

**ЯДРО ФИЗИКАСИ ИНСТИТУТИ ҲУЗУРИДАГИ ИЛМИЙ
ДАРАЖАЛАР БЕРУВЧИ DSc.02/30.12.2019.FM/Т.33.01 РАҚАМЛИ
ИЛМИЙ КЕНГАШ**

ЯДРО ФИЗИКАСИ ИНСТИТУТИ

ХУЖАЕВ САЙДАХМАД

**РАДИОНУКЛИДЛИ $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ ГЕНЕРАТОРИНИ ВА ^{57}Co
РАДИОНУКЛИДИНИ ОЛИШ ТЕХНОЛОГИЯЛАРИНИ ИШЛАБ
ЧИҚИШ**

01.04.01 – Экспериментал физиканинг асбоблари ва усуллари

**Диссертация химоясиз ихтиро патентлари асосида
техника фанлари доктори (DSc) илмий даражасини бериш бўйича
ТАҚДИМНОМА**

Тошкент – 2021

Диссертация химоясисиз ихтиро патентлари асосида техника фанлари доктори (DSc) илмий даражасини бериш бўйича тақдимнома мундарижаси

Представление по присуждению ученой степени доктора технических наук (DSc) на основе патентов на изобретения без защиты диссертации

Representation on awarding the scientific degree of doctor on technical sciences (DSc) based on the patent of the invention without dissertation defence

Хужаев Сайдахмад

Радионуклидди $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ генераторини ва ^{57}Co радионуклидини олиш технологияларини ишлаб чиқиш..... 3

Хужаев Сайдахмад

Разработка технологий получения радионуклидного генератора $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ и радионуклида ^{57}Co 27

Khujaev Saydakhmad

Development of Technologies for Obtaining the $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ Radionuclide Generator and the ^{57}Co Radionuclide..... 51

Эълон қилинган ихтиролар рўйхати

List of patents

Список патентов по теме диссертации..... 55

**ЯДРО ФИЗИКАСИ ИНСТИТУТИ ҲУЗУРИДАГИ ИЛМИЙ
ДАРАЖАЛАР БЕРУВЧИ DSc.02/30.12.2019.FM/Т.33.01 РАҚАМЛИ
ИЛМИЙ КЕНГАШ**

ЯДРО ФИЗИКАСИ ИНСТИТУТИ

ХУЖАЕВ САЙДАХМАД

**РАДИОНУКЛИДЛИ $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ ГЕНЕРАТОРИНИ ВА ^{57}Co
РАДИОНУКЛИДИНИ ОЛИШ ТЕХНОЛОГИЯЛАРИНИ ИШЛАБ
ЧИҚИШ**

01.04.01 – Экспериментал физиканинг асбоблари ва усуллари

**Диссертация химоясиз ихтиро патентлари асосида
техника фанлари доктори (DSc) илмий даражасини бериш бўйича
ТАҚДИМНОМА**

Тошкент – 2021

Техника фанлари доктори (DSc) диссертацияси мавзуси Ўзбекистон Республикаси Вазирлар Маҳкамаси ҳузуридаги Олий аттестация комиссиясида B2021.2.DSc/T431 рақами билан рўйхатга олиган.

Илмий-тадқиқот иши Ўзбекистон Фанлар академиси Ядро физикаси институтида бажарилган.

Илмий-тадқиқот тақдимномаси уч тилда (ўзбек, рус, инглиз (резюме)) Илмий кенгашнинг веб-саҳифасида (www.inp.uz) ва “Ziyonet” таълим ахборот тармоғида (www.ziyonet.uz) жойлаштирилган.

Илмий-тадқиқот тақдимномаси Ядро физикаси институти ҳузуридаги DSc.02/30.12.2019.FM/T.33.01 рақамли Илмий кенгашнинг 2021 йил _____ соат _____ даги мажлисида бўлиб ўтади. (Манзил: 100174, Тошкент ш., Улуғбек қўрғони, Ядро физикаси институти. Тел. (+99871) 289-31-41; факс (+99871) 289-36-65; e-mail: info@inp.uz).

Илмий-тадқиқот тақдимномаси билан Ядро физикаси институтининг Ахборот-ресурс марказида танишиш мумкин (_____ рақами билан рўйхатга олинган. (Манзил: 100214, Тошкент ш., Улуғбек қўрғони, ЯФИ. Тел. (+99871) 289-31-19).

Илмий-тадқиқот тақдимномаси 2021 йил «___» _____ куни тарқатилди.
(2021 йил “___” _____ даги _____ рақамли реестр баённомаси)

М. Ю. Ташметов

Илмий даражалар берувчи илмий кенгаш раиси, ф.-м. ф. д., профессор

О.Р. Тожибоев

Илмий даражалар берувчи илмий кенгаш илмий котиби, ф.-м.ф. PhD

КИРИШ (тақдимнома аннотацияси)

Илмий-тадқиқот ишининг долзарблиги ва зарурати.

Жахон миқёсида радиоактив нуклидлар ва уларнинг бирикмалари фан ва техниканинг ҳар хил соҳаларида, айниқса ядровий тиббиётда кенг қўлланилади. Ҳозирги кунда радионуклидларни олиш ва ажратишга бағишланган радиокимёвий тадқиқотлар ва технологиялар долзарб муаммога айланган ва ҳам илмий, ҳам амалий аҳамиятга эга. Радионуклидли маҳсулотларни ишлаб чиқариш ҳам номенклатура, ҳам ҳажм жиҳатдан доимо кенгайиб бориш тенденциясига эга. Шу тенденциядан келиб чиқиб, юқори сифатли радионуклидли маҳсулотлар олишнинг маълум технологияларини такомиллаштириш ва янги замонавий усулларни ишлаб чиқиш каби масалалар туғилади. Радионуклидли $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ генераторини ва ^{57}Co радионуклидини олиш технологияларини ишлаб чиқиш ҳам жуда долзарб вазифалардан ҳисобланади.

Дунёнинг кўплаб ривожланган мамлакатларида ядро тиббиёти саратон, кардиология, эндокрин ва бошқа кўплаб касалликларни эрта ташхислаш усуллари орасида энг муҳим ролга эга. Ядровий тиббиёт усуллари эрта ташхислаш усуллари орасида энг истиқболли ва прогрессив усул ҳисобланади. Бу усуллар бошқа усуллардан ўзининг юқори сезувчанлиги, такрорланувчанлиги билан фарқ қилади ва энг ишончли ҳисобланади. Касалликларни ташхислашда қўлланиладиган радионуклидлар орасида энг кенг қўлланиладиган радионуклид бу технеций-99m радионуклиди. Ҳозирги кунда бу радионуклид саратон ва кардиологик касалликларни ташхислашни 85% ҳолларида қўлланилади. Технеций-99m радионуклиди бола радионуклид бўлиб, она радионуклид бўлган Мо-99 радионуклидини бета-емирилиши натижасида ҳосил бўлади. Яқин вақтгача молибден-99 асосан ядро реакторида уран-235 ни бўлиниши жараёнида (n,f) реакция натижасида ҳосил бўладиган бўлиниш маҳсуллари орасидан ажратиб олинган. Бироқ молибден-99 ни ядро реакторида (n,gamma) реакция орқали ҳосил қилиб олиш усули радиация хавфсизлиги нуқтаи назаридан хавфсизроқ ва технологияни амалга ошириш нуқтаи назаридан оддийроқ усул ҳисобланади. Кейинги пайтларда бу усул барча радиокимё тадқиқотчиларини эътиборини ўзига тортган. Юқорида айтиб ўтилганларга эътиборан молибден-99 радионуклидини олиш ва унинг асосида турли хил вариантда $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ генераторини яратиш технологиясини ишлаб чиқиш жуда муҳим ва долзарб муаммо ҳисобланади.

Фан ва техникада мёссбауэр спектроскопияси аппаратурасини калибрлаш учун ^{57}Co радионуклиди ишлатилади. Бундан ташқари, ^{57}Co радионуклиди ядровий тиббиётда организмни метаболизмини ўрганишда ва турли касалликларни ташхислашда (Шиллинг тести) ишлатиладиган радиофармацевтик цианокобаламин (витамин В₁₂) бирикмасини олишда қўлланилади. Бу радионуклидга бўлган талаб узоқ муддат давомида юқори даражада сақланиб келаяпти.

Бизнинг республикада радионуклидларни ва улар асосида радиофармацевтик препаратларни олишга, уларни онкологик клиникаларда ташхислаш ва даволашда қўллаш каби ишларга бағишланган экспериментал тадқиқотларга катта аҳамият бериб келинаёпти. Ўзбекистон Республикасини янада ривожлантириш бўйича Харакатлар стратегиясининг 2017 – 2021 йилларнинг бешта устувор йўналишларига мувофиқ ядровий тиббиёт соҳасида қўлланиладиган радионуклидларни ва улар асосида радиоактив препаратларни олиш режалаштирилган ва режани бажариш аниқланган.

Ушбу илмий-тадқиқот иши маълум даражада Ўзбекистон Республикаси Президентининг 2017 йил февралдаги УП-4947-сонли “2017-2021 йилларда Ўзбекистон Республикасини янада ривожлантириш бўйича Харакатлар стратегияси тўғрисида”, 2017 йил 7 ноябрдаги 5229-сонли “Фармацевтика саноатини бошқариш тизимини тубдан такомиллаштириш чора-тадбирлари тўғрисида” ги Фармонларида, Ўзбекистон Вазирлар Маҳкамасининг 2019 йил 21 ноябрдаги ХҚ-4526-сонли “Ядро физикаси институтининг илмий-тадқиқот фаолиятини қўллаб-қувватлаш чора-тадбирлари тўғрисида”ги қарори ва шунингдек бу соҳада қабул қилинган бошқа меърий ҳужжатларда назарда тутилган вазиятларга мос келади.

Тадқиқотнинг республика фан ва технологиялари ривожланишининг устувор йўналишларига мослиги. Мазкур тадқиқот республикаси фан ва технологиялари ривожлантиришнинг VII. “Кимёвий технологиялар ва нанотехнологиялар” устувор йўналиши доирасида бажарилган.

Тадқиқот бўйича хорижий илмий тадқиқотлар шарҳи. Радиоактив нуклидлар, айниқса $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ генератори шунингдек радионуклидлар асосида радиоактив фармацевт препаратлар (РФП) ишлаб чиқиш ва уларни амалиётда қўлланилишига таалукли тадқиқотлар дунёнинг кўплаб мамлакатларида ўтказилган ва ҳозирга қадар ўтказилаёпти. $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ генератори ва генератор тизимида ишлатиладиган тўпламлар, турли РФП йирик хорижий фирмалар томонидан ишлаб чиқарилади. Бу фирмалар: Cardinal Health Inc. (АҚШ); CisBio(Франция); GE Healthcare(Буюк Британия); Nordion Inc. (Канада); ISOTOP (Венгрия); FGUP "Маяк" (Россия), ОАО "ГНЦ НИИАР" (Россия), ГНЦ ФЭИ (Россия), НИ ТПУ (Россия) ва бошқалар. Кўп йиллар давомида ЎЗР ФА ядро физикаси институтида ва унинг шуба ташкилотларида (“Тезлатгич” ва ДК “Радиопрепарат”) радионуклид маҳсулотлари ишлаб чиқариш ишлари амалга оширилиб келинаёпти.

Ўтказилган тадқиқотлар доирасида институтнинг ядро реакторида (ВВР-СМ) биринчи марта радиацион қамраш реакцияси (n,γ) орқали олинган ^{99}Mo радионуклиди асосида $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ генераторини олиш технологияси ишлаб чиқилди. Бу технология уран орқали олинган молибден-99 технологиясига альтернатив сифатида ишлаб чиқилган. Кейинчалик шу технология Россияда ҳам (ИРТ-Т НИИ ядро физикаси ТПУ) қўлланилди. Кейинчалик бориб, технология кўп марта қайта кўриб чиқилди ва

такомиллаштирилди, ҳамда ДК “Радмиопрепарат”да ишлаб чиқаришга жорий этилди.

Реакторда олинадиган радионуклидлар билан бир қаторда ядро физикаси институтининг У-150 циклотронда циклотронда олинадиган радионуклидлар ^{57}Co , ^{109}Cd ва ^{68}Ge кабиларни олиш технологиялари ишлаб чиқилди. Улардан ^{57}Co радионуклидини олиш технологияси “Тезлатгич” шубба корхонасида ишлаб чиқаришга жорий этилди ва махсулот хозирга қадар экспортга ишлаб чиқарилаяпти. Дастлаб ишлаб чиқилган, ^{57}Co радионуклидини олиш технологияси кейинчалик бир неча бор такомиллаштирилиб олинаётган махсулотни сифат кўрсаткичларини бир мунча яхшилашга эришилди.

Хозирги пайтда, жахонни кўп мамлакатларида, радионуклидларни олишга бағишланган радиокимёвий жараёнларни ишлаб чиқиш бўйича олиб борилаётган ишлар қуйидаги устувор йўналишларда олиб борилаяпти: ядровий материалларни, шу жихатдан Уран-235 ни тарқалишини олдини олиш мақсадида активацион молибден-99 асосида $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ генераторини технологиясини такомиллаштириш; юқори активликка эга бўлган генератор олиш мақсадида генератор колонкаси учун янги, келажаги порлоқ сорбент яратиш; янада юқори тозалikka эга бўлган ^{57}Co радионуклидини олиш технологиясини яратиш.

Муаммонинг ўрганилганлик даражаси. Ядро медицинаси эҳтиёжи учун қўлланиладиган радионуклидларни олиш технологияларини ишлаб чиқиш муаммолари билан дунёнинг бир мунча радиокимё олимлари шуғулланган ва шуғулланади: Америкадан (J. Steigman, E. N. Vine), Россиядан (Г.Е. Кодина, В.С. Скуридин, Е. Чибисов, Е. Нестеров)), Австралиядан (R. E. Boyd, R. W. Moore, J. V. Evans), Хиндистондан (N. Ramomorthy, P. Vanaja), Ўзбекистондан (Е.С. Гуреев, О. Аббаров) ва бошқа мутахассислар.

Хозирги кунда, $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ радиоизотопли генераторини технологияси, уран-235 дан олинадиган Мо-99 радионуклиди асосида кўп олимлар томонидан ишлаб чиқилган. Бу генераторлар хроматографик усул асосида ва молибденни гел бирикмаси асосида ишлатилади. Генератор колонкасида Мо-99 она нуклидни ушлаб қолиш учун хархил сорбентлар, ҳам ноорганик, ҳам органик (синтетик ионитлар) тадқиқотдан ўтказилган. Шу билан бир қаторда циклотронда олинадиган ^{57}Co радионуклидини циклотронда никел нишонларини протонлар билан нурлантириб олиш технологияси ҳам ишлаб чиқилган (Обнинск, Россия). ^{57}Co радионуклидини бошқа нишонларни, масалан, темир нишонини нурлантириб олиш ва нурлантирилган нишонлардаги ^{57}Co радионуклиди активлигини вақтга, зарядланган заррачалар оқимига боғлиқлиги ўрганилган. Лекин, шу кунга қадар технологияларга таалуқли бир мунча муаммоларни ечими хал бўлмаган эди. Булар: $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ радиоизотопли генератор технологиясини, ядро реакторида молибденни активация қилиш йўли билан олинадиган Мо-99 ишлаб чиқиш ва ^{57}Co радионуклидини юқори тозалikka эга бўлган (махсулотдаги ^{56}Co радионуклидини миқдори 0,15% дан кам бўлиши керак) ҳолатда олиш имконини берадиган технологиясини яратиш.

Тадқиқот мавзусининг илмий тадқиқот ишининг бажарилган илмий-тадқиқот муассасасининг илмий-тадқиқот ишлари режалари билан боғлиқлиги. Илмий тадқиқот иши ЎзР Фанлар академияси Ядро физикаси институти илмий-тадқиқот ишлари режасининг № 01.92.000091-рақамли “Реактор ва циклотронда ҳосил бўладиган радионуклидларни олиш ва ажратишни илмий асосларини ишлаб чиқиш” (1992-1995 йй), № 01970005173-рақамли “Радионуклидларнинг фазалараро тақсимланиш қонунларини ва фазалардаги ҳолатларини тадқиқот қилиш” (1997-1999 йй), 2.1.5-рақамли “Радионуклидларни эритмалардаги, қаттиқ фазалардаги ҳолатлари, фазалараро тақсимланиш қонуниятлари, радионуклидларни реакторда ва циклотронда ҳосил қилиб олишнинг илмий асослари” (2003-2007 йй) мавзуларидаги фундаментал ва амалий лойиҳалари доирасида бажарилган.

Тадқиқотнинг мақсади радионуклидли $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ генераторини реакторда активация қилиб олинган Мо-99 радионуклиди асосида ишлаб чиқиш ва юқори радионуклидли тозалikka эга бўлган ^{57}Co радионуклидини олиш технологиясини ишлаб чиқишдан иборат.

