

УДК 536.71

ТЕПЛОФИЗИЧЕСКИЕ СВОЙСТВА ГЕКСАФТОРИДА УРАНА. СВОЙСТВА В ОБЛАСТИ РАЗРЕЖЕННОГО ГАЗА

© 2022 г. В. В. Малышев*

*Национальный исследовательский центр “Курчатовский институт”,
Курчатовский комплекс физико-химических технологий, Москва, Россия***E-mail: Malyshev_VV@nrcki.ru*

Поступила в редакцию 30.03.2021 г.

После доработки 22.11.2021 г.

Принята к публикации 28.11.2021 г.

Представлены обновленные результаты экспериментальных исследований теплофизических свойств гексафторида урана (UF_6) в области разреженного газа в интервале температур от 287 до 368 К, давлений от 53 до 750 мм рт. ст. и плотностей газа от 0.00188 до 0.0118 г/см³, полученные переработкой прежних данных автора с использованием графо-математической программы “Origin-8”. Уточнены значения параметров состояния UF_6 в области равновесия пара с твердой фазой, получены обновленные данные для теплоты сублимации. По P – V – T -данным построено уравнение состояния UF_6 , которое обеспечивает вдвое большее, чем прежнее уравнение, приближение к экспериментальным данным по давлению со среднеквадратичным отклонением 0.53 мм рт. ст. и 0.12% во всей исследованной области параметров состояния. Обновлены данные для второго вириального коэффициента. В работе использовался гексафторид урана с естественным содержанием изотопов урана и чистотой 99.98 об. %. Приведено описание экспериментального оборудования, методики проведения исследований и обработки экспериментальных данных.

DOI: 10.31857/S0040364422020272

ВВЕДЕНИЕ

Научно-практический интерес к гексафториду урана (UF_6) появился лишь через 30 лет после его открытия немецким исследователем Otto Ruff в 1909 г. Основанием к этому послужило открытие в 1939 г. явления распада ядра урана, а UF_6 оказался единственным известным устойчивым газообразным соединением урана, которое можно использовать для получения и обогащения ядерного топлива. Наряду с разработкой реакторов на твердых ТВЭЛах, в СССР и США с 1950-х годов активно начались работы по созданию ядерных энергетических установок (ЯЭУ), использующих в качестве ядерного топлива газообразный UF_6 . В СССР в ИАЭ им. И.В. Курчатова в середине 1950-х годов был спроектирован и сооружен стендовый реактор на гексафториде урана [1, 2]. В последующие годы в СССР и США был выполнен большой цикл работ, посвященных этому направлению. В обзоре Иосилевского с соавторами [3] сделан анализ состояния работ по данному направлению, рассмотрены перспективные варианты применения ЯЭУ с циркулирующим гексафторидом урана в наземной и космической энергетике.

Для расчетов и создания ЯЭУ с циркулирующим UF_6 необходимы данные по теплофизическим свойствам этого соединения. В период с 1943 по

1953 гг. в США, Англии, Франции выполнено большое число работ по исследованию различных химических и термодинамических свойств UF_6 . Обзор работ по свойствам UF_6 , представленных до 1949 г., сделан в монографии Каца и Рабиновича [4]. Обстоятельный обзор работ, выполненных до 1974 г., дан Беляниным в труде НИЦ Института высоких температур АН СССР по теплофизическим свойствам веществ [5].

Содержащиеся в открытой литературе данные по теплофизическим свойствам UF_6 относятся в основном к состоянию сублимации твердого и насыщения жидкого UF_6 и нередко противоречат одни другим. Отсутствие экспериментальных данных по свойствам UF_6 в области перегретого пара, закритической области и жидкости, а также противоречивость данных в “изученных” областях параметров состояния UF_6 побудили автора восполнить существующий пробел и провести в 1968–1973 гг. собственные исследования теплофизических свойств этого соединения. Полученные экспериментальные данные представлены в работе [6], а результаты исследований опубликованы без описания экспериментальных установок и методик исследований в работах [7–9]. Интерес к UF_6 сохраняется и в 21-м веке, когда появились две работы [10, 11], посвященные методикам вычисления второго вириального коэффициента

UF_6 с использованием различных моделей потенциала межмолекулярного взаимодействия.

В начале 1970-х годов в научных лабораториях, по крайней мере в СССР, отсутствовали персональные компьютеры, необходимое программное обеспечение, включая графические программы и математические средства обработки экспериментальных данных. Поэтому вся обработка данных и построение графических зависимостей производились только вручную, что не позволяло учесть различные тонкости в поведении функций и закономерностей особенно в окрестности критической точки, где, как известно, скапливается большое число экспериментальных точек с еле заметными отличиями друг от друга. Исходя из последних соображений, представляется полезным произвести переработку полученных ранее результатов по теплофизическим свойствам UF_6 с использованием современных графоаналитических методик. В результате были заметно изменены местоположения плотности пара и жидкости на бинадали, разработана физико-математическая методика определения критической температуры. Современные математические модели обработки большого числа экспериментальных точек позволили не только получить новые уравнения состояния UF_6 в области разреженного и плотного газа, но и корректно вычислить данные для второго вириального коэффициента. Наконец, впервые представлены экспериментальные данные и уравнение состояния в области жидкого UF_6 .

