

УДК 546.798.24:546.73:546.72:546.261

УГЛЕРОДНЫЙ ФАКТОР В СОЕДИНЕНИЯХ КЮРИЯ С КОБАЛЬТОМ, ЖЕЛЕЗОМ. КАРБИДЫ КЮРИЯ

© 2019 г. **В. М. Радченко**¹, М. А. Рябинин¹, Т. А. Чернакова^{1,*}

¹ Научно-исследовательский институт атомных реакторов”,
Дмитровград, 433510, Россия
*e-mail: taticher@mail.ru

Поступила в редакцию 25.09.2019 г.

После доработки 07.10.2019 г.

Принята к публикации 15.10.2019 г.

Представлены результаты синтеза и рентгенографического исследования микрообразцов соединений юрия-244 с кобальтом, железом, углеродом, полученных методом высокотемпературной конденсации паров металлического юрия на соответствующие подложки. Изучено влияние углерода в системах Sm-Co и Sm-Fe . В системе юрий-углерод обнаружены и рассчитаны параметры кристаллических структур карбидов юрия Sm_2C_3 и Sm_3C , изоструктурные карбидам Am_2C_3 и Sm_3C . Установлено отсутствие взаимной растворимости компонентов систем при комнатной температуре. Показано влияние высокой альфа-активности нуклида ^{244}Sm на кристаллические структуры полученных соединений.

Ключевые слова: юрий-244, высокотемпературная конденсация паров, карбиды, кристаллическая структура

DOI: 10.1134/S2304487X19060117

ВВЕДЕНИЕ

Исследования металлического состояния трансплутониевых элементов (ТПЭ), а также сплавов на основе ТПЭ, относятся к разряду уникальных не только в России, но и во всем мире. Получение экспериментального материала, с одной стороны очень затруднено вследствие малой доступности и высокой радиоактивности ТПЭ, а с другой стороны исключительно ценно для развития теоретических представлений об особенностях строения 4f (лантанидных) и 5f (актинидных) элементов и в целом о Периодической системе элементов Д.И. Менделеева. Теоретически и практически важным во всех случаях является влияние высокой активности нуклидов на физические, химические и технологические свойства материалов и изделий на основе этих нуклидов.

В АО “ГНЦ НИИАР” многие годы проводят исследования по изучению способов получения, структур, важнейших химических и физико-химических свойств известных соединений ТПЭ, от нептуния до эйнштейния. Специалистами института опубликовано более 300 научных трудов по результатам работ, внесен значительный вклад в исследование фундаментальных свойств ТПЭ. В частности, в работе [1] авторы обобщили и систематизировали сведения о методах получения, ос-

новных свойствах и практическом применении металлов и сплавов ТПЭ. Однако данная монография не раскрывает информацию по получению и исследованию интерметаллических соединений юрия-244 с такими элементами Периодической системы, как кобальт, железо и углерод. Описание получения подобных микрообразцов и результаты их исследований в литературных источниках практически отсутствуют. Именно эти вопросы отражены в настоящей работе.

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Для получения образцов юрия-244 выбран способ, ставший уже традиционным для получения интерметаллических соединений ТПЭ в АО “ГНЦ НИИАР”, а именно металлотермическое восстановление оксида юрия торием с последующей конденсацией паров металла на соответствующие подложки. В исследовании сплавообразования юрия с углеродом подложки для конденсации его паров представляли собой плоскопараллельные пластины из иридия с предварительно нанесенным на них слоем аморфного углерода толщиной ~ 1 мкм.

Установка и способ получения интерметаллидов и сплавов ТПЭ разработаны в ГНЦ НИИАР

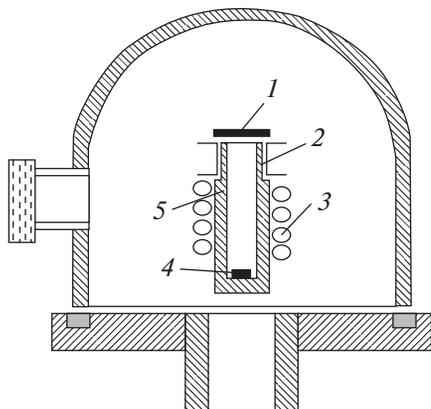


Рис. 1. Схема установки для получения металлического кюрия и его сплавов: 1 – подложка; 2 – тепловой экран; 3 – высокочастотный индуктор; 4 – смесь $\text{SmO}_2 + \text{Th}$ или испаряемый металл; 5 – тигель.

