

ОТЗЫВ

официального оппонента на диссертацию Ворошилова Юрия Аркадьевича на тему "Разработка технологии производства препарата молибден-99 на ФГУП «ПО «Маяк»", представленную на соискание ученой степени кандидата технических наук по специальности 02.00.14 -радиохимия

Актуальность избранной темы

В настоящее время в медицине большое внимание уделяется развитию методов диагностики, позволяющих определять очаги локализации различных заболеваний на самых ранних стадиях их развития. К числу наиболее информативных и точных относятся методы диагностики, основанные на использовании радиоактивных изотопов. Меченные ими соединения позволяют проводить визуализацию патологических очагов практически во всех органах и тканях, что создает возможность их применения в онкологии, кардиологии и других областях медицины.

Одним из наиболее значимых радионуклидов для ядерной медицины является ^{99m}Tc – дочерний продукт β -распада радиоизотопа ^{99}Mo . Благодаря своим ядерно-физическим характеристикам: короткому периоду полураспада 6,02 ч и «мягкой» энергии гамма-излучения 0,1405 МэВ, ^{99m}Tc обеспечивает в 100 раз меньшую дозовую нагрузку на исследуемые органы и окружающие их ткани по сравнению, например, с рентгеновским обследованием. Кроме того, химические свойства технеция позволяют получать различные простые и сложные комплексные соединения, пригодные для использования в медицине.

Поэтому проблема производства препарата ^{99}Mo с требуемыми характеристиками является важной задачей, решение которой связано с выполнением комплекса научно-исследовательских и технологических работ. В связи с этим настоящая работа является *актуальной*.

Степень достоверности результатов научных исследований

Работа выполнена на высоком экспериментальном уровне, используемые методики исследования и проведённые расчёты являются корректными. Измерения проводились на аттестованном оборудовании, обработка результатов измерений была проведена надлежащим образом, поэтому экспериментальные данные, представленные в работе, носят систематический характер и имеют хорошую

воспроизводимость. Сформулированные выводы являются обоснованными и соответствуют полученным результатам.

Научная новизна диссертационной работы заключается в следующем:

1. Исследованы сорбционные и экстракционные свойства ряда массообменных материалов по отношению к молибдену и сопутствующим стабильным и радиоактивным примесям, присутствующим в растворе облученного уранового блока.
2. Изучены и предложены оптимальные условия проведения стадий переработки раствора облученного блока, концентрирования и аффинажной очистки ^{99}Mo с использованием выбранных массообменных процессов.
3. Разработан и проверен состав нового экстракционно-хроматографического материала для селективного извлечения ^{99}Mo из раствора облученного уранового топлива.
4. Выявлен синергетный эффект экстракционной смеси Д2ЭГФК и ТБФ по отношению к урану и антагонистический эффект по отношению к сопутствующим примесям – Y, Eu, Al и Hg.

Научная новизна полученных результатов не вызывает сомнения, поскольку практически все значимые результаты исследований, проведенных Ю.А. Ворошиловым, получены впервые. По результатам работы получено четыре патента.

Практическая значимость диссертационной работы заключается в том, что:

1. Подобраны эффективные неорганические сорбенты и ионообменные смолы для извлечения молибдена из азотнокислого раствора облученного уранового блока, концентрирования и очистки данного целевого компонента и предложены варианты реализации процессов с их использованием в производстве.
2. Разработан и испытан экстракционный вариант процесса выделения, концентрирования и очистки молибдена. Показана возможность реализации процесса на каскаде центробежных экстракторов с вынесенными приводами, в том числе в режиме рефлексирования молибдена в составе его реэкстракта через головной экстрактор.

3. Разработана и реализована стадия сублимационной очистки Мо с переводом компонента в виде триоксида молибдена в газовую фазу и его последующего улавливания.
4. Предложена технологическая схема производства ^{99}Mo на базе существующей на ФГУП «ПО «Маяк» установки «Молибден». Для реализации технологии потребовалось обновить и модернизировать внутрикамерное оборудование, внести незначительные изменения в основное технологическое оборудование, расположенное в каньоне.
5. Проведена промышленная наработка концентрата ^{99}Mo и его поставка в течение августа - сентября 2003 года в ФЭИ для зарядки генераторов $^{99\text{m}}\text{Tc}$ в период останова реактора в ФЭИ. В данный период генераторы $^{99\text{m}}\text{Tc}$ поставлялись в клиники России.
6. Продемонстрирована возможность выделения ^{99}Mo по вновь разработанной технологии с получением препарата, соответствующего требованиям зарубежных производителей. Качество препарата подтверждено в ФЭИ при пробной зарядке генераторов $^{99\text{m}}\text{Tc}$.