Тадқиқотнинг вазифалари:

нишон $^{98}\text{MoO}_3$ ни реакторда нурлантирилганда олинадиган радионуклид молибден-99 ни юқори маҳсус активлигини таъминлайдиган оптимал шарт-шароитларни аниқлаш;

реакторда нурлантирилган нишонга радиокимёвий ишлов бериш технологиясини ишлаб чиқиш. Ишлов бериш жараёнида молибденни алюминий оксидида сорбцияланадиган кимёвий шаклини олиш;

генератор колонкасида ишлатиладиган сорбент (Al_2O_3) ни молибденга нисбатан юқори ютиш хажмига эга бўлган ҳолатини олиш имконини берадиган усулни аниқлаш;

генератор колонкасини ювишда ва технеций-99м радионуклидини колонкадан ювиб олишда ишлатиладиган эритмаларнинг таркибини аниқлаш;

бойитилган изотоп ^{98}Mo ни ишлатилган генераторларнинг колонкаларидан ва ишлаб чиқаришнинг радиоактив чиқиндиларидан регенерация қилиб олиш технологиясини ишлаб чиқиш ва уни $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ генератори ишлаб чиқарилиши циклига қайтариш;

^{57}Co радионуклидини циклотронда, бойитилган ^{58}Ni изотопини протонлар билан нурлантириб, ҳосил қилиб олиш жараёнини ўрганиш ва оптимал шарт-шароитларини аниқлаш;

^{57}Co радионуклидини циклотронда нурлантирилган нишонлардан ажратиб олишни радиокимёвий технологиясини ва радионуклидни юқори тозалигини таъминлайдиган тозалаш усулини ишлаб чиқиш;

^{57}Co радионуклидини ишлаб чиқариш жараёнида ҳосил бўладиган радиоактив чиқиндилардан бойитилган никель-58 изотопини регенерация қилиб олиш технологиясини ишлаб чиқиш ва олинган никель-58 изотопини ишлаб чиқаришда қайта ишлатиш шартларини ўрганиш.

Тадқиқотлар объекти сифатида $\text{Al}_2\text{O}_3 + ^{99}\text{Mo}(^{99\text{m}}\text{Tc}) + \text{NaCl} \rightarrow ^{99\text{m}}\text{Tc}$ ва $\text{FT4/TOA (дауэкс } 1 \times 4) + ^{58}\text{Ni}(^{57}\text{Co}) + \text{HCl} \rightarrow ^{57}\text{Co}$ радиокимё тизимлар олинган.

Тадқиқотлар предметини активацион молибден-99 асосида $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ генератори олишни радиокимёвий технологияси; ишлатилган генератор колонкаларидан ва суяқ радиоактив чиқиндилардан бойитилган изотоп молибден-98 ни регенерация қилиб олиш технологияси; ^{57}Co радионуклидини циклотронда бойитилган изотоп никель-58 ни нурлантириб олишни радиокимёвий технологияси; ишлаб чиқариш чиқиндиларидан бойитилган изотоп никель-58 ни регенерация қилиб олиш технологияси ташкил этади.

Тадқиқот усуллари. Сорбция ва десорбция; адсорбцион хроматография; куйига ва юқорига йўналтирилган эюация; экстракция ва реэкстракция; экстракцион хроматография; гамма-спектрометрия; радиометрия; статистик таҳлил.

Тадқиқотнинг илмий янгилиги қуйидагилардан иборат:

бойитилган ^{98}Mo изотопли молибден оксидини ядро реактори ВВР-СМ да нурлантириб юқори махсус активликка (6-9 Ки/г) эга бўлган ^{99}Mo радионуклидини активлаштириб олишни шартлари аниқланган;

молибденни изополимолибдат ҳолатидаги кимёвий шаклини олишни янги усули ва молибденни изополимолибдат шакли оксид алюминийда 99% дан юқори даражада сорбцияланиши аниқланган;

бойитилган ^{98}Mo ни активация қилиб олинган ^{99}Mo радионуклиди асосида радионуклидли $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ генераторини олишни технологияси биринчи марта ишлаб чиқилган;

генератор колонкасидан $^{99\text{m}}\text{Tc}$ радионуклидини ажратиб олишда ишлатиладиган эритмаларни таркиби ва радионуклидни ювиб олишни шартлари аниқланган;

биринчи марта радионуклидли генератор $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ ишлаб чиқариш технологияси чиқиндиларидан бойитилган ^{98}Mo ни 80% гача регенерация қилиб олиш ва уни ишлаб чиқариш циклига қайтариш технологияси ишлаб чиқилган;

циклотронда ^{58}Ni изотопини протонлар билан нурлантиришни оптимал шартлари ва нурлантирилган нишонларни радиокимёвий ишлови аниқланган;

^{57}Co радионуклидини нурлантирилган никель-58 нишонларидан олишга асосланган, юқори радионуклидли тозаликни таъминлайдиган (радиоактив ифлосликлар миқдори 0.15% дан кам) такомиллаштирилган хроматографик усули ишлаб чиқилган;

биринчи марта ^{57}Co радионуклиди ишлаб чиқариш технологияси чиқиндиларидан бойитилган ^{58}Ni ни 80% гача регенерация қилиб олиш ва уни ишлаб чиқариш циклига қайтариш технологияси ишлаб чиқилган.

Тадқиқотнинг амалий натижалари қуйидагилардан иборат:

$^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ радионуклидли генераторини олиш технологияси ва экспериментал саноат қоидалари ишлаб чиқилган ва ишлаб чиқаришга жорий қилинган;

^{57}Co радионуклидини олиш технологияси ишлаб чиқилган, технология ишлаб чиқаришга жорий қилинган ва ҳозирда технология асосида $^{57}\text{CoCl}_2$, радиоизотопли махсулот ишлаб чиқарилаёпти.

Тақиқот натижаларининг ишончилиги экспериментал тадқиқотларни ўтказишда замонавий усуллардан ва ўлчаш воситаларидан фойдаланганлик, олинган натижаларни ўзга тадқиқотчиларни олган натижалари билан солиштириш, ўтказилган тажрибаларни параллеллиги ва олинган натижаларга статистик ишлов бериш билан исботланади.

Тадқиқот натижаларининг илмий ва амалий ахамияти. Тадқиқотларнинг илмий ахамияти ^{98}Mo изотопини ядро реакторида нурлантиришни оптимал шароитларини аниқлаш, молибденни кучсиз нордон мухитларда изополимолибдат шаклини олиш шартлари, генератор колонкасидан $^{99\text{m}}\text{Tc}$ радионуклидини ювиб олишда қўлланиладиган эритмаларни таркибини аниқлаш, циклотронда нурлантирилган ^{58}Ni нишонини совутишни оптимал муддатини аниқлаш ва нурлантирилган нишонлардан ^{57}Co радионуклидини ажратиб олиш ва ишлаб чиқариш чиқиндиларидан ^{98}Mo ва ^{58}Ni изотопларини ажратиб олиш ва тозалаш кабилардан иборат.

Тадқиқот натижаларининг амалий ахамияти радионуклидли генератор $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ технологиясини ва технологияни экспериментал саноат қоидаларини ишлаб чиқиш ва шунингдек ^{57}Co радионуклидини олиш технологиясини ишлаб чиқиш кабилардан иборат. Олинган натижаларни амалий ахамияти ихтироларни ишлаб чиқаришга жорий этилганлиги билан белгиланади.

Тадқиқот натижаларининг жорий қилиниши. $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ радонуклидли генераторини ва ^{57}Co радионуклидини олиш технологияларини ишлаб чиқиш бўйича олинган натижалар асосида:

натрий пертехнетат (Tc-99m) ни олиш усулига Ўзбекистон Республикаси Интеллектуал мулк агентлигининг ихтирога патенти олинган (“Натрий пертехнетат (Tc-99m) ни олиш усули”, № 5121, 29.06.1998). Ихтиродан фойдаланиш натижасида натрий пертехнетат эритмасини генератор колонкасидан вакуумлаштирилган флаконлар ёрдамида олиш имконияти яратилган. Бу ҳолат клиникаларда генератордан фойдаланиш жараёнини хавфсизлигини таъминлайди;

ишлатилган генераторлардан олинган молибден-98 ни нейтронлар билан нурлантириб технеций-99m генераторини олиш усулига Ўзбекистон Республикаси Интеллектуал мулк агентлигининг ихтирога патенти олинган (“Технеций-99m генераторини олиш усули”, № IDP 05064, 18.01.2002). Ихтиродан фойдаланиш натижасида хом-ашёга бўлган ишлаб чиқариш харажатларини 80% га камайтириш ва $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ генераторини чиқиндиларсиз технологиясини яратиш имконияти яратилган.

натрий пертехнетат (Tc-99m) ни олиш усулига Ўзбекистон Республикаси Интеллектуал мулк агентлигининг ихтирога патенти олинган (“Натрий пертехнетат (Tc-99m) ни олиш усули”, № IAP 04001, 22.07.2009). Ихтиродан фойдаланиш натижасида Tc-99m радионуклидини генератор колонкасидан ювиб олиш унумини ва эффективлигини ошириш имконияти яратилди;

активацион ^{99}Mo ва ишлаб чиқариш чиқиндиларидан регенерация қилиб олинган бойитилган Mo-98 асосида ишлаб чиқилган технологиялар Ўз ФА ЯФИ ҳузуридаги “Радиопрепарат” Давлат корхонасида ишлаб чиқаришга жорий этилган (10.08.2021 да берилган №1-1/784-сонли Ихтиродан фойдаланиш акти). Натижада маҳсулот сифати оширилди ва ишлаб чиқариш харажатлари 80% га қисқарди;

ташувчисиз кобалт-57 ни олиш усулига Ўзбекистон Республикаси Интеллектуал мулк агентлигининг ихтирога патенти олинган (“Ташувчисиз кобалт-57 ни олиш усули”, № 5120, 03.07.1998). Ихтиродан фойдаланиш натижасида олинган маҳсулот кобалт-57 препаратининг радионуклидли тозалиги ошди ва сифати яхшиланди;

ташувчисиз кобалт-57 ни олиш усулига Ўзбекистон Республикаси Интеллектуал мулк агентлигининг ихтирога патенти олинган (“Ташувчисиз кобалт-57 ни олиш усули”, № 2857, 30.09.1995). Ихтиродан фойдаланиш натижасида ишлаб чиқариш харажатлари қисқартирилди ва кобалт-57 радионуклидини чиқиндиларсиз олиш технологияси яратилди;

^{57}Co радионуклидини такомиллаштирилган хроматографик технологияси ва ^{58}Ni изотопини ишлаб чиқариш чиқиндиларидан ажратиб олиш технологияси ООО «Тезлатгич» корхонасида ишлаб чиқаришга жорий этилган (09.08.2021 да берилган №126/1-сонли Ихтиродан фойдаланиш акти). Натижада маҳсулот сифати оширилди ва ишлаб чиқариш харажатлари 80% га қисқартирилди.

Тадқиқот натижаларини апробацияси. Тақиқотлар доирасида олинган натижалар 18 та Халқаро ва Республика миқёсида ўтказилган илмий-амалий анжуманларда муҳокамадан ўтган.

Тадқиқот натижаларини эълон қилинганлиги. Тадқиқот мавзуси бўйича жами 20 та илмий мақолалар илмий журналларда ва тўпламларда чоп этилган, шулардан 10 илмий мақола Ўзбекистон Республикаси Олий аттестация комиссиясининг асосий илмий натижаларни чоп этиш тавсия этилган нашрларда чоп этилган ва 15 та ихтирога муаллифлик гувоҳномалари ва патентлар олинган. Умумий мақолалар сонидан 6 та мақола хорижий тўпламларда чоп этилган.

ТАДҚИҚОТНИНГ АСОСИЙ МАЗМУНИ

I. Ўзбекистон Республикаси Интеллектуал мулк агентлигининг “Натрий пертехнетати (Tc-99m) ни олиш усули” (№ 5121, 29.06.1998 й.) ихтирога дастлабки патенти.

Фойдаланиш соҳаси: амалий радиокимёда.

Вазифаси: $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ радионуклидли генератор колонкасида сифати юқори бўлган радионуклидли препаратни ювиб олиш ишончилигини ошириш ва генератордан фойдаланиш жараёнида радиацион хавфсизлик даражасини ошириш.

Ихтиро миҳияти: усул молибден-98 изотопи билан бойитилган молибден оксидини иссиқ нейтронлар билан нурлантиришни, нурлантирилган

молибден оксидини ишқорий эритма ёрдами билан эритма ҳолатига ўтказишни, молибденни изополимолибдат шаклга ўтказишни, изополимолибдат шаклидаги молибденни генератор колонкасига жойланган алюминий оксидида сорбция қилишни, концентрацияси 0,01% дан кўп бўлмаган водород пероксидли, нордонлаштирилган дистирланган сув билан генератор колонкасини ювишни, генератор колонкасини стерилизациялашни ва натрий пертехнетати $\text{Na}^{99\text{m}}\text{TcO}_4$ кўринишли технеций-99m ни 23-25 мг/л нитрат натрийли натрий хлориднинг стерилли физиологик эритмасида элюирлашни (ювиб олиш) ўз ичига олади. Технеций-99m ни колонкадан ювиб олиш колонканинг остидан колонка тепаси томон 4-8 мл/мин тезликда амалга оширилади, бунда препаратни тортиб оладиган флакон ичидаги сийраклик 640- 680 симоб устунига тенгланади.

Амалиётда молибден-99 икки хил усул билан олинади ва иккала усул ҳам реакторда амалга оширилади:

- 1) ^{235}U (n,f) БМ (~ 6,1% ^{99}Mo);
- 2) ^{98}Mo (n, γ) ^{99}Mo .

Тақдим этилаётган ишда ^{98}Mo изотопи билан 98,75% гача бойитилган иккинчи усул таклиф қилинган.

Молибден нишонларини ядро реакторида нурлантирилганда молибден изотопларининг ядроларида (n, γ), (n,2n), (n,p) ядровий реакциялари бўлади. Бу реакциялар натижасида Мо ва Nb ларнинг радиоактив нуклидлари ҳосил бўлади. Бу ядровий реакциялар 1-жадвалда акс этдирилган. Келтирилган жадвалда ядро реакцияларининг кесимлари, радионуклидларнинг ярим емирилиш даври ва Мо-98 билан бойитилган нишондаги молибденнинг бошқа изотопларининг миқдори берилган.

1-жадвал

Нейтронлар таъсирида молибден изотоплари ядроларида бўладиган ядровий реакциялар.

Мо изотопи	Табиатда тарқалганлиги, %	Ядровий реакция	Активлашиш кесими, мбарн	Радионуклид	Ярим емирилиш даври	Бойитилган маҳсулотдаги миқдори, %
^{92}Mo	15,84	(n, γ) (n,2n) (n,p)	< 6 7,0 – 15,0 5,7 – 66,0	$^{93\text{m}}\text{Mo}$ $^{91\text{m}}\text{Mo}$ ^{92}Nb	6,94 ч. 1,09м. 10,16 д.	0,01
^{94}Mo	9,12	(n,p)	7,4	$^{94\text{m}}\text{Nb}$	6,3 м.	0,03
^{95}Mo	15,70	(n,p)	12,4	$^{95\text{m}}\text{Nb}$	3,75 д.	0,03
^{96}Mo	16,50	(n,p)	16 - 37	^{96}Nb	23,35 ч.	0,01
^{97}Mo	9,45	(n,p)	7,4	$^{97\text{m}}\text{Nb}$	1,0 м.	0,66
^{98}Mo	23,75	(n, γ) (n,p)	410 9,2	^{99}Mo ^{98}Nb	66,02 ч. 51,5м.	98,75
^{100}Mo	9,62	(n, γ) (n,2n)	200 1,8	^{101}Mo ^{99}Mo	14,61 м. 65,9 ч.	0,51

Баъзибир намуналардаги ҳосил бўлган молибден-99 нинг активлиги 2-жадвалда келтирилган. Шу жадвалда келтирилган маълумотлардан реакторнинг тажриба каналларидаги иссиқ нейтронлар оқими зичлигини (F) ва молибден-98 ни активлашишини эффектив кесимини (резонанс нейтронларнинг таъсирини ҳисобга олган ҳолда) ҳисоблашда фойдаланилди. Ҳисоблаш натижалари қуйида келтирилган:

$$F(\text{условный номер канала 2-3}) = (8,17 \pm 0,37) \cdot 10^{13} \text{ н/см}^2 \text{ с.}$$

$$\Sigma_{\text{эфф}} = 0,57 \pm 0,06 \text{ барн,}$$

бунда F – иссиқ нейтронларнинг оқим зичлиги; $\Sigma_{\text{эфф}}$ – активлашиш эффектив кесими.

2-жадвал

Молибден-99 активлигини қийматлари, Ки/г ^{98}Mo

Намуна рақами	Нурлантириш вақти, соат.	Радиация қуввати бўйича	Монитор бўйича	Аликвота активлиги бўйича
1	200	6,60	6,55	6,71
2	190	6,43	6,76	6,47
3	190	7,00	6,95	6,90
4	185	6,79	6,94	6,45
5	185	6,41	6,01	6,05
6	165	6,37	5,73	6,13
7	160	6,37	5,22	5,76

Молибден-98 нурлантирилганда ^{99}Mo ҳосил бўлиши ҳосил бўлиш кинетикаси ва радионуклидни емирилиши билан аниқланади ва бўлиниш нейтронларининг спектрига, активлаштирилаётган нуклиднинг ядро-физикавий хусусиятларига ва нурлантириш вақтига боғлиқ бўлади.

$^{99\text{m}}\text{Tc}$ ядроларининг она нуклидда йиғилиши максимумга эга бўлиб, максимумдан ўтгандан сўнг радиоактив парчаланишнинг мувозанат ҳолатига мос келган ҳолда камайиб боради. Максимумга чиқиш вақти қуйидаги ифода орқали топилади:

$$t_{\text{max}} = \frac{\ln(\lambda_{\text{T}}/\lambda_{\text{Mo}})}{\lambda_{\text{Tc}} - \lambda_{\text{Mo}}} \quad (1)$$

унинг қиймати 23,04 соатга тенг.

Технологик жараёни асосий босқичлари қуйидагилардан иборат:

- тайёргарлик ишлари (генератор колонкасининг сорбенти Al_2O_3 ни тайёрлаш, эритмаларни тайёрлаш, нурлантириладиган намунани тайёрлаш);
- $^{98}\text{MoO}_3$ намунасини нурлантириш;
- нурлантирилган $^{98}\text{MoO}_3$ ни эритиб эритма ҳолатига келтириш;
- молибденни изополимолибдат формасига ўтказиш;
- молибдена-99 ни оксид алюминийда сорбциясини ўтказиш;

- генератор колонкасини стерилизациялаш;
- технеций-99m радионуклидини генератор колонкасидан дастлабки ювиб олинишини (элюациясини) ўтказиш.

