

О ФРАКЦИОНИРОВАНИИ ИЗОТОПОВ УГЛЕРОДА ПРИ СИНТЕЗЕ АЛМАЗА ИЗ ГАЗА

*Д.В.Федосеев, Э.М.Галимов, В.Н.Варнин,
В.С.Прохоров, Б.В.Дерягин*

Синтез алмаза из газа осуществляется в области метастабильности алмаза и основан на ориентирующем действии поверхностных сил затравки на процессы нуклеации [1, 2]. При наращивании затравочных алмазных порошков (природного и синтетического алмаза) было установлено неизвестное ранее явление аномально большого фракционирования стабильных изотопов углерода.

Синтез осуществлялся из метана при температуре $1000 - 1050^{\circ}\text{C}$ и давлении $0,2 - 0,5 \text{ тор}$. Перед опытом метан очищался. В качестве подложки использовались алмазные порошки с размером до 1 мк . Наращивание производилось циклическим способом: по истечении определенного времени синтез прекращался и затравочный алмазный порошок очищался от наросшего неалмазного углерода, после чего цикл наращивания повторялся.

Изотопный состав углерода исследовался масс-спектроскопически. Весь углерод алмаза или графита переводился в окись углерода [3]. Погрешность, оцениваемая на уровне доверительной вероятности 0,95, составляла $\pm 0,05\%$. Погрешность по воспроизводимости была равна $\pm 0,02\%$. Результаты экспериментов обрабатывались по формуле:

$$\delta C^{13} = \left[\frac{(C^{13}/C^{12})_{\text{обр}}}{(C^{13}/C^{12})_{\text{ст}}} - 1 \right] 100\%.$$

Отношение C^{13}/C^{12} в стандарте равно $1123,72 \cdot 10^{-5}$. Величина δC^{13} для исходного метана равна $-4,62\%$. Контрольное исследование показало, что процесс предварительной очистки метана не вносит изменений в его изотопный состав.

Результаты экспериментов приведены в таблице, в первом столбце которой дан характер подложки, во втором – привес новой фазы. В третьем столбце приводятся полученные непосредственно на опыте величины δC^{13} , а в последнем даны величины $\delta_1 C^{13}$, рассчитанные для наращенной новой фазы.

Подложка	Привес, %	$\delta C^{13}, \%$	$\delta_1 C^{13}, \%$
Природный алмаз	–	–0,86	–
То же	60	–1,29	–1,73
Синтетический алмаз	–	–3,07	–
То же	48	–2,56	–1,40
Сажа	–	–2,31	–
То же	25	–3,17	–6,61

Если бы не происходило фракционирования изотопов углерода, то вновь образующаяся твердая фаза имела ту же величину δC^{13} , что и исходный метан, т.е. $-4,62\%$. В этом случае измеренная на опыте величина δC^{13} для подложки из синтетического алмаза, наращенной на 48% должна быть равна $-3,56\%$. В то же время для сажи, наращенной неалмазным углеродом на 25%, должно было быть получено $\delta C^{13} = -2,27\%$.

Из приведенных результатов следует сделать вывод, что при наращивании из газа имеет место фракционирование изотопов углерода, причем наращенный алмаз обогащается более тяжелым изотопом углерода, тогда как наращенный неалмазный углерод обогащается более легким изотопом по сравнению с исходным метаном. Специально поставленный опыт показал, что образующийся на алмазе неалмазный угле-

род имеет величину $\delta C^{13} = -6,6\%$, т.е. такую же, что и при наращивании на неалмазной подложке. Таким образом, при синтезе из газа эффекты фракционирования противоположны по знаку для алмаза и графита. Очевидно это связано с самим механизмом синтеза.

Институт физической химии
Академии наук СССР

Поступила в редакцию
3 июня 1971 г.

Литература

- [1] B.V.Derjaguin. *New Scientist*, **44**, 673, 1969.
 - [2] Б.В. Дерягин, Д.В. Федосеев. *Успехи химии*, **39**, 1661, 1970.
 - [3] Э.М. Галимов. *Геохимия стабильных изотопов углерода*. Изд. Недра, 1968.
-