

УТВЕРЖДАЮ



В.А. Матвеев

[м.п.]

Директор Объединенного института
ядерных исследований

« 27 » апреля 2016 г.

ОТЗЫВ

ведущей организации Лаборатория ядерных реакций им. Г.Н. Флерова
Объединенного института ядерных исследований на диссертационную работу

Васильева Александра Николаевича

«Получение ^{225}Ac и ^{223}Ra из облученного протонами природного тория»

представленную на соискание ученой степени кандидата химических наук по
специальностям:

02.00.14 – радиохимия и 02.00.09 – химия высоких энергий.

В последние годы особое внимание обращается на использование альфа излучающих радионуклидов в ядерной медицине. Их преимущество заключается в том, что при доставке к клеткам опухоли с использованием векторов адресной доставки, они обеспечивают их разрушение при минимальном поражении окружающих органов за счет свойств альфа излучения. Диссертационная работа А.Н. Васильева посвящена созданию научных основ технологии эффективного выделения альфа-излучателей ^{225}Ac и ^{223}Ra без носителя из растворов сложного состава, содержащих продукты облучения тория протонами средних энергий. Предлагаемый в работе способ получения больших количеств ^{225}Ac и ^{223}Ra может способствовать преодолению разрыва между растущим рынком потребления данных перспективных радионуклидов и их ограниченным производством, поэтому актуальность представленной работы не вызывает сомнений.

Несомненно, диссертация А.Н. Васильева вносит новый, важный вклад в исследования сорбционного поведения Ac(III) , La(III) и Ce(III) на экстракционно-хроматографических сорбентах на основе N,N,N',N' -тетра-*n*-октилдигликольамида (DGA Resin), Д-2-ЭГФК (Ln Resin), октилфенил- N,N -диизобутилкарбамоилфосфин оксида в ТБФ (TRU Resin) и N,N -ди-*n*-октилдигликольамидной кислоты (MGA Resin) в азотнокислых, хлорнокислых и солянокислых растворах. Кроме того, в работе впервые определены массовые коэффициенты распределения Ra(II) , Ba(II) , Ag(I) , Cs(I) , Te(IV) , а также Sb и Ru в зависимости от концентрации хлорной и винной кислот при их

совместном присутствии на катионообменном сорбенте Dowex 50x8, а также на сорбенте на основе 4,4'(5')-дитретбутилциклогексано-18-краун-6 эфира (Sr Resin) при сорбции из хлорнокислых растворов в статических условиях. Полученные в работе результаты могут быть использованы в технологии производства ^{225}Ac и ^{223}Ra . Для этого на основании полученных данных разработана и апробирована Научно-исследовательском физико-химическом институте им. Л.Я. Карпова оригинальная схема выделения ^{225}Ac и ^{223}Ra из облученного протонами тория. Для полученных препаратов определены выходы, химическая и радиохимическая чистота. Проведено определение радиационной устойчивости используемых для разделения продуктов облучения экстракционно-хроматографических материалов, показана высокая радиационная стойкость сорбентов DGA Resin и Sr Resin, достаточная для их использования в соответствующей технологии получения актиния и радия.

Рассматриваемая диссертационная работа состоит из введения, обзора литературы, экспериментальной части, четырех глав обсуждения результатов, выводов, списка сокращений и обозначений, списка цитируемой литературы и приложения. Материал диссертации изложен на 163 страницах печатного текста, содержит 90 рисунков и 32 таблицы, в списке цитируемой литературы приведено 178 наименований.

Во введении (Глава I) обоснована актуальность и цель работы, ее научная новизна и практическая значимость.

Во второй главе выполнен обзор литературных данных по концепции использования альфа-эмиттеров в терапии онкологических заболеваний, способы получения и выделения ^{225}Ac и ^{223}Ra , а также возможности использования современных экстракционно-хроматографических материалов для отделения актиния и радия от их химических аналогов. Отдельно диссертантом рассмотрены литературные данные по возможным способам разделения макроколичеств тория от продуктов его облучения.

Третья глава содержит описание использованных в настоящей работе оборудования, реактивов и материалов, а также методики проведения экстракционных и хроматографических экспериментов, определения коэффициентов распределения и удерживания радионуклидов, ёмкости сорбентов. Методологической основой диссертационной работы А.Н. Васильева послужили традиционные подходы к исследованию закономерностей экстракционного и экстракционно-хроматографического разделения микроколичеств элементов. Экспериментальные исследования выполнены автором на сертифицированном и поверенном научном оборудовании с использованием аттестованных методик в аккредитованных лабораториях. Научная достоверность полученных результатов подтверждается применением современных методов физико-химического анализа исследуемых объектов, таких как гамма- и альфа-спектрометрия, атомная эмиссионная спектрометрия (ICP-AES).

В главе IV описаны результаты экспериментов по растворению облученного тория в различных минеральных кислотах и их смесях. Рассчитаны сечения образования некоторых продуктов скалывания и деления тория на основании результатов γ -спектрометрии Th-фольги, облученной протонами с энергией 135 МэВ.

