

О Т З Ы В

дополнительного члена диссертационного совета ДС.ТПУ.04, доктора технических наук, профессора отделения ядерно-топливного цикла Инженерной школы ядерных технологий Национального Исследовательского Томского политехнического университета, Ливенцова Сергея Николаевича на диссертационную работу Семенова Андрея Олеговича «Получение материала на основе алюмината неодима для иммобилизации актиноидной фракции радиоактивных отходов методом самораспространяющегося высокотемпературного синтеза», представленную на соискание учёной степени кандидата технических наук по специальности 1.3.14 - Теплофизика и теоретическая теплотехника.

Актуальность работы. Развитие атомной энергетики сопровождается возрастающим количеством радиоактивных отходов и постоянным поиском перспективных путей их переработки и хранения. Кристаллические матрицы способны на протяжении длительного периода надежно удерживать в себе и герметизировать высокоактивные фракции радиоактивных отходов. К одному из методов получения таких материалов относится самораспространяющийся высокотемпературный синтез (СВС), преимуществами которого являются возможность получения материалов с заранее заданными свойствами и высокой чистотой конечного продукта, низкое энергопотребление и возможность управления процессом на всех этапах синтеза.

В диссертационной работе Семенова А.О. поставлены задачи по разработке технологии получения матричного материала на основе алюмината неодима, предназначенного для иммобилизации актиноидной фракции радиоактивных отходов методом самораспространяющегося высокотемпературного синтеза. Также показаны преимущества предложенной матрицы и технологии ее получения, что доказывает актуальность представленной работы.

Краткий анализ содержания работы

Введение - обоснована актуальность, определены цели и поставлены задачи работы, показаны научная новизна, теоретическая и практическая значимость исследования, предложены методология и методы получения искомых результатов, а также сформулированы положения, выносимые на защиту.

В первой главе представлен анализ результатов научно-исследовательских работ, посвященных изучению свойств матричных материалов, предназначенных для иммобилизации актиноидной фракции радиоактивных отходов, их особенности, способы получения, и последующее применение в атомной энергетике. Показано, что использование технологии самораспространяющегося высокотемпературного синтеза является перспективным способом

вследствие возможности получения продукта с заданными свойствами и составом при низких энергетических затратах.

Во второй главе представлено описание объектов исследования, методик синтеза, методов исследований и аналитического оборудования, используемого в работе.

В третьей главе изложены результаты термодинамического расчета синтеза алюмината неодима из оксидов и обсуждены результаты экспериментов по синтезу алюмината неодима при использовании различных способов управления процессом СВС путем изменения на стадии подготовки шихты: плотности образца, температуры предварительного подогрева, степени разбавления системы.

Расчет показал, что реакция синтеза NdAlO_3 из оксидов Nd_2O_3 и Al_2O_3 носит эндотермический характер и возможна при достижении системой температуры выше 900 К. Использование дополнительной экзотермической реакции с большим энергетическим выходом и ее разбавление системой $\text{Nd}_2\text{O}_3\text{-Al}_2\text{O}_3$ позволит достичь необходимых параметров синтеза.

Экспериментально установлено, что синтез матричного материала на основе алюмината неодима при различном массовом содержании реагирующих компонентов в реакции СВ-синтеза никель алюминия возможен при содержании в исходной системе не выше 40 масс. % $\text{Nd}_2\text{O}_3\text{-Al}_2\text{O}_3$ вне зависимости от плотности шихты. Максимальная доля перовскита получена в образце с 40 % масс. содержанием реагентов $\text{Nd}_2\text{O}_3\text{-Al}_2\text{O}_3$ и давлении прессования 30 МПа, соответствующего плотности $5,15 \pm 0,03$ г/см³. Стационарный режим горения шихты наблюдается при температуре предварительного подогрева 633 К и выше.

В четвертой главе представлены результаты исследования физико-механических и физико-химических свойств матричного материала на основе NdAlO_3 .

Исследование устойчивости к процессам выщелачивания матричного материала на основе алюмината неодима показало, что значение максимальной линейной скорости коррозии матричного материала составляет порядка $5,15 \cdot 10^{-10}$ см/сутки, что позволяет говорить о надежной изоляции радионуклидов в течении довольно продолжительного времени при постоянном контакте с водной средой.

Установлено, что возникают незначительные радиационные повреждения структуры алюмината неодима потоком нейтронного облучения в исследовательском ядерном реакторе при флюенсе 10^{19} н/см², показаны незначительные разрушения кристаллической структуры, обусловленное появлением дефектов, приводящих к изменению максимального значения плотности на 4,3%.

В выводах обобщены основные результаты работы.

Наиболее значимая научная новизна результатов отличает диссертационное исследование от предыдущих работ тем, что:

- Впервые по результатам анализа термодинамического расчета, основанного на определении адиабатической температуры горения, показана возможность синтеза алюмината неодима методом самораспространяющегося высокотемпературного синтеза и установлены критические параметры, при которых возможен процесс горения и образования NdAlO_3 .

