

ОТЗЫВ

официального оппонента на диссертацию Наумова Андрея Александровича на тему «Экстракционное выделение молибдена-99 из растворов облученных урановых мишеней с использованием растворов гидроксамовых кислот в н-спиртах», представленную на соискание ученой степени кандидата технических наук по специальности 02.00.14 – радиохимия

Молибден-99 используется для производства генераторов технеция-99m – основного диагностического радионуклида современной ядерной медицины. Основным методом получения молибдена-99 является облучение мишени из урана с содержанием урану-235 не менее 90 % в высокопоточном реакторе и последующая химическая переработка облученной мишени с выделением молибдена-99 высокой радиохимической чистоты. В настоящее время в соответствии с рекомендациями МАГАТЭ принято решение об исключении из гражданского обращения урана с обогащением по изотопу уран-235 более 20%. Отсюда вытекает необходимость использования для получения молибдена-99 низкообогащенного урана с содержанием урана-235 не более 20 %. Существующие технологии переработки облученных урановых мишеней на молибден-99, ориентированные на использование высокообогащенных по урану-235 мишеней, требуют существенной корректировки. Информация об экономически приемлемых методах производства ⁹⁹Mo медицинского назначения при использовании мишеней из низкообогащенного урана в научно-технической литературе практически отсутствует. Ввиду относительно небольших объемов производства (до 2000 Ки ⁹⁹Mo в неделю) разрабатываемая технология должна быть достаточно компактной, а с учетом малого периода полураспада целевого компонента (66 часов) – экспрессной. При этом желательно обеспечить полное выведение урана и радиоактивных отходов с производственной площадки. В связи с этим тема диссертационной работы Наумова А.А., посвященной разработке технологии выделения и очистки изотопа молибден-99 медицинского назначения из облученных урановых мишеней с содержанием урана-235 не более 20% является **весьма актуальной**.

Представленная диссертация изложена на 100 страницах и состоит из введения, основного текста, который включает 20 таблиц и 37 рисунков, заключения, выводов по работе и списка использованных источников, насчитывающего 136 наименований. Каждый раздел диссертации завершается краткими выводами.

Во **введении** автором обоснованы цель и задачи работы, ее актуальность, сформулированы новизна и практическая значимость полученных результатов, а

также выносимые на защиту основные положения, приведены сведения об апробации работы и основных публикациях.

В **литературном обзоре** рассмотрены общие сведения о применении и производстве радионуклидов биомедицинского назначения, включая ^{99m}Tc , способах получения ^{99}Mo , представляющего собой материнский радионуклид для ^{99m}Tc , включая растворение облученных урановых мишеней, извлечение и очистку с помощью осадительных, сорбционных и экстракционных методов. С учетом того, что применяемый способ выделения молибдена-99 должен отвечать требованию экспрессности, автором предпочтение отдано экстракционному методу. Особое внимание уделено гидроксамовым кислотам как перспективным экстрагентам для выделения молибдена из многокомпонентных растворов. Дано описание свойств гидроксамовых кислот.

В **методической части** достаточно подробно описаны использованные в работе методы анализа и методики проведения лабораторных экспериментов и стендовых испытаний. В работе применены разнообразные современные физико-химические методы анализа, в том числе, гамма- и альфа-спектрометрия, спектрофотометрия, эмиссионная спектрометрия с индуктивно-связанной плазмой и др. Полученные в результате лабораторных исследований экспериментальные данные были использованы при разработке технологической схемы процесса выделения молибдена-99 из облученных мишеней и проведении стендовых испытаний.

Использование автором современных физико-химических методов исследований, корректная трактовка полученных результатов, а также соответствие данных, полученных в лабораторных условиях, с данными, полученными в ходе стендовых испытаний, позволяет считать приведенные в диссертации результаты вполне **достоверными**. Обращает на себя внимание тщательность изложения методического раздела, относящегося к экспериментальной части работы, что дополнительно подтверждает **достоверность** полученных автором данных.

Далее в диссертации приведены результаты проведенных исследований и их обсуждение.

В **главе 3** представлены результаты, полученные при исследовании экстракции молибдена растворами различных гидроксамовых кислот в многоатомных спиртах. Выбран наиболее эффективный экстрагент (каприногидроксамовая кислота) и разбавитель (деканол-1). Сделано заключение о форме нахождения молибдена в экстракте. С целью нахождения условий реэкстракции молибдена из органической фазы приведены данные о влиянии некоторых реагентов на его экстракцию.

В главе 4 приведены экспериментальные данные по изучению химической устойчивости гидроксамовых кислот в присутствии спиртов в растворах азотной кислоты при различных температурах и поиску способа, повышающего эффективность реэкстракции молибдена из органической фазы. Предложено переводить основные количества экстрагированного молибдена в водную фазу путем термохимического разрушения каприногидроксамовой кислоты.

