

## ОТЗЫВ

официального оппонента на диссертацию Ван Цайлунь «Распространение ионов щелочных и щелочноземельных элементов через природный и облученный слоистые минералы», представленную на соискание ученой степени кандидата технических наук по специальности 2.4.9 Ядерные энергетические установки, топливный цикл, радиационная безопасность.

### Актуальность диссертационной темы

В связи с непрерывным развитием атомной энергетики перед мировым сообществом встает важная задача обращения с радиоактивными отходами (РАО). Безопасное захоронение высокоактивных РАО является сложным вопросом для устойчивого развития атомной отрасли. В настоящее время широко применяется глубокое геологическое захоронение, при котором высокоактивные РАО захораниваются на глубине от 500 до 1000 метров от поверхности земли. При использовании многобарьерной системы это исключает негативное воздействие радионуклидов на биосферу. Создание хранилищ — это длительный систематический процесс, который обычно включает в себя фундаментальные исследования, оценку мест расположения, подземные лабораторные исследования, проектирование и строительство.

Хранилища должны обеспечивать локализацию и изоляцию радионуклидов в течение более чем 10 000 лет при различных сценариях развития событий и неопределенности в будущем, чтобы обеспечить долгосрочную безопасность и выполнить нормативные требования. Для обеспечения защитной роли хранилища особенно важно знать характеристики глинистых минералов, которые служат конечным барьером. Поэтому тема диссертационного исследования Ван Цайлунь по изучению факторов, влияющих на миграцию катионов радионуклидов в глинистых минералах, несомненно, обладает актуальностью.

### Структура и основное содержание работы

Диссертационная работа состоит из введения, 5 глав, заключения, списка цитируемой литературы. Диссертация изложена на 159 страницах, включая 42 рисунка, 18 таблиц. Список цитируемой литературы содержит 223 наименования.

**Во введении** обосновывается актуальность темы диссертации, формулируются цель и задачи исследований, представлена научная новизна, показывается теоретическая и практическая значимость полученных результатов, излагаются научные положения, выносимые на защиту, сведения об апробации результатов и публикации по теме исследования.

**В первой главе** представлен обзор литературных данных о проведенных на сегодняшний день исследованиях по темам, связанным с моделированием и экспериментальными исследованиями влияния различных факторов на глинистые минералы. В нем также рассматривается основная структура глинистых минералов, свойства набухания и анизотропия адсорбции катионов на поверхности глины.



**Во второй главе** описаны возможные энергетические барьеры и траектории миграции катионов  $\text{Li}^+$ ,  $\text{Cs}^+$  и  $\text{Rb}^+$  между пакетами глинистых минерала иллит в отсутствие воды. Также рассматривается распределение частиц в двойном диффузном слое иллита.

**Во третьей главе** представлены результаты моделирования диффузии катионов в межпакетном пространстве вермикулита в температурном диапазоне РАО геологического захоронения и низкой гидратации глины. Показано, что положение и количество изоморфных замещений в вермикулите может оказывать существенное влияние на миграцию катионов. При этом миграция двухвалентных катионов будет происходить медленнее, чем одновалентных, из-за образования гидратов с большими радиусами.

**Во четвертой главе** рассмотрены диффузия и распределение различных катионов в Са-Монтмориллоните (ММТ), содержащем некоторое количество катионов  $\text{Sr}^{2+}$  и ионов  $\text{Ba}^{2+}$ . Полученные результаты подтверждают, что катионы с большими энергиями гидратации с большей вероятностью образуют внешнесферные комплексы, преимущественно занимающие середину межпакетного пространства, а катионы с малыми энергиями гидратации с большей вероятностью взаимодействуют с поверхностью глинистого пакета, образуя внутрисферные комплексы. При этом внутрисферные комплексы имеют меньшую скорость диффузии. Коэффициент диффузии молекул воды увеличивается в ряду Са-ММТ, Са-Ва-ММТ, Са-Sr-ММТ, Са-Sr-Ва-ММТ. Нарушение закономерности для Са-Ва-ММТ обусловлено тем, что  $\text{Ba}^{2+}$  со слабой гидратацией сильнее взаимодействует с базальной поверхностью минерала, чем с  $\text{H}_2\text{O}$ . При этом молекулы воды больше взаимодействуют с  $\text{Ca}^{2+}$ , имеющем максимальную энергию гидратации. Во всех случаях энергия гидратации и коэффициенты диффузии катионов в ММТ значительно ниже, чем в свободной воде при той же температуре.