на подложках, не обладающих каталитической способностью в водороде [2, 3]. Центральная часть установки представлена на рис. 1. Процесс состоит из двух стадий: 1 – восстановление оксида, 2 – вакуумная перегонка полученного металла. Обе стадии проводят не только в высоком вакууме, но и при высокой температуре (вплоть до 2000°C), что обеспечивает достаточную скорость испарения трансплутониевого металла. Аппараты, в которых происходит процесс, изготавливают в основном из тантала, сочетающего в себе высокую жаропрочность, химическую инертность и очень низкую упругость паров с удовлетворительными технологическими свойствами.

Идентификацию новых соединений ТПЭ проводили рентгеновским дифрактометрическим методом, который позволяет: проводить структурный анализ исследуемого материала (определять координаты атомов в элементарной ячейке); определять параметры элементарной ячейки исследуемого вещества; определять состояния твердого тела (кристаллическое, аморфное, аморфное с кристаллическими включениями); исследовать фазовый состав вещества (качественный и количественный анализы).

Рентгенографическую идентификацию фаз выполняли с использованием “Рентгенометрической картотеки”, издаваемой Объединенным комитетом по порошковым дифракционным стандартам [4].

Кристаллографические данные сравнивали с соответствующими данными по аналогичным лантанидным и первым актинидным соединениям: подобие структуры, “хорошее” соответствие параметров решетки обычно служат доказательством получения нового соединения. Кристаллическая структура новых соединений ТПЭ часто является их единственной характеристикой, тем

не менее, она позволяет рассчитать по параметрам решетки объем элементарной ячейки, плотность, межатомные расстояния, определить тип связи, а также выявить закономерности изменения этих свойств вдоль актинидного ряда.

Содержание кюрия в образцах определяли альфа, гамма-спектрометрическими методами сравнением с эталонами.

РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

“Углеродный фактор” в системе кюрий–кобальт

Первые микрообразцы системы Sm-Co получены методом высокотемпературной вакуумной конденсации паров металлического кюрия-244 на плоские подложки кобальта получены. Исходный препарат кюрия содержал $\sim 93\%$ нуклида Sm-244 и менее 0.4% катионных примесей. Подложки для конденсации паров представляли собой полированные пластины из металлического кобальта (содержание кобальта не менее 99.98%). Содержание кюрия в образце 1 составило 0.079 мг, в образце 2 – 1.843 мг [5].

Идентификацию интерметаллических соединений системы Sm-Co проводили порефлексным сравнением исходных рентгенограмм с рентгенограммами образцов системы Sm-Ni [6]. На рентгенограммах образцов Sm-Ni присутствовали многочисленные интенсивные рефлексы интерметаллидов $\text{Sm}_2\text{Ni}_{17}$ (до 72 рефлексов) и SmNi_5 (до 30 рефлексов), что помогло выявлению рефлексов интерметаллических соединений $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ и SmCo_5 . Результаты расчетов параметров некоторых кристаллических решеток фаз, обнаруженных при исследовании образца 1, приведены в табл. 1.

Однако на исходной рентгенограмме образца 1, снятой через 4 ч после его получения, кроме решеток интерметаллических соединений присутствовали рефлексы, которые отнесли к следующим фазам: α - и β - Co ; $\text{V-Co}_2\text{O}_3$; карбид кюрия Sm_2C_3 , идентифицированной по аналогии с Th_2C_3 [4] и две кубических решетки типа шпинели (пространственная группа $Fd3m$), приписанных оксиду Co_3O_4 ; моноклинной решетки ThC_2 .

Рентгенограмму образца 2, записали через 4 ч после получения образца системы Sm-Co . На данной рентгенограмме идентифицированы решетки: α - Co ; ГЦК β - Co ; моноклинной решетки $\text{V-Co}_2\text{O}_3$; ГЦК решетке ThO_2 ; двум гексагональным решеткам, интерпретированным как решетки интерметаллидов $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ и SmCo_5 , а также кубической решетке с пространственной группой $Fd3m$, интерпретированной, по аналогии с решеткой GdCo_2 [4], как решетка интерметаллида SmCo_2 (фаза Лавеса), наличие углерода в системе

