ОТЗЫВ ОФИЦИАЛЬНОГО ОППОНЕНТА

доктора химических наук, старшего научного сотрудника Смирнова Игоря Валентиновича
на диссертацию Беспала Евгения Владимировича
«Разработка методологии и технологий обращения с графитовыми радиоактивными отходами»,
представленную на соискание ученой степени доктора технических наук
по специальности 2.4.9. Ядерные энергетические установки, топливный цикл, радиационная безопасность

Общие сведения

Диссертационная работа Беспала Евгения Владимировича посвящена исследованию физико-химических свойств облученного ядерного графита, извлеченного из кладок уран-графитовых ядерных реакторов, разработке научных основ и технологий его переработки для последующего безопасного захоронения. Обозначенная научно-техническая проблема переработки облученного графита успешно решена в диссертационной работе соискателя, а полученные результаты могут быть использованы не предприятиях атомной отрасли.

Основное содержание диссертационного исследования отражено в 59 работах, в их числе 29 статей, опубликованных в рецензируемых научных изданиях, включая 16 статьей в изданиях, индексируемых в базе данных Scopus и Web of Science, 8 патентов РФ.

Диссертация состоит из введения, 6 глав, заключения, списка сокращений и условных обозначений, списка цитируемой литературы. Диссертация изложена на 345 страницах машинописного текста, включая 129 рисунков, 27 таблиц и список литературы из 244 наименований.

Актуальность работы

На территории Российской Федерации функционировали 13 промышленных уран-графитовых реакторов (ПУГР); энергетические уран-графитовые реакторы (УГР) АМ Обнинской АЭС; 2 УГР АМБ-100 и АМБ-200 Белоярской АЭС; 4 УГР ЭГП-6 Билибинской АЭС; 11 УГР РБМК-1000 Ленинградской, Курской и Смоленской АЭС. К настоящему моменту все ПУГР, реакторы Белоярской и Обнинской АЭС остановлены, и выводятся из эксплуатации. Завершается срок эксплуатации энергетических УГР РБМК и ЭГП. К 2030 году будут остановлены практически все УГР. При этом количество накопленных графитовых радиоактивных отходов (РАО) составляет 60 000 тонн. В связи с этим **актуальными** являются исследования, направленные на разработку научных основ методологии и технологий обращения с графитовыми радиоактивными отходами, чему и посвящено диссертационное исследование Е.В. Беспала.

Достоверность и обоснованность полученных результатов и сделанных выводов не вызывает сомнений. Достоверность полученных результатов подтверждается использованием при разработке математических моделей классических положений механики и теплофизики, использованием в экспериментальных исследованиях аттестованных приборов и методик, сертифицированного оборудования. Обоснованность результатов исследований обеспечивается их внутренней согласованностью, отсутствием противоречий между экспериментальными данными, предложенными моделями и научными выводами, а также результатами научных исследований других авторов.

Материалы диссертации полно представлены в работах, опубликованных соискателем.

Общая характеристика содержания диссертации с оценкой значимости результатов

Во введении обоснована актуальность работы; проведен анализ степени разработанности темы исследования; сформулированы цель, задачи; отражены научная новизна, теоретическая и практическая значимость работы; описаны методы исследования; приведены положения, выносимые на защиту; обоснована достоверность результатов экспериментальных и теоретических исследований; приведены сведения об апробации работы.

В **первой главе** описаны основные источники образования графитовых РАО и оценено их количество. Рассмотрен процесс получения ядерного графита и показано, что на каждой стадии его производства происходит накопление примесей, которые активируются при работе реактора. Проанализированы процессы образования дефектов в графите, изменяющих кристаллическую структуру и физико-механические свойства материала, под действием повреждающих нейтронов. Показано, что при облучении меняется пористость ядерного графита, количество открытых пор уменьшается, а закрытых – увеличивается. Это приводило к накоплению примесей на поверхности пор по всему объёму графита, которые при работе реактора не удаляются. Описаны возможные способы кондиционирования графитовых твёрдых радиоактивных отходов (ТРО). Показаны преимущества использования термических методов снижения потенциальной опасности РАО за счет дезактивации облученного графита, иммобилизации радионуклидов, снижения скорости выщелачивания, уменьшения общего объёма отходов, обеспечения пожаровзрывобезопасности вследствие отжига дефектов. Проведен обзор методов исследования облученного графита, включая методы определения радионуклидного состава, в том числе трудноопределяемых радионуклидов, химической устойчивости и количества запасенной энергии.

