

Экспериментальные данные

По предложению В. В. Ковальского [19] в нашей лаборатории был проанализирован изотопный состав углерода серии предоставленных им окрашенных алмазов из Якутии (табл. 1)¹. Как видно из табл. 1, наряду с величинами, обычными для алмазов, зафиксированы значения δC^{13} , отличающиеся заметному обогащению алмазов изотопом C^{12} . Все четыре кристалла из месторождения Эбэлях обогащены легким изотопом (δC^{13} от $-2,14$ до $-2,22\%$). Среди алмазов из трубки «Мир», где ранее проанализированный бесцветный образец имел $\delta C^{13} = -0,54\%$ [9], нами в трех окрашенных образцах определен аналогичный изотопный состав ($\delta C^{13} = -0,50; -0,59$ и $-0,61\%$), но там же обнаружен алмаз, отличающийся аномально высокой концентрацией легкого изотопа ($\delta C^{13} = -3,23\%$).

Т а б л и ц а 1

Изотопный состав окрашенных разновидностей якутских алмазов

Месторождение	Окраска	Вес кристалла, мг	δC^{13} , %
Трубка «Мир»	Серая	82,5	-3,23
» »	»	66,7	-0,59
» »	»	57,0	-0,61
Трубка «Айхал»	Зеленовато-желтая	56,0	-0,66
» »	Желтовато-серая	55,0	-1,07
» »	Серая	76,0	-0,79
» »	»	48,0	-0,52
Месторождение Эбэлях	Темно-серая	135,8	-2,14
» »	Рыжевато-серая	56,0	-2,18
» »	»	48,5	-2,22
» »	»	33,0	-2,14

Таким образом, оказалось, что обогащенность алмазов изотопом C^{12} — достаточно распространенное явление. Характерно, что присуще оно, если исходить из до сих пор проанализированных образцов, именно окрашенным разновидностям.

На рис. 1 приведены в виде гистограммы опубликованные результаты анализа алмазов, заимствованные из работ Г. Крейга [20], Викмана [50], А. П. Виноградова с сотрудниками [9], О. И. Кропотовой [21], а также наши определения. Окрашенные разновидности, включая два образца карбонадо, определенные в работе [8], выделены зачернением.

Совершенно отчетливо проявляется следующая закономерность: в то время как бесцветным алмазам из различных месторождений свойственно удивительное единство изотопного состава, окрашенные разновидности характеризуются широким рядом значений δC^{13} : от $-0,5$ до $-3,2\%$. Все случаи особого обогащения алмазов легким изотопом C^{12} относятся к окрашенным кристаллам. При этом существенна не столько обогащенность

¹ Определения изотопного состава углерода проводились на масс-спектрометре МИ-1305 в режиме прецизионных измерений с двумя-тремя контрольными анализами. Вычисленная погрешность определения $\pm 0,02\%$. Подготовка проб осуществлялась на установке сжигания по методике, описанной ранее [11]. Величины δC^{13} отнесены к стандарту PDB и связаны с величиной C^{13}/C^{12} соотношением:

$$\delta C^{13} = \left(\frac{C^{13}/C^{12}}{1123,72 \cdot 10^{-5}} - 1 \right) \cdot 100\%.$$

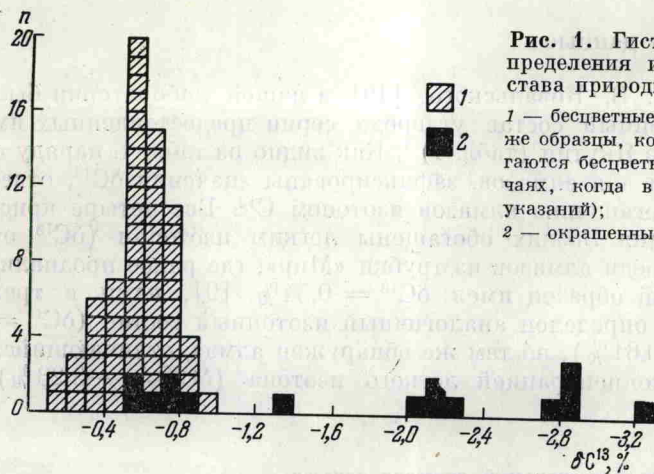


Рис. 1. Гистограмма распределения изотопного состава природных алмазов

1 — бесцветные алмазы, а также образцы, которые предполагаются бесцветными (в тех случаях, когда в описании нет указаний);
2 — окрашенные алмазы

цветных алмазов легким изотопом, сколько широкий диапазон вариаций их изотопного состава.

Очевидно, окрашенность алмазов и необычный изотопный состав их углерода находятся в определенной связи. Ниже мы попытаемся рассмотреть возможные ее причины.

Изотопные равновесия

Изотопный состав алмазов может служить индикатором исходного углерода. Однако прямые сопоставления опасны, так как в процессе кристаллизации возможно фракционирование изотопов, вследствие которого изотопный состав алмазов может оказаться отличным от изотопного состава углерода исходного вещества.

Термодинамические функции (β -факторы или отношение статсумм по состоянию), определяющие фракционирование изотопов в изотопно-обменных реакциях, для CO_3^{2-} , CO , CO_2 , и $\text{C}_{\text{алм}}$ были вычислены Юри [49], а для CH_4 — Г. Крейгом [20]. В последнее время появилась возможность более подробного термодинамического анализа углеродсодержащих систем. Недавно Боттинга [31] вычислил отношение статсумм для изотопных форм графита, а в нашей лаборатории А. А. Ивлевым решена задача определения β -факторов для многоатомных молекул углеводородов CH_4 , C_2H_6 , C_3H_8 , C_5H_{12} , а также бензола и толуола.

Таким образом, теперь известны термодинамические изотопные эффекты и зависимости коэффициентов разделения α от температуры для большинства соединений углерода, которые могут быть причастны к образованию природных алмазов. Поэтому возникает принципиальная возможность установить термодинамически разрешенные температурные пределы образования алмазов из различных веществ или, наоборот, задавая температурой, оценить круг природных объектов, способных быть источником углерода алмазов.

Кривые зависимости от температуры коэффициентов разделения изотопов между углеродом алмазов и углеродом соответствующего соединения приведены на рис. 2. По оси ординат отложена величина $(\alpha - 1) \cdot 10^2$; параллельно оси проведена вертикальная шкала величин δC^{13} и указаны характерные пределы естественной распространенности изотопов в основных классах углеродсодержащих соединений. Так как $\delta_1 - \delta_2 = (\alpha - 1) \cdot 10^2$, обе шкалы отвечают одинаковому масштабу изменения изотопного состава. Шкалы совмещены таким образом, чтобы величина $\alpha = 1,000$, т. е. линия $\text{C}_{\text{алм}}$ на графике кривых фракционирования, отвечала среднему изотопному составу основной группы кристаллов алмаза ($\delta \text{C}^{13} = -0,6\%$) на графике природной распространенности.