В работе использовался гексафторид урана с естественным содержанием изотопов урана, молекулярная масса которого равна 352.04 г/моль. Чистота продукта, прошедшего все стадии вакуумной дистилляции, по результатам масс-спектрометрического анализа была не менее 99.98 об. %. Исследования UF_6 выполнены в широком диапазоне параметров состояния, в связи с чем изготовлено две установки, размещенные в одном двухсекционном вытяжном шкафу: установка низкого давления и установка высокого давления. Поскольку UF_6 является высокоагрессивным химическим соединением, то все узлы и детали установок, с которыми контактировал UF_6 , изготовлены из никеля и монель-металла. Большое внимание было уделено созданию средств и методик измерения параметров состояния вещества с максимально возможной точностью.

Результаты экспериментальных исследований и их графо-математической обработки разбиты на две части. Материалы, полученные в области разреженного газа UF_6 на установке низкого давления, представлены в настоящей работе, а материалы, полученные в области плотного газа и жидкости UF_6 на установке высокого давления, предполагается опубликовать в отдельной работе.

В настоящей работе представлены результаты исследований теплофизических свойств гексафторида урана (UF_6) в области разреженного газа и его равновесия с твердой фазой в интервале температур от 287 до 368 К, давлений от 53 до 750 мм рт. ст. и плотностей газа от 0.00188 до 0.0118 г/см³. Получены экспериментальные данные по давлению и теплоте сублимации UF_6 , плотности, давлению и температуре пара, равновесного с твердой фазой. По P - V - T -данным определены значения для второго вириального коэффициента и построено уравнение состояния UF_6 , которое обеспечивает приближение к опытным данным по давлению со среднеквадратичным отклонением MSD 0.53 мм рт. ст. и 0.12% во всей исследованной области параметров состояния.

1. СХЕМА ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНОЙ УСТАНОВКИ И МЕТОДИКА ПРОВЕДЕНИЯ ИССЛЕДОВАНИЙ

Установка низкого давления была размещена в нижней части вытяжного шкафа, верхнюю часть которого, представляющую собой толсто-стенный стальной бокс, занимала установка высокого давления.

Схема установки низкого давления, представляющей собой систему многоцелевого назначения, изображена на рис. 1. Прежде всего она была предназначена для проведения P - V - T -исследований UF_6 в области разреженного газа. На установке проводилась очистка UF_6 от примесей легких газов (воздуха, фтора, фтористого водорода) и осуществлялся контроль за чистотой самого UF_6 . Третье назначение установки – дозировка и подготовка UF_6 для загрузки в пьезометры низкого и высокого давления.

Основным узлом установки являлся мерный объем или пьезометр низкого давления 4, представляющий собой сварной никелевый сосуд сферической формы. Емкость сосуда определялась многократным взвешиванием дистиллированной воды и оказалась равной 3227 ± 2 см³ ($\pm 0.06\%$) при температуре 293 К. В целях снижения коррозионных потерь гексафторида урана внутренняя поверхность пьезометра была запассивирована фтором при температуре 355 К в течение 80 ч. Фторированию подвергались также все коммуникации и ловушки 1–3, которые находились в среде UF_6 . Пьезометр был помещен в герметичный кожух с теплоизолированными стенками, который был заполнен водой и соединен трубками с термостатом (не показан на схеме). К вершине сферы приварен блок, на котором установлены два вентиля 5 и 7, через которые пьезометр соединялся с остальными узлами установки, и мембранный нуль-индикатор давления 6. Вакуумирование пьезометра осуществлялось форвакуумным насосом через емкость 10, заполненную