**Во пятой главе** представлены результаты определения связи между изменением барьерных характеристик глины и поглощенной дозой облучения. Измеряли экспериментально скорость диффузии катионов  $\text{Na}^+$  через природную и облученную глины. Результаты экспериментальных исследований были также использованы для оценки времени безопасной эксплуатации действующего пункта захоронения РАО, расположенного на СХК.

#### **Соответствие диссертации паспорту специальности 2.4.9. Ядерные энергетические установки, топливный цикл, радиационная безопасность**

Содержание диссертации соответствует следующим пунктам области исследования паспорта научной специальности 2.4.9:

П.2. Разработка методик экспериментальных методик и экспериментальные исследования в реакторных условиях и вне реакторов свойств и характеристик материалов, конструкций, оборудования и систем с целью выявления закономерностей их изменения в течение жизненного цикла объектов ядерной техники.



П. 6. Разработка методов обоснования ядерной и радиационной безопасности и экологической приемлемости технологий и объектов ядерной техники.

### **Степень обоснованности положений и достоверности полученных результатов**

Обоснованность научных положений и достоверности полученных результатов определяется аргументированным выбором направления работы и применением фундаментальных теоретических методов исследований в рассматриваемой области, подтверждается успешной апробацией полученных автором результатов на научных конференциях.

### **Научная новизна**

Научная новизна результатов диссертационного моделирования связана с тем, что впервые показано:

1. На основании термодинамических расчётов были определены обменные свойства глины иллит. Впервые показано, что при отсутствии воды в межслойном пространстве коэффициент диффузии катионов  $\text{Li}^+$ ,  $\text{Rb}^+$ ,  $\text{Cs}^+$  очень низкий – диффузия катионов практически невозможна.

2. На основании расчёта методом молекулярной динамики было показано, что заряд и закономерности замещения атомов в пакетах глинистых минералов оказывают значительное влияние на коэффициент диффузии катионов между пакетами.

3. Впервые показано, что коэффициент диффузии межпакетных катионов  $\text{Na}^+$ ,  $\text{Cs}^+$ ,  $\text{Rb}^+$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Ba}^{2+}$  и молекул воды в вермикулите зависит не только от температуры, но и степени гидратации.

4. Показано, что при наличии между пакетами минерала вермикулит смеси  $\text{Na}^+$  и  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Na}^+$  и  $\text{Ba}^{2+}$  катионы щелочноземельных металлов  $\text{Mg}^{2+}$  и  $\text{Ba}^{2+}$  образуют гидрат с большим радиусом, преимущественно расположенный в середине межпакетного пространства.

5. При моделировании набухания Са-ММТ впервые установлено, что если часть катионов  $\text{Ca}^{2+}$  заменяются на ионы  $\text{Sr}^{2+}$  или  $\text{Ba}^{2+}$ , то межпакетное набухание увеличивается из-за появления катионов большого радиуса.

6. Установлено, что при облучении смешанных глин излучением  $^{60}\text{Co}$  до поглощенной дозы 0,3 МГр увеличивается как адсорбционная емкость, так и коэффициент диффузии ионов  $\text{Na}^+$  через уплотненный слой глины.

### **Практическая ценность**

Практическое значение имеют результаты исследования барьерных свойств глинистых минеральных смесей, используемых в качестве радиационно-защитных материалов, и миграции катионов между глинистыми упаковками при различных условиях. Следует отметить, что уже при поглощенной дозе 0,3 МГр происходит частичное разрушение структуры глинистого слоя, что приводит к увеличению скорости миграции катионов через глинистый слой. Это имеет большое значение при проектировании захоронения



радиоактивных отходов для определения радиационной безопасности.

### **Достоверность результатов, обоснованность научных положений и выводов**

Достоверность результатов, полученных Ван Цайлунь, не вызывает сомнений. Она обеспечена применением известных, зарекомендовавших себя методов моделирования и расчета, поверенного программного обеспечения, поверенных приборов и измерительных комплексов, хорошим согласованием полученных результатов, полученных экспериментально, с результатами моделирования, а также с результатами других исследователей.