Глава V описывает исследования экстракции 50% растворами ТБФ и Д-2-ЭГФК в толуоле, а также 0,1 М ТОФО в толуоле из растворов, содержащих микроколичества продуктов скалывания и деления и макроколичества Th(IV) в среде минеральных кислот (HNO_3 , HCl , HClO_4). На основании систематического анализа полученных результатов выбраны оптимальные условия количественного отделения тория из растворов после растворения облученных мишеней. Получены значения обменной ёмкости по Th(IV) для экстракционно-хроматографических сорбентов на основе N,N,N',N'-тетра-н-

октилдигликольамида (DGA Resin), хлорида трикаприлметиламмония (TEVA Resin), октилфенил-N,N-диизобутилкарбамоилфосфин оксида в ТБФ (TRU Resin) и ди-2-(этилгексил)-фосфорной кислоты (Ln Resin) в статических и динамических условиях.

В главе VI представлены результаты экстракционно-хроматографического выделения и очистки актиния с помощью перспективных для этой цели сорбентов: Ln Resin, DGA Resin, MGA Resin, TRU Resin. Определены коэффициенты удерживания, для Ac(III), La(III) и Ce(III) из растворов минеральных кислот в статических условиях и на основании полученных данных предложены и протестированы различные варианты колоночного группового концентрирования актиния и лантанидов и их дальнейшего разделения. Рассматривается возможность использования каликсаренов в качестве селективных по отношению к актинию и лантанидам экстрагентов при их групповом концентрировании жидкость-жидкостной экстракцией.

Глава VII посвящена выделению радия из растворов, полученных после выделения ^{225}Ac из облученной протонами ториевой мишени. Для этого предложено использовать комбинацию катионообменной хроматографии на сорбенте Dowex 50x8 и экстракционной хроматографии на сорбенте на основе производного 18-краун-6 эфира (Sr Resin). 4. Определены значения коэффициентов удерживания Ra(II), Ba(II), Ag(I) и Cs(I) на сорбенте на основе 4,4'(5')-дитретбутилциклогексано-18-краун-6 эфира (Sr Resin) при сорбции из хлорнокислых растворов, а также на катионообменном сорбенте Dowex 50x8 в зависимости от концентрации хлорной и винной кислот в статических условиях. Полученные результаты позволили предложить оригинальный способ одновременного выделения радия и актиния из облученной ториевой мишени.

Таким образом, цель настоящей работы, состоящая в создании научных основ технологии эффективного выделения ^{225}Ac и ^{223}Ra из растворов сложного состава, содержащих продукты облучения тория протонами средних энергий полностью достигнута. Сделанные по работе **выводы** представляются вполне обоснованными.

По работе имеются замечания и пожелания:

1. В диссертации относительно немного места отведено описанию условий облучения исходных мишенных материалов, что затрудняет оценку выходов целевых радионуклидов в ядерных реакциях. Это также осложняет оценку радиохимической чистоты получаемых препаратов изотопными примесям актиния и радия.
2. В работе используются экстракционно-хроматографические материалы производства компании Triskem, Франция. Теоретическое обоснование выбора данных материалов было бы полезным.
3. Выделение конечной фракции осуществляется в раствор 3 моль/л HNO_3 , спектры конечной фракции свидетельствуют о наличии примесей радионуклидов, в связи с этим было бы полезным рассмотреть полученные результаты с точки зрения их дальнейшего применения на практике.
4. При определении радиационной устойчивости сорбентов определение их сорбционной емкости проводили в статических условиях, тогда как в предлагаемом подходе используются динамические условия. Непонятно, насколько применяемый метод информативен и стандартизован.
5. В тексте диссертации имеются повторения и неточные выражения, встречаются сокращения, расшифровка которых отсутствует.

Указанные замечания не влияют на общую положительную оценку диссертационной работы. Диссертация представляет собой законченное научное

исследование, выполненное на высоком современном научном уровне. Основное содержание работы изложено в 4 печатных работах в рецензируемых научных изданиях, рекомендованных ВАК и 15 тезисах докладов на международных и российских конференциях. Содержание опубликованных работ соответствует содержанию диссертации. Полученные в диссертации научные результаты могут быть использованы специалистами, работающими в МГУ им. М.В. Ломоносова, ИЯИ РАН, НИФХИ им. Л.Я. Карпова, НИЦ «Курчатовский институт», ОИЯИ.

Заключение. Диссертационная работа Васильева Александра Николаевича «Получение ^{225}Ac и ^{223}Ra из облученного протонами природного тория» представляет собой фундаментальное исследование, выполненное на высоком научном уровне, и соответствует паспорту специальностям 02.00.14 – радиохимия и 02.00.09 – химия высоких энергий и является по своей актуальности, научной новизне, объему выполненных исследований, практической значимости полученных результатов завершающим научным исследованием. Содержание автореферата полностью соответствует основным положениям и выводам диссертационной работы.

