

Контрольные значения альфа  
 $^{235}\text{U}$  и отношений сечения деления  $^{239}\text{Pu}$  и  $^{235}\text{U}$  Таблица 5

Энергетический интервал, кэВ	$\alpha$ $^{235}\text{U}$ *	Отношение сечений деления $^{239}\text{Pu}$ и $^{235}\text{U}$ **
0,1—0,2	0,65±0,23	—
0,2—0,3	0,47±0,26	0,90 ***
0,3—0,4	0,68±0,23	0,74±0,06
0,4—0,5	0,41±0,27	0,65±0,05
0,5—0,6	0,37±0,27	1,02±0,06
0,6—0,7	0,41±0,27	0,38±0,03
0,7—0,8	0,41±0,27	0,42±0,03
0,8—0,9	0,50±0,25	0,64±0,06
0,9—1,0	0,57±0,24	0,62±0,06
1—2	0,43±0,26	0,63±0,02
2—3	0,49±0,26	0,54±0,03
3—4	0,36±0,28	0,61±0,05
4—5	0,34±0,28	0,54±0,05
5—6	0,33±0,28	0,57±0,06
6—7	0,34±0,28	0,59±0,06
7—8	0,39±0,27	0,62±0,07
8—9	0,32±0,28	0,65±0,08
9—10	0,28±0,29	0,60±0,07
10—15	0,29±0,29	0,62±0,03
15—20	0,22±0,30	0,65±0,05
20—30	0,28±0,28	0,69±0,03

\* В погрешность  $\alpha$  основной вклад вносит погрешность из-за нормировки.

\*\* Для отношения сечений приведена статистическая погрешность.

\*\*\* Нормировочное значение.

были включены все результаты работ до 1970 г. Следует отметить хорошее согласие (с учетом погрешностей) этих результатов между собой. Сравнение и оценка полученных к настоящему времени дифференциальных данных по  $\alpha$  будет проведено в отдельной работе.

УДК 531.756 : 532.61.133

## Плотность, поверхностное натяжение и вязкость расплавов трихлорида урана с хлоридами рубидия и цезия

ДЕСЯТНИК В. Н., КАТЫШЕВ С. Ф., РАСПОПИН С. П., ЧЕРВИНСКИЙ Ю. Ф.

Сведения о свойствах расплавов трихлорида урана с хлоридами рубидия и цезия весьма ограничены [1], в связи с чем были изучены плотность ( $\rho$ ), поверхностное натяжение ( $\sigma$ ) и вязкость ( $\nu$ ) расплавов систем  $\text{RbCl} - \text{UCl}_3$ ,  $\text{CsCl} - \text{UCl}_3$  в широком интервале температур и концентраций. Плотность и поверхностное натяжение определяли методом максимального давления в пузырьке газа (аргона), а вязкость — методом крутильных колебаний цилиндрического тигля с расплавом [2, 3]. Исходные соли были приготовлены по известным методикам [1].

Для всех расплавов систем  $\text{RbCl} - \text{UCl}_3$  и  $\text{CsCl} - \text{UCl}_3$  в изученном интервале температур были получены

линейные зависимости  $\rho$  и  $\sigma$  (табл. 1) и экспоненциальная зависимость  $\nu$  от температуры ( $K$ ) (табл. 2). Значения  $\rho$ ,  $\sigma$  и  $\nu$  для чистых хлоридов рубидия и цезия хорошо согласуются с опубликованными [4, 5].

На рисунке представлены сечения захвата и деления, а также их отношение  $\alpha$  для  $^{239}\text{Pu}$  в области энергии нейтронов 0,1—4 кэВ, усредненные в интервалах по 100 эВ. При нормировке сечений было использовано значение 17,65 б для сечения деления в интервале 0,1—0,2 кэВ. Эта величина получена в работе [3] для образца, применявшегося в настоящих измерениях. Энергетический ход сечения деления, представленный на рисунке, хорошо согласуется с результатами работы [6], тогда как энергетический ход отношения  $\alpha$  согласуется с результатами этой работы не полностью. Численная информация, полученная в этой работе, послана в Центр по ядерным данным.

В заключение авторы считают своим приятным долгом поблагодарить сотрудников ЛНФ ОИЯИ В. И. Луцникова, Л. Б. Пикельнера, Г. С. Самосвата за помощь в организации измерений; сотрудника ФЭИ Ю. В. Григорьева за предоставление образцов и сотрудников нейтронной группы ИТЭФ Ф. Н. Беляева и С. П. Боровлева за обсуждение результатов и помощь при их обработке.