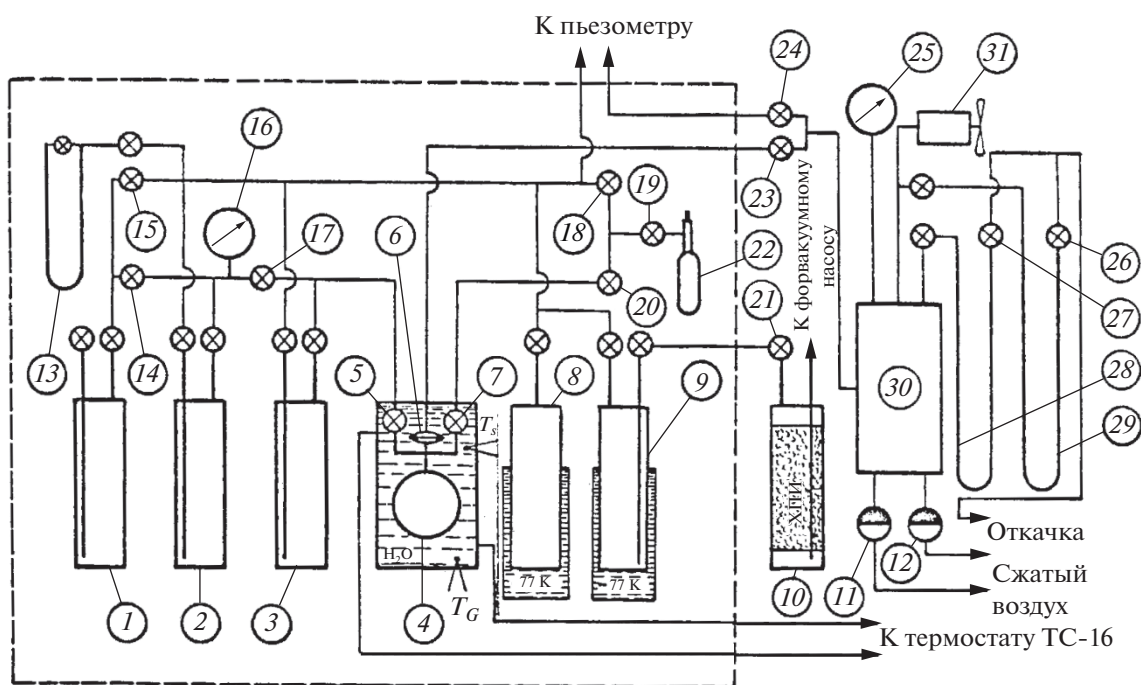


Рис. 1. Схема экспериментальной установки низкого давления.

известковым химическим поглотителем фторсодержащих газов (ХПИ), прокачную ловушку 9 и угольную ловушку 8, которые были погружены в жидкий азот. Для отсечения отдельных узлов на откачной линии использованы вакуумные вентили 14, 15, 17 и 21. Контроль за давлением в системе производился образцовым вакуумметром 16 и U-образным манометром 13, залитым химически стойким ко фтору маслом. Глубина откачки пьезометра была не менее 0.1 мм рт. ст., а с использованием угольной ловушки была значительно больше.

1.1. Очистка UF_6 . Содержащийся в никелевой ловушке 1 UF_6 очищался от примесей легких газов (воздуха, фтора, фтористого водорода) методом многократной вакуумной дистилляции с использованием прокачных никелевых ловушек 2 и 3. В процессе этой операции ловушка-приемник помещалась в хладагент с температурой 223 К, при которой давление UF_6 составляло 0.12 мм рт. ст. [4], а давление самой низколетучей примеси HF 22 мм рт. ст. (при 228 К) [12]. При таких условиях воздух и фтор удалялись практически полностью, а примесь HF удалялась значительно труднее и к тому же с частью продукта.

1.2. Давление UF_6 . В пьезометре 4 давление UF_6 измерялось компенсационным методом посредством мембранного нуль-индикатора давления 6, конструкция и принцип действия которого подробно описаны в работе [13]. Отметим лишь, что чувствительным элементом прибора являлась гофрированная мембрана диаметром 58 мм, изготов-

ленная из листа монель-металла, толщиной 70 мкм. Чувствительность мембраны, центр которой фиксировался подвижным электроконтактным шупом, была не хуже 0.02 мм рт. ст. Противодействие устанавливалось автоматически в зависимости от положения мембраны нуль-индикатора с помощью следящей электрической схемы, датчиком которой был шуп, а исполнительными элементами буферный сосуд 30 и два электромагнитных клапана 11 и 12, к одному из которых подведена вакуумная система, а к другому – сжатый воздух. На воздушной линии были установлены также образцовый вакуумметр 25 и вентили 23 и 24. Величина противодействия измерялась до 70 мм рт. ст. масляным U-образным манометром 28 с точностью 0.1 мм рт. ст., а при больших давлениях ртутным U-образным манометром 29, снабженным нониусом с ценой деления 0.1 мм рт. ст. Нулевые колена обоих манометров во время измерений давления всегда откачивались через краны 26 и 27 дополнительной угольной ловушкой, не показанной на рисунке. Окончательный замер противодействия производился при отключенной схеме слежения посредством ручного регулятора давления 31, что исключало существование перепада давления между мембраной нуль-индикатора и манометрами, который мог образовываться во время работы схемы слежения. Суммарная погрешность в измерении противодействия, а следовательно, и давления вещества в пьезометре оценена не более 0.1 мм рт. ст., что составляло в среднем ~0.17%.

1.3. Температура. Температура пьезометра, а следовательно, и заполняющего его газа, принималась равной среднеарифметическому показаний двух хромель-копелевых термопар T_5 и T_6 , измеряющих температуру воды на входе и выходе воды из кожуха. Погрешность температуры газа UF_6 в пьезометре оценена в ~ 0.2 К, что составляло в среднем $\sim 0.06\%$.