Таблица 1. Расчетные ПКР интерметаллидов и карбидов, обнаруженных на рентгенограммах образца 1 системы Cm–Co (0.079 мг ²⁴⁴Cm)

| Фаза | Решетка | τ , ч | n | Параметры решетки | | | | | F |
|----------------------------------|----------------------|------------|-----|-------------------|----------|----------|----------------|----------------------|-----|
| | | | | a , Å | b , Å | c , Å | β , град | V , Å ³ | |
| Cm ₂ Co ₁₇ | Гекс ($P6_3/mcm$) | 4 | 8 | 8.353(8) | | 8.067(6) | | 487(1) | 2.3 |
| CmCo ₅ | Гекс ($P6/mmm$) | 4 | 6 | 4.917(3) | | 4.057(2) | | 84.9(2) | 3.7 |
| Cm ₂ C ₃ | Куб ($I\bar{4}3d$) | 4 | 4 | 8.323(6) | | | | | 4.4 |
| | | 24 | 1 | 8.34(1)* | | | | | – |
| ThC ₂ | Мнкл ($C2/c$) | 4 | 15 | 6.541(4) | 4.259(3) | 6.584(4) | 103.96(3) | 178.0(4) | 2.7 |

Примечания (здесь и далее). В столбце “Решетка” в скобках указана пространственная группа кристаллической решетки. В скобках после значений параметров решетки приведены ошибки определения последнего знака. n – Число рефлексов в расчетном наборе. F – критерий адекватности: чем меньше F , тем лучше расчетная модель соответствует экспериментальному набору рефлексов $2\theta_{\text{эсп}}$. * По рефлексу (211).

Таблица 2. Расчетные ПКР отдельных фаз, обнаруженных на рентгенограммах образца 2 системы Cm–Co (1.843 мг ²⁴⁴Cm)

| Фаза | Тип решетки | τ , сут | n | Параметры решетки | | | | | F |
|----------------------------------|----------------------|--------------|-----|-------------------|----------|----------|----------------|----------------------|------|
| | | | | a , Å | b , Å | c , Å | β , град | V , Å ³ | |
| Cm ₂ Co ₁₇ | Гекс ($P6_3/mcm$) | 0.16 | 8 | 8.378(7) | | 8.070(5) | | 491(1) | 2.1 |
| CmCo ₅ | Гекс ($P6/mmm$) | 0.16 | 6 | 4.88(1) | | 4.08(4) | | 84(1) | 20 |
| CmCo ₂ | Куб ($Fd\bar{3}m$) | 0.16 | 6 | 7.242(2) | | | | 379.8(3) | 13.2 |
| | | 0.16 | 10 | 6.523(3) | 4.185(1) | 6.603(3) | 104.55(2) | 174.5(2) | 0.3 |
| ThC ₂ | Мнкл ($C2/c$) | 5 | 7 | 6.54(1) | 4.215(4) | 6.62(7) | 104.6(1) | 177(1) | 3.8 |
| | | 7 | 5 | 6.52(7) | 4.202(9) | 6.62(2) | 104.9(3) | 175(4) | 3.7 |

обозначилось в моноклинной решетке ThC₂ (см. табл. 2).

Казалось бы, присутствие оксидов и оксикарбидов на рентгенограммах интерметаллических соединений ТПЭ было замечено и на более ранних исследованиях, но наличие карбида юрия идентифицировано впервые в образце Cm–Co с содержанием 0.079 мг юрия в образце. Причем во втором образце с большим содержанием юрия данная находка не подтвердилась, юрий полностью прореагировал с кобальтом, это новое интерметаллическое соединение CmCo₂ (фаза Лавеса) интерпретированное, по аналогии с решеткой GdCo₂ [4].

Полученный результат впервые заставил задуматься о возможности целенаправленного исследования юрия с углеродом, с целью облегчения при дальнейшей работе исследования взаимодействия юрия-244 с другими элементами Периодической системы, но интерес в пользу изучения

интерметаллических соединений юрия существенно перевешивал.