Юқорида санаб ўтилган технология жараёнларининг этапларидан дастлабки элюация ва умуман бола нуклид Тс-99m ни генератордан фойдаланилаётганда элюацияси Тс-99m ни генератор колонкасидан ювиб олиш эффективлигига катта таъсир кўрсатади. Генераторнинг дастлабки вариантларида элюация юқоридан пастга қарата, махсус шприцдан фойдаланган ҳолда ювиш принципида амалга оширилган. Бундай элюацияда эритма колонка бўйлаб юқоридан пастга қараб ҳаракатланган. Бундай элюацияда элюацион эритма генератор колонкасининг хамма зоналаридан бир текисда юрмаслик хавфи мавжуд ва бу ҳол генераторда генерация бўлган Тс-99m ни колонкадан тўлиқ ювиб олинишига олиб келмаслиги мумкин. Элюацияда элюацион эритманинг колонка бўйлаб ҳаракатланиш тезлиги хам муҳим рол ўйнайди.

Такдим этилаётган ихтирода вакуумлаштирилган флаконлардан фойдаланган ҳолда пастдан юқorigа қарата элюациялаш принципи таклиф қилинган. Бу принцип она радионуклид Мо-99 ни колонка сорбентида бир текис тарқалмаганлиги натижасини бартараф қилиб, элюацион эритманинг мумкин бўлган “сакраш” ларини олдини олиш имкониятини беради. Принцип генераторда ҳосил бўлган Тс-99m ни тўлиқ ювиб олиш имконини беради, генератор ишининг ишончлилигини оширади ва генератордан фойдаланиш жараёнида персоналнинг кўшимча нурланиш хавфини камайтиради. Ўз навбатида вакуумлаштирилган флаконлардан фойдаланиш элюацион эритмани генератор колонкасида ҳаракатланиш тезлигини танлаб олинган қийматини ушлаб туриш имконини беради.

Таклиф қилинаётган усул тажрибаларида олинган натижалар 3-жадвалда келтирилган

3-жадвал

Тс-99m ни ювиб олинишини элюация тезлигига боғлиқлиги (флаконлар вакуумланган)

Элюация тезлиги, <i>мл/мин</i>	Флакон ичидаги сийраклик, <i>мм рт. ст.</i>	Выход Тс-99m ювиб олиниш эффективлиги, %
2,0	720	92,3
3,0	700	92,0
4,0	680	91,4
5,0	670	90,7
6,0	660	89,9
7,0	650	87,9
8,0	640	85,6
9,0	620	76,5
10,0	600	70,4

Таблицада келтирилган натижалардан кўриниб турибдики, элюациянинг кичик тезликларида муқим юқори эффективлик кузатилади, ва аксинча тезлик ошганда эффективлик камайди. Аммо, элюация тезлигини 4 мл/мин дан камайтириш радиоактив манба бўлган генератордан фойдаланиш вақтини узайишига олиб келади ва бу персонал учун тавсия қилинмайди. Танлаб олинган элюация тезлиги флакон ичидаги сийраклик симоб устуни 640-680 мм бўлганда таъминланади.

II. Ўзбекистон Республикаси Интеллектуал мулк агентлигининг "Тс-99m генераторини олиш усули" (№ IDP 05064, 27.03.2001 й.) ихтирога дастлабки патенти.

Фойдаланиш соҳаси: амалий радиокимеда, хусусан тиббиёт эҳтижлари учун радиоактив препаратлар олиш усулида.

Вазифаси: технеций-99m генераторининг олиш технологиясини соддалаштиришга ва натрий пертехнетат-99m генераторидан олинадиган сўнгги маҳсулотни юқори сифатини сақланган ҳолда жараённи анча тежамли қилишга имкон берадиган усул яратиш.

Ихтиро моҳияти: усул ишлатилган технеций-99m генератор сорбентидан эритмага десорбциялаш, эритмадан чўктириш, чўкмани сувли фазадан ажратиш, қуритиш ва қиздириш йўли билан олинган молибден-98 оксидини иссиқ нейтронлар билан нурлантиришни ўз ичига олади. Сўнгра молибден оксидини ишқорда эритиб изополимолибдат шаклига ўтказилади. Сорбциялашни алюминий оксидида ўтказилади. Генератор колонкасини ювиш, стериллаб сўнгра технеций-99m ни элюация қилиш натрий хлориди физиологик эритмаси билан ўтказилади. Ишлатилган генераторлар сорбентидан молибден-98 ни десорбциялаш аммиакнинг камида 10% ли сувдаги эритмаси билан 0,9-1,2 мл/мин тезликда амалга оширилади.

АТЭХАГ (МАГАТЭ) нинг уран изотопи уран-235 ни (Мо-99 изотопини олишда ҳам ишлатилади) бойитиш даражасини камайтириш бўйича олиб бораётган сиёсати туфайли кўпчилик тадқиқотчилар ўз эътиборларини Мо-99 ни бойитилган Мо-98 изотопини (n,gamma) реакцияси ёрдамида олиш муаммосига қаратишга мажбур бўлдилар. Натижада бойитилган Мо-98 изотопини нархи кескин даражада ошиб кетди. Бизнинг шароитда бу ҳолат $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ генератори технологиясини харажатларини ошишига олиб келди. Чунки бизда ишлаб чиқарилаётган генераторлар технологияси бойитилган Мо-98 изотопини нейтронлар билан нурлантириш натижасида олинади. Шу туфайли бойитилган Мо-98ни ишлатилган генераторлардан ва ишлаб чиқариш чиқиндиларидан регенерация қилиб олиш ва ишлаб чиқаришда ундан қайта фойдаланиш зарурати пайдо бўлди. Бу муммони ечими чиқиндиларсиз ишлаб чиқариш технологиясини яратиш нуқтаи назаридан ҳам актуал ҳисобланади.

Агар Мо-98 нурлантирилганда 5 Ки/г активлик ҳосил бўлса, бундай активлик 10^{-5} г Мо-98 массасини сарфланишига олиб келади. Бу Мо-98 нинг асосий қисми активлашмай чиқиндига чиқиб кетади дегани. Активлашмай қолган бу молибденни регенерация қилиб қайтариш ва ундан ишлаб

чиқаришда қайта фойдаланиш мумкин. Бу жараёни ишлатилган генераторларнинг сорбентларини йиғиб, маълум муддат сақлаш ва сорбентдаги қолдиқ активлик сезиларли даражада камайгандан сўнг амалга ошириш мумкин. Бу материалдан 60-70% Мо-98 изотопини регенерация қилиб олиш корхонани хомашёга бўлган йиллик эҳтиёжини ярмидан кўпини қоплаши мумкин.

Таклиф қилинаётган усулда Мо-98 ни генератор колонкасининг сорбенти фазасидан ювиб олиш учун аммиакнинг сувли эритмасидан фойдаланиш мумкинлиги кўрсатилган. NH_4OH нинг эритмаларидан фойдаланилганда молибден нормал молибдат ионлари шаклига (MoO_4^{2-}) ўтади ва Al_2O_3 фазасидан сувли фазага ўтади.

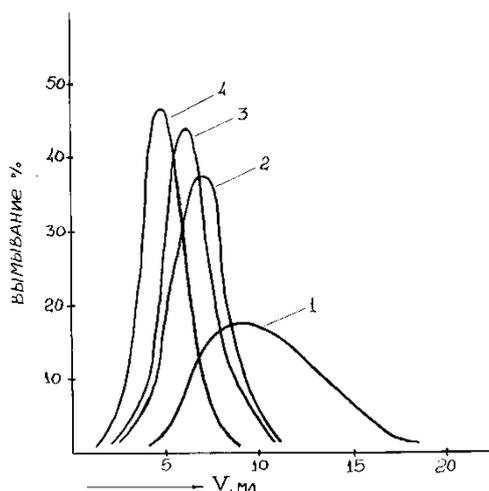
Аммиакнинг сувли эритмаларини ишлатиб олинган натижалар 4- ва 5-жадвалларда, ҳамда 1-расмда келтирилган. Тажрибада олинган натижалардан келиб чиқиб аммиакнинг сувли эритмасини концентрацияси 10% дан кам бўлмаслиги оптимал деб топилган.

4-жадвал

NH_4OH концентрациясини Мо-98 унумига таъсири

NH_4OH концентрацияси, %	Мо-98 нинг унуми, %
7,0	60
9,0	78
10,0	86
11,0	89
12,0	90
13,0	> 90

Мо-98 ни ишлатилган генераторларнинг сорбент фазасидан ювиб олиш тезликларини регенерация жараёнига таъсири 5-жадвалда кўрсатилган. Натижалар оптимал ювиш тезлиги 0,9-1,2 мл/мин ни ташкил қилишини кўрсатади.



1-расм. Мо-98 ювилиш графиклари

- 1 - 3,5% NH₄OH;
- 2 - 7,0% NH₄OH;
- 3 - 10% NH₄OH;
- 4 - 7,0% NH₄OH + 2,0% H₂O₂.

5-жадвал

**Мо-98 ни ювилишини оптимал тезлигин аниқлаш
(сорбент массаси 200 г)**

Ювилиш тезлиги, <i>мл/мин</i>	Сарфланаётган эритма хажми, <i>мл</i>	Тўлиқ ювилиш вақти, <i>мин</i>
0,4	240	600
0,6	260	430
0,8	280	350
0,9	290	320
1,0	300	300
1,1	300	270
1,2	310	260
1,3	350	270
1,4	400	285

Технология жараёнининг кимёвий схемасини қуйидагича келтириш мумкин:

1. 10% дан кам бўлмаган аммиак эритмаси билан Мо-98 ни оксид алюминийдан ювиб олиш.



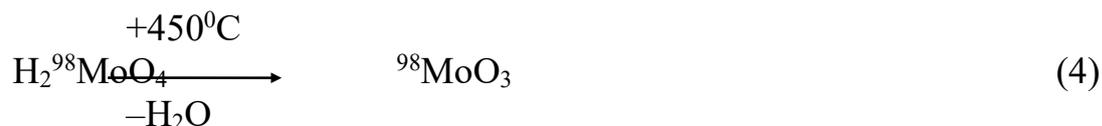
2. ~100⁰С температурада (NH₄)₂⁹⁸MoO₄ ни концентрлаш.

3. Азот кислотаси ёрдамида молибден кислотасини ҳосил қилиб чўктириш.



4. Чўкмани филтрлаш ва дистилланган сув билан ювиш.

5. Олинган молибден кислотани қуришиб ва қиздириб молибден оксид шаклига ўтказиш.



III. Ўзбекистон Республикаси Интеллектуал мулк агентлигининг “Натрий пертехнетатини (Тс-99m) олиш усули” (№ IAP 04001, 31.05.2007) ихтирога патенти.

Фойдаланиш соҳаси: амалий радиокимеда, хусусан тиббий мақсадлар учун радиопрепаратлар олишда.

Вазифаси: молибден-99 нинг солиштирма активлигини ошириш ва Тс-99m ни колонкадан чиқиш унумини ошириш, шунингдек мақсадли маҳсулотнинг юқори характеристикаларига эга бўлишда барқарорликни таъминлаш.

Ихтиро моҳияти: натрий пертехнетат (Тс-99m) ни олиш усули ($1,0-1,5$) $\cdot 10^{14}$ н/см²с⁻¹ нейтронлар оқим зичлигида Мо-98 изотопи билан бойитилган молибден оксидини иссиқ нейтронлар билан нурлантиришни, нурлантирилган молибден оксидини ишқорда эритишни, ишқорли эритмага рН=2,0 гача хлорид кислотанинг сувли эритмасини қўшиб, молибденни изополимолибдат шаклига ўтказишни, изополимолибдат сорбцияси олдида генератор колонкасини 60-80 °С температурали ва рН=2,0 га тенг хлорид кислотасининг иссиқ сувли эритмаси билан ювишни, генератор колонкасига жойлаштирилган молибденни дистирланган сув ва рН=2,0 ли хлорид кислотасининг сувли эритмаси билан ювилган 0,05-0,20 мм ўлчамдаги заррачалар қўрилишидаги алюминий оксидида сорбция қилишни, колонкани 2,5-3,0 г миқдордаги сорбент билан тўлдиришни, изополимолибдат сорбциясидан олдин ва кейин генератор колонкасини рН=2,0 ли хлорид кислотасининг сувли эритмаси билан ювишни, натрий пертехнетат (Тс-99m) қўрилишидаги технеций-99m ни таркибида 23-25 мг/мл натрий нитрати бўлган натрий хлориднинг стерил эритмаси билан флаконга элюирлашни, ўз ичига олади. Бунда флакон ичидаги сийраклик симоб устунининг 640-680 мм га тенг бўлиб, элюирлаш колонканинг пастида юқорисига қараб 4-8 мл/мин тезлик билан амалга оширилади.

Келтирилган ихтирода молибден оксидини (Мо-98) $1,2 \cdot 10^{14}$ н/см²с⁻¹ нейтронлар оқими зичлигида реакторнинг марказий каналида ТВЭЛ лар зонасида нурлантиришни таклиф қилинган, Бу ҳолда Мо-99 нинг солиштирма активлигини 5 Ки/г дан 9 Ки/г гача ва ундан юқори ошириш имкони пайдо бўлади (6-жадвал).

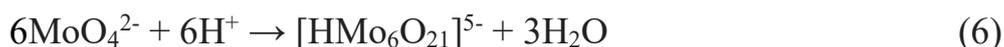
Mo-99 нинг солиштирма активлиги

Нейтрон оқими зичлиги, n/cm^2c^{-1}	Нурлантириш вақти, час	Солиштирма активлик, Ки/г
$1,2 \cdot 10^{14}$	122	8,8
$1,2 \cdot 10^{14}$	140	9,0
$1,2 \cdot 10^{14}$	176	10,3

Молибден ишқорий эритмада эритилганда нормал молибдат молекулалари ҳосил бўлади (тенглама 5).



Бундай эритмани нордонлаштирилганда таркиби рН қийматига боғлиқ бўлган молибден бирикмалари ҳосил бўлади. рН 6,0 дан 2,0 гача ўзгарганда секин аста эритмада пара- и изополимолибдат ионлари ҳосил бўла бошлайди (6 ва 7 тенгламалар):



Молибден кислотасининг чўкмаси ҳосил бўлмаслиги учун эритмани нордонлаштириш хлорид кислотанинг паст концентрацияси (1,0 мол/л) билан амалга оширилади. Генератор колонкасидаги сорбентнинг 0,05-0,20 мм ўлчамли заррачалари изополимолибдат ионларини сорбциясини таъминлайди. Молибден сорбциясига сорбентга сорбциядан олдин температура ёрдамида ишлов бериш таъсир қилади. Генераторнинг эффектив ишлашига температурани таъсири 7-жадвалда кўрсатилган.

Tc-99m ни генератор колонкасида элюирлаш эффективлигига температурани таъсири. из генераторной колонки

Температура, °C	Tc-99m унуми, %	Mo-99 аралашмаси, %
20	86,0	0,002
40	92,0	0,001
60	97,5	0,0009
80	98,8	0,0009

рН қийматини генераторнинг ишлаш эффективлигига таъсири 8-жадвалда кўрсатилган.

**Элюирлаш эритмасининг рН ини $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ генераторининг ишлаш
эффективлигига таъсири**

Ўлчов вақти	рН	Tc-99m унуми, %	Mo-99 аралашмаси, %
Тайёрланган кун	1	91,7	0,0087
	2	97,8	0,0007
	3	95,0	0,0009
4 кундан кейин	1	90,2	0,004
	2	98,8	0,0009
	3	94,0	0,001
6 кундан кейин	1	88,0	0,002
	2	100,0	0,001
	3	86,0	0,002

Ва охирида $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ экспериментал генераторларидан бирининг характеристикалари 9-жадвалда келтирилган.

Экспириментал $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ генераторининг характеристикалари

Ўлчанадиган параметрлар	Параметрлар қиймати
Удельная активность Mo-99, <i>Ku/г</i>	9,2
Объемная активность, <i>ГБк/мл</i>	2,1
Выход Tc-99m, %	97,8
Радиохимическая чистота, %	> 99
Содержание Mo-99	$7 \cdot 10^{-3}$
рН	6,0
Содежание алюминия, <i>мкг/мл</i>	< 2,0

Шундай қилиб, таклиф қилинган процедураларнинг мажмуаси $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ генераторини тайёрлашда ихтиро олдига қўйилган вазифаларни ижобий хал қилиш имконини беради.

IV. Ўзбекистон Республикаси Интеллектуал мулк агентлигининг “Ташувчисиз кобальт-57 радионуклидини олиш усули” (№ IDP 2857, 14.09.1994 й) ихтирога дастлабки патенти.

Фойдаланиш соҳаси: радиоактив нуклидларни ажратиш усулларида.

Вазифаси: кобальт-57 ни ишлаб чиқариш учун сарф-харажатларни камайтириш ва уни чиқиндисиз шаклда ишлаб чиқаришни барпо қилиш.

Ихтиро моҳияти: усул бойитилган никел-58 ни протонлар билан нурлантиришни, хлорид кислотада эритишни, анион алмаштирувчи тўлдирилган хроматографик колонкада кобальт-57 ни сорбция қилиш ҳамда уни хлорид кислота эритмасида элюирлашни, дастлабки колонкадан ўказилган эритмани фойдаланилган тагликни ювиш натижасида олинган эритма билан қўшиб иккиламчи анион алмаштирувчи колонка орқали

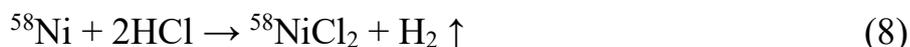
ўтказишни, ишқор эритмаси билан никелни гидроксид шаклда чўктиришни, ҳосил қилинган чўкмани рН 9,0 дан кам бўлмаган ишқорий муҳитда сутка давомида ушлаб туришни, чўкмани филтрлашни, ювишни ва қуриштишни, қиздириш йўли билан никел-58 гидроксидини оксид шаклига ўтказишни ўз ичига олади.