Глава 5 посвящена разработке технологической схемы выделения молибдена-99 из облученных уран-алюминиевых мишеней, включающей растворение мишеней и последующее экстракционное извлечение молибдена из получаемых азотнокислых растворов, а также проведению стендовых испытаний процесса экстракционного извлечения молибдена. Оптимизирован процесс растворения мишеней. Разработано и испытано два варианта технологической схемы экстракционного выделения молибдена-99 из азотнокислых растворов, первый из которых основан на непрерывном извлечении молибдена в каскаде центробежных экстракторов с применением для реэкстракции молибдена растворов смеси пероксида водорода и азотной кислоты, вторая – в периодическом экстракционном извлечении молибдена с последующим его переводом в водную фазу путем термохимического разложения экстрагента в органической фазе. Предпочтение было вполне обоснованно отдано второму варианту. Не обойдены вниманием вопросы повышения радиохимической чистоты выделенного молибдена-99 и регенерации урана.

Представляется, что предмет **научной новизны** диссертационной работы составляет следующие результаты:

- систематические данные по равновесию и кинетике экстракции молибдена из азотнокислых растворов растворами бензо-, каприно- и лаурилогидроксамовых кислот в нормальных или разветвленных спиртах и их смесях с углеводородами, что позволило, с одной стороны, обосновать выбор оптимального состава экстракционной смеси – раствора каприногидроксамовой кислоты в дециловом спирте в смеси с разветвленными углеводами, и времени, необходимого для достижения равновесия, с другой стороны, сделать заключение о составе экстрагируемого комплекса молибдена;

- данные о разложении гидроксамовых кислот в водных и спиртовых растворах, а также в двухфазных системах под действием азотной кислоты при переменной температуре, что позволило выявить условия перехода процесса из области гидролиза в область автокаталитического термохимического окисления и выбрать условия наиболее полного перехода молибдена в водную фазу с максимальной степенью его концентрирования.

Практическая значимость работы заключается в разработке автором комплексной технологии селективного экстракционного выделения молибдена из облученных уран-алюминиевых мишеней, включающей усовершенствованный способ растворения мишеней в присутствии добавок ртути и фторид-иона, экстракционное извлечение молибдена из получаемых азотнокислых растворов раствором каприногидроксамовой кислоты в дециловом спирте в чистом виде или в виде смеси с разветвленными углеводами по одному из двух предложенных вариантов: либо в непрерывном режиме при использовании центробежных экстракторов с последующей реэкстракцией молибдена раствором смеси пероксида водорода и азотной кислоты, либо в периодическом режиме с последующим переводом молибдена в водную фазу путем термохимического разложения экстракта, и дальнейшую очистку молибдена-99, а также результаты стендовых испытаний в части растворения мишеней и экстракционного извлечения молибдена-99. На основании результатов проведенных исследований по заказу АО «Концерн Росэнергоатом» разработаны исходные данные для проработки производства молибдена-99 с использованием облученной мишени из диоксида урана с обогащением по урану-235 3%.

Сделанные по работе выводы вполне **обоснованы**.

Положения, выносимые на защиту, **соответствуют** содержанию диссертации.

Материалы диссертации соответствуют специальности 02.00.14 – радиохимия.

Автореферат и публикации достаточно **полно** отражают содержание диссертации.

Вместе с тем, по работе имеются следующие **замечания**.

1. В работе имеются некоторые неудачные формулировки. В частности, это относится к пункту «Степень достоверности результатов...» (стр. 7 автореферата, стр. 8 диссертации), а именно, формулировка «Работа выполнена на высоком экспериментальном уровне...». Наверное, оппоненты, или ведущая организация, или члены диссертационного совета вправе делать подобное заключение, но никак не диссертант.

2. Вряд ли уместно использовать термин «реэкстракция», если речь идет о термохимическом разложении экстрагента.

3. Возникает вопрос, насколько безвозвратные потери экстрагента при его термохимическом разложении для перевода в водную фазу молибдена скажутся на себестоимости выделяемого молибдена-99.

4. В предлагаемую технологическую схему производства молибдена-99 автор включил операцию его сорбционного извлечения на активном оксиде алюминия. Непонятно, откуда взялась эта операция, и почему в качестве сорбента предложено использовать именно оксид алюминия.

5. В разделе 3.3 «Обсуждение результатов», приведенных в главе 3 (стр. 49 диссертации), автор упоминает «способность молибдена реэкстрагироваться в щелочно-карбонатные растворы без эмульгирования», в то время как какие-либо данные о реэкстракции молибдена такими растворами в главе 3 отсутствуют.

Высказанные замечания не носят принципиального характера и не ставят под сомнение достоверность и обоснованность выводов и основных положений, защищаемых в диссертации.

Считаю, что по своей актуальности, содержанию, глубине проработки, научной новизне и практической значимости полученных результатов диссертационная работа **Наумова А.А. соответствует** требованиям пункта 9 «Положения о порядке присуждения ученых степеней» (в редакции постановления Правительства РФ от 24.09.2013 № 842), предъявляемых к диссертациям на соискание ученой степени кандидата наук, а ее автор **Наумов Андрей Александрович заслуживает** присуждения ученой степени кандидата технических наук по специальности 02.00.14 – радиохимия.

Официальный оппонент:
д-р. техн. наук, профессор

А.А. Блохин

Блохин Александр Андреевич;
зав. кафедрой технологии редких элементов и наноматериалов на их основе
Санкт-Петербургского государственного технологического института
(технического университета);
190013, СПб, Московский пр., 26;
E-mail: blokhin@list.ru;
тел.(812) 494-92-56.

Подпись *Васюхина Александра*
Александровича
Начальник отдела кадров *В. Шерешова В.К.*