Во **второй главе** приведены результаты оценки потенциальной опасности графитовых РАО, находящихся в кладках реактора и прireакторных хранилищах, включая определение радионуклидного состава графитовых ТРО, областей локализации и скорости выщелачивания различных радионуклидов из графитовых блоков и втулок УГР. Представлен анализ процессов тепловыделения при обращении с облученным графитом. Проведена оценка образования возможных химических соединений радионуклидов $^{137,134}Cs$, ^{60}Co, ^{90}Sr, ^{3}H, $^{154,152}Eu$, ^{36}Cl, находящихся в структуре облученного графита.

Третья глава посвящена исследованию процесса термообработки графитовых РАО в инертной и окислительной среде. Представлены результаты разработки математических моделей процесса тепло- и массообмена при термической дезактивации графитовых РАО, в которых учтено влияние выделения запасенной энергии на эффективность удаления радиоактивных загрязнителей. По результатам моделирования установлено, что реакторный графит, который облучался при температуре (50–80) °С, может быть переработан методом неполного сжигания с энергетическими затратами менее 300 Дж/г. Впервые показано влияние выделения энергии Вигнера на скорость дезактивации облученного ядерного графита в инертной или окислительной среде.

В четвертой главе приведены результаты исследований по электрохимической переработке графитовых РАО. На основании математического моделирования разработано оборудование для электрохимической обработки графитовых РАО. Установлено, что степень дезактивации зависит от температуры раствора, напряжения и расстояния между электродами. Впервые экспериментально показано, что практически полное удаление $^{137,134}Cs$, ^{60}Co, $^{154,152}Eu$ и ^{241}Am с поверхности графита при минимальной потере массы РАО наблюдается в электролите на основе 8 М HNO_3 и/или H_2SO_4 с добавками 0,2 М фторида или 0,1 М $KMnO_4$ и плотности тока ~0,2 А/см^2. До 75 % долгоживущего ^{14}C при 30 % потери массы графита удаляется при добавлении в раствор H_2O_2.

Пятая глава посвящена исследованию процесса объёмной дезактивации облученного ядерного графита в низкотемпературной плазме. Установлено, что факторами, влияющими на степень извлечения ^{14}C, являются: среднемассовая газовая температура плазмы, скорость прокачки высокотемпературного потока и толщина пленки радиоактивного загрязнителя. Экспериментально показано, что данный способ позволяют менее, чем за 15 мин практически полностью удалить $^{137,134}Cs$, ^{60}Co, $^{154,152}Eu$ из облученного графита. Производительность разработанной установки с ВЧ генератором мощностью 4 кВт составляет 1 кг/час по графиту.

В шестой главе проведен анализ, систематизация и обобщение полученных результатов с целью разработки научных основ процесса обращения с облученным ядерным

графитом. Проведена оценка энергии связи ^{14}C с облученным графитом. На основе проведенных расчетных и экспериментальных исследований, с учётом действующего законодательства, сформулированы основы обращения с РАО и научно обоснованы ядерно- и радиационно-безопасные технические решения, которые позволяют разделить потоки графитовых РАО, провести их дезактивацию с целью увеличения количества РАО 3 класса, которые могут быть захоронены в приповерхностных ПЗРО.

Практическая ценность результатов исследования

Результаты, полученные при выявлении закономерностей распределения долгоживущих радионуклидов по объему облученного ядерного графита и определении энергии связи долгоживущих радионуклидов с его кристаллической решеткой, позволили оценить эффективность различных методов термической переработки РАО, образующихся при эксплуатации объектов использования атомной энергии. Установление химических форм радионуклидов в облученном графите позволило определить подходы к обращению с РАО. Показано, что с точки зрения радиационной, ядерной и пожарной безопасности газообразные продукты (соединения хлора, оксиды углерода, метан, цианистый водород) требуют специализированной системы газоулавливания, а оксиды и соли металлов - системы пылеулавливания.

Полученные результаты по нагреву облученного графита за счет выделения запасенной энергии Вигнера при его извлечении из графитовой кладки УГР или размещении в хранилищах различного типа, а также контейнеризации позволили оценивать величину возможных тепловых эффектов для обоснования пожаробезопасности, а также сформировать требования к упаковке для хранения и захоронения графитовых РАО. Указанные результаты могут быть использованы при разработке контейнеров для транспортировки и захоронения облученного графита.

Научная новизна

1. Впервые определены закономерности распределения долгоживущих радионуклидов ^{14}C и ^{36}Cl в облученных графитовых элементах, извлечённых из кладок УГР различных типов и прireакторных хранилищ. Впервые определена энергия связи долгоживущих радионуклидов ^{14}C и ^{36}Cl с кристаллической решеткой облученного графита в зависимости от исходного примесного состава необлученного графита, а также получены закономерности влияния конструкционных особенностей и режимов эксплуатации УГР (температура кладки, набранный флюенс, время эксплуатации, состав продувочного газа) на образование соединений изотопов $^{235,238}U$, $^{137,134}Cs$, ^{60}Co, $^{154,152}Eu$, ^{3}H, ^{36}Cl, ^{14}C.