“Углеродный фактор” в системе юрий–железо

Присутствие углерода замечено и в интерметаллической системе Cm–Fe [7]. “Углеродный фактор” проявился в следующем:

- тетрагонализация решетки α -Fe (подложки);
- появление карбида ThC₂ на подложке;
- увеличенный параметр ThO₂ (5.642 Å по сравнению с 5.600 Å для чистого ThO₂) – фактически это соединение имеет состав Th(O, C)₂;
- увеличенный атомный объем ДГПУ решетки α -Cm в результате внедрения в нее атомов углерода;

– увеличенный параметр CmO на исходной рентгенограмме образца и отсутствие некоторых рефлексов ГЦК решетки CmO на последующих рентгенограммах: не исключено что фактически мы видим отдельные рефлексы некубической решетки соединения CmOC (в банке данных име-

Таблица 3. Параметры решеток фаз на рентгенограмме 1 образца 2 ($\tau = 1$ сут)

| Фаза | Решетка | τ , сут | n^1 | Параметры решетки | | | | | F^3 |
|----------------------------------|---------|--------------|-------|------------------------|----------|-----------|-------------|----------------------|-------|
| | | | | a , Å | b , Å | c , Å | β , Å | V , Å ³ | |
| SmFe ₂ | куб. | 1 | 8 | 7.213(2) | | | | | 13.0 |
| | | 2 | 5 | 7.240(3) | | | | | 19.6 |
| | | 3 | 5 | 7.231(7) | | | | | 5.5 |
| Sm ₂ Fe ₁₇ | гекс. | 1 | 12 | 8.406(3) | | 8.122(2) | | 497.0(5) | 1.6 |
| | | 2 | 9 | 8.377(5) | | 8.081(6) | | 491(1) | 1.9 |
| | | 3 | 9 | 8.401(8) | | 8.12(1) | | 496(2) | 6.2 |
| Fe(C) | тетр. | 1 | 6 | 2.8635(5) ² | | 2.9083(6) | | 23.85(1) | 0.93 |
| | | 2 | 5 | 2.858(1) | | 2.889(3) | | 23.60(4) | 3.8 |
| | | 3 | 5 | 2.860(1) | | 2.874(9) | | 23.51(9) | 7.3 |
| α -Fe | ОЦК | 3 | 4 | 2.861(1) | | | | 23.42(3) | 5.2 |
| | | 4 | 3 | 2.862(2) | | | | | – |
| ThC ₂ | мнкл. | 1 | 11 | 6.59(1) | 4.245(2) | 6.74(2) | 102.77(7) | 184(1) | 3.4 |
| | | 2 | 9 | 6.74(1) | 4.230(3) | 6.74(1) | 103.2(1) | 187.1(8) | 2.6 |
| | | 3 | 9 | 6.72(1) | 4.244(5) | 6.72(1) | 103.3(2) | 186.5(9) | 5.6 |
| | | 4 | 9 | 6.68(1) | 4.245(4) | 6.68(1) | 101.9(1) | 186(1) | 3.5 |

ются сведения о возможном аналоге – соединении CeOC с моноклинной (при $T < 1333$ К) и тетрагональной (при $T > 1333$ К) решеткой).

Образец получали методом высокотемпературной вакуумной конденсации паров металлического кюрия-244 на плоскую подложку в виде фольги из железа “Армко”. Исходный препарат кюрия содержал ~93% нуклида Sm–244 и менее 0.4% катионных примесей. Конденсацию кюрия на нее проводили при постепенном увеличении температуры испарения до ~2050°C. Установлено, что образец содержал 917 мкг кюрия [7].

На исходных рентгенограммах образца, записанных через 1 и 2 сут, зафиксировано – 50 и 34 рефлекса соответственно. С помощью компьютерного банка данных [4] идентифицированы кристаллические решетки, расчетные параметры которых представлены в табл. 3.

Практически все фазы, кристаллические решетки которых выявлены на исходной рентгенограмме образца Sm–Fe, являются неравновесными: они были получены при кратковременном высокотемпературном взаимодействии атомов Sm, Th, O и C с твердым кристаллическим Fe, за которым последовало быстрое охлаждение (закалка) образца. Последующее облучение (рентгенографируемой) поверхности образца α -частицами и ядрами отдачи при интенсивном альфа-распаде ²⁴⁴Sm привело к своеобразному радиационному отжигу неравновесных фаз, их переходу в более равновесное состояние. Рентгенографически это за 4 сут выдержки проявилось следующим образом:

1. Распадался твердый раствор углерода в α -Fe, что проявлялось исчезновением “расщепления” рефлексов и уменьшением атомного объема решетки α -Fe.