1.4. Определение плотности. Вначале в пьезометр 4 из ловушки 1 напускалось необходимое для проведения исследований количество продукта, которое предварительно рассчитывалось по параметрам состояния для идеального газа. Далее весь UF_6 без остатка перепускался из пьезометра через вентиль пьезометра 7 и блок напуска (вентили 18–20) в отвакуумированный пустой пикнометр 22, погруженный в сосуд Дьюара с жидким азотом. При этом все коммуникации и вентили перепускной трассы разогревались до температур ~ 330 – 340 К, а пьезометр – до ~ 370 К. После перепуска продукта пикнометр, представлявший собой миниатюрную тонкостенную никелевую ампулу с запорным вентилем, взвешивался на аналитических весах (M_1). Далее пикнометр снова подсоединялся к блоку напуска пьезометра, и продукт перепускался в пьезометр. Для полноты процесса ампула пикнометра нагревалась специальным электронагревателем до температуры ~ 370 К. По окончании загрузки вентили пикнометра и вентиль 7 пьезометра перекрывались, и “пустой” пикнометр снова взвешивался (M_2). Количество UF_6 , загруженное в пьезометр, определялось как разность двух взвешиваний пикнометра, т.е. $M = M_1 - M_2$. По результатам двух взвешиваний пикнометра определялась величина коррозионных потерь продукта, которая в среднем не превышала 0.05 – 0.1% . Таким образом, погрешность плотности UF_6 с учетом нулевой ошибки в определении объема реально находилась в пределах 0.1 – 0.15% , уменьшаясь с ростом плотности газа.

1.5. Методика проведения исследований и обработки экспериментальных данных. Исследования газообразного UF_6 проводились по изохорам. Загрузка необходимого для каждой изохоры количества продукта производилась в пьезометр 4 (рис. 1) описанным выше способом. Поскольку в процессе загрузки продукта пьезометр разогревался до ~ 370 К, то все последующие точки снимались в режиме охлаждения пьезометра. Кривая сублимации исследовалась в процессе понижения температуры после перелома изохор. При каждом значении температуры пьезометр выдерживался для установления равновесия в течение 60 – 90 мин (в двухфазной области) и 40 – 50 мин (в области газа). Критерием равновесия было постоянное давления исследуемого вещества и показаний термопар. На каждой изохоре снималось от 7 до 10 экспериментальных точек с интервалом между

ними в 7 – 10 К. Общее количество исследованных изохор было 10.

Обработка экспериментальных данных, построение графических зависимостей, а также определение параметров аппроксимирующих выражений осуществлялись с использованием алгоритмов графо-аналитической программы “Origin 8”. При аппроксимации экспериментальных данных параметры наилучшего соответствия выбранной регрессионной модели оценивались по методу наименьших квадратов. В большинстве случаев для регрессионных моделей применялись полиномы различных порядков. Качество аппроксимирующих выражений оценивалось по величине среднеквадратичной ошибки MSE , степень приближения вычисленных по выбранной модели значений параметров состояния к экспериментальным данным – по величине среднеквадратичного отклонения MSD , а ошибка определения какой-либо отдельной величины (например, коэффициентов в полиномиальном выражении) – по величине среднеквадратичного или стандартного отклонения SD . Принципы вычисления данных ошибок во многом схожи, и отличия заключаются лишь в некоторых деталях. При вычислении MSE и MSD определяется сумма квадратов разницы между вычисленными величинами $y_{i,cal}$ и величинами $y_{i,exp}$, измеренными в эксперименте, т.е. $\sum (y_{i,cal} - y_{i,exp})^2$, а при вычислении SD – сумма квадратов разницы между измеренными величинами параметра $y_{i,exp}$ и его средним значением y_{av} . Суммирование проводится по всем измеряемым N точкам. MSE , MSD и SD численно равны квадратному корню из частного от деления полученной суммы квадратов на число d , которое различно для упомянутых терминов:

$$\sqrt{(1/d) \sum_1^N (y_i - y_{i,exp})^2}.$$

При вычислениях MSD и SD d принималось равным числу опытных точек N . При аппроксимации экспериментальных данных полиномами программа вычисляла значение квадрата среднеквадратичной ошибки MSE аппроксимирующего полинома (при этом знаменатель $d = N - 1 - n$, где n равно порядку полинома), а также значение SD для его коэффициентов. В тех случаях, когда измеряемый параметр состояния (например, давление насыщенного пара, давление газа в выражении для сжимаемости Z) входил в состав функционального выражения все действия проводились также по программе “Origin 8” в следующей последовательности: вычисление параметров состояния по аппроксимирующим функциям, определение разницы между экспериментальными и вычисленными величинами, вычисление суммы квадратов разницы чисел, а также вычисление тех же разниц и сумм квадратов в виде процентов.

При вычислении MSD для численных величин использовалась приведенная выше формула, а при вычислении MSD в процентах подкоренное выражение преобразовывалось к следующему виду:

$$\sqrt{(1/N) \sum_1^N \left[\frac{(y_i - y_{i \text{exp}}) \times 100}{y_{i \text{exp}}} \right]^2}$$

Необходимо отметить, что ошибки MSE , MSD и SD являются не безразмерными величинами, а имеют те же размерности, что и анализируемые параметры.

2. РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ

Давление сублимации UF_6 P_s экспериментально исследовано в диапазоне температур 287–330 К и давлений от 53 до 734.5 мм рт. ст. Экспериментальные данные представлены вместе с данными [14–17] на рис. 2. Как видно, наблюдается хорошее согласие результатов измерений всех перечисленных работ. Все данные (общее число точек – 82) аппроксимированы уравнением, которое в десятичных логарифмах имеет вид

$$\lg P_s [\text{мм рт. ст.}] = 12.227 - 2813.88/T - 0.00248T \quad (1)$$

и обеспечивает приближение к экспериментальным данным по давлению UF_6 со среднеквадратичным отклонением $MSD = 3.48$ мм рт. ст. и 0.84% в диапазоне температур 273–336 К и давлений 18–1070 мм рт. ст. Значение давления в тройной точке, определенное при экстраполяции уравнения (1), оказалось равным 1111.8 мм рт. ст.