Общая характеристика работы

Диссертационная работа изложена на 179 страницах машинописного текста и состоит из введения, литературного обзора, экспериментальной части, заключения, списка литературы. Работа содержит 72 таблицы и 45 рисунков. Список литературы включает 95 наименований.

Во введении отражены: актуальность поставленной проблемы; цель и научные задачи работы; научная новизна; практическая значимость работы; положения, выносимые на защиту; личный вклад автора; а также апробация работы.

Раздел 1 содержит обзор литературы по теме диссертации. В ней Ворошилов Ю.А. указал область применения радионуклида ^{99}Mo , рассмотрел основных его производителей. Также представил варианты наработки радионуклида, проанализировал литературные данные о поведении молибдена в водных растворах, описал применяемые для выделения молибдена массообменные процессы и реализованные на их основе технологические схемы выделения ^{99}Mo .

Раздел 2 включает экспериментальную часть и состоит из пяти подразделов.

В первом подразделе, представляющем методическую часть, автором указаны основные физико-химические характеристики использованных в исследованиях массообменных материалов и реагентов. Представлены методики расчета характеристик сорбционных и экстракционных материалов, параметров технологических процессов, позволяющих судить об эффективности их применения. Кратко описаны применявшиеся в работе аналитические методики и приборный парк для проведения измерений. Даны методы статистической и математической обработки экспериментальных данных.

Подраздел 2 экспериментальной части содержит результаты лабораторных экспериментов по оптимизации исходной базовой технологии, существовавшей к началу выполнения работы. По результатам лабораторных исследований даны рекомендации по реализации оптимизированной технологии в производственных условиях. В заключение Ворошиловым Ю.А. представлены результаты опытно-промышленных операций наработки препарата ^{99}Mo на установке «Молибден» с целью поставки препарата в ГНЦ РФ-ФЭИ. Произведенный в данный период на ФГУП «ПО «Маяк» препарат ^{99}Mo впервые использовали для зарядки генераторов $^{99\text{m}}\text{Tc}$, которые поставлялись в медицинские клиники России.

Подраздел 3 посвящен результатам разработки технологии экстракционного выделения и концентрирования ^{99}Mo из раствора облученной мишени. Автором представлен вариант технологии с использованием органического раствора Д2ЭГФК и ТБФ в парафиновом разбавителе. В ходе исследований выявлен эффект синергетного повышения извлечения U и понижения экстрагируемости Mo и ряда примесей, что положительно отразилось на разделении U и Mo.

В результате предложен технологический процесс экстракционного концентрирования и очистки ^{99}Mo , который был реализован на каскаде центробежных экстракторов типа ЭЦР-33 с вынесенными в ремонтную зону приводами. Данное техническое решение представляется уникальным дизайном экстракционного каскада для радиохимического производства, позволяет существенно упростить обслуживание и ремонт приводов.

Тем не менее, в конечном итоге автором выбран в качестве базового варианта сорбционный метод концентрирования и первичной очистки ^{99}Mo .

В связи с этим в подразделе 4 диссертации приведены данные лабораторных и промышленных экспериментов по разработке сорбционной технологии наработки препарата ^{99}Mo на основе неорганического сорбента Т-5.

Представленные Ворошиловым Ю.А. результаты опытной операции на реальном продукте подтверждают возможность коммерческой реализации данной технологии.

В заключительном подразделе 5 автором приведены результаты лабораторных и промышленных экспериментов по доработке сорбционной технологии на основе неорганического сорбента Т-5 в направлении повышения эффективности очистки получаемого препарата ^{99}Mo .

Ворошилов Ю.А. предложил включить в технологическую схему дополнительную стадию анионообменной очистки на основе анионита Lewatit MP-500 в SO_4^{2-} - форме, а на конечной стадии технологического процесса осуществлять сублимационную очистку Мо путем перевода его в газовую фазу и последующего улавливания триоксида молибдена в холодильнике.

Результаты итоговых производственных испытаний разработанной технологии продемонстрировали возможность получения препарата ^{99}Mo фармакопейного качества, соответствующего аналогичному продукту зарубежных производителей, что подтверждено в ФЭИ при пробной зарядке генераторов $^{99\text{m}}\text{Tc}$.

