

АКАДЕМИЯ НАУК СССР

Геохимия
ГЕОХИМИЯ

(ОТДЕЛЬНЫЙ ОТТИСК)

NOV 19 1973

3

МОСКВА · 1973

УДК 550.4

Geterogennye Izotopnye Effekty
 ГЕТЕРОГЕННЫЕ ИЗОТОПНЫЕ ЭФФЕКТЫ
 По Углероду При Синтезе Алмаза и Графита из Газа
 i Grafita iz Gaza

Э. М. ГАЛИМОВ, В. С. ПРОХОРОВ, Д. В. ФЕДОСЕЕВ, В. П. ВАРНИН
 E. M. Galimov, V. S. Prokhorov, D. V. Fedoseev, V. P. Varnin
 Московский институт нефтехимической и газовой промышленности, Москва

Обсуждается предполагаемый механизм и возможная роль в геологических процессах обнаруженного ранее [1] явления фракционирования изотопов углерода при физико-химическом синтезе алмаза и графита из метана. Предлагается модель процесса, основанная на представлении о различном характере проявления кинетического изотопного эффекта при различном соотношении скоростей ван-дер-ваальсовской и активированной адсорбции, которая позволяет объяснить, почему в проведенных экспериментах графитный углерод обогащается изотопом C^{12} , а алмазный — изотопом C^{13} по сравнению с углеродом исходного метана. Приводится ряд геологических примеров, в которых особенности изотопного состава природных графитов удовлетворительно объясняются проявлением рассматриваемого гетерогенного изотопного эффекта.

В совместном исследовании, проведенном лабораторией масс-спектрометрии МИНХ и ГП им. И. М. Губкина и лабораторией поверхностных явлений ИФХ АН СССР было обнаружено явление фракционирования изотопов при физико-химическом синтезе алмаза из газа [1].

Данная работа посвящена обсуждению предполагаемого механизма фракционирования изотопов и возможной роли подобных эффектов в геологических процессах. Сущность эксперимента состояла в следующем. Синтез алмаза осуществлялся из метана при температуре $1000-1050^\circ C$ и давлении метана $0,2-0,5$ тор по способу, описанному в работе [2].

Осаждение велось на алмазную подложку. Образование алмаза сопровождается синхронным образованием неалмазного углерода (графита или аморфного углерода), который периодически удалялся. Нарращивание алмаза осуществляется путем многократного повторения циклов синтеза и очистки. Если не производить очистки, наращивание алмаза прекращается и происходит только наращивание графитного углерода.

Изотопный анализ углерода осуществлялся на масс-спектрометре МИ-1305 с погрешностью по воспроизводимости, не превышающей $\pm 0,02\%$. Результаты сообщаются в величинах δC^{13} , отнесенных к стандарту РДВ. Результаты изотопного анализа углерода представлены в таблице.

Проводилось два опыта по наращиванию природных алмазов: в одном случае на 13, в другом — на 60% от веса исходного алмаза. Изотопный состав алмазной подложки в обоих случаях был практически одинаков: $\delta C^{13} = -0,87$ и $\delta C^{13} = 0,86\%$. Углерод метана, используемого в качестве исходного для синтеза, имел изотопный состав, характеризующийся величиной $\delta C^{13} = -4,62\%$. Контрольными измерениями было установлено, что процедура пропускания метана через ловушку с жидким азотом не вносит изменения в его изотопный состав.

Изотопный состав углерода наращенных алмазов, как и следовало ожидать, изменился: в первом случае до величины $\delta C^{13} = -1,02\%$, во втором — до $\delta C^{13} = -1,29\%$. Однако расчет показал, что изотопный состав