- Изучено влияние массового содержания реагирующих компонентов оксидов алюминия и неодима в исходной шихте на фазовый состав матричных материалов, полученных СВС методом (оптимальное массовое содержание системы $\text{Nd}_2\text{O}_3\text{-Al}_2\text{O}_3$ до 41,5% масс. алюмината неодима).

- Установлена динамика изменения основных матричных характеристик вследствие воздействия потоков ионизирующего излучения при имитации длительного хранения материала на протяжении 1000 лет.

Практическая значимость работы заключается в том, что на основе проведенных исследований разработан метод получения матричного материала на основе алюмината неодима со структурой перовскита методом самораспространяющегося высокотемпературного синтеза, обладающего повышенными гидролитическими характеристиками, по сравнению с традиционными боросиликатными и алюминофосфатными стеклами. Его применение позволяет получить матрицы в виде изделия пригодного для захоронения в геологических формациях без дополнительных операций. Результаты внедрены и используются Учебно-научным центром «Исследовательский ядерный реактор», а также в учебном процессе в Национальном исследовательском Томском политехническом университете при подготовке выпускных квалификационных работ и магистерских диссертаций студентов, обучающихся по направлению «Ядерная физика и технологии».

Диссертация соответствует паспорту специальности 1.3.14 «Теплофизика и теоретическая теплотехника» в части пункта 6 – «Экспериментальные исследования, физическое и численное моделирование процессов переноса массы, импульса и энергии в многофазных системах и при фазовых превращениях», и в части пункта 7 – «Экспериментальные и теоретические исследования процессов совместного переноса тепла и массы в бинарных и многокомпонентных смесях веществ, включая химически реагирующие смеси».

Достоверность и обоснованность экспериментальных данных, полученных в диссертационной работе, обеспечивается проведением исследований с использованием современного аналитического и технологического оборудования, применением комплексных методов исследования материалов, повторяемостью результатов экспериментов.

Личный вклад автора заключается в проработке литературы по теме диссертации и участие в обсуждении планов экспериментальных исследований; синтезе и подготовка опытных образцов для экспериментальных исследований; обработке результатов рентгеноструктурного

анализа полученных образцов, проведении экспериментов по определению гидролитической устойчивости; участии в обсуждении полученных результатов, оформлении и подготовке их к публикации.

Замечания по диссертационной работе.

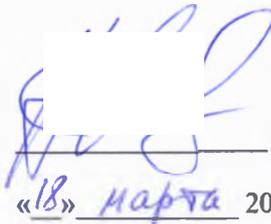
Оценивая в целом положительно как научное, так и практическое значение диссертационного исследования Семенова А.О., необходимо отметить, что работа не свободна от недостатков:

1. В диссертации не указаны полные параметры используемых химических реагентов: чистота, наличие примесей, морфология и т.д.
2. Не оценена возможность применения дополнительных источников энергии внутри указанных в работе СВ-систем с целью расширения потенциальных вариантов матриц для иммобилизации РАО.
3. Не до конца понятны параметры облучения образцов: автор на страницах 61 и 112 диссертации, а также на стр.16 автореферата утверждает о флюенсе нейтронов, однако указывает единицы измерения плотности потока нейтронов.
4. Обработка результатов экспериментов не отличается тщательностью, в частности на графиках не приводятся доверительные интервалы.
5. В диссертации встречаются опечатки и стилистические неточности.

Заключение. Диссертация Семенова А.О. «Получение материала на основе алюмината неодима для иммобилизации актиноидной фракции радиоактивных отходов методом самораспространяющегося высокотемпературного синтеза» является научно-квалификационной работой, содержащей новое техническое решение по получению матричных материалов, которое, несомненно, будет востребовано в атомной промышленности. По актуальности, новизне и значимости полученных результатов диссертационная работа Семенов А.О. соответствует требованиям п.п. 2.1-2.5 Порядка присуждения ученых степеней в Национальном исследовательском Томском политехническом университете, утвержденного приказом ректора ТПУ 362-Под от 28.12.2021г. (dis.tpu.ru), а её автор, Семенов Андрей Олегович, заслуживает присуждения учёной степени кандидата технических наук по специальности 1.3.14-Теплофизика и теоретическая теплотехника.

Я, Ливенцов Сергей Николаевич, согласен на автоматизированную обработку персональных данных, приведенных в настоящем документе.

Доктор технических наук, профессор
отделения ядерно-топливного цикла
Инженерной школы ядерных технологий,
Томский политехнический университет



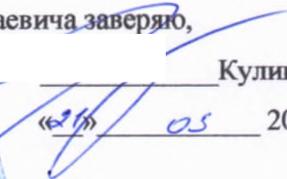
Ливенцов Сергей Николаевич

«18» марта 2022 г

ФГАОУ ВО Национальный исследовательский
Томский политехнический университет
634050, г. Томск, пр. Ленина 30,
Тел. +7 (3822) 606343
E-mail: livetsov@tpu.ru

Подпись Ливенцова Сергея Николаевича заверяю,

Ученый секретарь ТПУ



Кулинич Екатерина Александровна

«18» марта 2022 г