2. Углерод уходил из ГЦК решетки Th(O, C)₂, что проявилось уменьшением ПКР соединения от $a = 5.642$ Å ($\tau = 1$ сут) до $a = 5.629$ Å ($\tau = 4$ сут), т.е. приближением ПКР к значению $a = 5.600$ Å, соответствующему чистому ThO₂.

3. В моноклинной решетке ThC₂ наблюдали сближение ПКР “ a ” и “ c ” с одновременным уменьшением объема ячейки (см. табл. 3); это может означать преобразование моноклинной решетки соединения в более равновесную (тетрагональную или гексагональную) модификацию.

4. Для гексагональной решетки интерметаллида Sm₂Fe₁₇ в интервале 1–2 сут наблюдали уменьшение обоих ПКР; в интервале 2–3 сут – обратный процесс (см. табл. 3), а после 4 сут выдержки уже произошла рентгеноаморфизация решетки.

5. ПКР интерметаллида SmFe₂ изменялся следующим образом: $a = 7.213(2)$ Å ($\tau = 1$ сут) → $7.240(3)$ Å ($\tau = 2$ сут) → $7.231(7)$ Å ($\tau = 3$ сут) → аморфизация ($\tau = 4$ сут выдержки).

В целом, фазы, в состав которых не входил ²⁴⁴Sm, переходили в более равновесное состояние, а кристаллические решетки фаз, сдержавших ²⁴⁴Sm, частично или полностью рентгеноаморфизировались.

Наличие “углеродного фактора” при приготовлении образцов систем Sm–Co и Sm–Fe объясняли возможным присутствием углерода, как в

Таблица 4. Расчетные ПКР карбидов юрия, обнаруженных на рентгенограммах образцов системы Cm–C

| Фаза | Решетка | τ , ч | n | Параметры решетки | | F |
|--------------------------------|----------------------|------------|-----|-------------------|----------------------|------|
| | | | | a , Å | V , Å ³ | |
| Образец 1 | | | | | | |
| Cm ₂ C ₃ | Куб ($I\bar{4}3d$) | 20 | 19 | 8.3904(5) | 590.7(1) | 0.9 |
| | | 44 | 22 | 8.4177(4) | 596.5(1) | 0.4 |
| | | 68 | 16 | 8.4351(5) | 600.2(1) | 0.5 |
| | | 92 | 10 | 8.450(2) | 603.4(4) | 2.5 |
| | | 308 | 2 | 8.437(2) | 600.6(4) | – |
| Cm ₃ C | ГЦК | 20 | 6 | 5.172(2) | 138.3(2) | 0.6 |
| | | 44 | 5 | 5.21102(1) | 141.504(1) | 0.5 |
| | | 68 | 4 | 5.210(2) | 141.4(2) | 14.5 |
| | | 92 | – | – | – | – |
| Образец 2 | | | | | | |
| Cm ₂ C ₃ | Куб ($I\bar{4}3d$) | 24 | 5 | 8.391(3) | 590.8(6) | 1.0 |
| | | 48 | 6 | 8.408(6) | 594.4(1.3) | 1.7 |
| | | 72 | 5 | 8.41(1) | 594.8(2.1) | 5.1 |

самом тигле, так и в атмосфере остаточных газов (в виде летучих соединений). Отсутствие информации в литературных источниках о карбидах юрия и желание получения достоверной информации о поведении углерода в процессе приготовления образцов с содержанием юрия-244, привели к необходимости целенаправленного исследования взаимодействия юрия-244 с углеродом.

Карбиды юрия

Из литературных данных [8] известно три типа бинарных соединений трансурановых элементов (Np и Pu) с углеродом: моно-, полоторные и дикарбиды. Для Pu дополнительно идентифицирован также карбид состава Pu₃C₂ [9]. Для Am получен только полоторный карбид [10]. По соединениям Cm с углеродом никаких данных нет.

Исходный препарат юрия содержал ~93% нуклида ²⁴⁴Cm и менее 0.4% катионных примесей. Подложки для конденсации его паров представляли собой плоскопараллельные пластины из иридия с предварительно нанесенным на них слоем аморфного углерода толщиной ~1 мкм. Как и ожидалось, углерод прореагировал только с юрием и не прореагировал с иридием, который имеет весьма высокую температуру плавления и не образует карбидов.

Было получено два образца. Образец 1 получали при более высокой температуре испарения юрия. Содержание юрия в нем составило 790 мкг. Образец 2 содержал 150 мкг юрия.