Ҳозирги пайтда барча кобалт-57 ишлаб чиқарадиган ташкилотлар (фирмалар) технологияда бойитилган никел-58 дан фойдаланади. Шу сабабли бойитилган никел-58 нинг нархи кейинги пайтларда кескин ошиб кетди. Бу эса ўз навбатида кобалт-57 ишлаб чиқаришни сарф харажатларини ошишига олиб келди.

Никел-58 протонлар билан нурлантирилганда унинг асосий қисми ядровий ўзгаришда қатнашмайди ва радиоактив чиқинди сифатида чиқиндилар кўмиш ташкилотига бериб юборилади. Технология жараёнида никел-58 радиоактив чиқинди сифатида қаттиқ ҳолатда ҳам, суяқ ҳолатда ҳам учрайди. Шу сабабли чиқиндилар таркибидан никел-58 ни регенерация қилиб ажратиб олинса ва ишлаб чиқаришда қайта ишлатилса ишлаб чиқариш сарф харажатларини камайтириш имконини беради.

Никел-58 регенерациянинг кимёвий схемасини қуйидаги тарзда ифодаласа бўлади:

1. Нишонни мис таглигидан қолган никелни хлорид кислотанинг 10 мол/л эритмаси билан эритмага ўтазиб олиш. Бу жараёнда нишонда қолиб кетган кобалт-57 билан бир қаторда эритмага таглик материали бўлган мис ҳам ўтади ва мисда бўлиб ўтган ядро реакцияси махсули Zn-65 ҳам ўтади.

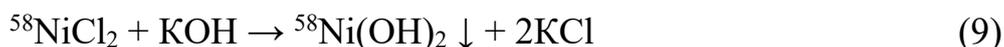


Шундай қилиб олинган эритма таркиби: ^{57}Co , ^{58}Ni , ^{65}Zn , $^{\text{nat}}\text{Cu}$ лардан иборат.

2. Никел-58 хлорид эритмасини анионалмашинув колонкасидан ўтказиш. Бу жараёнда никел-58 Cu , Zn-65 , Co-57 ва бошқалардан ажратиб олинади.

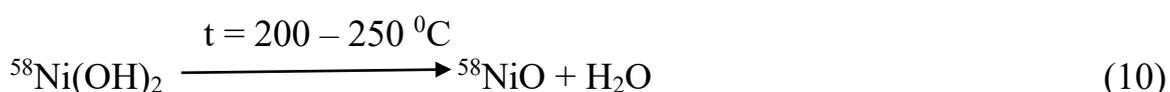
3. Никел-58 хлорид эритмасидаги эритувчини 100 – 120 °С да хайдаб асосий эритмани концентрлаш.

4. Никел-58 ни КОН эритмаси ёрдамида гидроксид формасини чўктириш.

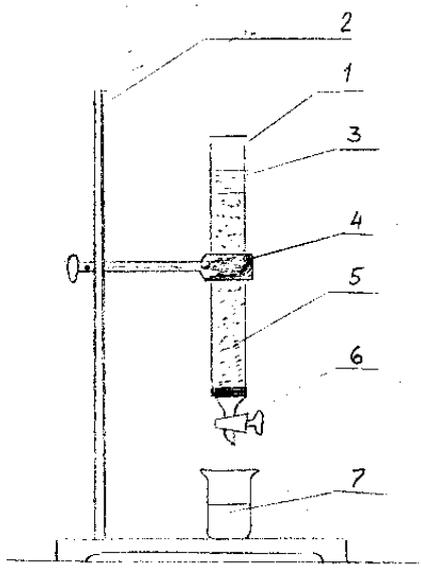


5. $^{58}\text{Ni}(\text{OH})_2$ чўкмани филтрлаш ва сув билан ювиш.

6. $^{58}\text{Ni}(\text{OH})_2$ ни қуриштириш ва қиздириб оксид шаклига ўтказиш.



Жараённи бажариш қурилмасининг схемаси 2-расмда кўрсатилган



20-расм. Анион алмашинув колонка

(1 – шиша колонка; 2 – штатив; 3 – колонканинг ишчи қатлами устидаги суюқлик; 4 – панжа; 5 – суспензия ТОА/ФТ-4 ёки Дауэкс 1x4; 6 – кран; 7 – элюат йиғиш учун стакан).

Анион алмашинув колонкасида никел-58 ни хар хил ифлосликлардан, радиоактив ва кимёвий аралашмалардан ажратиб тозаланади. Суюқ фаза мухити 10 мол/л хлорид кислота. Бу жараёнда колонкани ишчи қатламини мис билан тўйинишни кузатиб бориш шарт. Анионитни мис билан тўйинган қисми ўзига хос ранг олади ва шунинг учун тўйинишни кузатув орқали бажарса бўлади. Никел-58 эритмасини ўтказишни колонка ишчи қатламини 2/3 қисми мис билан тўйингандан кейин тўхтатиш керак. Сўнгра, эритма ўтказиш тўхтатилгач, колонкани хлорид кислотани 8,0 мол/л лик эритмаси билан ювилади. Ўтказиладиган эритма хажми колонкани бир, бир ярим озод хажмига тенг бўлиши керак. Колонкани ювиш натижасида колонкадан ўтган эритма асосан никел-58 эритмаси бўлади. Стаканга йиғилган эритмани колбага ўтказилади ва колбада эритма қайнатилиб никел-58 концентрланади. Концентрланган никел-58 эритмаси совутилиб эритмадан никелнинг гидроокиси чўкмага 8,0 мол/л ли КОН билан чўктирилади. Чўкма устидаги эритманинг рН и 9,0 дан кам бўлмаслиги керак. Тажрибалар натижаси 10-жадвалда келтирилган.

10-жадвал

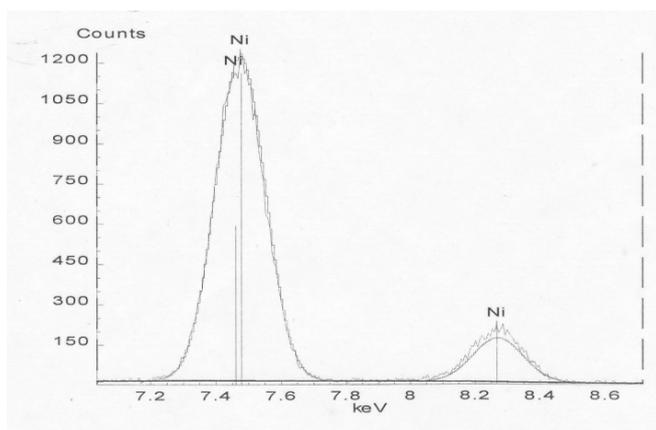
Эритма рН ининг чўкиш тўлиқлиги таъсири

рН	7,0	8,0	8,5	9,0	9,5	10,0	10,5
⁵⁸ Ni унуми, %	67,2	84,6	90,2	98,3	98,2	98,4	98,3

Чўкма сутка давомида сақлангандан (чўкманинг етилиш муддати) сўнг, чўкма эритмадан ажратилади, дистирланган сув билан ювилади ва хона температурасида қуритилади. Қуритилган ⁵⁸Ni(OH)₂ 200-250 °С да қиздирилиб ⁵⁸NiO ҳолатига ўтказилади. Ҳосил бўлган маҳсулотни ҳақиқийлиги рентгенфлуоресцент усул билан (3-расм), тозалиги спектрал усул билан (11-жадвал) текширувдан ўтказилади.

**^{58}NiO нинг спектрал анализ натижалари ^{58}NiO (кимёвий
Элементлар миқдори, мкг/г)**

Элементы	Si	Al	Mg	Fe	Cu	Cd	Co
^{58}Ni , регенерированный	0,003	0,001	0,001	следы	10^{-4}	-	0,001
^{58}Ni , исходный	0,003	0,002	0,005	0,008	0,008	0,001	0,003



3-расм. Регенерация қилинган никел-58 нинг рентген спектри

Шундай қилиб ихтирони қўллаш натижасида кобальт-57 радионуклидини ишлаб чиқарилишида хомашё бўлган бойитилган никел-58 ни ишлаб чиқариш чиқиндиларидан 80% гача ишлаб чиқаришда қайта ишлатиш мумкин бўлади.

V. Ўзбекистон Республикаси Интеллектуал мулк агентлигининг “Ташувчисиз кобальт-57 радионуклидини олиш усули” (№ IDP 5120, 02.03.1998 й) ихтирога дастлабки патенти.

Фойдаланиш соҳаси: амалий радиокимёда.

Вазифаси: маҳсулот сифати кўтарилган ҳолда кобалт-57 радионуклидидаги бегона аралашма миқдорини камайтириш.

Ихтиро моҳияти: усулда протонлар билан нурлантирилган, никел-58 ўтказилган нишон (таглик) 2-4 сутка давомида ушлаб турилади (совутилади), нишоннинг активлашган қатлами хлорид кислотада эритиб олинади, кобалт-57 ни ажратиш, тозалаш ва концентрлаш жараёнлари иккита анионитли хроматографик колонкаларда амалга оширилади, кейин иккинчи хроматографик колонкадан кобалт-57 бидистирланган сув билан ювиб олинади.

Олинадиган радиоактив маҳсулот “Кобалт хлорид (^{57}Co)” га қўйиладиган асосий талаб – бу унинг радионуклидли тозалигидир, яъни препаратдаги бошқа радионуклид ифлосликларни миқдори чегараланган. Кобалт-57 ни юқори радионуклидли тозалиги уни тиббиётда қўлланилиши ва калибратор сифатида ишлатилиши билан боғлиқ.

Ихтирода таклиф қилинаётган биринчи Дауэкс 1x4 ли колонка кобалт-57 ни мис ва темир ифлосликлардан тозалаш имконини беради. Бунда мис 90% гача, темир 95% гача биринчи колонкада ушланиб қолади ва аксинча кобалт-57 колонкадан 90-95% ювилиб чиқади.

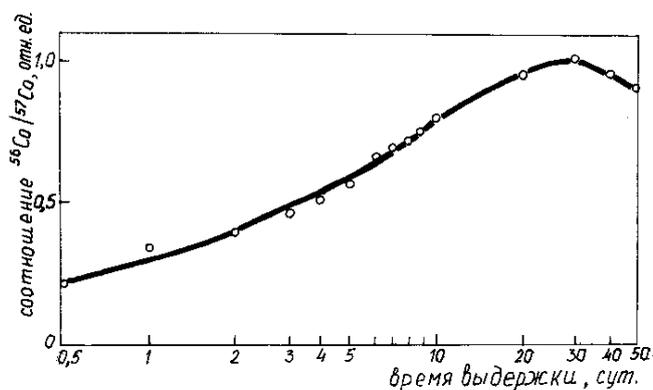
Иккинчи колонка ҳам Дауэкс 1x4 ли бўлиб, унда этил спирти билан ювиш натижасида хлорид кислотани юқори концентрацияси 5,0 мол/л дан 0,1 мол/л гача кескин камади. Колонкани этил спирти билан ювиш жараёнида кобалт-57 ювилиши кузатилмайди. Кобалт-57 ни иккинчи колонкадан бидистирланган сув билан ювиб олиниши $^{57}\text{CoCl}_2$ ни юқори кимёвий тозалигини ва юқори хажмий активлигини таъминлайди (12-жадвал).

12-жадвал

$^{57}\text{CoCl}_2$ нинг сифат кўрсаткичлари

$^{57}\text{CoCl}_2$ сифат кўрсаткичлари	Натижалар
Мис миқдори, мкг/ГБк	< 0,1
Темир миқдори, мкг/ГБк	< 0,4
HCl концентрацияси, моль/л	0,1
Хажмий активлик, ГБк/мл (МКи/мл)	22 (600)

$^{57}\text{CoCl}_2$ маҳсулотига асосий радиактив ифлослик бу ^{56}Co бўлиб бу радионуклид ^{57}Co радионуклиди билан бир қаторда никел-58 нишонини протонлар билан нурлантириш жараёнида ҳосил бўлади. ^{56}Co ва ^{57}Co радионуклидлари учун она радионуклидлар бу ^{56}Ni ва ^{57}Ni лар. Уларнинг ярим емирилиш даври хар хил бўлгани учун нурлантирилган нишонни совутиш вақтини варъироват қилиб керакли натижага эришса бўлади. ^{56}Co ва ^{57}Co радионуклидларнинг активликлари нисбати нисбий бирликларда 4-расмда кўрсатилган. Келтирилган графикдан нурлантирилган нишонни сақлаш муддати кам бўлса ^{57}Co даги ^{56}Co миқдори кам бўлади ва аксинча сақлаш муддати кўп бўлса ^{56}Co миқдори ошиб боради. Шундай қилиб нишонни амалда оптимал сақлаш муддатини танласа бўлади, ва бу муддат 2-4 суткани ташкил қилади.



4-расм. ^{56}Co ва ^{57}Co радионуклидларининг нисбий активликлари

Нурлантирилган нишонларнинг ҳар хил сақлаш муддати билан ишлаш натижасида олинган экспериментал натижалар (13-жадвал) сақлаш муддатини оптимал режимини танлаш имконини берди.

13-жадвал

$^{57}\text{CoCl}_2$ препаратининг унуми ва радионуклидли тозалиги

Сақлаш муддати, <i>сут</i>	^{56}Co миқдори, %	^{57}Co унуми, %
0,5	0,080	32,0
1,0	0,106	37,7
2,0	0,110	67,9
3,0	0,127	77,3
4,0	0,136	86,7
5,0	0,158	92,4
6,0	0,161	96,2

Сақлаш муддати қисқарганда нисбат кобальт-57 фойдасига ўзгаради. Аммо сақлаш муддати қисқарганда катта активликка эга бўлган нишонлар билан ишлашга тўғри келади, бу эса технологияни радиацион хавфлиликни оширади. Шу билан бирга кобальт-57 етарли миқдорда ҳосил бўлмайди. Шунинг учун, айтилганларни ҳисобга олган ҳолда амалий жиҳатдан оптимал сақлаш муддати 2 - 4 сутка қилиб белгиланди. Танланган оптимал сақлаш муддатида препаратни бошқа сифат кўрсаткичлари (специфик активлиги, ҳажмий активлиги, радионуклидли тозалиги) талаб қилинган даражада сақланади.

ХУЛОСА

“Радионуклидли $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ генераторини ва ^{57}Co радионуклидини олиш технологияларини ишлаб чиқиш” мавзудаги илмий тадқиқот иши бўйича олиб борилган тадқиқотлар натижалари асосида қуйидаги хулосалар тақдим этилди:

1. ВВР-СМ ядро реактори шароитида юқори специфик активликка эга бўлган ^{99}Mo радионуклидини бойитилган ^{98}Mo изотопини активлаштириб олиш шартлари аниқланди.

2. Оксид алюминийда молибденни юқори даражада (> 99%) сорбцияланадиган кимёвий изополимолибдат формаси топилди.

3. Молибденнинг изополимолибдат формасини оксид алюминийда сорбцияланиш қонуниятлари ўрганилди ва биринчи марта активацияланган ^{99}Mo асосида $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ генератори олиш технологияси ишлаб чиқилди ва технологияни амалиётда қўллаш шартлари аниқланди.

4. Турли омилларни $^{99\text{m}}\text{Tc}$ радионуклидини генератор колонкасида ювиб олиш эффективлигига таъсири ўрганилди, ювиб олишда ишлатиладиган эритма таркиби ва элюация ўтказишни оптимал шартлари аниқланди.

5. Биринчи марта, бойитилган ^{98}Mo изотопини $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ генератори ишлаб чиқарилиши чиқиндиларидан регенерация қилиб олиш ва уни ишлаб чиқаришда қайта ишлатиш технологияси ишлаб чиқилди. Регенерация қилиб олинган ^{98}Mo ишлаб чиқаришда ишлатиладиган хом-ашё харажатини 80% гача тежаш имконини беради.

6. Бойитилган никел-58 нишонларини циклотронда протонлар дастаси билан нурлантиришни, нурлантирилган материални нишонни мис таглигидан ажратиб олиш ва нурлантирилган материални радиокимёвий ишловини оптимал шартлари аниқланди.

7. ^{57}Co радионуклидини бойитилган никел-58 изотопини циклотронда нурлантириб, икки анион алмашинув колонкали системани қўллаб ва олинадиган маҳсулот $^{57}\text{CoCl}_2$ ни юқори тозалikka эга бўлган ҳолда олишни такомиллашган технологияси ишлаб чиқилди. Технология ^{57}Co даги ўзга радионуклидлар аралашмасини 0,15% дан ҳам камайтириш имконини беради.

8. Биринчи марта “хлорид кобалт-57” ишлаб чиқаришдаги радиоактив чиқиндилардан бойитилган никел-58 изотопини регенерация қилиб олиш ва уни ишлаб чиқаришда қайта ишлатиш технологияси ишлаб чиқилди. Регенерация қилиб олинган никел-58 ишлаб чиқаришда ишлатиладиган хом-ашёни 80% гача тежаш имконини беради.