### **Личный вклад автора**

Основные результаты, представленные в диссертационной работе, получены автором лично или при её непосредственном участии.

### **Полнота опубликования основных результатов диссертационной работы**

Основные результаты диссертационной работы опубликованы в 7 статьях в рецензируемых научных журналах, рекомендованных ВАК, в том числе 5 статей в журналах, индексируемых в Scopus и WoS.

### **Замечания по диссертационной работе**

По диссертационной работе имеются следующие вопросы и замечания:

1. Во второй главе при приведении результаты определения энергетического барьера нерасширяющегося иллита не написано о конкретном методе моделирования. В целом, желательно было бы более подробное описание в части «Методы моделирования»: размер ячеек, количество ячеек в суперячейке, положение катионов в начале моделирования и т.д. А также такой метод использовался MD или Монте-Карло?
2. На ст. 72 в которой приведен рисунок 3.4b для воды с температурой 300 К и 350 К, было бы желательно показать постепенный переход промежуточных пиков.
3. Почему диффузия воды при наличии Cs и Rb более ограничена, чем для Na, который, вероятно, будет удален из их гидратационных оболочек?
4. Взаимодействие различных катионов и катионов  $\text{Na}^+$  с молекулами воды в межпакетном пространстве и с кислородом на поверхности глинистого пакета рассматривается в разделе 3.5 соответственно, однако в конце эти взаимодействия не сравниваются и не обобщаются.
5. Как правило, MSD как функция времени должна представлять собой прямую линию. Однако на рисунке 4.7 кривая, полученная для катиона при низкой гидратации (один слой воды, два слоя воды), нелинейна с течением времени. В тексте не приводится объяснение такого поведения.
6. Диссертация содержит опечатки и пропуски, например, местоимений, что, впрочем, не искажает смысла фраз.

### **Соответствие диссертации критериям Положения о присуждении**



## ученых степеней в УрФУ

Диссертационная работа Ван Ц. в полном объеме отвечает критериям, которые установлены Положением о присуждении ученых степеней в ФГАОУ ВО «Уральский федеральный университет имени первого Президента России Б.Н. Ельцина». В диссертационной работе приведены научно-обоснованные решения, внедрение которых имеет важное хозяйственное значение для развития системы радиационной безопасности персонала объектов использования атомной энергии, а также для населения.

### Общее заключение диссертационной работы

Имеющиеся замечания не снижают общего благоприятного впечатления от диссертационной работы.

Диссертация Ван Цайлунь «Распространение ионов щелочных и щелочноземельных элементов через природные и облученные слоистые минералы» является законченной научно-исследовательской работой. Полученные результаты, научные положения и выводы, представленные автором в работе, обоснованы, достоверны, высоко оригинальны, имеют теоретическую и практическую значимость.

На основании актуальности, научной новизны и достоверности полученных результатов диссертация соответствует требованиям, предъявляемым к диссертациям на соискание ученой степени кандидата технических наук согласно п. 9 Положения о присуждении ученых степеней в УрФУ, а соискатель Ван Цайлунь заслуживает присуждения ей ученой степени кандидата технических наук по специальности 2.4.9. Ядерные энергетические установки, топливный цикл, радиационная безопасность.

Официальный оппонент:

доктор технических наук, доцент  
ведущий научный сотрудник научно-исследовательского отделения  
учебно-научного комплекса пожаротушения и проведения аварийно-спасательных работ ФГБОУ ВО Уральский институт государственной противопожарной службы МЧС России

Барбин Николай Михайлович

Дата 09.10.21

Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования «Уральский институт государственной противопожарной службы Министерства Российской Федерации по делам гражданской обороны, чрезвычайным ситуациям и ликвидации последствий стихийных бедствий»

620062, Свердловская область, г. Екатеринбург, ул. Мира, д. 22.

Телефон 8 (343) 374-07-06, 360-80-74

Электронная почта [uigps@uigps.ru](mailto:uigps@uigps.ru) Сайт <https://uigps.ru>

*Подпись Н.М. Барбина*  
*Сот. юрисконсульт Барбин*