Диссертация соответствует требованиям пункта 9 «Положения о присуждении ученых степеней», утвержденного постановлением Правительства Российской Федерации №842 от 24 сентября 2013 года, и является научно-квалификационной работой, в которой на основании экспериментальных исследований сорбционного поведения Ac(III) , La(III) и Ce(III) на экстракционно-хроматографических сорбентах DGA Resin, Ln Resin, TRU Resin и MGA Resin в азотнокислых, хлорнокислых и солянокислых растворах, а также Ra(II) , Ba(II) , Ag(I) , Cs(I) , Te(IV) , а также Sb и Ru в зависимости от концентрации хлорной и винной кислот при их совместном присутствии на катионообменном сорбенте Dowex 50x8, а также на Sr Resin при сорбции из хлорнокислых растворов в статических условиях разработан способ одновременного выделения ^{225}Ac и ^{223}Ra высокой чистоты из облученного протонами средних энергий природного тория, что необходимо для разработки технологии получения альфа-излучателей ^{225}Ac и ^{223}Ra . Автор диссертации Васильев Александр Николаевич заслуживает присуждения ему ученой степени кандидата химических наук по специальностям 02.00.14 – «Радиохимия» и 02.00.09 – «Химия высоких энергий».

Отзыв рассмотрен на Химическом семинаре Лаборатории ядерных реакций

им. Г.Н. Флерова ОИЯИ.

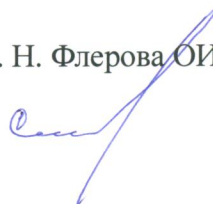
секретарь семинара, к.х.н.



Н.В. Аксенов

Директор Лаборатории ядерных реакций им. Г. Н. Флерова ОИЯИ

д. ф.-м. н., профессор



С.Н. Дмитриев

Адрес: Россия, 141980, г.Дубна, Московская обл., Объединенный институт ядерных исследований, Лаборатория ядерных реакций им. Г. Н. Флерова

тел.: +7 (496) 216 5858;

e-mail: dmitriev@jinr.ru

Сведения о ведущей организации

по диссертационной работе ВАСИЛЬЕВА АЛЕКСАНДРА НИКОЛАЕВИЧА
«Получение ^{225}Ac и ^{223}Ra из облученного протонами природного тория»
на соискание ученой степени кандидата химических наук по специальностям:
02.00.14 – радиохимия и 02.00.09 – химия высоких энергий

Полное название организации в соответствии с уставом	Объединенный институт ядерных исследований Лаборатория ядерных реакций им. Г.Н. Флерова
Сокращенное название организации в соответствии с уставом	ОИЯИ ЛЯР
Ведомственная принадлежность	Международная межправительственная организация
Место нахождения	г. Дубна, Московская обл., Россия
Почтовый индекс, адрес организации	141980, ул. Жолио-Кюри, 6 г. Дубна, Московская обл., Россия
Телефон	+7 (49621) 6-50-59
Адрес электронной почты	post@jinr.ru
Адрес официального сайта в сети «Интернет»	http://www.jinr.ru

<p>Список основных публикаций работников ведущей организации по теме диссертации в рецензируемых научных изданиях за последние 5 лет (не более 15 публикаций)</p>	<ol style="list-style-type: none"> 1. S.A. Karamian, J.J. Carroll, N.V. Aksenov, Yu.V. Albin, A.G. Belov, G.A. Bozhikov, S.N. Dmitriev, G.A. Starodub. Production of isotopes and isomers with irradiation of $Z = 47-50$ targets by 23 MeV bremsstrahlung. <i>Physics of Atomic Nuclei</i> 78(6), 757 (2015). 2. P. Ivanov, S.M. Jerome, G.A. Bozhikov, O.D. Maslov, G.Ya. Starodub, S.N. Dmitriev. Cyclotron production and radiochemical purification of $^{88,89}\text{Zr}$ via alpha-particle induced reactions on natural strontium. <i>Appl. Radiat. Isot.</i> 90, 261 (2014). 3. V. Radchenko, D.V. Filosofov, O.K. Bochko, N.A. Lebedev, A.V. Rakhimov, H. Hauser, M. Eisenhut, N.V. Aksenov, G.A. Bozhikov, B. Ponsard, F. Roesch. Separation of ^{90}Nb from zirconium target for application in immuno-PET. <i>Radiochim. Acta</i> 102(5), 433 (2014). 4. S.A. Karamian, N.V. Aksenov, Yu.V. Albin, A.G. Belov, G.A. Bozhikov, S.N. Dmitriev, G.A. Starodub. Methods for production of $^{195\text{m}}\text{Pt}$ isomer. <i>Bulletin of the Russian Academy of Sciences: Physics.</i> 78(5), 367 (2014). 5. Д.В. Философов, А.В. Рахимов, Г.А. Божиков, Д.В. Караиванов, Н. А. Лебедев, Ю.В. Норсеев, И.И. Садыков-Радиохимия. Получение радионуклидов из Th-мишеней, облученных протонами энергией 300 МэВ. <i>Радиохимия</i> 55, 339 (2013). 6. S. A. Karamian, J. J. Carroll, N. V. Aksenov, Y. A. Albin, G. A. Bozhikov, S. N. Dmitriev, G. Y. Starodub, G. K. Vostokin. Production of isomers in compound and transfer reactions with ^4He ions. <i>Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. A</i> 646, 87 (2011).
---	---

Верно:



Точильников А. Г.