**НАУЧНЫЙ СОВЕТ DSc.02/30.12.2019.FM/Т.33.01 ПО ПРИСУЖДЕНИЮ
УЧЕНЫХ СТЕПЕНЕЙ ПРИ ИНСТИТУТЕ ЯДЕРНОЙ ФИЗИКИ**

ИНСТИТУТ ЯДЕРНОЙ ФИЗИКИ

ХУЖАЕВ САЙДАХМАД

**РАЗРАБОТКА ТЕХНОЛОГИЙ ПОЛУЧЕНИЯ РАДИОНУКЛИДНОГО
ГЕНЕРАТОРА $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ И РАДИОНУКЛИДА ^{57}Co**

01.04.01 – приборы и методы экспериментальной физики

ПРЕДСТАВЛЕНИЕ

**по присуждению ученой степени доктора наук (DSc) по техническим наукам на
основе патентов на изобретение без защиты диссертации**

Ташкент – 2021

Тема диссертации доктора наук (DSc) по техническим наукам зарегистрирована в Высшей аттестационной комиссии при Кабинете Министров Республики Узбекистан за номером № В2021.2.DSc/Т431.

Научно-исследовательская работа выполнена в Институте ядерной физики Академии наук Республики Узбекистан.

Представление научного исследования на трех языках (узбекский, русский и английский (резюме)) размещено на веб-странице Научного совета (www.inp.uz) и Информационно-образовательном портале “Ziyonet” (www.ziyonet.uz).

Представление научного исследования состоится «__» _____ 2021 года в ____ часов на заседании Научного Совета DSc.02/30.12.2019.FM/Т.33.01 по защите диссертаций на соискание ученых степеней при Институте ядерной физики Академии наук Республики Узбекистан по адресу: 100214, г. Ташкент, пос. Улугбек, ИЯФ. Тел.: (+99871)289-31-18; факс: (99872)289-36-65; e-mail: info@inp.uz).

С представлением научного исследования можно ознакомиться в Информационно-ресурсном центре Института ядерной физики (регистрационный номер _____) (Адрес: 100214, г.Ташкент, поселок Улугбек, НУУз. Тел. (+99871) 289-31-19).

Представление научного исследования разослано «__» _____ 2021 г.
(протокол рассылки № _____ от _____ 2021 г.).

М.Ю. Ташметов

председатель Научного совета по присуждению
ученых степеней, д.ф.-м.н., профессор

О.Р. Тожибоев

ученый секретарь Научного совета по присуждению
ученых степеней, PhD ф.-м.н.

ВВЕДЕНИЕ (аннотация представления)

Актуальность и востребованность научно-исследовательской темы. В мире радиоактивные нуклиды и соединения на их основе нашли широкое применение в различных областях науки и техники, и особенно в ядерной медицине. Исследование и разработка радиохимических процессов получения и выделения радионуклидов в настоящее время является актуальной задачей, и имеет как научное, так и практическое значение. Производство радионуклидной продукции представляет самостоятельную область промышленности и имеет устойчивую тенденцию к расширению, как номенклатуры, так и объемов. Как следствие такой тенденции возникают вопросы, связанные с усовершенствованием известных и разработкой новых современных методов получения качественной продукции. Разработка технологии получения радионуклидной продукции, каковыми являются технологии получения радионуклидного генератора $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ и радионуклида ^{57}Co , является весьма актуальной.

Во многих развитых странах мира ядерная медицина играет наиважнейшую роль среди методов ранней диагностики онкологических, кардиологических, эндокринных и многих других заболеваний. Методы ядерной медицины являются самыми перспективными и прогрессивными среди методов ранней диагностики, отличаются высокой чувствительностью, воспроизводимостью и являются наиболее достоверными. Среди радионуклидов, которые применяются в диагностике заболеваний, наиболее широко используется радионуклид $^{99\text{m}}\text{Tc}$. Так, на сегодняшний день, до 85% диагностических исследований онкологических и кардиологических болезней, в которых используются радионуклиды, выполняются с помощью $^{99\text{m}}\text{Tc}$. Радионуклид технеций-99м является дочерним, и генерируется материнским радионуклидом молибден-99, в результате его бета-распада. До недавнего времени молибден-99 в основном, получали в ядерных реакторах как продукт деления урана-235, по (n,f) реакции. Однако, более безопасным с точки зрения радиационной безопасности и более простым с точки зрения технологического осуществления является способ получения радионуклида ^{99}Mo , тоже в реакторе с использованием $^{98}\text{Mo}(n,\gamma)^{99}\text{Mo}$ реакции. В последнее время все внимание исследователей-радиохимиков обращено именно такому активационному методу получения материнского нуклида ^{99}Mo для радиоизотопного генератора $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$.

В науке и технике в качестве калибровочного источника для аппаратуры мёссбауэровской спектроскопии применяются источники радионуклида ^{57}Co . Кроме того, ^{57}Co может применяться в ядерной медицине при синтезе радиофармацевтического препарата цианокобаламина (витамин B_{12}), который используется в изучении метаболизма организма, а также при диагностике различных заболеваний (тест Шиллинга). Спрос на этот радионуклид, в длительное время находится на стабильно высоком уровне.

В нашей республике уделяется большое внимание развитию экспериментальных исследований по получению радионуклидов и радиофармпрепаратов на их основе для их использования в онкологических клиниках в диагностических и терапевтических целях. В соответствии со Стратегией действий по дальнейшему развитию Республики Узбекистан по пяти приоритетным направлениям на 2017–2021 гг. определены задачи для выполнения программы по разработке и внедрению технологии получения радионуклидов и радиофармпрепаратов на их основе, используемых в области ядерной медицины.

Данная научно-исследовательская работа в определенной степени соответствует задачам, предусмотренным в Указах Президента Республики Узбекистан № УП-4947 от 7 февраля 2017 г. «О Стратегии действий по дальнейшему развитию Республики Узбекистан на 2017–2021 годы», № УП-5229 от 7 ноября 2017 года «О мерах по кардинальному совершенствованию системы управления фармацевтической отраслью», Постановлении Кабинета Министров РУз № ПП-4526 от 21 ноября 2019 г. «О мерах по поддержке научно-исследовательской деятельности института ядерной физики», а также в других нормативно-правовых документах, принятых в данной сфере.

Соответствия исследования с приоритетными направлениями развития науки и технологий Республики. Данное исследование выполнено в соответствии с приоритетным направлением развития науки и технологий республики VII. “Химические технологии и нанотехнологии”.

Обзор международных научных исследований. Исследования, посвященные разработке радиоактивных нуклидов, особенно радионуклидного генератора $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$, а также радиоактивных фармацевтических препаратов (РФП) на основе радионуклидов и их практическому применению проводились и проводятся во многих странах мира. Генераторы $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ и наборы к генератору, а также РФП выпускаются крупными зарубежными фирмами такими, как: Cardinal Health Inc. (США); CisBio (Франция); GE Healthcare (Великобритания); Nordion Inc. (Канада); ISOTOP (Венгрия); ФГУП «ПО Маяк» (Россия), ОАО «ГНЦ НИИАР» (Россия), ГНЦ ФЭИ (Россия), НИ ТПУ (Россия) и др. В течение многих лет такие же исследования и производство радионуклидной продукции осуществляются и в Институте ядерной физики АН РУз и в его дочерних организациях: ГП «Радиопрепарат» и ООО «Тезлатгич».

В результате проведенных исследований на реакторе ВВР-СМ ИЯФ АН РУз впервые была разработана технология получения радионуклидного генератора $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ на основе ^{99}Mo , полученного реакцией радиационного захвата (n, γ), которая является альтернативой получению ^{99}Mo из урана. Позднее, подобно разработанной в ИЯФ АН РУз технологии, в России на реакторе ИРТ-Т НИИ ядерной физики ТПУ также был получен активационный ^{99}Mo и на его основе создан генератор $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$. В дальнейшем, технология получения радионуклидного генератора $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$

была многократно усовершенствована и внедрена в производство на ГП «Радиопрепарат» при ИЯФ АН РУз.

В ИЯФ АН РУз наряду с реакторными радионуклидами на циклотроне У-150 были исследованы и разработаны технологии получения циклотронных радионуклидов, таких как ^{57}Co , ^{109}Cd и ^{68}Ge из числа которых технология получения радионуклида ^{57}Co внедрена в производство на дочернем предприятии ИЯФ “Тезлатгич”, а продукция до сегодняшнего дня поставляется на экспорт. Изначально разработанная технология получения ^{57}Co путем протонного облучения обогащенного никеля-58, впоследствии была усовершенствована, с целью снижения содержания в продукте примеси других радиоактивных изотопов кобальта.

В настоящее время в мире разработка радиохимических процессов получения и выделения радионуклидов проводятся по следующим приоритетным направлениям, в том числе: разработка технологии получения генератора $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ на активационном молибдене-99, с целью предупреждения распространения ядерных материалов, каковым является обогащенный уран-235; поиски новых перспективных сорбентов, с целью получения более высокоактивных генераторов; разработка технологии, обеспечивающая получения радионуклида ^{57}Co с более высокой радиоизотопной чистотой.

Степень изученности проблемы. Разработкой технологий получения радионуклидов для целей ядерной медицины загнимались и занимаются многие ученые мира, например: американские (J. Steigman, E. N. Vine), российские (Г.Е. Кодина, В.С. Скуридин, Е. Чибисов, Е. Нестеров), австралийские (R.E. Boyd, R.W. Moore, J.V. Evans), индийские (N. Ramomorthy, P. Vanaaja), узбекские (Е.С.Гуреев, О. Аббаров, Г.А. Бродская) и другие специалисты.

В настоящее время во многих странах разработаны технологии получения радионуклидного генератора $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ на осколочном радионуклиде молибден-99, как хроматографические, так и гель генераторы. Исследованы различные сорбенты, как неорганические, так и органические (синтетические иониты) для фиксации материнского радионуклида Мо-99 в генераторной колонке. Также разработана технология получения радионуклида ^{57}Co (Обнинск, Россия) путём облучения никелевых мишеней протонами циклотрона. Исследованы также возможности получения ^{57}Co облучением мишеней из железа, рассчитаны выходы целевого радионуклида при облучении мишеней в зависимости от времени облучения и от тока заряженных частиц. В то же время остается неясным решение некоторых проблем, а именно: технология получения радионуклидного генератора $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ на активационном радионуклиде молибден-99, получение радионуклида ^{57}Co с содержанием примесного радионуклида ^{56}Co менее 0,15%.

Связь темы научно-исследовательской работы с планами научно-исследовательских работ научно-исследовательского учреждения.

Научно-исследовательская работа выполнена в рамках научных проектов Института ядерной физики Академии наук Республики Узбекистан по темам: № 01.92.000091 «Разработка научных основ получения и выделения реакторных и циклотронных радионуклидов» (1992 - 1996); № 01970005173 «Исследование закономерностей поведения радионуклидов и основных законов их распределения между фазами» (1997 - 1999) и № Ф-2.1.5 «Поведение радиоактивных нуклидов в растворах, твердых фазах, закономерности их распределения между фазами и научные основы получения реакторных и циклотронных радионуклидов (2003 – 2007).

Целью исследования является разработка технологий получения радионуклидного генератора $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ на основе активационного молибдена-99 и радионуклида ^{57}Co с высокой радионуклидной чистотой для промышленных технологий и медицины.

Задачи исследования:

определить оптимальные условия облучения исходной мишени $^{98}\text{MoO}_3$ в ядерном реакторе, обеспечивающие получение максимально возможной специфической активности ^{99}Mo в облучаемом материале;

разработать технологию радиохимической обработки облученной мишени, обеспечивающей получение адсорбируемой химической формы молибдена на сорбенте – оксиде алюминия;

подобрать методики приготовления сорбента (Al_2O_3) для генераторной колонки с высокой сорбционной емкостью относительно молибдена и условия сорбции молибдена на оксиде алюминия;

установить состав промывного и элюирующего растворов, обеспечивающих высокую химическую и радионуклидную чистоту с высоким радиохимическим выходом дочернего радионуклида $^{99\text{m}}\text{Tc}$ из генераторной колонки;

разработать технологию регенерации обогащенного ^{98}Mo из отработанных генераторов и из жидких радиоактивных отходов производства генератора $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ и возвращения регенерированного ^{98}Mo в производственный цикл;

определить оптимальные условия облучения мишеней, обогащенных изотопом ^{58}Ni путем исследования процесса наработки радионуклида ^{57}Co на циклотроне при облучении протонами;

разработать радиохимическую технологию выделения радионуклида ^{57}Co из облученных циклотронных мишеней и способ его очистки, обеспечивающий высокую радионуклидную чистоту;

разработать технологию регенерации обогащенного изотопа ^{58}Ni из отходов производства и определить условия его возврата в производство получения радионуклида ^{57}Co .

Объектом исследования являются радиохимические системы $\text{Al}_2\text{O}_3 + ^{99}\text{Mo}(^{99\text{m}}\text{Tc}) + \text{NaCl} \rightarrow ^{99\text{m}}\text{Tc}$ и $\text{ФТ4/ТОА (дауэкс 1x4)} + ^{58}\text{Ni}(^{57}\text{Co}) + \text{HCl} \rightarrow ^{57}\text{Co}$.

Предметом исследования являются: радиохимическая технология получения радионуклидного генератора $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ на основе активационного

молибдена-99; технология получения обогащенного изотопа молибден-98 из твердых и жидких отходов производства генераторов технеция-99м; технология получения радионуклида ^{57}Co на циклотроне облучением обогащенных изотопов никель-58; технология регенерации обогащенного изотопа никель-58 из отходов производства ^{57}Co .

Методы исследований. Методы сорбции и десорбции; адсорбционная хроматография; методы нисходящего и восходящего элюирования; методы экстракции и реэкстракции; метод экстракционной хроматографии; гамма-спектрометрические и радиометрические методы анализа; методы определения радиохимической чистоты, а также статистические методы анализа.

Научная новизна исследования заключается в следующем:

определены условия активации окиси молибдена, обогащенного изотопом ^{98}Mo нейтронным потоком ядерного реактора ВВР-СМ с возможно высокой специфической активностью ^{99}Mo до 6 - 9 Кюри на грамм Мо-98;

установлены новые способы получения химических изополимолибдатных форм молибдена с наивысшей степенью сорбции (до 99% и выше) на оксиде алюминия;

впервые разработана технология получения радионуклидного генератора $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ на основе активационного ^{99}Mo , полученного активацией изотопа ^{98}Mo и условия их технологической реализации;

определены составы элюирующих растворов и условия элюирования дочернего радионуклида $^{99\text{m}}\text{Tc}$ из генераторной колонки;

впервые разработана технология регенерации молибдена, обогащенного изотопом ^{98}Mo , из отработанных генераторов и отходов производства генератора $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$, с возвратом изотопа ^{98}Mo в цикл производства с подпиткой исходного облучаемого материала до 80%;

определены оптимальные условия облучения протонами циклотрона никелевых мишеней, обогащенных изотопом ^{58}Ni и радиохимической переработки облученных мишеней;

усовершенствована хроматографическая технология получения радионуклида ^{57}Co , основанная на использовании обогащенного изотопом никеля-58 материала мишеней с содержанием сопутствующих радиоизотопов в конечном продукте не более 0,15%;

впервые разработана технология регенерации обогащенного изотопа ^{58}Ni материала из отходов производства с возвращением в цикл производства радионуклида ^{57}Co до 80% исходного сырья.

Практические результаты исследования заключаются в следующем:

создана технология получения радионуклидного генератора $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ с опытно-промышленным регламентом;

разработана технология получения радионуклида ^{57}Co , по которой выпускается продукция в виде $^{57}\text{CoCl}_2$.

Достоверность результатов исследования обосновывается проведением экспериментальных исследований с применением современных

методов исследований и средств измерений, сопоставлением полученных результатов с данными других исследователей и научных подразделений, проведением многократных параллельных экспериментов и анализов, статистической обработкой полученных экспериментальных результатов, а также проведенными экспертизами результатов работы Патентными ведомствами и Агентством интеллектуальной собственности РУз.

Научная и практическая значимость результатов исследования.

Научная значимость результатов исследования заключается в определении оптимальных условий активации ^{98}Mo на ядерном реакторе; в установлении условий получения изополимолибдатных форм молибдена в слабокислых средах; в определении состава элюирующих, дочернего радионуклида $^{99\text{m}}\text{Tc}$, растворов; в определении оптимальных условий выдержки облученных на циклотроне мишеней ^{58}Ni и выделения ^{57}Co из облученных мишеней, а также в определении условий выделения и очистки ^{98}Mo и ^{58}Ni из отходов производства.

Практическая значимость результатов исследований заключается в разработке технологии получения радионуклидного генератора $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ и опытно-промышленного регламента на его производство, а также технологии получения радионуклида ^{57}Co и подтверждается внедрением их в производство.

Внедрение результатов исследований. На основе полученных результатов по разработке технологий получения радионуклидного генератора $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ и радионуклида ^{57}Co :

получен предварительный патент на изобретение Агентства интеллектуальной собственности Республики Узбекистан на способ получения натрия пертехнетата (Tc-99m) (“Способ получения натрия пертехнетата (Tc-99m)”, №5121, 29.06.1998). В результате использования изобретения получена возможность использования вакуумированных флаконов для получения раствора натрия пертехнетата (Tc-99m) из генераторной колонки, что обеспечивает надежности выхода высококачественного препарата и более безопасную эксплуатацию генераторов в клиниках;

получен патент на изобретение Агентства интеллектуальной собственности Республики Узбекистан на способ получения натрия пертехнетата (Tc-99m) (“Способ получения натрия пертехнетата (Tc-99m)”, №IAP 04001, 22.07.2009). В результате использования изобретения получена возможность значительно увеличить выход дочернего радионуклида Tc-99m из генераторной колонки;

получен предварительный патент на изобретение Агентства интеллектуальной собственности Республики Узбекистан на способ получения генератора технеция - $^{99\text{m}}$ облучением тепловыми нейтронами оксида молибдена- 98 из отработанных генераторов технеция - $^{99\text{m}}$ («Способ получения генератора технеция - $^{99\text{m}}$ », № IDP 05064, 18.01.2002). В результате использования изобретения получена возможность снизить

расходы на производство и создано безотходное производство генераторов $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$;

разработанные технологии получения радионуклидного генератора $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ на основе активационного ^{99}Mo и регенерации молибдена, обогащенного изотопом ^{98}Mo , из отработанных генераторов и отходов производства генератора $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ внедрены в производство на Государственном предприятии «Радиопрепарат» при ИЯФ АН РУз (Акт об использовании изобретений №1-1/784 от 10.08.2021). В результате повысилось качество выпускаемого продукта и сократились затраты на производство до 80%;

получен предварительный патент на изобретение Агенства интеллектуальной собственности Республики Узбекистан на способ получения кобальта-57 без носителя (“Способ получения кобальта-57 без носителя”, №5120, 03.07.1998). В результате получена возможность снижения радионуклидной примеси в препарате кобальт-57 с обеспечением при этом высокого качества продукта;

получен предварительный патент на изобретение Агенства интеллектуальной собственности Республики Узбекистан на способ получения кобальта-57 без носителя (“Способ получения кобальта-57 без носителя”, №2857, 30.09.1995). В результате использования изобретения снижены затраты на производство и создано безотходное производство кобальта-57;

усовершенствованная хроматографическая технология получения радионуклида ^{57}Co и разработанная технология регенерации обогащенного изотопа ^{58}Ni материала из отходов производства внедрены в производство ООО «Тезлатгич» (Акт об использовании изобретений №126/1 от 09.08.2021). В результате использование изобретения позволило повысить качество выпускаемого продукта и сэкономить до 80% дорогостоящих обогащенных изотопов в облучаемых продуктах в каждом цикле производства.

