

СПЛАВООБРАЗОВАНИЕ РУТЕНИЯ С КЮРИЕМ И ТЕХНЕЦИЕМ

© 2012 Е.М. Пичужкина^{1,2}, К.В. Ротманов², В.М. Радченко², С.В. Томилин²¹ Ульяновский государственный университет² ОАО «ГНЦ НИИ атомных реакторов», г. Димитровград

Поступила в редакцию 20.11.2012

Представлены результаты рентгенографического исследования сплавов платиноида рутения с кюрием-244 и технецием.

Ключевые слова: кюрий, металлический технеций, рутений, рентгеновский дифрактометрический анализ, сплав, кристаллическая структура, параметры кристаллической решетки (ПКР).

1. ВВЕДЕНИЕ

Исследование системы *Ru-Cm* является продолжением изучения сплавообразования кюрия с элементами группы платиновых металлов. Ранее были получены интерметаллиды *Cm* с *Pt, Ir, Rh* [1].

Исследование сплавообразования рутения с технецием проводится в рамках работ по изучению трансмутации технеция. Этот процесс с приемлемой скоростью может быть реализован в высокопоточном реакторе СМ-3 (Димитровград, Россия). Для последующего выделения рутения из облученных образцов необходимы сведения о фазовых соотношениях в системе технеций-рутений в условиях облучения. В настоящей работе с использованием метода рентгеновской дифрактометрии изучены образцы металлического технеция, а также образцы технеция, облученные в реакторе до накопления 19, 45, 70% рутения.

2. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Образец сплава Ru с ²⁴⁴Cm был получен методом торий-термического восстановления оксида кюрия с одновременной конденсацией паров металлического кюрия на плоскую подложку из рутения. Содержание кюрия в образце определяли по количеству испускаемых нейтронов спонтанного деления ²⁴⁴Cm методом сравнения с эталоном. Было установлено, что образец содержит примерно 365 мкг кюрия.

Сплавы Ru с Tc были получены в результате

Пичужкина Елена Михайловна, аспирант УлГУ, научный сотрудник ОАО «ГНЦ НИИАР». E-mail: elena810@mail.ru. Ротманов Константин Владиславович, кандидат химических наук, старший научный сотрудник. E-mail: nanolabniti@gmail.com

Радченко Вячеслав Михайлович, доктор химических наук, начальник лаборатории.

Томилин Сергей Васильевич, кандидат химических наук, ведущий научный сотрудник. E-mail: nanolabniti@gmail.com

облучения металлического технеция в реакторе СМ. По данным спектрофотометрического и эмиссионного спектрального анализа содержание рутения в исследуемых образцах составляло 19, 45 и 70 %.

Образцы исследовали рентгеновским дифрактометрическим методом при комнатной температуре. Использовали отфильтрованное (Ni-фильтр) немонахроматизированное медное K_{α} -излучение. Угловое положение рефлексов корректировали по рефлексам кубической решетки алмаза, наносимого тонким слоем на поверхность образцов при каждой съемке. Рентгенографическую идентификацию фаз выполняли с использованием картотеки ASTM [2] и компьютерного банка данных по кристаллическим структурам неорганических материалов.

3. РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

3.1. Сплавы рутения с кюрием

Исходная рентгенограмма образца (РГ1) была получена через 6 часов после его изготовления. После 68 сут хранения на воздухе образец был отожжен в высоком вакууме (0,1 мПа) при 1000-1100°C. Затем было снято еще несколько рентгенограмм – сразу после отжига образца (РГ2), а также в ходе выдержки его на воздухе при комнатной температуре (с целью наблюдения динамики изменения дифракционной картины).

На исходной рентгенограмме образца РГ1 были выявлены рефлексы, принадлежащие следующему кристаллическим решеткам:

- ГПУ решетке металлического Ru;
- гексагональной решетке типа Zn_2Mg , идентифицированной, по аналогии с Ru_2Gd [2], как интерметаллид Ru_2Cm ;
- моноклинной решетке $B-Cm_2O_3$.

Расчетные параметры кристаллической решетки интерметаллида Ru_2Cm приведены в табл.1.

Таблица 1. Расчетные ПКР интерметаллидов юрия, обнаруженных на рентгенограммах образца системы *Ru-Ст*

Фаза	Сингония (пространственная группа)	n	Параметры решетки		
			a, нм	c, нм	V, нм ³
РГ1					
Ru₂Ст	Гексагональная (<i>P6₃/mmc</i>)	9	0,5279(1)	0,8812(3)	0,2127(1)
РГ2					
Ru₃Ст	Кубическая (<i>Pm3m</i>)	4	0,4151(2)	-	0,0715(1)

Примечания: n – число рефлексов в расчетном наборе. V – объем элементарной ячейки. В скобках после значений параметров решетки приведены ошибки определения последнего знака.

