

UYJÁDRĚNÍ VEDOUČÍHO DIPLOMOVÉ PRÁCE

Název práce (česky): Využití kvantových simulací pro charakterizaci stability organických extrakčních ligandů

Název práce (anglicky): Application of quantum simulations for characterizing stability of organic extraction ligands

Jazyk práce: anglický

Autor práce: Bc. Jakub Luštinec

Škola: ČVUT v Praze, FJFI

Studijní program: Aplikace přírodních věd

Studijní obor: Inženýrství pevných látek

Akademický rok: 2019/2020

Uspokojivé vyřešení problému přepracování vyhořelého paliva představuje v jeden z klíčových faktorů podmiňujících budoucnost jaderných štěpných energetických zdrojů. Navržený a stále průběžně zdokonalovaný postup přepracování je v zásadě složen ze dvou hlavních kroků: separace jednotlivých složek (izotopů uranu, plutonia, minoritních aktinoidů, lanthanoidů) a následné zpracování těchto složek do podoby recyklovaného paliva (v případě uranu a plutonia) nebo transmutací (minoritní aktinoidy s dlouhou dobou života).

Diplomová práce se zabývá problematikou související s prvním ze zmíněných kroků, konkrétně se separací minoritních aktinoidů a lanthanoidů z roztoku paliva rozpuštěného v koncentrované kyselině dusičné, podrobeného již separaci uranu a plutonia (proces „PUREX“). Separace je realizována selektivní extrakcí cílových iontů ze zdrojové vodné do organické fáze probíhající prostřednictvím extrakčních činidel (tzv. „extraktantů“) komplexujících zvolené ionty (procesy DIAMEX-SANEX, GANEX, EURO-GANEX, EXAm, aj.) a kompatibilizujících je tak s organickou fází, která je následně oddělena. Molekuly extraktandu jsou přitom vystaveny působení silných destruktivních vlivů způsobujících rozpad jejich molekulární struktury (radiace, silně ionizované rozpouštědlo, extrémně kyselé pH). Vysoká strukturální stabilita extraktantu je tak jedním z klíčových požadavků při jeho návrhu.

Předložená práce je věnována jedné třídě široce využívaných extraktantů, vybraným derivátům diglykolamidu (DGA) a tématicky úzce souvisí projektem GENIORS (GEN IV integrated oxide fuels recycling strategies) implementovaného v rámci EU programu Horizon 2020. Chemická stabilita čtyř vybraných derivátů je analyzována a charakterizována s využitím pokročilých kvantově-mechanických výpočetních postupů založených především na teorii funkcionálu elektronové hustoty (DFT), doplněné o aplikaci metody CCT („Coupled Cluster Theory“). Jsou uvažovány radikálové degradační reakce bez a s vlivem kyseliny. Vliv kyseliny je reprezentován třemi odlišnými modely (H^+ , H_3O^+ a HNO_3). Polarizační vliv okolí je reprezentován v rámci přiblížení COSMO a PCM. Pro uvedenou čtveřici modelů je vyčíslena řada dílčích indikátorů chemické stability (rozložení molekulárních orbitalů HOMO/LUMO, Fukui funkce a náboje, dílčí atomové náboje, řády vazeb, rozložení elektrostatického potenciálu) a energetický reakční profil zahrnující dílčí přechodové stavy. Dosažený komplexní soubor teoretických výsledků je v jednotlivých dílčích položkách porovnán a diskutován ve vztahu k dostupným výsledkům experimentálním.

Významným přínosem práce je praktické ověření a ustanovení sady teoretických postupů aplikovatelných k získání věrohodných predikcí potřebných dílčích kvantově mechanických indikátorů chemické stability. Výzvou pro další vývoj je formulace „integrálního“ indikátoru chemické stability zohledňujícího jak primární kvantově mechanické vlastnosti molekulární struktury, tak její konformační variabilitu a interakci s okolním prostředím rozpouštědla.

V průběhu řešení diplomového projektu prokázal Jakub vysokou teoretickou i výpočetní erudici, systematickostí, schopnost kritického myšlení, cílevědomou pílí a trpělivostí, to vše za komplikované pandemické situace, a naplnil úspěšně všechny body zadání práce. S prací Bc. Jakuba Luštince na

diplomovém projektu jsem jako vedoucí práce velmi spokojen, předloženou diplomovou práci doporučuji k obhajobě a navrhuji hodnotit ji klasifikačním stupněm A – výborný.

Praha, 15/7/2020

Doc. Ing. Ladislav Kalvoda, CSc.

vedoucí práce