Апробация результатов исследования. Результаты исследований докладывались и обсуждались на 18 Международных и республиканских конференциях.

Опубликованность результатов исследования. По основному содержанию исследования опубликованы 20 научных статей в научных журналах и сборниках, из них 10 статей в научных изданиях, рекомендованных Высшей аттестационной комиссией Республики Узбекистан для публикации основных научных результатов докторских диссертаций, получены 15 авторских свидетельств и патентов на изобретения. Из общего количества статей 6 статьи опубликованы в зарубежных сборниках.

ОСНОВНОЕ СОДЕРЖАНИЕ ИССЛЕДОВАНИЯ

I. Предварительный патент на изобретение Агенства по интеллектуальной собственности Республики Узбекистан “Способ получения натрия пертехнетата (Tc-99m)” (№ 5121, 02.03.1998).

Сфера использования: прикладная радиохимия.

Задачи: увеличение выхода дочернего радионуклида Tc-99m из генераторной колонки и создание радиационно безопасных условий использования генератора в клинических условиях.

Сущность изобретения: способ получения натрия пертехнетата с радиоактивным нуклидом Tc-99m в составе включает облучение тепловыми нейтронами оксида молибдена, обогащенного изотопом молибден-98, растворение облученного оксида молибдена в щелочном растворе, перевод молибдена в изополимолибдатную форму, сорбцию молибдена на оксиде алюминия, помещенном в генераторную колонку, промывку генераторной колонки подкисленной дистиллированной водой, содержащей не более 0,01% перекиси водорода, стерилизацию колонки и элюирование технеция-99m в виде пертехнетата натрия ($\text{Na}^{99\text{m}}\text{TcO}_4$) стерильным физиологическим раствором восходящим элюированием. Процедуру восходящего элюирования радиоактивного раствора $\text{Na}^{99\text{m}}\text{TcO}_4$ из генераторной колонки выполняют раствором 0,9 % NaCl, содержащий 23-25 мг/мл нитрата натрия. Генераторная колонка предварительно промыта подкисленной (pH 2-3) дистиллированной водой с содержанием 0,01% перекиси водорода. Восходящее элюирование выполняется с помощью рязряженных флаконов с внутренним пониженным давлением 640-680 мм. рт. ст.

На практике используются 2 способа получения радионуклида молибден-99. Оба способа реализуются в ядерных реакторах:

3) ^{235}U (n,f) ПД (~ 6,0% ^{99}Mo);

4) ^{98}Mo (n, γ) ^{99}Mo .

В данной работе предлагается использовать второй способ, причем обогащенный изотопом ^{98}Mo на 98,75%.

При облучении молибденовых мишеней на ядрах изотопов молибдена протекают ядерные реакции (n, γ), (n,2n), (n,p) с образованием радиоактивных нуклидов Mo и Nb. Ядерные реакции представлены в таблице 1. Там же приведены сечение ядерных реакций, периоды полураспада образовавшихся радионуклидов и содержание того или иного изотопа молибдена в обогащенных по изотопу Mo-98 образцах, облучаемых в качестве стартовых мишеней.

Таблица 1

Ядерные реакции на ядрах изотопов молибдена под действием нейтронов

Изотоп Мо	Распространённость в природе %	Ядерная реакция	Сечение активации, мбарн	Радиоактивный изотоп	Период полураспада	Содержание в обогащенном продукте, %
⁹² Mo	15,84	(n,γ) (n,2n) (n,p)	< 6 7,0 – 15,0 5,7 – 66,0	^{93m} Mo ^{91m} Mo ⁹² Nb	6,94 ч. 1,09м. 10,16 д.	0,01
⁹⁴ Mo	9,12	(n,p)	7,4	^{94m} Nb	6,3 м.	0,03
⁹⁵ Mo	15,70	(n,p)	12,4	^{95m} Nb	3,75 д.	0,03
⁹⁶ Mo	16,50	(n,p)	16 - 37	⁹⁶ Nb	23,35 ч.	0,01
⁹⁷ Mo	9,45	(n,p)	7,4	^{97m} Nb	1,0 м.	0,66
⁹⁸ Mo	23,75	(n,γ) (n,p)	410 9,2	⁹⁹ Mo ⁹⁸ Nb	66,02 ч. 51,5м.	98,75
¹⁰⁰ Mo	9,62	(n,γ) (n,2n)	200 1,8	¹⁰¹ Mo ⁹⁹ Mo	14,61 м. 65,9 ч.	0,51

Значения наведенной активности некоторых серий образцов приведены в таблице 2. Таких экспериментов были выполнены более 50 в год.

Приведенные в таблице 2 данные были использованы для определения плотности потока (F) тепловых нейтронов в экспериментальных каналах реактора и эффективного сечения активации (с учетом вклада резонансной составляющей) молибдена-98 нейтронами в реакторе ВВР-СМ. Вычисленные значения указанных величин составляли:

$$F(\text{условный номер канала 2-3}) = (8,17 \pm 0,37) \cdot 10^{13} \text{ н/см}^2 \text{ с.}$$

$$\Sigma_{\text{эфф}} = 0,57 \pm 0,06 \text{ барн,}$$

где F – плотность потока тепловых нейтронов; $\Sigma_{\text{эфф}}$ – эффективное сечение активации.

Таблица 2

Значение наведенной активности молибдена-99, в Ки/г ⁹⁸Mo

Номер образца	Время облучения, ч.	По мощности	По монитору	Активность аликвоты
1	200	6,60	6,55	6,71
2	190	6,43	6,76	6,47
3	190	7,00	6,95	6,90
4	185	6,79	6,94	6,45
5	185	6,41	6,01	6,05
6	165	6,37	5,73	6,13
7	160	6,37	5,22	5,76

При облучении молибдена-98 накопление ^{99}Mo определяется кинетикой образования и распада радионуклида и зависит от таких параметров, как спектр нейтронов деления в локальной зоне облучения, ядерно-физические характеристики активируемого нуклида и время облучения.

Накопление ядер $^{99\text{m}}\text{Tc}$ в материнском радионуклиде имеет некоторый максимум, после которого количество их падает в соответствии с равновесным радиоактивным распадом. Время, за которое может быть достигнута максимальная активность $^{99\text{m}}\text{Tc}$, определяется соотношением:

$$t_{\text{max}} = \frac{\ln(\lambda_{\text{T}}/\lambda_{\text{Mo}})}{\lambda_{\text{Tc}} - \lambda_{\text{Mo}}} \quad (1)$$

и составляет 23,04 часа.

Основные этапы технологического процесса следующие:

- подготовительные работы (подготовка сорбента генераторной колонки – Al_2O_3 ; подготовка рабочих растворов; подготовка облучаемого образца);
- облучение исходного материала - $^{98}\text{MoO}_3$;
- растворение облученного образца $^{98}\text{MoO}_3$;
- переводение молибдена в изополимолибдатную форму;
- сорбция молибдена-99 на оксиде алюминия;
- стерилизация генераторной колонки;
- первичное элюирование дочернего радионуклида технеций-99m из генераторной колонки.

Из вышеперечисленных этапов технологического процесса первичное элюирование и не только первичное но и элюирование дочернего радионуклида Tc-99m в ходе эксплуатации генератора имеет не последнюю роль в повышении выхода дочернего радионуклида из генераторной колонки.

В начальных вариантах генераторов элюирование выполнялось нисходящим принципом элюирования с помощью специального шприца. При этом элюировании элюирующий раствор в генераторной колонке двигался сверху вниз. При этом имеется достаточно большая вероятность того, что элюирующий раствор не будет равномерно проходить через все участки генераторной колонки и в результате происходить не полное вымывание равновесно накопленного дочернего радионуклида Tc-99m . При этом и скорость вымывание также оказывает влияние на полноту вымывания дочернего радионуклида Tc-99m из-за кинетики самого процесса.

В данной работе предлагается использовать восходящий принцип элюирования, с использованием вакуумированных флаконов. Элюирование снизу вверх позволяет избежать “проскоков” раствора из-за возможной неравномерности распределения на сорбенте генераторной колонки материнского радионуклида Mo-99 , а также самого сорбента. Восходящий принцип элюирования обеспечивает более полное вымывание дочернего

радионуклида Tc-99m, постоянно поддерживает высокий выход продукта и повышает надежность работы генератора, при заниженных рисках переоблучения персонала, эксплуатирующего генератор в клиниках.

Использование флаконов с пониженным давлением (слабо вакуумированные флаконы) дает возможность создать более удобные условия при получении нужной скорости элюирования. Это позволяет получать однородные порции продукта, как по объему, так и по качественным показателям.

Результаты примера использования предлагаемого способа приведены в таблице 3.

Таблица 3

Зависимость выхода Tc-99m от скорости элюирования с использованием вакуумированных флаконов

Скорость элюирования, <i>мл/мин</i>	Давление во флаконе, <i>мм рт. ст.</i>	Выход Tc-99m, <i>%</i>
2,0	720	92,3
3,0	700	92,0
4,0	680	91,4
5,0	670	90,7
6,0	660	89,9
7,0	650	87,9
8,0	640	85,6
9,0	620	76,5
10,0	600	70,4

Как видно из таблицы при малых скоростях элюирования достигается стабильно высокий выход дочернего радионуклида Tc-99m, и наоборот при увеличении скорости элюирования выход снижается. Таким образом, снижение скорости элюирования менее 4 *мл/мин* нецелесообразно, поскольку не дает существенного выигрыша по выходу Tc-99m, но приводит к увеличению времени пребывания персонала около радиоактивного объекта. Предлагается оптимальный режим элюирования, который составляет 4-8 *мл/мин*, при разряжении флаконов 640-680 *мм рт. ст.*

II. Патент на изобретение Агенства по интеллектуальной собственности Республики Узбекистан “Способ получения генератора технеция-99m” (№ IDP 05064, 27.03.2001).

Сфера использования: прикладная радиохимия, в частности способы получения радиоактивных препаратов для медицинских целей.

Задачи: создание способа, позволяющего упростить технологию получения генератора технеция-99m и сделать более экономичным процесс с сохранением при этом высокого качества конечного продукта, получаемого из генератора – натрия пертехнетата (Tc-99m).

Сущность изобретения: способ включает облучение тепловыми нейтронами оксида молибдена-98 из отработанных генераторов и жидких отходов производства, полученного путём десорбции из сорбента генераторной колонки в раствор, осаждения из раствора молибденовой кислоты, отделения осадка от раствора, перевод молибдена в форму оксида высушиванием и прокаливанием. Затем оксид молибдена-98 облучают тепловыми нейтронами реактора, растворяют в щелочном растворе, переводят в изополимолибдатную форму подкислением раствора. Сорбцию молибдена в генераторной колонке проводят на оксиде алюминия, промывают колонку, стерилизуют и элюируют технеций-99m из генераторной колонки физиологическим раствором натрия хлорида. Десорбцию молибдена-98 из сорбента отработанных генераторов осуществляют не менее чем 10%-ным водным раствором аммиака со скоростью 0,9-1,2 мл/мин.

Из-за политики МАГАТЭ по снижению обогащения урана изотопом уран-235, который используется во многих сферах деятельности, в том числе и для получения радионуклида ^{99}Mo , многие производители обратили свой взор на способ получения Mo-99 путём облучения обогащенного молибдена-98. Как следствие, цены на обогащенный Mo-98 резко возросли. В нашем случае это обстоятельство привело к увеличению расходов на изготовление генераторов $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$, поскольку технология производства радионуклидного генератора $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ основана на использовании обогащенного сырья Mo-98 . В связи с этим возникла необходимость в регенерации обогащенного молибдена-98, как из отработанных генераторов, так и из отходов производства и повторного его использования для изготовления радиоизотопного генератора технеция-99m. Решение проблемы актуально и с точки зрения безотходного производства.

Если считать, что в процессе активации Mo-98 нейтронами реактора нарабатывается молибден-99 с удельной активностью 5,0 Ки/г, то масса радиоактивного молибдена составляет всего 10^{-5} г молибдена. Следовательно, основная масса исходного Mo-98 , остается неактивированной. Она может быть вновь использована для производства радионуклида Mo-99 . При условии возврата отработанных генераторов $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ производителю, можно выгружать из генераторных колонок и собирать на предприятии оксид алюминия с сорбированным на нем молибденом-98. Из этого материала при 60-70%-ной регенерации можно получать Mo-98 , что достаточно для покрытия более чем половины годовой потребности предприятия в этом сырье.

В представленном изобретении предлагается водные растворы аммиака для смыва Mo-98 из фазы сорбента генераторной колонки. В случае использования водных растворов NH_4OH молибден переходит в нормальную молибдатную форму – MoO_4^{2-} и вымывается из фазы Al_2O_3 .

Результаты использования водных растворов аммиака, как с добавлением перекиси водорода, так и без добавления представлены в таблице 4 и на рис. 1. На основании полученных результатов концентрация водного раствора аммиака

не менее 10% определена как оптимальная концентрация для смывания Mo-98 из фазы оксида алюминия отработанных генераторов.

Таблица 4

Влияние концентрации NH₄OH на выход Mo-98

Концентрация NH ₄ OH, %	Выход Mo-98, %
7,0	60
9,0	78
10,0	86
11,0	89
12,0	90
13,0	> 90

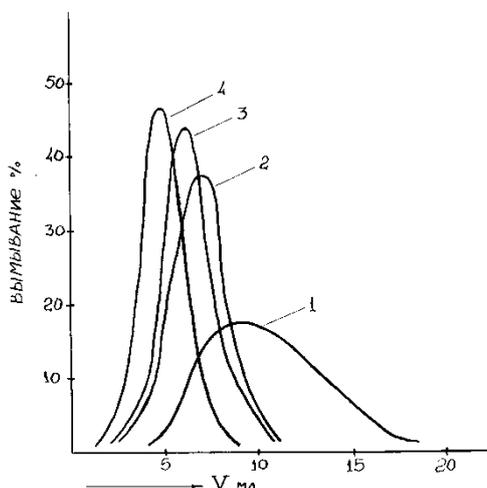


Рис. 1. Кривые вымывания Mo-98

- 1 - 3,5% NH₄OH;
- 2 - 7,0% NH₄OH;
- 3 - 10% NH₄OH;
- 4 - 7,0% NH₄OH + 2,0% H₂O₂.

Оптимальная скорость смывания Mo-98 из фазы сорбента отработанного генератора определена экспериментальным путём, результаты, которых, приведены в таблице 5.

Таблица 5

Определение оптимальной скорости смывания Mo-98 (масса сорбента 200 г)

Скорость смывания, мл/мин	Объем расходуемого раствора, мл	Время полного вымывания, мин
0,4	240	600
0,6	260	430
0,8	280	350
0,9	290	320
1,0	300	300
1,1	300	270
1,2	310	260
1,3	350	270
1,4	400	285

Химическую схему технологического процесса можно представить следующим образом:

1. Элюирование (вымывание) Мо-98 с оксида алюминия не менее 10%-ным раствором аммиака



2. Концентрирование $(NH_4)_2 {}^{98}MoO_4$ путем нагревания до температуры $\sim 100^\circ C$.

3. Осаждение молибденовой кислоты подкислением раствора с помощью концентрированной азотной кислоты.



4. Фильтрование и промывка осадка на фильтре дистиллированной водой.

5. Высушивание и прокаливание молибденовой кислоты (перевод в молибден оксид).



III. Патент на изобретение Агенство интеллектуальной собственности Республики Узбекистан “Способ получения натрия пертехнетата (Тс-99m)” (№ IAP 04001, 31.05.2007).

Сфера использования: прикладная радиохимия, в частности получение радиопрепаратов для медицинских целей.

Задача: увеличение удельной активности Мо-99 и повышение выхода Тс-99m, обеспечение стабильности получения высоких характеристик целевого продукта.

Сущность изобретения: способ включает облучение тепловыми нейтронами оксида молибдена, обогащенного изотопом Мо-98, в потоке нейтронов $(1,0-1,5) \cdot 10^{14}$ н/см²с⁻¹, растворение облученного оксида молибдена в щелочном растворе, перевод молибдена в изополимолибдатную форму добавлением в щелочной раствор водного раствора соляной кислоты с рН=2, промывание сорбента колонки горячим водным раствором соляной кислоты с температурой 60-80 °С и рН=2 перед сорбцией изополимолибдата, сорбцию Мо-99 на оксиде алюминия с размерами частиц 0,05-0,20 мм и навеской 2,5-3,0 г, помещенном в генераторную колонку. Элюирование Тс-99m в виде пертехнетата натрия из генераторной колонки осуществляют стерильным 0,9%-ным раствором натрия хлорида, содержащим 23-25 мг/л натрия нитрата, восходящим элюированием со скоростью 4,8 мл/мин, во флакон с разряжением 640-688 мм рт. ст.