На поверхности образца 1 зафиксированы интенсивные рефлексы кубической решетки про-

странственной группы $I\bar{4}3d$ с параметром $a = 8.3904(5)$ Å и рефлексы ГЦК решетки с параметром $a = 5.172(2)$ Å (время выдержки образца 20 ч), а на поверхности образца 2 – рефлексы кубической решетки пространственной группы $I\bar{4}3d$ с параметром $a = 8.391(3)$ Å (время выдержки образца 24 ч). Кроме того, на обеих исходных рентгенограммах присутствовали интенсивные рефлексы ГЦК решетки иридия, а также относительно слабые рефлексы моноклинной решетки Cm₂O₃ и рефлексы ГЦК решетки ThO₂.

Результаты расчета параметров кристаллических решеток карбидов юрия, обнаруженных при исследовании образцов Cm–C, представлены в табл. 4.

Необходимо отметить, что кубическая решетка с пространственной группой $I\bar{4}3d$ и с параметром $a = 8.323(6)$ Å была обнаружена при исследовании системы Cm–Co на рентгенограмме одного из образцов. Уже тогда ее предположительно приписали решетке Cm₂C₃, образовавшейся в результате взаимодействия металлического юрия с углеродосодержащими соединениями в вакуумной системе.

Идентификацию предполагаемых карбидов юрия проводили методом сравнения наборов межплоскостных расстояний и интенсивностей рефлексов известных соединений лантанидов и актинидов с данными, полученными на рентгенограмме исследуемого образца, при этом учитывавшая разницу металлических радиусов лантанидов и америция.

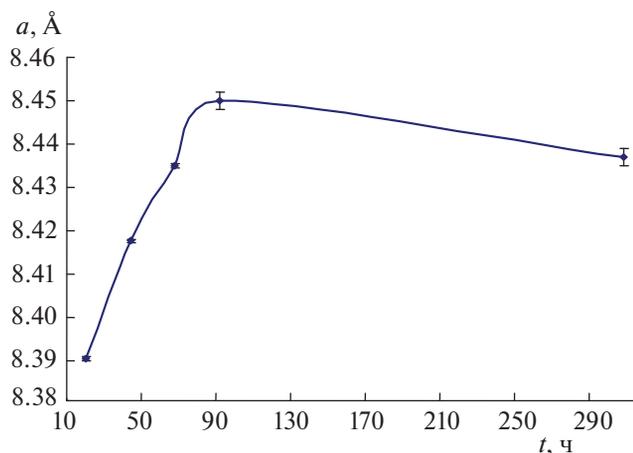


Рис. 2. Изменение параметра решетки карбида Sm_2C_3 при выдержке образца 1.

Влияние интенсивного альфа-распада ^{244}Sm на кристаллические структуры Sm_2C_3 и Sm_3C при комнатной температуре можно проследить по результатам обработки пяти последовательно снятых рентгенограмм образца 1. Как и для других интерметаллических соединений ^{244}Sm , это влияние проявляется увеличением параметров решетки с одновременным ослаблением их интенсивности и последующим полным исчезновением, т.е. распуханием и последующей рентгеноаморфизацией решетки. Полной аморфизации кристаллической решетки Sm_2C_3 не произошло и через 13 сут выдержки, хотя на последней рентгенограмме осталось только два наиболее интенсивных рефлекса этой решетки. Зависимость изменения параметра решетки Sm_2C_3 от времени самооблучения приведена на рис. 2. Регистрируемое распухание решетки за первые 92 ч выдержки составило $\approx 2.4\%$. Аморфизация решетки карбида Sm_3C произошла значительно быстрее, чем у Sm_2C_3 , – в интервале от 68 ч до 92 ч выдержки, а регистрируемое распухание решетки составило 2.1–2.4% за первые 68 ч выдержки образца (рис. 3). Непосредственно перед аморфизацией параметр решетки обоих карбидов явно уменьшается (см. рис. 2, 3).

Количество кюрия в образце 1 оказалось достаточным для образования как карбида Sm_2C_3 (атомная доля кюрия 40%), так и карбида Sm_3C (атомная доля кюрия 75%). Содержание кюрия в образце 2 оказалось существенно меньше, и он весь прореагировал с углеродом с образованием только соединения Sm_2C_3 (на карбид Sm_3C кюрия не хватило).