Поступило в Редакцию 7/VI 1976 г.

### СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Рябов Ю. В. и др. Препринт ОИЯИ РЗ-5113. Дубна, 1970.
2. Болотский В. П. и др. В сб.: Труды конф. «Нейтронная физика». Ч. 4. Обнинск, изд. ОНТИ ФЭИ, 1974, с. 49.
3. Беляев Ф. Н. и др. In: Proc. Conf. IAEA «Nuclear Data for Reactor». Vienna, 1970, v. 1, p. 339.
4. Сухоручкин С. И. «Атомная энергия», т. 31, вып. 3, с. 245.
5. Gwin R. e.a. In: Proc. 4th Nuclear Cross Sections and Technology. Washington, 3—7 March 1975, rep. GB-23.
6. Sowerby M., Konshin V. «Atomic Energy Rev.», 1972, v. 10, N 4, p. 453.

Плотность и поверхностное натяжение расплавленных смесей RbCl—UCl<sub>3</sub> и CsCl—UCl<sub>3</sub>

Таблица 1

UCl <sub>3</sub> , мол. %	$\rho = a - \epsilon T, \text{ г/см}^3$			$\sigma = \sigma_0 - cT, \text{ мДж/м}^2$			Температурный интервал, К
	$a$	$\epsilon \cdot 10^3$	$S \cdot 10^3$	$\sigma_0$	$c \cdot 10^3$	$S \cdot 10^2$	
0,0	3,1069	0,8799	1	155,59	64,34	6	1012—1142
15,0	3,4979	0,9404	1	122,69	40,03	3	917—1133
20,0	3,5001	0,8600	2	126,40	44,78	2	1001—1155
25,0	3,6142	0,8569	3	130,10	49,52	2	1036—1183
33,2	3,8281	0,8755	2	121,58	42,04	1	973—1133
37,4	3,9795	0,9055	1	114,77	35,86	2	949—1126
40,1	4,1056	0,9452	1	112,86	34,16	3	867—1130
45,5	4,2272	0,9476	2	108,41	30,13	2	851—1138
50,0	4,4739	1,0578	2	111,42	31,90	3	891—1125
60,0	4,4236	0,7984	1	—	—	—	952—1148
62,1	4,6964	0,9726	3	114,97	33,72	1	963—1128
70,0	4,9532	1,0008	1	122,42	36,34	2	993—1129
80,2	5,3940	1,1541	1	139,37	45,20	1	1048—1198
88,0	5,7054	1,2458	3	162,55	61,20	4	1089—1229
100,0	6,3747	1,5222	2	224,70	95,70	1	1138—1296
CsCl—UCl <sub>3</sub>							
0,0	3,7776	1,0716	1	155,50	72,08	6	922—1125
10,0	3,9168	1,0902	1	132,57	56,67	2	906—1129
20,0	3,9805	1,0498	2	119,17	45,75	2	855—1126
25,1	4,0782	1,0707	2	123,10	48,49	4	991—1132
33,2	4,1153	0,9954	2	156,38	78,86	6	1029—1158
34,1	4,1875	1,0431	2	129,93	55,70	2	1037—1132
39,0	3,9566	0,7493	1	115,17	41,78	3	1012—1097
39,8	4,1125	0,8764	1	107,32	35,06	3	965—1135
49,0	4,2937	0,8701	2	—	—	—	919—1127
50,2	4,4837	1,0261	2	105,64	33,85	2	906—1120
58,5	4,5972	0,9324	2	105,06	33,26	4	943—1107
60,1	4,7418	1,0370	2	104,87	31,84	3	937—1129
70,0	4,9738	1,0293	2	115,07	37,42	1	986—1142
75,0	4,8918	0,8671	2	122,58	39,98	3	1049—1227
84,0	5,1311	0,8874	2	142,79	51,63	3	1049—1221
92,2	5,6432	1,1577	2	164,73	59,79	6	1114—1270
94,1	5,9419	1,3533	3	176,22	67,19	2	1112—1298