На рис. 2 представлены также десять изохор UF_6 в диапазоне плотностей от 0.00188 до 0.0118 г/см³, давлений от 100 до 749 мм рт. ст. и температур от 300 до 368 К. Цифры у изохор показывают осредненные значения плотности газа. Для сравнения на графике штриховыми линиями приведены изохоры UF_6 в качестве идеального газа. Отчетливо видно, что по мере повышения плотности газа возрастает и отличие UF_6 от идеальности. Графоматематической экстраполяцией изохор к зависимости давления сублимации (1) уточнены значения температуры, давления и плотности пара UF_6 в состоянии равновесия с твердой фазой. Данные для плотности пара ρ_v аппроксимированы со среднеквадратичной ошибкой $MSE = 1.06 \times 10^{-4}$ г/см³ следующим уравнением:

$$\rho_v = 0.6731 - 0.0046T + 7.86531 \times 10^{-6} T^2 \quad (2)$$

Полученные данные в исследованном интервале температур использованы для вычисления теплоты сублимации UF_6 по формуле Клапейрона–Клаузиуса [18]

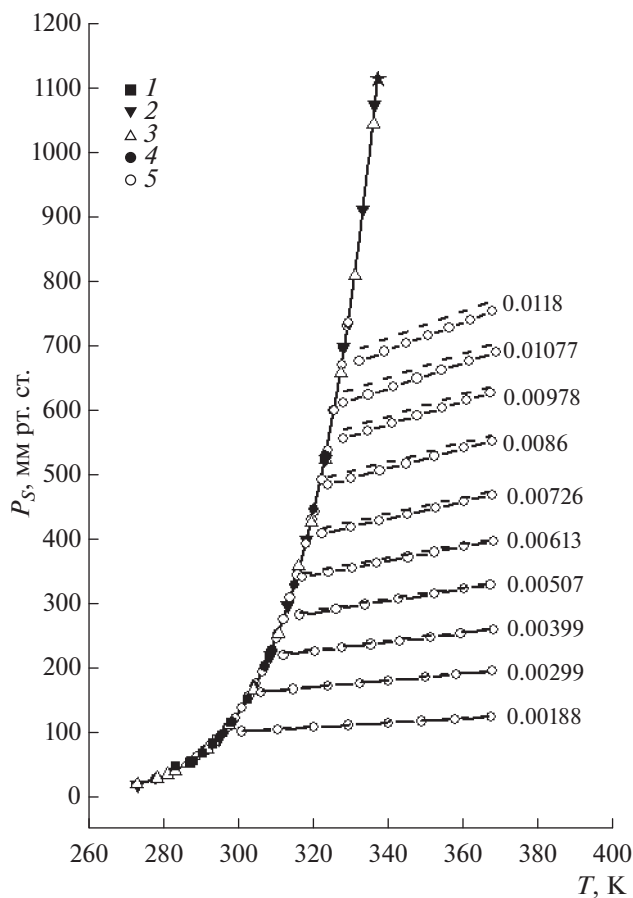


Рис. 2. Давление сублимации P_s : 1 – данные [14], 2 – [15], 3 – [16], 4 – [17], 5 – настоящей работы; звездочка – тройная точка; числа у изохор – средние значения плотности газа в г/см³.

$$\Delta H_s = (dP_s/dT)(\rho_{sp} - \rho_v)T_{eq}/(\rho_{sp}\rho_v),$$

где ρ_{sp} и ρ_v – плотности твердого UF_6 и его пара, находящихся в равновесии друг с другом; T_{eq} – равновесная температура, (dP_s/dT) – производная давления сублимации по температуре. При вычислении теплоты сублимации ΔH_s давление сублимации и его производная рассчитывались непосредственно по уравнению (1), а значение плотности твердого UF_6 было принято равным 4.93 г/см³, как в работах [4, 19].

Полученные данные для теплоты сублимации аппроксимированы уравнением

$$\Delta H_s = -136.057 + 1.9617T - 0.00347T^2, \quad (3)$$

которое обеспечивает приближение к экспериментальным данным со среднеквадратичным отклонением $MSD = 0.23$ кДж/кг и 0.17%.