2. Впервые представлен механизм образования химических соединений радионуклидов ^{3}H, ^{36}Cl, ^{14}C, $^{235,238}U$, $^{137,134}Cs$, ^{60}Co, ^{154}Eu в температурном диапазоне 300-1200ºС в облученном графите в результате нарушения режима охлаждения ТВЭЛов, разрушения их оболочки и проникновения в графитовую кладку фрагментов облученного ядерного топлива.

3. Разработаны оригинальные математические модели, описывающие процесс термической обработки графитовых РАО. Из результатов моделирования определена зависимость степени дезактивации облученного графита от газодинамического и теплового режимов процесса, а также химического состава теплоносителя. Впервые показано, что выделение энергии Вигнера способствует увеличению количества удаляемых радиоактивных загрязнителей в единицу времени из облученного графита, отобранного из кладок УГР проточного типа - эффективность дезактивации зависит от количества запасенной энергии.

4. Впервые экспериментально определена зависимость выхода ^{14}C с поверхности облученного графита, отобранного из кладки промышленного и энергетического УГР, от потери его массы при термической дезактивации в среде азота, аргона и воздуха при различных термо- и газодинамических параметрах. Экспериментально определена зависимость степени дезактивации от состава электролита, плотности тока, потенциала анода и температуры в электролизере при электрохимической обработке графитовых РАО. Способы защищены патентом РФ.

5. Установлены режимы высокотемпературной плазменной переконденсации соединений радионуклидов в инертной среде при объемной переработке облученного ядерного графита, впервые определены закономерности изменения активности различных радиоактивных загрязнителей (^{60}Co, $^{152,154}Eu$, ^{137}Cs) при плазменной очистке графита.

6. С учётом технологических и технических возможностей и в соответствии с действующим законодательством обоснован подход создания основ технологии обращения с графитовыми РАО, образующимися при эксплуатации и выводе из эксплуатации УГР.

Соответствие паспорту научной специальности

Диссертация Беспала Евгения Владимировича «Разработка методологии и технологий обращения с графитовыми радиоактивными отходами» **соответствует** научной специальности 2.4.9. Ядерные энергетические установки, топливный цикл, радиационная безопасность:

1. формуле паспорта специальности, так как в диссертации рассматриваются вопросы «моделирования физических процессов»;

2. областям исследования паспорта специальности, в частности:

пункту 1 – Моделирование нейтронно-физических, химических, тепловых, гидравлических и механических процессов, создание программных комплексов,

обеспечивающих достоверное расчетное обоснование объектов ядерной техники и их безопасное функционирование при эксплуатации, а также снятии с эксплуатации;

пункту 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;

пункту 3 – Разработка методов расчета технологических процессов в объектах ядерной техники с целью оптимизации их характеристик, повышения надежности оборудования и систем и обеспечения их ядерной и радиационной безопасности;

пункту 6 – Разработка методов обоснования ядерной и радиационной безопасности и экологической приемлемости технологий и объектов ядерной техники;

Оценка значимости результатов диссертационного исследования

Значимость определяется новым теоретическим описанием процессов переработки облученного ядерного графита с учётом выделения энергии Вигнера, новыми сведениями о распределении долгоживущих радионуклидов по объёму графитовых РАО различного типа в зависимости от величины потока нейтронов, времени облучения, состава продувочного газа, пористости и распределения компонентов по объему конструкционных элементов, созданием методик расчетов нового оборудования, методов интенсификации процессов тепло- и массообмена, технологических процессов.

Результаты исследований расширяют представление о химических, тепловых, гидравлических и механических процессах, протекающих при переработке и кондиционировании РАО, и вносят вклад в развитие теории их дезактивации.

Дискуссионные положения и замечания

Положительно оценивая диссертацию в целом, её логику, обоснованность, достоверность, полученные новые научные результаты стоит выделить следующие дискуссионные положения и замечания:

1. Название раздела 2.3.1 «Определение формы нахождения радиоактивных загрязнителей» позволяло надеяться на очень интересные экспериментальные данные о химических формах, в которых радионуклиды присутствуют в облученном графите. Но автор ограничился только моделированием, а полученные результаты вызывают много вопросов. Например, в выводе 3 сказано, «радионуклиды $^{235,238}U$, $^{137,134}Cs$, ^{60}Co, ^{154}Eu, ^{3}H, ^{36}Cl, ^{14}C, находящиеся в графитовых РАО, образуют оксиды и, в меньшей степени, цианиды». Какие цианиды могут образовывать тритий, хлор и углерод? На стр. 85 упоминаются другие химические соединения: «Из рисунка 2.14 видно, что при критических режимах эксплуатации

ядерного реактора могут образовываться различные химические соединения радионуклидов, например, хлориды и гидриды». Продукты деления и активации присутствуют в графите в микроконцентрациях и шансы на их взаимодействие с микроколичествами цианистого водорода или хлора ничтожно малы. Макрокомпоненты - уран и его оксиды, могут образовывать цианиды. Но возможны ли реакции образования цианидов в безводной среде? Есть ли экспериментальные подтверждения присутствия цианидов урана в облученном графите?