В представленном изобретении предлагается облучение образцов оксида молибдена (Мо-98) тепловыми нейтронами с плотностью потока

$1,2 \cdot 10^{14}$ н/см²с⁻¹ в центральном канале реактора в зоне расположения ТВЭЛов, что позволяет повысить удельную активность Мо-99 с 5 Ки/г до 9 Ки/г и более (табл. 6).

Таблица 6

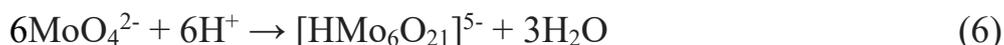
Удельная активность Мо-99

Плотность потока нейтронов, н/см ² с ⁻¹	Время облучения, час	Удельная активность, Ки/г
$1,2 \cdot 10^{14}$	122	8,8
$1,2 \cdot 10^{14}$	140	9,0
$1,2 \cdot 10^{14}$	176	10,3

При растворении молибдена в щелочном растворе образуются молекулы нормальных молибдатов (ур. 5).



При подкислении таких растворов происходит конденсация с образованием продуктов, состав которых определяется значением рН среды. В интервале рН от 6,0 до 2,0 постепенно происходит образование пара- и изополимолибдатов в соответствии с уравнениями 6 и 7:



Во избежание образования осадка молибденовой кислоты, подкисление выполняется соляной кислотой с концентрацией 1,0 моль/л.

Зернистость сорбента генераторной колонки 0,05-0,20 мм обеспечивает наибольшую сорбцию изополимолибданных ионов. На сорбцию молибдена и на эффективность работы генератора в определенной степени влияет температурная обработка сорбента генераторной колонки перед сорбцией молибдена. Температурная зависимость эффективности работы генератора представлена в таблице 7.

Таблица 7

Влияние температуры на выход Тс-99m из генераторной колонки

Температура, °С	Выход Тс-99m, %	Примесь Мо-99, %
20	86,0	0,002
40	92,0	0,001
60	97,5	0,0009
80	98,8	0,0009

Влияние значения рН на эффективность работы генератора показано в таблице 8.

Таблица 8

Влияние рН элюирующего раствора на эффективность работы генератора $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$

Время измерения	рН	Выход Тс-99m, %	Примесь Мо-99, %
В день изготовления	1	91,7	0,0087
	2	97,8	0,0007
	3	95,0	0,0009
Через 4 дня	1	90,2	0,004
	2	98,8	0,0009
	3	94,0	0,001
Через 6 дней	1	88,0	0,002
	2	100,0	0,001
	3	86,0	0,002

И в конце приводим измеренные характеристики одного из экспериментальных генераторов $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ (табл. 9).

Таблица 9

Характеристики экспериментального генератора $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$

Измеряемые параметры	Значение измеряемых параметров
Удельная активность Мо-99, <i>Ku/g</i>	9,2
Объемная активность, <i>ГБк/мл</i>	2,1
Выход Тс-99m, %	97,8
Радиохимическая чистота, %	> 99
Содержание Мо-99	$7 \cdot 10^{-3}$
рН	6,0
Содежание алюминия, <i>мкг/мл</i>	< 2,0

Таким образом, сочетание всех предлагаемых процедур при изготовлении генератора $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ обеспечивают решению поставленной в изобретении задачи.

IV. Предварительный патент на изобретение Агенства по интеллектуальной собственности Республики Узбекистан “Способ получения радионуклида кобальт-57 без носителя” (№ IDP 2857, 30.09.1994).

Сфера использования: разделение радиоактивных нуклидов.

Задача: снижение расходов производства кобальта-57 и организовать безотходное производство.

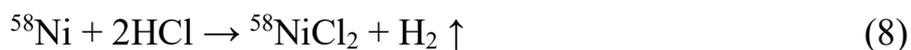
Сущность изобретения: способ включает облучение обогащенного никеля-58 протонами, растворение в соляной кислоте, сорбцию кобальта-57 на

анионообменной хроматографической колонке и его элюацию слабым раствором соляной кислоты, вторичное пропускание пропущенного через колонку раствора совместно с растворенным никелем из использованной подложки через вторичной анионообменной колонки, осаждение гидроокиси никеля в растворе щелочным раствором, выдержку образовавшегося осадка в среде с рН 9,0 в течение суток, фильтрацию, промывку и высушивание, перевод в форму оксида путём прокаливания.

В настоящее время производство радионуклида кобальт-57 у всех производителей продукта основано на использовании мишеней, обогащенных изотопом никель-58. В последнее время в связи с удорожанием материалов и энергоносителей, цена никеля, обогащенного изотопом никель-58 многократно возросла, что привело к резкому повышению затрат на производство кобальта-57. В то же время при облучении основная часть никеля-58, не подвергшаяся ядерному превращению в процессе производства, утилизируется в виде радиоактивных отходов. Причем, никель-58 присутствует как в жидких радиоактивных отходах, так и в твёрдых отходах (медная подложка мишени). Поэтому, регенерация никеля-58 из отходов производства и повторное его использование для изготовления мишеней приводит к значительному снижению затрат.

Химическую схему регенерации можно представить следующим образом:

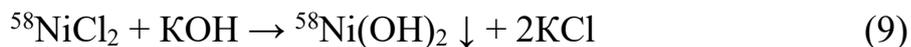
1. Растворение остаточного никеля-58 с подложки мишени 10 моль/л раствором соляной кислоты. При этом одновременно в раствор переходят медь как материал подложки, радиоактивный цинк-65, образующиеся на материале подложки при протонном облучении и остаточный кобальт-57.



2. Пропускание раствора хлорида никеля-58 через анионообменную колонку. При этом происходит отделения от примесных элементов Cu, Zn-65, Co-57 и др.

3. Концентрирование раствора хлорида никеля-58 путём перегонки растворителя при температуре 100 – 120 °С.

4. Осаждение никеля-58 в виде его гидроокиси раствором KOH.



5. Фильтрование и промывка дистиллированной водой осадка ${}^{58}\text{Ni}(\text{OH})_2$.

6. Высушивание и прокаливание ${}^{58}\text{Ni}(\text{OH})_2$ (перевод в химическую форму оксид).



Схема установки для осуществления способа представлена на рис. 2.

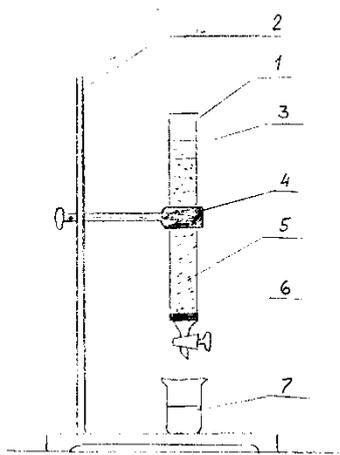


Рис. 2. Анионообменная колонка для очистки никеля-58

(1 – стеклянная колонка; 2 – штатив; 3 – жидкость над рабочим слоем колонки; 4 – лапа; 5 – суспензия ТОА на ФТ-4 или Дауэкс 1x4; 6 – кран; 7 – стакан для сбора элюата).

На анионообменной колонке выполняют процедуру очистки никеля-58 от сопутствующих химических и физических примесей в среде 10 моль/л HCl пропуская растворы никеля-58 из отходов производства. Необходимо следить за насыщением рабочего слоя колонки медью. Насыщенная медью часть рабочего слоя приобретает окраску, и поэтому за насыщением можно следить визуально. Пропускание раствора никеля-58 через колонку прекращают при насыщении 2/3 рабочего слоя колонки медью. После прекращения пропускания раствора никеля-58 промывают колонку раствором 8,0 моль/л соляной кислоты, объемом равным 1,0 – 1,5 свободного объема колонки. Раствор никеля-58 из стакана – сборника переводят в колбу, где выполняют процесс концентрирования никеля-58 нагреванием.

Из концентрированного раствора никеля осаждают его гидроксид с помощью раствора 8,0 моль/л KOH. pH раствора над осадком должен быть не менее 9,0. Влияние pH раствора на полноту осаждения никеля-58 показано в таблице 10.

После выдержки смеси в стакане в течение суток (время созревания осадка) осадок отделяют от жидкой фазы, промывают дистиллированной водой и высушивают при комнатной температуре. Высушенный $^{58}\text{Ni}(\text{OH})_2$ переносят в кварцевый стакан и прокалывают в печи при температуре 200 – 250 °C. В результате получают продукт ^{58}NiO . Полученный продукт анализируют на подлинность рентгенофлуоресцентным анализом (рис. 3) и химическую чистоту спектральным анализом (табл. 11).

Таблица 10

Влияние pH раствора на полноту осаждения никеля-58

pH	7,0	8,0	8,5	9,0	9,5	10,0	10,5
Выход, ^{58}Ni , %	67,2	84,6	90,2	98,3	98,2	98,4	98,3

Таблица 11

Результаты спектрального анализа ^{58}NiO (содержание химических элементов в мкг/г)

Элементы	Si	Al	Mg	Fe	Cu	Cd	Co
^{58}Ni , регенерированный	0,003	0,001	0,001	следы	10^{-4}	-	0,001
^{58}Ni , исходный	0,003	0,002	0,005	0,008	0,008	0,001	0,003

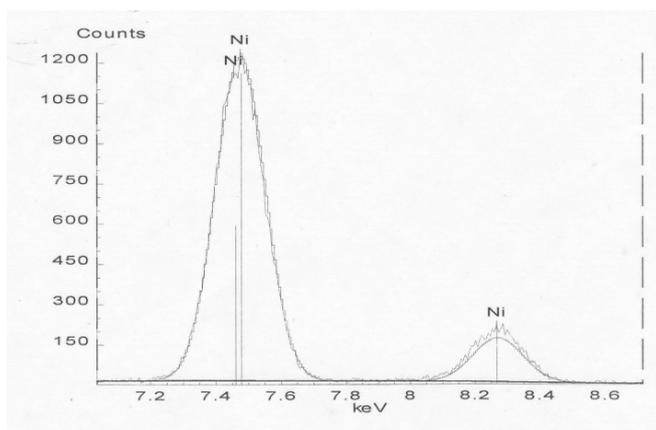


Рис. 3. Рентгеновский спектр регенерированного никеля-58

Таким образом, удастся возвращать на начало производство радионуклида кобальт-57 до 80% обогащенного никеля-58 из радиоактивных отходов производства в качестве сырья.

V. Предварительный патент Агенства по интеллектуальной собственности Республики Узбекистан “Способ получения радионуклида кобальт-57 без носителя” (№ IDP 5120, 02.03.1998).

Сфера использования: прикладная радиохимия.

Задача: снижение радионуклидной примеси в препарате кобальт-57 с обеспечением при этом высокого качества продукта.

Сущность изобретения: в способе получения кобальта-57 без носителя облученную протонами, обогащенную никелем-58 мишень выдерживают 2-4 суток, снимают активный слой мишени растворением в соляной кислоте, проводят процессы отделения, очистки и концентрирования кобальта-57 на двух хроматографических колонках с анионитами с последующим элюированием его со второй колонки бидистиллированной водой.

Одним из основных требований к продукту «хлорид кобальта (^{57}Co)» является ограничение содержания других радионуклидов кобальта, при распаде которых возникает жесткое гамма-излучение. Высокая радионуклидная чистота ^{57}Co необходима для изготовления мёссбауэровских источников, где требуется точные измерения, а также медицинских препаратов меченых радионуклидом кобальт-57.

Первая колонка с Дауэкс 1x4 обеспечивает очистку кобальта-57 от примесей удержанием примесей в колонке меди до 90%, железа до 95% при вымывании кобальта-57 на уровне 90 – 95%.

Вторая колонка с анионитом Дауэкс1x4 с последующим промыванием колонки этиловым спиртом и элюированием кобальта-57 бидистиллированной водой обеспечивает снижение до минимума содержания HCl от 5 моль/л после первой колонки с Дауэкс 1x4 до 0,1 моль/л и ниже. При этом, полностью отсутствует проскок кобальта-57.

Вымывание кобальта на последней стадии со второй колонки бидистиллированной водой с одним свободным объемом колонки обеспечивает получение раствора $^{57}\text{CoCl}_2$ высокой химической чистоты и высокой объемной активностью (табл. 12).

Таблица 12

Качественные характеристики $^{57}\text{CoCl}_2$

Характеристика $^{57}\text{CoCl}_2$	Результаты
Содержание меди, мкг/ГБк	< 0,1
Содержание железа, мкг/ГБк	< 0,4
Концентрация HCl, моль/л	0,1
Объемная активность, ГБк/мл (мКи/мл)	22 (600)

Основной радионуклидной примесью в продукте $^{57}\text{CoCl}_2$ является ^{56}Co , который наряду с ^{57}Co образуется при облучении протонами никелевой мишени. Материнскими радионуклидами для ^{56}Co и ^{57}Co являются ^{56}Ni и ^{57}Ni . Эти радионуклиды имеют разные значения периодов полураспада. Варьируя времени выдержки облученной мишени можно добиться желаемого соотношения дочерних радионуклидов. Соотношение активностей ^{56}Co и ^{57}Co в относительных единицах в зависимости от времени приведено на рис. 4. Из приведенного графика видно, что чем больше времени выдержки облученной мишени, тем больше накопление радионуклида ^{56}Co и его содержание в продукте ^{57}Co . Следовательно, чтобы снизить содержание радиоактивной примеси ^{56}Co в целевом продукте необходимо сокращать времени выдержки облученных мишеней до практически возможного срока.

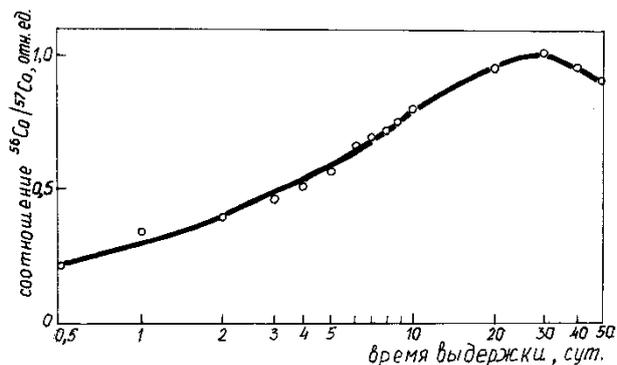


Рис. 4. Соотношение активностей ^{56}Co и ^{57}Co

Экспериментальные результаты, полученные при переработке облученных мишеней, и горячих в том числе, с различными временами выдержки (табл. 13) позволили подобрать оптимальный режим выдержки облученных мишеней, с учетом безопасности переработки мишеней и потери целевого радионуклида.

Таблица 13

Выход и радионуклидная чистота препарата $^{57}\text{CoCl}_2$

Время выдержки, <i>сут</i>	Содержание ^{56}Co , %	Выход ^{57}Co , %
0,5	0,080	32,0
1,0	0,106	37,7
2,0	0,110	67,9
3,0	0,127	77,3
4,0	0,136	86,7
5,0	0,158	92,4
6,0	0,161	96,2

Как показывают экспериментальные результаты, с сокращением времени выдержки облученных мишеней повышается радионуклидная чистота продукта. Однако при выдержке облученной мишени менее двух суток, снижается выход целевого радионуклида ^{57}Co , что является нежелательным из-за его потери и снижения объемной активности конечного продукта. Таким образом, оптимальным значением времени выдержки, оказалось время от 2 до 4 суток. При этом другие показатели продукта (удельная активность, радионуклидная чистота, объемная активность) сохраняется на требуемом уровне.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

На основе проведенных исследований по научно-исследовательской работе на тему: “Разработка технологий получения радионуклидного генератора $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ и радионуклида ^{57}Co ” представлены следующие выводы:

1. Определены условия активации обогащенного изотопа ^{98}Mo нейтронами деления ядерного реактора ВВР-СМ с максимально высокой специфической активностью ^{99}Mo .
2. Установлены химические изополимолибдатные формы молибдена с наивысшей степенью сорбции (до 99% и выше) на оксиде алюминия.
3. Исследованы закономерности сорбции изополимолибдатных форм молибдена на оксиде алюминия и впервые разработана технология получения радионуклидного генератора $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ на основе активационного ^{99}Mo ,

полученного активацией обогащенного изотопа ^{98}Mo и условия реализации этой технологии.

4. Изучены влияние различных факторов на выход дочернего радионуклида $^{99\text{m}}\text{Tc}$ из генераторной колонки, определены составы элюирующих растворов и оптимальные условия элюирования дочернего радионуклида $^{99\text{m}}\text{Tc}$ из генераторной колонки.

5. Впервые разработана технология регенерации обогащенного изотопа ^{98}Mo из отработанных генераторов и из отходов производства генератора $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$, с возвратом обогащенного ^{98}Mo в цикл производства с подпиткой исходного облучаемого материала до 80% и выше.

6. Определены оптимальные условия облучения мишеней из никеля, обогащенного изотопом ^{58}Ni на циклотроне пучком протонов, снятия облученного материала с медных подложек и радиохимической переработки облученного материала мишени.

7. Усовершенствована технология получения радионуклида ^{57}Co с облучением на циклотроне обогащенных изотопом никель-58 мишеней, с использованием двух анионообменных хроматографических колонок и с очисткой от сопутствующих радионуклидов с их содержанием в конечном продукте $^{57}\text{CoCl}_2$ менее 0,15%.

8. Впервые разработана технология регенерации изотопа никель-58 из отходов производства «хлорид кобальта-57» с его возвращением в цикл производства и до 80% компенсацией исходного сырья.