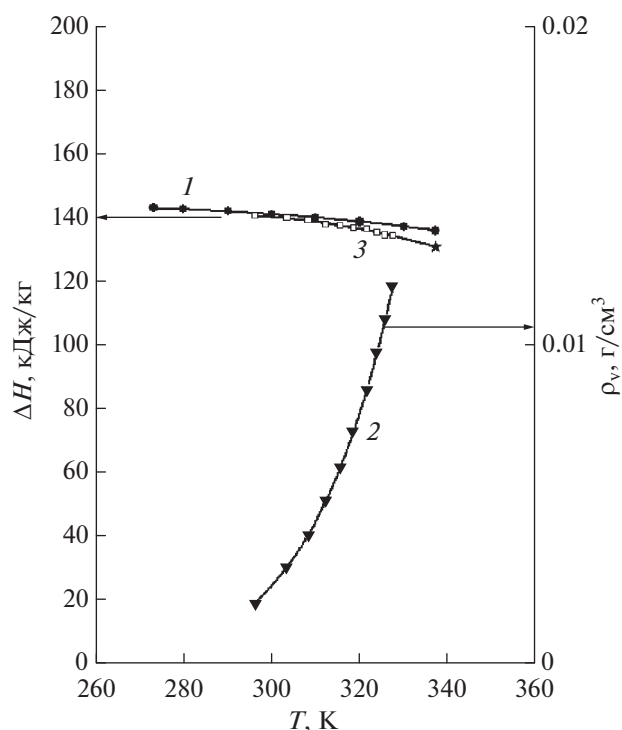


Рис. 3. Теплота сублимации ΔH_s (1, 3) и плотность пара ρ_v (2) UF_6 , равновесного с твердой фазой, в зависимости от температуры: 1, 2 – данные настоящей работы, 3 – [20].

Результаты вычислений ΔH_s , значения давления и плотности пара ρ_v в точках равновесия пара с твердой фазой представлены в табл. 1.

Зависимости $\Delta H_s(T)$ и $\rho_v(T)$ показаны на рис. 3. Там же отложены данные для теплоты сублимации, полученные Masi [20] по результатам прямых калориметрических исследований.

Чтобы подвести итог измерениям в области сублимации, все данные по параметрам UF_6 в тройной точке, которые опубликованы в открытой литературе, размещены в табл. 2. В таблице представлены также данные для плотности жидкого UF_6 ρ_l и его теплоты плавления ΔH_m . Данные, приведенные в таблице, наглядно иллюстрируют, что даже в такой наиболее изученной области существования UF_6 наблюдается заметный разброс показаний.

Поведение UF_6 в области разреженного газа демонстрируется зависимостями изохор от температуры (рис. 2) и сжимаемости $Z = P\mu/(\rho TR)$ от плотности (рис. 4), построенными для заданных температур с интервалом 5 К. Величина давления для этих температур рассчитывалась по полиномам первого порядка, полученным при аппроксимации экспериментальных данных для давления газа на изохорах. Изотермы $Z(\rho)$ так же, как и изохоры на рис. 2, наглядно иллюстрируют тенденции в возрастании отличия UF_6 от идеального

Таблица 1. Плотность пара ρ_v UF_6 , давление сублимации P_s при температуре равновесия T_{eq} пара с твердой фазой и теплота сублимации ΔH_s

T_{eq} , К	296.2	303.5	308.3	312.3	315.6	318.6	321.7	324.0	325.8	327.5	337.21
$\rho_v \times 10^{-3}$, г/см ³	1.88	2.99	3.99	5.08	6.14	7.27	8.60	9.78	10.77	11.81	0.0171*
P_s , мм рт. ст.	96.1	159.2	215.2	276.8	336.8	401.3	478.2	546.2	604.2	664.4	1111.8*
ΔH_s , кДж/кг	140.6	139.9	138.1	137.9	137.3	136.7	136.4	135.4	134.4	134.2	130.9*

*Значения параметров UF_6 , полученные экстраполяцией уравнений (1)–(3).

Таблица 2. Параметры UF_6 в тройной точке

T_{tp} , К	337.21	337.21	338.06	337.18	337.21	337.21
P_s , мм Нг	1142	1130	1161	1129.5	1111.8*	1111.8*
ρ_v , г/см ³						0.0171*
ρ_l , г/см ³	3.674		3.624			
ΔH_s , кДж/кг				135.31	135.9	130.9*
ΔH_m , кДж/кг	54.56	54.55	54.14	54.22	54.34–54.55	
Источник	[19]	[15]	[16]	[17]	[20]	(1) (2) (3)

*Результаты аппроксимации по уравнениям в последней строке.

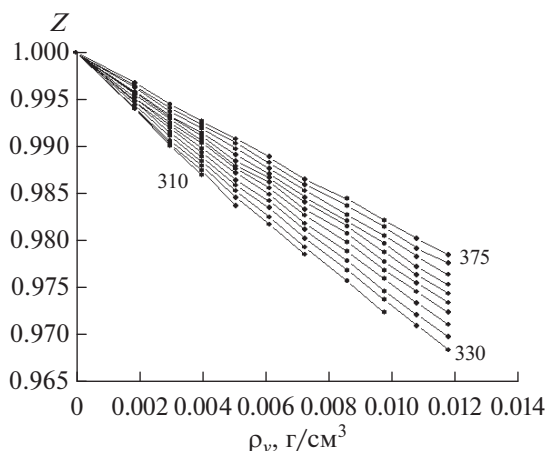


Рис. 4. Зависимость сжимаемости Z от плотности разреженного газа UF_6 : числа у кривых – значения температуры с шагом 5 К.

