

«УТВЕРЖДАЮ»

И. о. ректора РХТУ им. Д. И. Менделеева,
д.т.н., проф. И. В. Воротынцев

« 9

20 22 г.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Диссертация Мосеевой Валерии Сергеевны на тему «Повышение эффективности противоточного процесса изотопного обмена водорода с водой» по научной специальности 2.6.7. Технология неорганических веществ на соискание ученой степени кандидата технических наук выполнена на кафедре технологии изотопов и водородной энергетики федерального государственного бюджетного образовательного учреждения высшего образования «Российский химико-технологический университет имени Д.И. Менделеева».

В процессе подготовки диссертации Мосеева Валерия Сергеевна «19» января 1993 года рождения являлась аспирантом кафедры технологии изотопов и водородной энергетики Российского химико-технологического университета им. Д.И. Менделеева с 01 сентября 2017 года по 31 августа 2021 года. В настоящее время работает младшим научным сотрудником кафедры технологии изотопов и водородной энергетики с 01 августа 2022 года по настоящее время.

Диплом об окончании аспирантуры 107718 1137959 регистрационный номер 1315 от 05 июля 2021 года выдан Российским химико-технологическим университетом имени Д.И. Менделеева в 2021 году.

Научный руководитель – кандидат технических наук (специальность 05.17.02. Технология редких, рассеянных и радиоактивных элементов), доцент кафедры технологии изотопов и водородной энергетики Российского химико-технологического университета имени Д.И. Менделеева Букин Алексей Николаевич.

По результатам рассмотрения диссертации Мосеевой Валерии Сергеевны на тему: «Повышение эффективности противоточного процесса изотопного обмена водорода с водой» принято следующее заключение.

Актуальность темы диссертационной работы обусловлена тем, что технология химического изотопного обмена (ХИО) водорода с водой является одной из наиболее перспективных в мире. Данный процесс используется для получения тяжелой воды на этапе конечного концентрирования, а также для детритизации тяжеловодных и легководных отходов. В настоящее время данная

технология реализуется в варианте CECE (Combined Electrolysis and Catalytic Exchange) - процесса, в которой ХИО сочетается с энергоемким электролизом всего потока воды, циркулирующего в разделительной колонне. Ключевым компонентом технологии является гидрофобный катализатор изотопного обмена водорода (рабочая температура 50-80°C). Альтернативу этому процессу представляет двухтемпературная схема, в которой электролиз воды не используется, а обращение потоков обеспечивается за счет разности температур в горячей и холодной колоннах: чем эта разность больше, тем выше эффективность процесса разделения. Однако для осуществления процесса разделения изотопов водорода по двухтемпературной схеме необходимо использование гидрофобного катализатора, обладающего термостойкостью как минимум до 180-200°C. Разработка такого катализатора, с одной стороны, предоставит возможность экспериментальной проверки эффективности использования двухтемпературной технологии. С другой стороны, позволит проводить CECE-процесс при повышенных температуре и давлении, что существенно уменьшит объем разделительных колонн и, соответственно, потребность в количестве дорогостоящего катализатора.

Научная новизна заключается в следующем:

1. Показано, что модификация гранул $\gamma\text{-Al}_2\text{O}_3$ растворами силанов (метилтриметоксисилан, фенилсилсесквиоксан, метилфенилсилсесквиоксан) позволяет получить гидрофобизированный катализатор активации водорода, по каталитической активности сопоставимый с опытно-промышленным катализатором РХТУ-ЗСМ, термостойкий в инертной атмосфере вплоть до 380°C.

2. Разработан способ приготовления гидрофобного платинового катализатора на основе СДВБ применительно к реакции изотопного обмена водорода. Найдено, что активность платинового катализатора на основе СДВБ зависит от способа подготовки носителя и возрастает с увеличением объема пор.

3. На основе гидродинамических исследований комбинированных загрузок в колонну гидрофобных и гидрофильных контактных элементов путем анализа кривых отклика при импульсном вводе трассера предложена методика оценки влияния объемного отношения гидрофобных и гидрофильных элементов и условий эксплуатации разделительных колонн на сплошность движения потока жидкости, влияющее на распределение задержки по жидкой фазе между статической и динамической составляющими.

4. Для анализа экспериментальных данных предложено математическое описание движения потока жидкости через смешанный насадочно-каталитический слой по методу случайных блужданий. Подтверждено, что с гидродинамической точки зрения для обеспечения сплошности потока жидкости максимальная доля катализатора Pt/СДВБ (диаметр гранул 0,8-1,2 мм) в смеси с

гидрофильной насадкой (СПН 3x3x0,2 мм) не должна превышать 20 об. %, а наибольшее влияние на характер движения жидкости оказывает способ запуска колонны.

5. С использованием полученной базы физико-химических данных о составляющих процесса каталитического изотопного обмена в системе вода-водород выявлены закономерности влияния параметров его проведения процесса на эффективность массообмена. Обнаружено существенное влияние конкурентной адсорбции паров воды и водорода на активных центрах катализатора на скорость каталитической составляющей процесса, а также показано, что снижение отношения потоков водяной пар/водород приводит к падению коэффициента массопередачи.