2. При описании методов электрохимической обработки облученного ядерного графита (глава 3) представлены данные по очистке графита от цезия. На стр. 197 (Рис. 4.9) приведены коэффициенты дезактивации ^{137}Cs на аноде 1,8 (рисунок 4.9а), а на катоде – 2,6 (рис. 4.9б). Но ранее (стр. 91) было установлено, что: «Скорости выщелачивания продуктов деления и актинидов водой отличаются незначительно. Показано, что практически все слабосвязанные радионуклиды можно удалить химическим путем за время не более 2 суток». Если продукты деления хорошо удаляются из графита обычной водой, зачем нужно использовать электрохимическую обработку, которая дает такие скромные коэффициенты дезактивации?

3. Не понятны различия в эффективности электрохимической дезактивации графита в 8 М азотной кислоте, представленные в на с. 33 автореферата (Таблица 5. Дезактивация графита в процессе электрохимического разрушения при различных добавках и плотности тока 0,2 А/см^2). Остаток радионуклида ^{60}Co для идентичных опытов 1, 2 и 6 составил : 7, 27 и 42%, соответственно. Эти опыты чем-то различались или это экспериментальные погрешности?

4. При дезактивации облученного графита в низкотемпературной плазме (глава 5) установлено, что «концентрация тяжелого изотопа углерода в газовой фазе … увеличивается в 1,6 раза». Эффект очень интересный, но может ли он быть полезен для разрабатываемых методов дезактивации графита или для разделения изотопов углерода в коммерческих целях? Было бы полезно узнать мнение авторов о перспективах практического применения этого интересного эффекта.

5. В работе детально рассмотрены различные химические и термические технологии дезактивации реакторного графита, но нет их сравнения по такими важным показателям, как достигаемый коэффициент дезактивации при незначительной потере массы графита, длительность процесса, энергопотребление, прогнозные характеристики оборудования, виды и количество вторичных отходов, оценка объемов кондиционированных РАО различных классов, стоимость переработки и т.д. Такая таблица с оценочными данными была бы очень полезна для лучшего понимания перспектив практического применения разработанных методов обращения с облученным реакторным графитом.

6. Из текста диссертации и автореферата непонятно, где и как были применены разработанные в диссертации методология и технологий обращения с графитовыми радиоактивными отходами.

Перечисленные замечания и вопросы носят дискуссионный характер и не умаляют научную и практическую значимости диссертационного исследования Е.В. Беспала.

Заключение

Диссертационная работа Беспала Евгения Владимировича «Разработка методологии и технологий обращения с графитовыми радиоактивными отходами» выполнена на высоком научно-техническом уровне, решает актуальную проблему обращения с графитовыми радиоактивными отходами и представляет собой законченную научно-квалификационную работу.

Диссертация соответствует пунктам 1, 2, 3, 6 паспорта специальности 2.4.9. Ядерные энергетические установки, топливный цикл, радиационная безопасность.

Все поставленные в работе задачи решены в полном объёме. Основные положения и результаты диссертации отражены в автореферате и публикациях автора.

По своему содержанию, составу и числу научных трудов, степени проработки решаемых задач и ценности полученных результатов диссертационная работа Беспала Е.В. «Разработка методологии и технологий обращения с графитовыми радиоактивными отходами» удовлетворяет требованиям п.9-14 Положения о присуждении учёных степеней в УрФУ, а ее автор, несомненно, заслуживает присуждения учёной степени доктора технических наук по специальности 2.4.9. Ядерные энергетические установки, топливный цикл, радиационная безопасность.

Официальный оппонент:
доктор химических наук, старший научный сотрудник,
Акционерное общество «Радиевый институт им. В.Г. Хлопина»,
Учёный секретарь-начальник отдела учёного секретаря
Смирнов Игорь Валентинович

Контактная информация
адрес: 194021, Ленинградская область, г. Санкт-Петербург, пр. 2-ой Муринский, д. 28,
тел. +
Адрес электронной почты: igor_smirnov@khlopin.ru
Дата: 26 мая 2026 г

Подпись Смирнова И.В. заверяю: Зам. директора по науке
Рябков Д.В.