Вязкость расплавленных смесей RbCl—UCl<sub>3</sub> и CsCl—UCl<sub>3</sub>

Таблица 2

UCl <sub>3</sub> , мол. %	$\lg \nu = A_\nu + \frac{B}{T} \nu (\nu, \text{ сСт})$			$\lg \eta = A_\eta + \frac{B}{T} \eta (\eta, \text{ сП})$			$\lg \mu = A_\mu + \frac{B}{T} \mu [\mu (\text{эрг} \cdot \text{с})/\text{моль}]$			Температурный интервал, К
	$A_\nu$	$B_\nu$	$S \cdot 10^3$	$A_\eta$	$B_\eta$	$S \cdot 10^3$	$A_\mu$	$B_\mu$	$S \cdot 10^3$	
RbCl—UCl <sub>3</sub>										
0,0	1,2413	1032	6	1,1194	1258	13	1,1588	1032	7	1000—1250
10,0	0,9295	657	2	0,7538	872	7	0,7733	657	3	996—1253
16,0	1,1082	893	10	0,8886	1080	32	0,9132	893	16	929—1250
24,9	1,3631	1274	8	1,1058	1458	21	1,1162	1274	13	1034—1251
33,1	1,4887	1432	3	1,1830	1597	14	1,1989	1432	7	991—1256
43,8	1,5390	1463	17	1,1818	1613	65	1,1989	1463	37	926—1250
53,9	1,5896	1501	11	1,1769	1640	36	1,2069	1501	27	935—1253
64,0	1,5640	1569	19	1,1293	1742	66	1,1425	1569	51	978—1256
75,0	1,7264	1796	16	1,2654	1949	63	1,2662	1796	46	1043—1246
88,8	1,8381	1919	14	1,3581	2095	61	1,3338	1919	45	1095—1242
100,0	1,2213	1100	3	0,7387	1310	11	0,6843	1100	9	1128—1278