На рентгенограмме образца РГ2 были выявлены рефлексы, отнесенные к следующим кристаллическим решеткам:

- ГПУ решетке металлического Ru;
- кубической решетке типа *Cu₃Au*, идентифицированной, по аналогии с *Rh₃Ст* [1], как интерметаллид *Ru₃Ст*;
- моноклинной решетке *B-Ст₂O₃*.

Расчетные параметры кристаллической решетки интерметаллида *Ru₃Ст* приведены в табл. 1.

Установлено, что параметры кристаллической решетки рутения после конденсации юрия не изменились, что свидетельствует об отсутствии растворимости юрия в рутении.

3.2. Сплавы рутения с технецием

Результаты рентгенографического фазового анализа исследованных образцов обобщены в табл. 2.

Наиболее сильные и многочисленные рефлексы во всех облученных образцах дает ГПУ-фаза твердого раствора рутения в технеции (рис. 1),

изоструктурная с ГПУ-фазой металлического Тс (табл. 2, Тс-Ru). Особенностью дифракционной картины этой фазы во всех образцах, начиная с необлученного Тс и заканчивая образцом Тс-70%Ru, является плохое разрешение K_{α} -дублетов на больших углах отражения, что свидетельствует, по-видимому, о заметной дефектности кристаллической структуры этой фазы. Другая особенность этой фазы заключается в текстурированности, т.е. в перераспределении интенсивности с усилением отражений типа 00l. Последнее обстоятельство является, видимо, следствием способа приготовления металлических дисков с использованием прокатки.

Значения параметров кристаллической решетки твердого раствора Тс-Ru зависят от содержания рутения (табл. 2) и находятся между значениями параметров чистых компонентов.

На дифрактограммах всех без исключения образцов обнаружены 2-3 слабых рефлекса на передних углах (рис. 1), местоположение и относительная интенсивность которых практически

Таблица 2. Результаты рентгенографического анализа сплавов Ru-Тс

Образец	Фазовый состав	Число наблюдаемых рефлексов фазы	ПКР, нм	
			a	c
Тс	Тс	10	0,2740(1)	0,4397 (1)
	НФ	3		
Тс-19%Ru	Тс-Ru	8	0,2730(1)	0,4356(1)
	НФ	2		
	ГПУ	5	0,2778(14)	0,4508(16)
Тс-45%Ru	Тс-Ru	10	0,2724(1)	0,4330(1)
	НФ	3		
	ГПУ	6	0,2784(5)	0,4514(5)
Тс-70%Ru	Тс-Ru	10	0,2716(2)	0,4299(1)
	НФ	3		
	ГПУ	4	0,2785(1)	0,4509(1)