Практическая ценность работы состоит в следующем:

1. Полученная в работе база физико-химических и гидродинамических данных расширяет возможности практического применения исследуемой технологии для разделения изотопных смесей водорода.

2. Результаты настоящей работы использованы для наработки опытной партии гидрофобного катализатора для системы нормализации изотопного состава тяжеловодного замедлителя реактора ПИК (Договор №26.05-Д-1-1/2018 от 29.12.2017).

3. Предложен метод исследования структуры потоков в колонне, позволяющий определять оптимальное соотношение гидрофобной и гидрофильной составляющей для загрузки противоточной колонны изотопного обмена.

Работа характеризуется логичностью построения, аргументированностью основных научных положений и выводов, а также четкостью изложения.

Основные положения диссертации получили полное отражение в 16 печатных изданиях, из них 7 в изданиях, индексируемых Scopus и Web of Science, 2 в изданиях, входящих в перечень российских рецензируемых журналов, получен 1 патент РФ.

Результаты диссертации представлены на 6 международных и всероссийских конференциях, в том числе на XVII международной научной конференции и школе молодых учёных «Физико-химические процессы в атомных системах», на XIII Международном конгрессе молодых ученых по химии и химической технологии МКХТ-2017, на XVI Международном конгрессе молодых ученых по химии и химической технологии МКХТ-2020, на 13-й Международной школе молодых учёных и специалистов имени А.А. Курдюмова "Взаимодействие изотопов водорода с конструкционными материалами" (IHISM'19 JUNIOR), на 7-й Международной конференции и 14-й Международной школе молодых учёных и специалистов имени А.А. Курдюмова "Взаимодействие изотопов водорода с

конструкционными материалами" (IHISM'21), на международной конференции Tritium 2019: 12th International conference on tritium science & technology.

Публикации по теме диссертации

Публикации в научных изданиях, индексируемых в международных базах данных Web of Science и Scopus

1. Bukin A.N., **Moseeva V.S.**, Rozenkevich M.B. Isotope purification of gases containing deuterium and tritium by the method of the phase isotopic exchange of water // Theoretical Foundations of Chemical Engineering. 2018. V. 52. № 4. P. 488-494. DOI: 10.1134/S0040579518040371.

2. Bukin A.N., **Moseeva V.S.**, Marunich S.A. Developing methods for producing hydrophobized platinum catalysts of different types // Theoretical Foundations of Chemical Engineering. 2020. V. 54. № 5. P. 1102-1106. DOI: 10.1134/S0040579520050085.

3. Bukin A.N., **Moseeva V.S.**, Ovcharov A.V., Marunich S.A., Pak Yu.S., Rozenkevich M.B. Development of Technology for Liquid Radioactive Waste Detritiation by Two-Temperature Catalytic Isotope Exchange Method in a Water-Hydrogen System // Fusion Science and Technology. 2020. V. 76. №3. P. 358-365. DOI: 10.1080/15361055.2020.1712981.

4. Bukin A.N., **Moseeva V.S.**, Marunich S.A., Pak Yu.S., Rozenkevich M.B., Vikulov D.D. Comparison of properties of the hydrophobic catalyst RCTU-3SM in reactions of isotope exchange between hydrogen and water vapors and oxidation of trace hydrogen in gas flows // Fusion Science and Technology. 2021. V. 77. №5. P. 373-381. DOI: 10.1080/15361055.2021.1909991.

5. Bukin A., **Moseeva V.**, Rozenkevich M., Pak Y., Marunich S., Ovcharov A. Mass transfer and hydrodynamics in a mixed bed of a hydrophobic catalyst and a hydrophilic packing // Fusion Engineering and Design V. 171. 2021. 112595. DOI: 10.1016/j.fusengdes.2021.112595.

6. **Moseeva V.**, Bukin A., Rozenkevich M., Anikin A., Zabirowa N. Synthesis method of hydrophobic catalysts for the hydrogen activation with a controlled platinum distribution // Fusion Engineering and Design. V. 171. 2021. 112571. DOI: 10.1016/j.fusengdes.2021.112571.

7. Bukin A.N., **Moseeva V.S.**, Ovcharov A.V., Marunich S.A., Pak Y.S., Rozenkevich M.B. Liquid holdup and axial mixing in a mixed bed of hydrophobic catalyst and hydrophilic packing // Theoretical Foundations of Chemical Engineering. 2021. V. 55. № 5. P. 888-893. DOI:10.1134/S0040579521040229.

Публикации в изданиях, входящих в перечень российских рецензируемых журналов

1. Букин А.Н., Мосеева В.С., Марунич С.А. Разработка способов получения гидрофобизированных платиновых катализаторов различного типа // Химическая технология. 2019. Т. 20. № 12. С. 552-557.
2. Букин А.Н., **Мосеева В.С.**, Марунич С.А., Пак Ю.С., Розенкевич М.Б., Викулов Д.Д. Исследование гидрофобных катализаторов различного типа в реакциях активации молекулярного водорода // Химическая промышленность сегодня. 2019. № 1. С. 50-55.