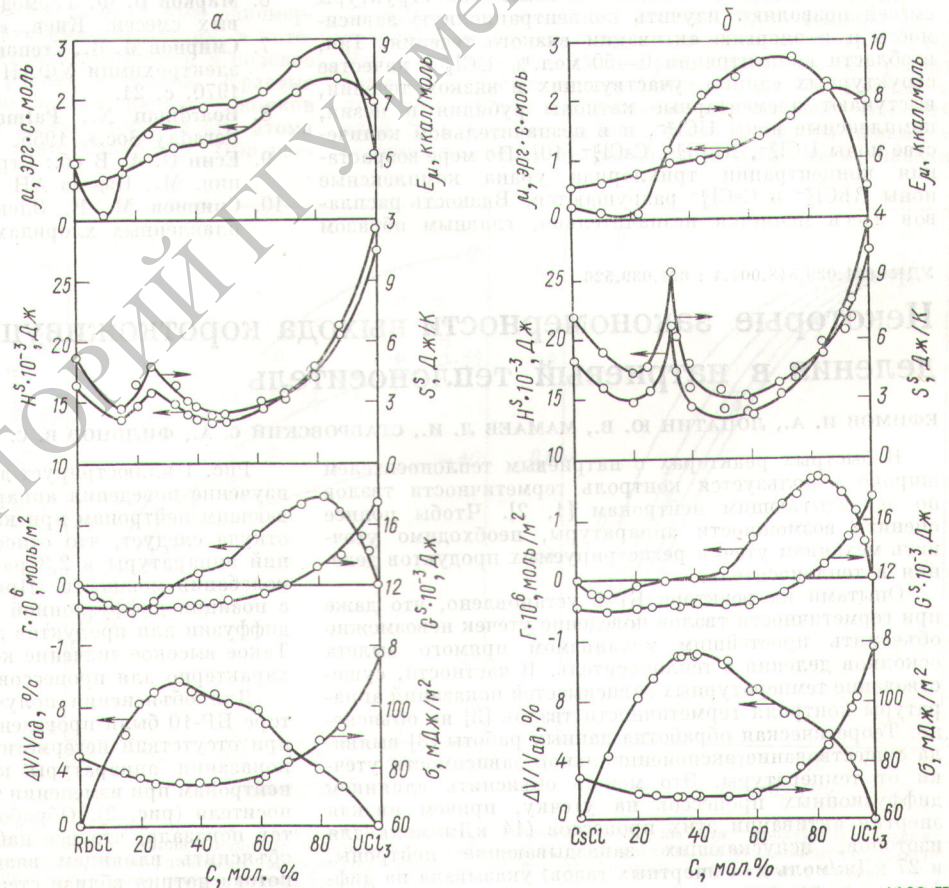
Продолжение табл. 2

UCl <sub>3</sub> , мол.%	$\lg v = A_v + \frac{B}{T} v$ (v, сСт)			$\lg \eta = A_\eta + \frac{B}{T} \eta$ ( $\eta$ , сП)			$\lg \mu = A_\mu + \frac{B}{T} \mu$ [ $\mu$ (эрг·с)/моль]			Температурный интервал, К
	$-A_v$	$B_v$	$S \cdot 10^3$	$-A_\eta$	$B_\eta$	$S \cdot 10^3$	$-A_\mu$	$B_\mu$	$S \cdot 10^3$	
CsCl — UCl <sub>3</sub>										
0,0	1,3764	965	6	1,1375	1157	17	1,1502	965	11	929—1185
10,0	1,3035	916	13	1,0435	1107	32	1,0341	916	24	933—1191
22,0	1,2553	913	4	0,9953	1129	11	0,9392	913	8	1068—1235
33,0	1,5987	1369	8	1,2815	1547	22	1,2437	1369	18	1023—1211
44,0	1,9734	1770	13	1,5800	1896	37	1,5826	1770	31	903—1210
50,0	2,0168	1841	18	1,6263	1987	53	1,6079	1841	45	930—1233
56,0	2,0236	1913	26	1,6025	2048	82	1,5972	1913	69	908—1247
64,0	2,1029	2028	14	1,6655	2169	50	1,6542	2028	40	946—1241
75,0	2,0771	2069	57	1,5996	2198	20	1,5995	2069	17	1062—1253
87,2	1,8156	1866	54	1,3152	2005	23	1,3079	1866	17	1073—1242

ных и вычисленных величин для 1130 К приведена на рисунке.

Смешение хлоридов Rb, Cs и U, катионы которых отличаются размерами и зарядами, должно сопровождаться преимущественным образованием комплексных группировок на основе катиона урана, обладающего

большой поляризующей способностью [6]. Это должно найти свое отражение на концентрационных зависимостях изученных свойств. Действительно, о взаимодействии компонентов при их смешении свидетельствуют значительные положительные отклонения молярных объемов от аддитивных величин и отрицательные



Физико-химические свойства расплавов систем Rb — UCl<sub>3</sub> (а) и CsCl — UCl<sub>3</sub> (б) при 1130 К

отклонения изотерм  $\sigma$ ,  $G^s$  и  $H^s$  от линейности [7]. Это подтверждается и отрицательными отклонениями (24,6% в системе RbCl —  $UCl_3$  и 31,4% в CsCl —  $UCl_3$ ) поверхностного натяжения эквимольного состава от идеальных, вычисленных по уравнению Жуховицкого — Гуггенгейма [8].

Максимальное отклонение мольных объемов от аддитивности наблюдается в области концентрации, соответствующей конгруэнтно плавящемуся соединению  $Me_2UCl_5$  [1], что связано, по-видимому, с образованием в расплаве комплексных группировок урана  $UCl_3^{2-}$ . Это отклонение возрастает при переходе от системы NaCl —  $UCl_3$  (5,13% [3]) к системам RbCl —  $UCl_3$  (9,50%) и CsCl —  $UCl_3$  (10,97%), что указывает на усиление взаимодействия трихлорида урана с хлоридами щелочных металлов по мере роста радиуса катиона щелочного металла.

На изотермах  $\sigma$  в области 25—50 мол. %  $UCl_3$  проявляется минимум, связанный с образованием комплексных соединений урана, поверхностно-активных по отношению к обоим компонентам смеси [9]. Адсорбция ионов в поверхностном слое в области концентрации, отвечающей соединениям  $Me_2UCl_5$ , равна нулю, а на кривых  $S^s$  проявляются максимумы. Это свидетельствует об устойчивости образующихся при смешении компонентов комплексных ионов  $UCl_3^{2-}$  в расплавах обеих систем, которые, по-видимому, и являются поверхностно-активными.