Примечание (здесь и далее): НФ - неизвестная фаза

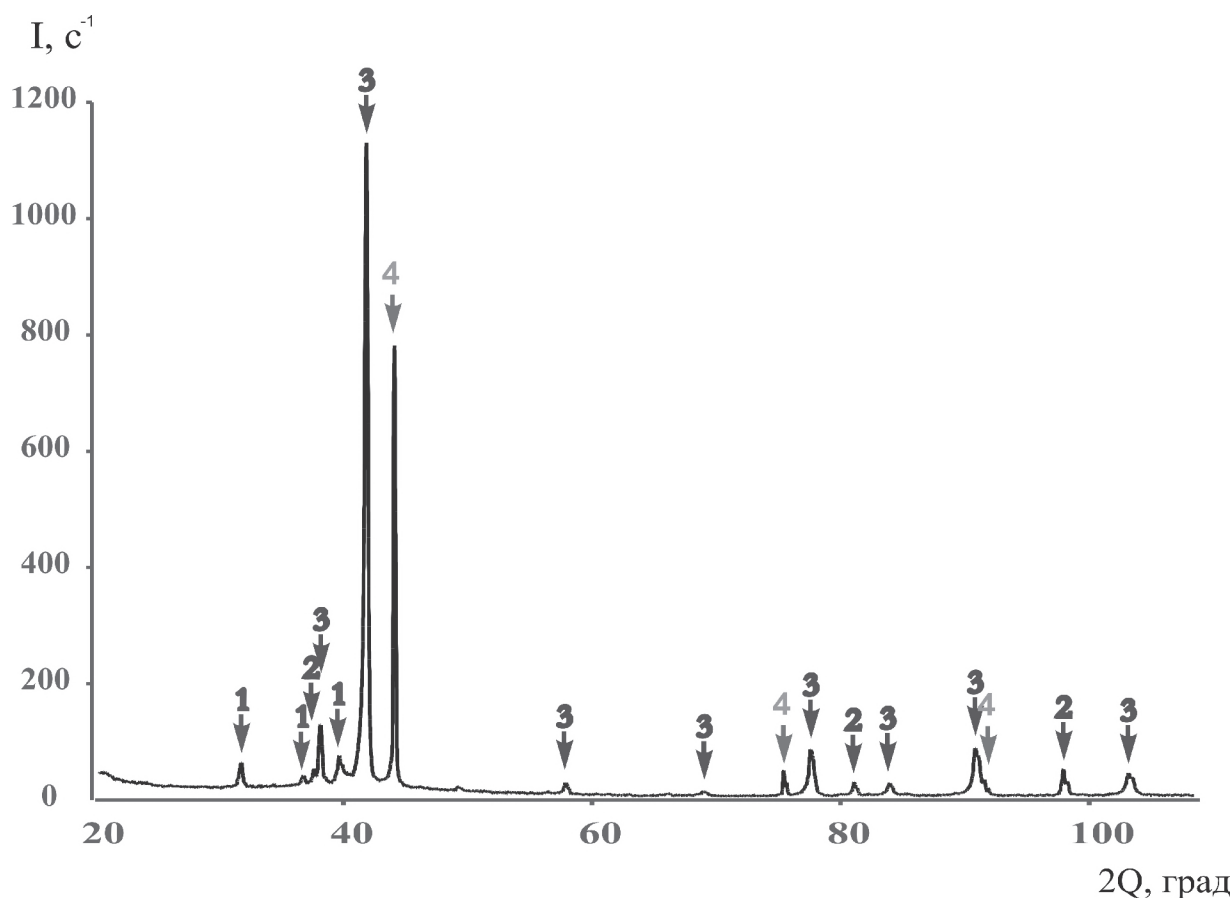


Рис. 1. Дифрактограмма образца Тс–45 %Ru:

1 – пики неизвестной фазы; 2 – пики неизвестной фазы ГПУ-типа; 3 – пики твердого раствора Тс–Ru; 4 – пики алмаза

одинаковы для всех образцов. По-видимому, они принадлежат фазе, которая изначально присутствовала во всех образцах (табл.2, НФ).

Кроме того на рентгенограммах всех облученных образцов обнаружены слабые рефлексы фазы, которая была интерпретирована как вторая ГПУ-фаза с параметрами решетки $a = 0,278 - 0,279$ нм и $c = 0,450 - 0,452$ нм (табл.2, ГПУ; рис. 1). Существование этой фазы не укладывается в рамки представлений о твердом растворе Тс–Ru, и для выяснения ее природы необходимы дополнительные исследования.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Таким образом, в результате проведенных исследований сплава рутения с кюрием были рентгенографически идентифицированы новые соединения: интерметаллид Ru_2Cm с гексагональной решеткой типа Zn_2Mg (ПКР $a = 0,5279(1)$ нм, $c = 0,8812(3)$ нм) и интерметаллид Ru_3Cm с кубической решеткой типа Cu_3Au (ПКР

$a = 0,4151(2)$ нм).

Рентгенофазовый анализ облученных в реакторе образцов металлического технеция показал, что при накоплении рутения образуются гомогенные твердые растворы рутений-технеций с ГПУ структурой; параметры их кристаллической решетки a и c закономерно уменьшаются с увеличением концентрации рутения.

Работа частично финансируется в рамках ФЦП «Научные и научно-педагогические кадры инновационной России на 2009-2013 годы»

СПИСОК ИСТОЧНИКОВ

1. Радченко В.М., Селезнев А.Г., Рябинин М.А. и др. «Синтез и изучение бинарных соединений актиноидов и лантаноидов. XVIII. Исследование сплавов ^{244}Cm с платиной, иридием и родием, полученных конденсацией паров металлического кюрия» // Радиохимия. 1994. Т. 36. Вып.4. С. 299-303.
2. X-Ray Diffraction Data Cards. Joint Committee on Powder Diffraction Standards. Amer. Soc. for Testing Materials (ASTM). Philadelphia. 1999.

FORMATION OF RUTHENIUM ALLOYS WITH CURIUM AND TECHNETIUM

© 2012 E.M. Pichuzhkina^{1,2}, K.V. Rotmanov², V.M. Radchenko², S.V. Tomilin²

¹ Ulyanovsk State University

² Joint Stock Company "State Scientific Center Research Institute of Atomic Reactors", Dimitrovgrad

Presented are results of x-ray examination of ruthenium compounds with curium and technetium.

Key words: curium, metallic technetium, ruthenium, X-ray diffractometry analysis, alloy, crystal structure, lattice parameters.

Elena Pichuzhkina, Graduate Student, Research Fellow.

E-mail: elena810@mail.ru

Konstantin Rotmanov, Candidate of Chemical Sciences, Senior Research Fellow. E-mail: nanolabniti@gmail.com

Vyacheslav Radchenko, Doctor of Chemical Sciences, Head at the Laboratory of Sources Technology.

Sergey Tomilin, Candidate of Chemical Sciences, Leading Research Fellow. E-mail: nanolabniti@gmail.com