газа с увеличением плотности. Так, если при температуре 370 К и плотности 0.00188 г/см^3 отличие Z от единицы составляет 0.35%, то уже при плотности 0.0118 г/см^3 оно возрастает до 2.3%.

В качестве регрессионной модели для уравнения состояния UF_6 выбрано вириальное уравнение, ограниченное двумя первыми членами: $Z = 1 + B\rho$. В этом выражении коэффициент B вполне обоснованно можно отождествить со вторым вириальным коэффициентом B . Для построения уравнения состояния UF_6 были использованы изотермы $Z(\rho)$, полученные для заданных температур и представляющие собой веер прямых линий, исходящих из точки $(0, 1)$ (рис. 4). Изотермы $Z(\rho)$ аппроксимированы со среднеквадратичными ошибками MSE в пределах $(1.2\text{--}2.8) \times 10^{-4}$ полиномами первого порядка, в результате чего были определены ВВК, значения которых представлены в табл. 3. Там же приведены рассчитанные значения SD . Полученные данные для ВВК аппроксимированы по температуре с $MSD = 0.025 \text{ см}^3/\text{г}$ и 0.12% полиномом второго порядка, после чего уравнение состояния приобрело следующий вид:

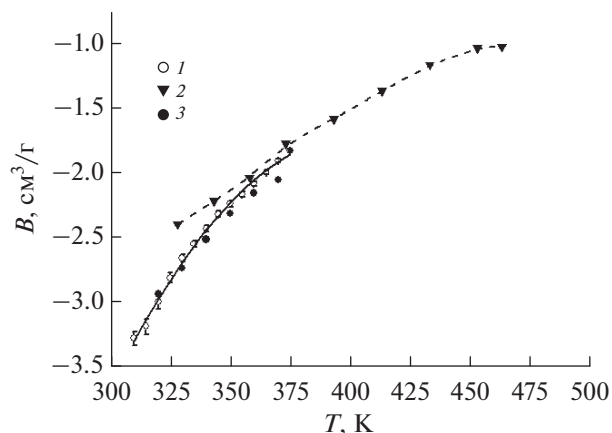


Рис. 5. Второй вириальный коэффициент UF_6 в зависимости от температуры: 1 – данные настоящей работы, 2 – [21], 3 – [8].

$$Z = P\mu/(\rho TR) = 1 + B\rho = 1 - (31.258 - 0.14643T + 1.8137 \times 10^{-4}T^2)\rho.$$

Данное уравнение обеспечивает приближение к экспериментальным значениям давления UF_6 со среднеквадратичным отклонением $MSD = 0.53 \text{ мм рт. ст.}$ и 0.12% во всей исследованной области параметров состояния в интервале температур 330–375 К, давлений 100–750 мм рт. ст. и плотностей $(0.19\text{--}1.2) \times 10^{-3} \text{ г/см}^3$. В реальности погрешность в определении параметров состояния UF_6 с учетом ошибки в определении плотности, составляющей 0.1–0.15% (см. п. 1.4), может возрасти до 0.25%. Полученное уравнение дает лучшее приближение к экспериментальным данным, чем прежнее уравнение [8].

Зависимость ВВК от температуры изображена на рис. 5. На графике также отложены данные, полученные ранее в интервале температур 320–370 К [8], и данные [21], полученные по результатам исследования сжимаемости разреженного газа UF_6 в интервале температур 328–463 К. Как видно, наблюдается отличие результатов [8] от данных настоящей работы, которое в среднем составляет

Таблица 3. Второй вириальный коэффициент UF_6 и его стандартные отклонения SD

$T, \text{ К}$	310	315	320	325	330	335	340
$B, \text{ см}^3/\text{г}$	-3.27	-3.18	-2.99	-2.81	-2.65	-2.54	-2.43
SD	0.053	0.062	0.053	0.038	0.026	0.024	0.024
$T, \text{ К}$	345	350	355	360	365	370	375
$B, \text{ см}^3/\text{г}$	-2.32	-2.23	-2.16	-2.08	-1.99	-1.90	-1.83
SD	0.026	0.024	0.022	0.019	0.012	0.012	0.0096

4%. Однако результаты настоящей работы по методу их получения представляются наиболее объективными. Отличие [21] от данных настоящей работы довольно значительное, но оно уменьшается с ростом температуры от 10% при $T = 330$ К до 4% при $T = 370$ К.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Представлены обновленные результаты экспериментальных исследований теплофизических свойств гексафторида урана в области разреженного газа в интервале температур от 287 до 368 К, давлений от 53 до 750 мм рт. ст. и плотностей газа от 0.00188 до 0.0118 г/см³, полученные переработкой прежних данных автора с использованием графо-математической программы "Origin-8". Уточнены результаты по давлению и температуре пара, равновесного с твердой фазой, и теплоте сублимации UF₆. По P - V - T -данным построено новое уравнение состояния UF₆, которое обеспечивает приближение к опытным данным по давлению со среднеквадратичным отклонением 0.53 мм рт. ст. и 0.12% во всей исследованной области параметров состояния. Обновлены данные для второго вириального коэффициента. Экспериментальные данные представлены в виде таблиц, графических зависимостей и аппроксимирующих функциональных выражений.