Дополнительные сведения об изменении структуры смесей позволяют изучить концентрационную зависимость  $\mu$  и энергию активации вязкого течения. Так, в области концентрации 0—50 мол. %  $UCl_3$  в качестве структурных единиц, участвующих в вязком течении, выступают элементарные катионы рубидия и цезия, комплексные ионы  $UCl_3^{2-}$ , и в незначительном количестве ионы  $UCl_3^{2-}$ ,  $RbCl_4^-$ ,  $CsCl_4^-$  [10]. По мере возрастания концентрации трихлорида урана комплексные ионы  $RbCl_4^-$  и  $CsCl_4^-$  разрушаются. Вязкость расплавов здесь меняется незначительно, главным образом

в результате уменьшения числа легче смещаемых катионов рубидия и цезия. В расплавах, содержащих более 50 мол. %  $UCl_3$ , повышение вязкости вызвано появлением во второй координационной сфере комплексных катионов урана типа  $UCl_4^+$ . Изменение ее значения и энергии активации вязкого течения в расплавах, содержащих более 80—90 мол. %  $UCl_3$ , указывают на происходящий процесс распада сложных комплексных группировок урана на более простые.

Поступило в Редакцию 21/VI 1976 г.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Десятник В. Н., Дубинин Б. В., Распопин С. П. «Журн. физ. химии», 1973, т. 47, № 10, с. 2726.
2. Вохмяков А. М. и др. Физико-химические исследования металлургических процессов. Вып. 2. Свердловск, изд. УПИ им. С. М. Кирова, 1974, с. 70.
3. Десятник В. Н. и др. «Атомная энергия», 1975, т. 39, вып. 1, с. 70.
4. Справочник по расплавленным солям. Пер. с англ. Под ред. А. Г. Морачевского. Т. 1. Л., «Химия», 1971.
5. Справочник по расплавленным солям. Пер. с англ. Под ред. А. Г. Морачевского. Т. 2. Л., «Химия», 1972.
6. Марков Б. Ф. Термодинамика расплавленных солевых смесей. Киев, «Наукова думка», 1974.
7. Смирнов М. В., Степанов В. П. В сб.: Тр. Института электрохимии УФАН СССР. Вып. 16. Свердловск, 1970, с. 21.
8. Boardman N., Palmer A., Heymann E. «Trans. Faraday Soc.», 1955, v. 51, N 2, p. 277.
9. Есин О. А. В сб.: Строение вещества и спектроскопия. М., Изд-во АН СССР, 1960, с. 111.
10. Смирнов М. В. Электродные потенциалы в расплавленных хлоридах. М., «Наука», 1973, с. 201.

УДК 621.039.548.004.4 : 621.039.526

## Некоторые закономерности выхода короткоживущих продуктов деления в натриевый теплоноситель

ЕФИМОВ И. А., ЛОПАТИН Ю. В., МАМАЕВ Л. И., СТАВРОВСКИЙ С. А., ФИЛОНОВ В. С.

В быстрых реакторах с натриевым теплоносителем широко используется контроль герметичности твэлов по запаздывающим нейтронам [1, 2]. Чтобы полнее оценить возможности аппаратуры, необходимо уточнить механизм утечки регистрируемых продуктов деления в теплоноситель.

Опытами на реакторе БР-5 установлено, что даже при герметичности твэлов поведение утечек невозможно объяснить простейшим механизмом прямого вылета осколков деления в теплоноситель. В частности, существование температурных зависимостей показаний аппаратуры контроля герметичности твэлов [3] не объяснено. Теоретическая обработка данных работы [3] выявила существование экспоненциальной зависимости утечки от температуры. Это можно объяснить влиянием диффузионных процессов на утечку, причем низкая энергия активации этих процессов (14 кДж/моль для изотопов, испускающих запаздывающие нейтроны, и 27 кДж/моль для инертных газов) указывала на диффузию в жидкости.

Рис. 1 иллюстрирует другой эксперимент на БР-5 — изучение поведения аппаратуры контроля по запаздывающим нейтронам при колебании мощности реактора, откуда следует, что относительные колебания показаний аппаратуры в 2,3 раза превышают относительные колебания мощности. При обработке этого результата с позиции диффузионной утечки получен коэффициент диффузии для продуктов деления, равный  $\sim 10^{-10}$  м<sup>2</sup>/с. Такое высокое значение коэффициента диффузии также характерно для процессов в жидкостях.

Для объяснения полученных результатов на реакторе БР-10 были проведены специальные эксперименты при отсутствии негерметичных твэлов — записывались показания аппаратуры контроля по запаздывающим нейтронам при изменении температуры и расхода теплоносителя (рис. 2). Обработка результатов экспериментов показала, что все наблюдавшиеся эффекты можно объяснить влиянием вязкого подслоя турбулентного потока натрия вблизи стенок. Поскольку толщина подслоя соизмерима с величиной пробега осколков в тепло-