В целом работа является оригинальной, в ней четко сформулирована цель, для достижения которой было необходимо решить ряд научных и технических задач. На всех этапах диссертационной работы Ворошилов Ю.А. проявил необходимую квалификацию и навыки научного работника.

Положительное впечатление о работе производит большой объем экспериментальной работы, все этапы исследований заканчивались производственными испытаниями.

Автореферат и публикации автора в достаточной мере отражают содержание диссертационной работы.

Полученные в диссертационной работе результаты могут быть использованы на радиохимических предприятиях и в научно-исследовательских центрах, занимающихся исследованиями в области радиохимии и производством РФП.

По диссертационной работе Ю.А. Ворошилова имеются замечания и вопросы.

Замечания:

1. В литературном обзоре на стр. 15 автор высказал мнение, что низкообогащенный уран (НОУ) целесообразно использовать в связи с отсутствием

урана-234 в исходной мишени. Однако в случае НОУ основной вклад в альфа-примеси молибдена-99 дает плутоний-239, который образуется в ощутимых количествах при облучении данной мишени.

2. В ряде случаев автор в конце разделов не дает краткого обобщения изложенного выше материала, например, в конце литературного обзора. Это было бы полезно для обоснования выбранного автором направления исследования. В разделе 2.2.6 автор пишет об отработанной технологии на предыдущем этапе, но в разделе 2.2.5 приведены результаты испытаний нескольких вариантов процесса без указания выбора предпочтительного варианта.

3. На стр. 116 автор пишет "Данные по балансу свидетельствуют ...", однако, экспериментальные данные по балансу не приведены.

Вопросы:

1. В разделе 2.4.6 при испытании двухциклической схемы на основе сорбента Т-5 на первом цикле выход молибдена составил 99.8 %, а на втором - 82 %, хотя исходный раствор на первом цикле значительно сложнее для переработки. Чем вызвана такая разница в выходах?

2. В разделе 2.5.1 при выборе фильтра для осветления исходного раствора учитывался осадок йодида ртути. Принималось ли во внимание при расчетах ресурса фильтрующего элемента возможность образования других осадков, например, оксида кремния, который в небольших количествах есть в исходной мишени?

3. В разделе 2.5.2.4 при сравнительном исследовании свойств сорбентов использовался йод-132, у которого период полураспада менее 3 часов. Может быть, был использован йод-131?

4. На каждом сорбционном переделе потери молибдена-99 составляют 15 – 20 % с учетом его распада за время проведения очистки. Использование сублимации для аффинажа молибдена-99 с большой долей вероятности позволит исключить 3-й цикл сорбционной очистки без ухудшения качества конечного продукта. Рассматривался ли такой вариант проведения процесса?

5. В настоящее время на рынке (в том числе, внутреннем) переизбыток молибдена-99, полученного из высокообогащенного урана. Единственная возможность коммерческого использования установки "Молибден" – это производство молибдена-99 из НОУ. Есть ли планы перехода на НОУ?

6. Насколько мне известно, производство сорбента Т-5 прекращено. Рассматриваются ли альтернативные типы сорбента?

Важно подчеркнуть, что цель работы, намеченная соискателем, была достигнута. Высказанные замечания и вопросы не снижают общей положительной оценки и ценности представленной диссертационной работы.

Таким образом, можно заключить, что диссертация Ю.А. Ворошилова на тему «Разработка технологии производства препарата молибден-99 на ФГУП «ПО «Маяк», полностью соответствует требованиям п. 9 «Положения о порядке присуждения ученых степеней», утвержденного постановлением Правительства Российской Федерации от 24.09.2013 г. № 842, предъявляемым к диссертациям на соискание ученой степени кандидата наук, а её автор, Ворошилов Юрий Аркадьевич, безусловно заслуживает присуждения ему ученой степени кандидата технических наук по специальности 02.00.14 - радиохимия.

Официальный оппонент:

кандидат химических наук, заведующий отделением изготовления
радиофармацевтических лекарственных препаратов
ФГБУ «НМИЦ им. В.А. Алмазова» Минздрава России

М.П. Зыков.

Почтовый адрес: 197341, Санкт-Петербург, ул. Аккуратова, д. 2
Телефон: 8 (812) 7023749 доб. 005786; e-mail: zykovm@yandex.ru

Подпись М.П. Зыкова заверяю.
Ученый секретарь ФГБУ
"НМИЦ им. В.А. Алмазова"
Минздрава России



А.О. Недошивин

01 октября 2018 г.