Результаты работы наглядно иллюстрируют целесообразность выполненной переработки прежних экспериментальных данных, позволившей получить новую информацию о теплофизических свойствах UF₆. Представленные в работе экспериментальные данные и аналитические выражения могут рассматриваться как справочный материал и использоваться для вычислений параметров состояния и различных термодинамических характеристик гексафторида урана.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Кикоин И.К., Дмитриевский В.А., Григорьев И.С. и др. Стеновый реактор с газообразным делящимся веществом UF₆ // Тр. Второй междунар. конф. по мирному использованию атомной энергии. Женева, 1958. Т. 2. Ядерные реакторы и ядерная энергетика. М., 1959. С. 232.
2. Дмитриевский В.А., Воинов Е.М., Тетельбаум С.Д. Применение гексафторида урана в ядерных энергетических установках // Атомная энергия. 1970. Т. 29. Вып. 4. С. 251.
3. Иосилевский И.Л., Луцик В.Г., Решмин А.И. Ядерные энергоустановки с циркулирующим топливом на основе гексафторида урана: результаты исследований гидродинамики и теплообмена, приложения, проблемы и перспективы (обзор) // Изв. РАН. МЖГ. 2018. № 4. С. 113.
4. Кац Дж., Рабинович Е. Химия урана. М.: Изд-во иностр. лит., 1954. С. 322.
5. Белянин В.С. Теплофизические свойства гексафторидов урана и вольфрама // Обзоры по теплофизическим свойствам веществ. М.: НИЦ ИВТ АН СССР, 1976. № 1. 154 с.
6. Малышев В.В. Экспериментальное исследование термодинамических свойств гексафторидов молибдена, вольфрама и урана в широкой области параметров состояния. Дис. ... канд. физ.-мат. наук. М.: Ин-т атомной энергии им. И.В. Курчатова, 1973. 198 с.
7. Малышев В.В. Уравнение состояния гексафторида урана в широкой области параметров состояния // Атомная энергия. 1972. Т. 32. № 4. С. 313.
8. Малышев В.В. Уравнения состояния UF₆ в области изменения плотности до 0.01180 г/см³ и температуры до 367 К // Атомная энергия. 1973. Т. 34. № 1. С. 42.
9. Малышев В.В. Экспериментальное исследование сжимаемости гексафторида урана в широкой области параметров состояния. В сб.: Теплофизические свойства газов / Под ред. Новикова И.И. М.: Наука, 1973. С. 142.
10. Zarkova L., Hohm U. pVT -second Virial Coefficients $B(T)$, Viscosity $\eta(T)$, and Self-Diffusion $\rho D(T)$ of the Gases: BF₃, CF₄, SiF₄, CCl₄, SiCl₄, SF₆, MoF₆, WF₆, UF₆, C(CH₃)₄, and Si(CH₃)₄ Determined by Means of an Isotropic Temperature-dependent Potential // J. Phys. Chem. Ref. Data. 2002. V. 31. № 1. P. 183.
11. Al-Matar A.K., Binous H. Vapor-liquid Phase Equilibrium Diagram for Uranium Hexafluoride (UF₆) Using Simplified Temperature Dependent Intermolecular Potential Parameters (TDIP) // J. Radioanal Nucl. Chem. 2016. V. 310. № 1. P. 139.
12. Рысс И.Г. Химия фтора и его неорганических соединений. М.: Госхимиздат, 1956. 720 с.
13. Малышев В.В. Мембранный нуль-индикатор для измерения давления в агрессивных средах и схемы с автоматической регулировкой противодавления // ТВТ. 1972. Т. 10. № 6. С. 1277.
14. Amphlett C.B., Mullinger L.W., Thomas L.F. Some Physical Properties of Uranium Hexafluoride // Trans. Faraday Soc. 1948. V. 44. P. 927.
15. Weinstock B., Crist R.H. The Vapor Pressure of Uranium Hexafluoride // J. Chem. Phys. 1948. V. 16. № 5. P. 436.
16. Llewellyn D.R. Some Physical Properties of Uranium Hexafluoride // J. Chem. Soc. 1953. P. 28. <https://doi.org/10.1039/JR9530000028>
17. Oliver G.D., Milton H.T., Grisard J.W. The Vapor Pressure and Critical Constants of Uranium Hexafluoride // J. Amer. Chem. Soc. 1953. V. 75. № 12. P. 2827.
18. Физическая энциклопедия / Под ред. Прохорова А.М. М.: Сов. энц., 1990. Т. 2. С. 372.
19. Brickwedde F.G., Hoge H.J., Scott R.B. The Low Temperature Heat Capacities, Enthalpies, and Entropies of UF₄ and UF₆ // J. Chem. Phys. 1948. V. 16. № 5. P. 429.
20. Masi J.F. The Heats of Vaporization of Uranium Hexafluoride // J. Chem. Phys. 1949. V. 17. № 9. P. 755.
21. Morizot P., Ostorero J., Plurien P. Viscosité et non-idéalité des hexafluorures de molybdène, de tungstène, d'uranium détermination de leurs paramètres moléculaires // J. Chim Phys. 1973. V. 58. P. 1582.