Публикации в сборниках материалов международных и всероссийских конференций

1. Долженкова Т.Ю., Букин А.Н., **Мосеева В.С.**, Кузьмин Д.А. Выбор материала насадки и способа запуска колонны при малых плотностях орошения // Успехи в химии и химической технологии: Сборник материалов XIII Международного конгресса молодых ученых по химии и химической технологии «МКХТ-2017». Москва, 2017. Т 31. № 10 (191). С. 91-93.
2. **Мосеева В.С.**, Николаева Е.А., Букин А.Н. Исследование механизма изотопного обмена в системе вода-водород // Успехи в химии и химической технологии: Сборник материалов XIII Международного конгресса молодых ученых по химии и химической технологии «МКХТ-2020». Москва, 2020. Т 34. № 9 (232). С. 58-60.
3. Pak Yu.S., Bukin A.N., **Moseeva V.S.**, Marunich S.A., Rosenkevich M.B. Development of technology for the liquid radioactive waste detritiation by two-temperature catalytic isotope exchange method in a water-hydrogen system // 12th International Conference on Tritium Science and Technology "TRITIUM 2019". Busan, Korea, 2019. P.184.
4. **Мосеева В.С.**, Букин А.Н., Викулов Д.Д., Марунич С.А., Пак Ю.С., Розенкевич М.Б. Разработка технологии детритизации жидких радиоактивных отходов методом двухтемпературного каталитического изотопного обмена в системе вода-водород // Сборник тезисов докладов 13-ой Международной школе молодых учёных и специалистов имени А.А. Курдюмова "Взаимодействие изотопов водорода с конструкционными материалами" (IHISM'19). Саров, 2019. С. 132.
5. Bukin A.N., **Moseeva V.S.**, Marunich S.A., Pak Yu.S., Rozenkevich M.B. Investigation of the isotope exchange mechanism in a water-hydrogen system // XVII International Scientific Conference and School of Young Scholars "Physical and Chemical Processes in Atomic Systems" Technical Program and Abstracts. Moscow, 2019. 102 p.

6. **Мосеева В.С.**, Букин А.Н., Марунич С.А., Пак Ю.С., Розенкевич М.Б. Сравнение каталитических и гидродинамических свойств гидрофобного и гидрофобизированного катализаторов в процессе химического изотопного обмена воды в системе вода-водород // Сборник тезисов докладов 7-ой Международной конференции и 14-ой Международной школе молодых учёных и специалистов имени А.А. Курдюмова "Взаимодействие изотопов водорода с конструкционными материалами" (IHISM'21). Гатчина, 2021. С. 117-119.

Патент

1. Способ получения гидрофобного платинового катализатора изотопного обмена водорода с водой / Балановский Н.В., Букин А.Н., Марунич С.А., **Мосеева В.С.**, Пак Ю.С., Розенкевич М.Б.: пат. 2767697 Рос. Федерация; № 2021121030; заявл. 16.07.2021; опубл. 18.03.2022, Бюл. № 8. 8 с.

По тематике, методам исследования, предложенным новым научным положениям диссертация соответствует паспорту специальности научных работников 2.6.7. Технология неорганических веществ по направлению исследования: «Технологические процессы получения неорганических продуктов: соли, кислоты и щелочи, минеральные удобрения, изотопы и высокочистые неорганические продукты, катализаторы, сорбенты, неорганические препараты».

Автореферат отражает основное содержание диссертации.

Диссертация Мосеевой Валерии Сергеевны является завершённой научно-квалификационной работой, содержащей результаты, полученные на основании исследований, проведенных на высоком научном и техническом уровне с применением современных методов исследования. Научные положения, выводы и рекомендации, сформулированные автором, теоретически обоснованы и не вызывают сомнений. Представленные в работе результаты принадлежат Мосеевой Валерии Сергеевне; они оригинальны, достоверны и отличаются научной новизной и практической значимостью.

С учетом научной зрелости автора, актуальности, научной новизны и практической значимости работы, а также ее соответствия требованиям Положения о порядке присуждения ученых степеней в федеральном государственном бюджетном учреждении высшего образования «Российский химико-технологический университет имени Д.И. Менделеева», предъявляемым к подобным работам, диссертация на тему: «Повышение эффективности противоточного процесса изотопного обмена водорода с водой» рекомендуется к защите на соискание ученой степени кандидата технических наук по научной специальности 2.6.7. Технология неорганических веществ.

Диссертация рассмотрена на заседании кафедры технологии изотопов и водородной энергетики Российского химико-технологического университета им. Д.И. Менделеева, состоявшемся «02» сентября 2022 года, протокол № 1.

В обсуждении приняли участие: заведующий кафедрой Растунова И.Л., профессор Розенкевич М.Б., доцент Варезкин А.В., доцент Боева О.А., доцент Хорошилов А.В., доцент Пак Ю.С.

Принимало участие в голосовании 10 человек. Результаты голосования: «За» - 10 человек, «Против» - нет, воздержались - нет, протокол № 1 от «02» сентября 2022 г.

Заведующий кафедрой технологии изотопов и водородной энергетики,
д.т.н.

И.Л. Растунова

Секретарь заседания,
доцент, к.т.н.

О.А. Боева