Если бы в системе $\text{Sm}-\text{C}$ существовал карбид SmC или карбид SmC_2 , то рефлексы одного из

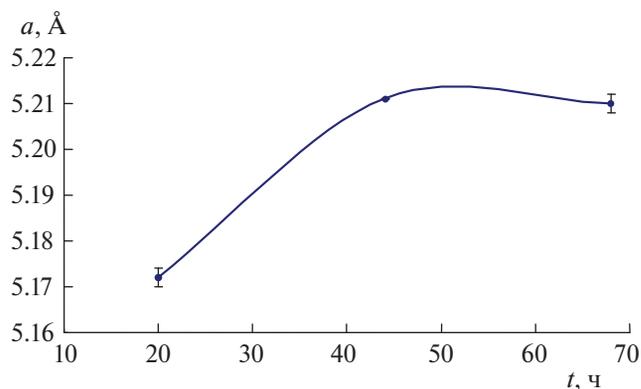


Рис. 3. Изменение параметра решетки карбида Sm_3C при выдержке образца 1.

этих соединений обязательно присутствовали бы на рентгенограмме образца 2. Никаких “посторонних” рефлексов на рентгенограммах обоих полученных образцов не обнаружено. Это может означать, что других карбидов, кроме двух идентифицированных в настоящей работе, в системе $\text{Sm}-\text{C}$ не существует.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Методом высокотемпературной вакуумной конденсацией паров металлического кюрия-244 на подложке из иридия с предварительно нанесенным на их поверхность слоем аморфного углерода (толщиной 1 мкм) получены первые образцы, предназначенные для исследования системы $\text{Sm}-\text{C}$. Образец 1 содержал 790 мкг кюрия, образец 2–150 мкг. Рентгенодифрактометрическим методом идентифицированы **новые, ранее не известные** соединения в системе кюрий–углерод: Sm_2C_3 кубическая решетка (пространственная группа $I\bar{4}3d$), Sm_3C кубическая решетка (пространственная группа $Fm\bar{3}m$).

Изучено влияние альфа-распада кюрия-244 на полученные кристаллические структуры соединений кюрия с углеродом. Показано, что под действием интенсивного альфа-распада ^{244}Sm решетки обоих карбидов распухают, а затем полностью рентгеноаморфизируются. Регистрируемое распухание решетки Sm_2C_3 составило 2.4% за 92 ч выдержки, а распухание решетки Sm_3C – 2.1–2.4% за 68 ч. Обнаружено также небольшое распухание ГЦК решетки иридия под действием альфа-частиц ^{244}Sm , находящегося на его поверхности.

По результатам общего анализа предположено, что в системе $\text{Sm}-\text{C}$ существуют только

два карбида, которые и обнаружены в настоящей работе.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Радченко В.М., Рябинин М.А., Топоров Ю.Г. Металловедение трансплутониевых металлов. Димитровград: ОАО “ГНЦ НИИАР”, 2009. 200 с.
2. Радченко В.М., Селезнев А.Г., Рябинин М.А. и др. Синтез и изучение бинарных соединений актиноидов и лантаноидов. XVII. Исследование сплавов ^{244}Cm с платиной, иридием и родием, полученных конденсацией паров металлического кюрия // Радиохимия, 1994. Т. 36. Вып. 4. С. 229–303.
3. Пат. 2030804 Российская Федерация. Способ изготовления активной части радионуклидного источника / В.М. Радченко, А.Г. Селезнев, М.А. Рябинин и др. // Бюллетень изобретений. 1995. № 7.
4. X-ray Diffraction Data Cards Joint Committee on Powder Diffraction Standards. Amer. Soc. for Testing Materials (ASTM). Philadelphia, 1999 и др. годы.
5. Радченко В.М., Селезнев А.Г., Дрозник Р.Р. и др. Синтез и изучение бинарных соединений актиноидов и лантаноидов. XXIV. Сплавы кюрия с кобальтом // Радиохимия, 2004. Т. 46. Вып. 1. С. 3–6.
6. Радченко В.М., Селезнев А.Г., Рябинин М.А. и др. Синтез и изучение бинарных соединений актиноидов и лантаноидов. XX. Интерметаллиды кюрия с никелем // Радиохимия, 1995. Т. 37. Вып. 4. С. 317–321.
7. Радченко В.М., Рябинин М.А., Селезнев А.Г. и др. Синтез и изучение бинарных соединений актиноидов и лантаноидов. XXVI. Сплавы Cm с Fe // Радиохимия, 2004. Т. 46. Вып. 5. С. 385–388.
8. Мифодьева М.П., Крот Н.Н. Соединения трансуранных элементов. М.: Наука, 1987. 302 с.
9. Лычев А.А., Маширов Л.Г., Смолин Ю.И. и др. // Радиохимия. 1980. Т. 22. № 1. С. 43–48.
10. Зубарев В.Г., Крот Н.Н. // Радиохимия. 1983. Т. 25. № 5. С. 631–638.