**SCIENTIFIC COUNCIL No.DSc.02/30.12.2019.FM/T.33.01 ON AWARD
OF SCIENTIFIC DEGREES AT THE INSTITUTE OF NUCLEAR
PHYSICS**

INSTITUTE OF NUCLEAR PHYSICS

KHUJAEV SAYDAKHMAD

**DEVELOPMENT OF TECHNOLOGIES FOR OBTAINING THE
⁹⁹Mo/^{99m}Tc RADIONUCLIDE GENERATOR AND THE ⁵⁷Co
RADIONUCLIDE**

01.04.01 – Instruments and methods of experimental physics

PRESENTATION

**on awarding the scientific degree of Doctor of Sciences (DSc) in technical sciences on
the basis a patent of an invention without a dissertation defense**

Tashkent - 2021

The theme of the doctoral dissertation (DSc) was registered by the Supreme Attestation Commission of the Cabinet of Ministers of the Republic of Uzbekistan under No. B2021.2.DSc/T431.

Research work has been carried out at the Institute of Nuclear Physics of Uzbekistan Academy of sciences.

Presentation of scientific research in three languages (Uzbek, Russian and English (resume)) is posted on the webpage at the address of www.inp.uz and Information-educational portal "Ziyonet" (www.ziyonet.uz).

Presentation of scientific research will take place on the « ____ » _____ 2021, at _____ the meeting of Scientific council DSc.02/30.12.2019.FM/T.33.01 at Institute of Nuclear Physics of Uzbekistan Academy of Sciences (Address: 100214, Tashkent, Ulughbek, Institute of Nuclear Physics. Phone: (+99871) 289-31-41; Fax: (+99871)289-36-65; e-mail: info@inp.uz).

The Presentation of scientific research is registered at Information-resource center of Institute of Nuclear Physics (registration No _____). Address: 100214, Tashkent, Ulughbek, Institute of Nuclear Physics, Phone (+99871) 289-31-19.

The Presentation of scientific research sent out on " ____ " _____ 2021.
(Registry protocol No. _____ dated " ____ " _____ 2021)

M.Yu. Tashmetov
Chairman of scientific council on award
of scientific degrees, D.Ph.M.S., professor

O.R. Tojiboev
Scientific secretary of scientific council on award
of scientific degrees, PhD ph.-m.s.

INTRODUCTION (presentation abstract)

The aim of the research work is to develop a $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ radionuclide generator based on activation ^{99}Mo and to develop a technology for obtaining ^{57}Co radionuclides with high radionuclide purity for nuclear medicine purposes.

The object of the research work is radiochemical system $\text{Al}_2\text{O}_3 + ^{99}\text{Mo}$ ($^{99\text{m}}\text{Tc}$) + $\text{NaCl} \rightarrow ^{99\text{m}}\text{Tc}$ and radiochemical system $\text{FT4/TOA} + ^{58}\text{Ni}$ (^{57}Co) + $\text{HCl} \rightarrow ^{57}\text{Co}$.

The scientific novelty of the research work is as follows:

the conditions of activation of the enriched ^{98}Mo isotope in the WWR-SM nuclear reactor with possibly high specific activity of ^{99}Mo up to 6 - 7 Curie per gram of ^{98}Mo have been determined;

the chemical isopolymolybdate forms of molybdenum with the highest degree of sorption (up to 99% and higher) on aluminum oxide have been investigated and established;

for the first time, a technology has been developed for obtaining a $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ radionuclide generator based on the activation ^{99}Mo , obtained by activation of the enriched ^{98}Mo isotope and the conditions for their technological implementation;

compositions of elution solutions and conditions for elution of daughter $^{99\text{m}}\text{Tc}$ radionuclide from the generator column were investigated and determined;

for the first time, the technology of regeneration of the enriched ^{98}Mo isotope from spent generators and from the waste of the $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ generator was developed, with the return of the enriched ^{98}Mo to the beginning of the production with feeding the initial irradiated material up to 80% and more;

the optimal conditions for irradiation of the enriched ^{58}Ni isotope by protons of the cyclotron and radiochemical processing of the irradiated target material have been determined;

for the first time, a chromatographic technology to obtain ^{57}Co radionuclide was developed, based on the use of an enriched ^{58}Ni isotope with a content of associated radioisotopes in the final product of 0.15%;

for the first time, the technology of regeneration of the enriched ^{58}Ni isotope from production wastes with its return to the beginning of the production of ^{57}Co radionuclide up to 80% of the compensation of the feedstock was developed.

Implementation of the research results. According to the results obtained on the development of technologies for obtaining a $^{99}\text{Mo} / ^{99\text{m}}\text{Tc}$ radionuclide generator and ^{57}Co radionuclide:

received a preliminary patent for an invention of the State Patent Office of the State Committee on Science and Technology of the Republic of Uzbekistan for a method for producing sodium pertechnetate (Tc-99m) ("Method for producing sodium pertechnetate (Tc-99m)", No. 5121, 29.06.1998). As a result of using the invention, it is possible to use evacuated vials to obtain a solution of sodium pertechnetate (Tc-99m) from a generator column, which ensures the reliability of the yield of a high-quality prepate and safer operation of generators in clinics;

received a patent for an invention of the State Patent Office of the Republic of Uzbekistan for a method for producing sodium pertechnetate (Tc-99m) (“Method for producing sodium pertechnetate (Tc-99m)”, No. IAP 04001, 22.07.2009). As a result of using the invention, it is possible to significantly increase the yield of the daughter Tc-99m radionuclide from the generator column;

received a preliminary patent for an invention of the State Patent Office of the State Committee on Science and Technology of the Republic of Uzbekistan for a method for producing a technetium generator - 99m by irradiation with thermal neutrons of molybdenum-98 oxide from spent technetium generators - 99m (“Method for obtaining a technetium generator - 99m”, No. IDP 05064, January 18, 2002). As a result of using the invention, it is possible to reduce production costs and create a waste-free production of $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ generators;

the developed technologies for obtaining a $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ radionuclide generator based on the activation ^{99}Mo and the regeneration of molybdenum enriched with the ^{98}Mo isotope from spent generators and waste from the $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ generator were introduced into production at the State Enterprise “Radiopreparat” at the INP AN RUz (Act on the use of inventions No. 1 -1/784 dated 08/10/2021). As a result, the quality of the manufactured product has increased and production costs have been reduced by up to 80%;

received a preliminary patent for an invention of the State Patent Office of the State Committee for Science and Technology of the Republic of Uzbekistan for a method for producing cobalt-57 a carrier-free (“Method for producing cobalt-57 a carrier-free”, No. 5120, 03.07.1998). As a result, it became possible to reduce the radionuclide impurity in the cobalt-57 preparation while ensuring the high quality of the product;

received a preliminary patent for an invention of the State Patent Office of the State Committee on Science and Technology of the Republic of Uzbekistan for a method for producing cobalt-57 a carrier-free (“Method for producing cobalt-57 a carrier-free”, No. 2857, 30.09.1995). As a result of using the invention, production costs have been reduced and a waste-free production of cobalt-57 has been created;

improved chromatographic technology for obtaining radionuclide ^{57}Co and developed technology for regeneration of enriched ^{58}Ni isotope material from production wastes, the production of LLC “Tezlatgich” was introduced (Act on the use of inventions No. 126/1 dated 09/08/2021). As a result, the use of the invention made it possible to improve the quality of the manufactured product and save up to 80% of expensive enriched isotopes in the irradiated products in each production cycle.

ЭЪЛОН ҚИЛИНГАН ИШЛАР РЎЙХАТИ
СПИСОК ОПУБЛИКОВАННЫХ РАБОТ
LIST OF PUBLISHED WORKS

I бўлим (Часть I; Part I)

1. ЎзР Дастлабки патент № 2857. Способ получения радионуклида кобальта-57 без носителя / Хужаев С., Султанов А., Мирзаева Н.А., Усаченко В.С., Егамедиев С.Х., Портянко А.П., Назарова К. // Расмий ахборотнома. - 1995. - № 3. - С. 83.
2. ЎзР Дастлабки патент № 5120. Ташувчисиз кобальт-57 радионуклидини олиш усули / Хужаев С., Мирзаева Н.А., Султанов А., Егамедиев С.Х., Юлдашев Б.С. // Расмий ахборотнома. -1998. - № 2.
3. ЎзР Дастлабки патент № 5121. Натрий пертехнетати (Тс-99m) ни олиш усули / Арипов Д., Холбоев А.Х., Рихсиев А.З., Урумбаев И.Т., Абдукаюмов М., Хужаев С., Султанов А., Мирзаева Н.А. // Расмий ахборотнома. -1998. - № 2.
4. ЎзР Дастлабки патент № IDP 05064. Технеций-99m генераторини олиш усули / Хужаев С., Мирзаева Н.А., Рихсиев А.З., Урумбаев И.Т. // Расмий ахборотнома. – 2002. - № 1. - С. 71.
5. Патент РУз № IAP 04001. Натрий пертехнетатини (Тс-99m) олиш усули / Арипов Д., Усаров З.О., Абдукаюмов М., Рихсиев А.З., Хужаев С. // Расмий ахборотнома. -2009. - № 8.
6. Гуреев Е.С., Маркелова Е.А., Султанов А., Хужаев С. Изучение Сорбции технеция-99m на оксиде алюминия. // Доклады АН УзССР, 1986, № 9, С. 22-23.
7. Маркелова Е.А., Хужаев С., Султанов А. Химическая форма и условия сорбции Мо-99 на окиси алюминия. // Узб. хим. журнал, 1987, № 5, С. 21-24.
8. Абдусалямов Н., Ашрапов Т.Б., Гуреев Е.С., Исламов Т., Хужаев С. Влияние условий облучения на выход наведенной активности молибдена, получаемого по ядерной реакции $^{98}\text{Mo}(n,\gamma)^{99}\text{Mo}$ // Известия АН УзССР, сер. физ.-мат. наук, 1987, № 6, С. 50-52.
9. Гуреев Е.С., Хужаев С., Султанов А., Мирзаева Н.А., Ашрапов У.Т. Сорбция молибдена-99 на оксиде алюминия и получение технеция-99m из облученной нейтронами трех окиси молибдена. // Узбекский химический журнал. – Ташкент, 1990. - № 6. - С. 8-11.
10. Гуреев Е.С., Мирзаева Н.А., Султанов А., Хужаев С., Ашрапов У.Т. Усовершенствование генератора технеция-99m. // Доклады АН УзССР. – Ташкент, 1991. - № 1.- С. 32-34.
11. Гуреев Е.С., Султанов А., Хужаев С., Ашрапов У.Т. Сорбция восстановленных форм технеция-99m на оксиде алюминия. // Узбекский химический журнал. – Ташкент, 1991. - № 1. - С. 37-40.

12. Хужаев С., Мирзаева Н.А. Регенерация молибдена-98 из отработанных генераторов технеция-99м. // Узбекский химический журнал. – Ташкент, 1995. - № 4. - С. 9-12.

13. Хужаев С., Исламов Т., Ганиев Д.А., Нуштаева Л.Б. Некоторые аспекты получения радионуклидов в ядерном реакторе типа ВВР-СМ. // Узбекский физический журнал. – Ташкент, 1998. - №.6. - С. 70-73.

14. Хужаев С. Современное состояние радиохимических исследований и перспективы производства радиоактивных препаратов // Узбекский физический журнал. – Ташкент, 2004. - № 2(6). - С. 139-144.

15. Нурматов Ш., Хужаев С., Рихсиев А., Абдукаюмов А.М. Получение набора реагентов к генератору технеция-99м для радионуклидной диагностики в кардиологии и онкологии. // Узбекский химический журнал. – Ташкент, 2008. - № 2. - С. 55-59.

II бўлим (Часть II; Part II)

16. Авторское свидетельство СССР № 1646102. Способ получения неорганического сорбента-носителя для радиоизотопных генераторов / Гуреев Е.С., Хужаев С., Султанов А., Ашрапов У.Т., Мирзаева Н.А. и Арипов Д.А. // 03.01.1991.

17. Авторское свидетельство СССР № 1679896. Способ изготовления стерильного генератора технеция-99М / Гуреев Е.С., Хужаев С., Султанов А., Исламов Т., Абдукаюмов М., Прусаков В.Н., Урумбаев И.Т., Хабибуллаев П.К. и Абдусаломов Н. // SU 1679896 A1.

18. Авторское свидетельство СССР № 1688719. Способ получения радионуклида кобальт-57 без носителя / Гуреев Е.С., Хужаев С., Шукуров А.Ш., Усаченко В.С., Мирзаева Н.А. и Маматказина А.Х. // SU 1688719 A1.

19. Авторское свидетельство СССР № 1762669. Способ выделения технеция-99м / Гуреев Е.С., Хужаев С., Султанов А., Хабибуллаев П.К., Абдукаюмов М., Маркелова Е.А. и Мирзаева Н.А. // SU 1679896 A1.

20. Патент СССР № 1820769. Способ получения технеция-99м в виде пертехнетата натрия и устройство для его получения / Гуреев Е.С., Ашрапов У.Т., Султанов А., Хужаев С. и Рахимов А.К. // SU 1820769 A1.

21. ЎзР Дастанлабки патент № 195. Ташувчисиз кобальт-57 радионуклидини олиш усули / Хужаев С., Шукурова А.Ш., Султанов А., Мирзаева Н.А., Маматказина А.Х., Гуреев Е.С., Абдукаюмов М. // Расмий ахборотнома. - 1993.- № 1.

22. ЎзР Дастанлабки патент № 694. Натрий пертехнетати ($^{99\text{m}}\text{Tc}$) ни олиш усули / Хужаев С., Султанов А., Мирзаева Н.А., Гуреев Е.С., Исламов Т., Арипов Д., Урумбаев И.Т., Абдукаюмов М. // Расмий ахборотнома. - 1994. - № 1.

23. Патент РФ № 2028679. Способ получения генератора технеция-99М / Ашрапов У.Т., Мирзаева Н.А., Султанов А. и Хужаев С. // Расмий ахборотнома. - 1996.- № 4.

24. ЎзР Дастлабки патент № 4807. Способ изготовления генератора технеция-99м. / Арипов Д., Ашрапов У.Т., Абдулахатов П., Хужаев С. И Султанов А. // Расмий ахборотнома. - 1997.- № 4.

25. Патент РУз № IAP 03963. Гепатобилиар тизим ташхиси учун реагентлар тўпламини олиш усули / Абдукаюмов М., Рихсиев А.З., Нурматов Ш.Х., Хужаев С. // Расмий ахборотнома. – 2009. - № 7.

26. Хужаев С., Султанов А., Мирзаева Н.А. Радионуклидный генератор $^{99}\text{Mo} \rightarrow ^{99\text{m}}\text{Tc}$. Проблемы выхода дочернего радионуклида $^{99\text{m}}\text{Tc}$ // Ядерная и радиационная физика, том 1: Материалы 2-ой международной конференции, 7-10 июня 1999 г., Алматы (Республика Казахстан) - Алматы, 1999. - С. 263-268.

27. Abdukaayumov M., Ashrapov T.B., Chistyakov P.G., Gulamov I.R., Khujaev S., Rylov A.A., Yuldashev B.S. Industrial scale production of radioactive isotopes at the Institute of Nuclear physics of Academy of Sciences and its enterprises. // Proc. of the I. Eurasia Conf. on nuclear science and its application 23-27 Oct. 2000, Izmir (Turkey) Presentations. V.1. –Ankara, 2001. - pp.15-18.

28. Абдукаюмов М., Хужаев С., Юлдашев Б.С. Производство радионуклидов в институте ядерной физики АН РУз. // Ядерная и радиационная физика, том 3: Материалы 3-ей международной конференции 4-7 июня 2001, Алматы (Республика Казахстан). – Алматы, 2001. - С. 370-373.

29. Khujaev S., Mirzaeva N.A., Ashrapov U.T., Nushtaeva L.B, Berdieva M. Regeneration of ^{98}Mo enriched from waste $^{99\text{m}}\text{Tc}$ generators // Proc. of the Second Eurasian Conference on nuclear science and its application, 16-19 September 2002, Almaty (Republic of Kazakhstan), Presentations. Vol. I. – Almaty, 2003. -pp. 455-458.

30. Ashrapov U.T., Khujaev S. The stationary generator of the $^{99\text{m}}\text{Tc}$ // Proc. of the Second Eurasian Conference on nuclear science and its application, 16-19 Sept. 2002, Almaty (Republic of Kazakhstan), Presentations. Vol.I. – Almaty, 2003. - pp. 499-503.

31. Хужаев С. Радиоизотопные генераторы //Фундаментальные и прикладные вопросы физики. Труды межд. конф., посвященной 90-летию акад. С.А. Азимова, 18-19 ноября 2004. – Ташкент, 2004. - С. 57-60.

32. Хужаев С. Радионуклиды в ядерной медицине // Фундаментальные и прикладные вопросы физики. Труды межд. конф., посвященной 90-летию акад. С.А.Азимова, 18-19 ноября 2004. Ташкент, 2004. - С. 60-62.

33. Khujaev S. Alternative generators of $^{99\text{m}}\text{Tc}$ // Proc. of the Third Eurasian Conf. Nuclear Science and its application 5-8 October 2004. - Tashkent, 2006. - pp. 275-276.

34. Ашрапов У.Т., Хужаев С. Регенерация трехокси молибдена, обогащенной молибденом-98, десорбированной из отработанных генераторов технеция-99м // Сб. статей «Экология, промышленность и энергетическая безопасность. - Севастополь: Сев ГУ, 2020. - С. 82-85.

35. Хужаев С., Ашрапов У.Т. Получение трехокси молибдена, обогащенного молибденом-98, регенерированного из отработанных

генераторов технеция-99м // IX Российская Конференция с международным участием «Радиохимия-2018», 17-21 сентября 2018. - Санкт-Петербург, 2018. -Тез. 474. - www.istina.msu.ru