Vestnik Natsional'nogo issledovatel'skogo yadernogo universiteta “MIFI”, 2019, vol. 8, no. 6, pp. 507–514

Carbon Factor in Compounds of Curium with Cobalt, Iron. Curium Carbides

V. M. Radchenko^{a,†}, M. A. Ryabinin^a, and T. A. Chernakova^{a,#}

^a JSC “SSC – Research Institute of Atomic Reactors”, Dimitrovgrad, 433510 Russia

[#]e-mail: taticher@mail.ru

Received September 25, 2019; revised October 7, 2019; accepted October 15, 2019

Abstract—This paper presents the results of production and radiographic examination of micro-samples of curium-244 compounds with iron, cobalt and carbon, prepared by high temperature condensation of metal curium vapor onto corresponding substrates. The effect of carbon in the Cm–Co and Cm–Fe systems was studied. In the Cm–C system carbides Cm_2C_3 and Cm_3C with a cubic lattice were detected, which were isostructural with regard to carbides Am_2C_3 and Sm_3C . The absence of mutual solubility of system components at room temperature was established. The effect of high alpha-activity of ^{244}Cm nuclide on the crystal structure of the compounds obtained was demonstrated.

Keywords: curium-244, high temperature condensation of metal, carbides, the crystal structure

DOI: 10.1134/S2304487X19060117

REFERENCES

1. Radchenko V.M., Ryabinin M.A., Toporov Yu.G. *Metallovedenie transplutoniyevykh metallov* [Metallurgy of transplutonium metals]. Dimitrovgrad: JSC “SSC RIAR”, 2009, 200 p.
2. Radchenko V.M., Seleznev A.G., Ryabinin M.A. et al. Synthesis and study of binary compounds of actinides and lanthanides. XVII. A study of ^{244}Cm alloys with platinum, iridium, and rhodium obtained by prepared by condensation of curium metal vapors. *Radiokhimiya*, 1994, vol. 36, no. 4. pp. 229–303.
3. Radchenko V.M., Seleznev A.G., Ryabinin M.A. et al. A method of manufacturing the active part of a radio-nuclide source. Patent RF no. 2030804, *Bull. Izobret.*, 1995, no. 7.
4. X-ray Diffraction Data Cards Joint Committee on Powder Diffraction Standards. Amer. Soc. for Testing Materials (ASTM). Philadelphia, 1999 e.a.

5. Radchenko V.M., Seleznev A.G., Droznic R.R. et al. Synthesis and study of binary compounds of actinides and lanthanides. XXIV. Alloys of Cm with Co. *Radiokhimiya*, 2004, vol. 46, no. 1. pp. 3–6.
6. Radchenko V.M., Seleznev A.G., Ryabinin M.A. et al. Synthesis and study of binary compounds of actinides and lanthanides. XX. Curium alloys with Nickel. *Radiokhimiya*, 1995, vol. 37, no. 4. pp. 317–321.
7. Radchenko V.M., Ryabinin M.A., Seleznev A.G., Gorbunov S.I., Chernakova T.A., Nagaitsev V.G. Synthesis and study of binary compounds of actinides and lanthanides: XXVI. Alloys of Cm with Fe. *Radiokhimiya*, 2004, vol. 46, no. 5. pp. 417–420.
8. Mefod'eva M.P., Krot N.N. *Soedineniya transuranovykh elementov* [Compounds of transuranic elements]. Moscow: Nauka, 1987, 330 p.
9. Lychev A.A., Mashirov L.G., Smolin Yu.I., et al. *Radiokhimiya*, 1980, vol. 22, no 1, pp. 43–48.
10. Zubarev V.G., Krot N.N. *Radiokhimiya*, 1983, vol. 25, no. 5, pp. 631–638.