

SPECIATION DES IONS (POLY)MOLYBDATE ET (POLY)TUNGSTATE SORBES DANS UNE ARGILE ANIONIQUE EN RELATION AVEC LA PRODUCTION DE RADIOISOTOPES POUR L'IMAGERIE MEDICALE

A. Davantès, G. Lefèvre

Institut de Recherche de Chimie Paris - UMR8247 Chimie ParisTech – CNRS

gregory.lefevre@chimie-paristech.fr

Dans l'imagerie médicale, le technétium 99m est utilisé depuis les années 60, tandis que l'utilisation du rhénium 188 a pris une forte ampleur ces vingt dernières années. Ces deux radionucléides sont produits sur le lieu de leur utilisation, à partir de l'élution par une solution de chlorure de sodium d'une colonne chromatographique contenant du $^{99}\text{Mo(VI)}$ ou du $^{188}\text{W(VI)}$. La séparation est basée sur la différence de charge de TcO_4^- (ReO_4^-), adsorbé moins fortement que MoO_4^{2-} (WO_4^{2-}) sur la surface de la colonne, positive à pH neutre. La chimie en solution de Mo(VI) et W(VI) est particulièrement riche, avec la formation de nombreux polyoxométallates en milieu acide. Du fait du pH de la solution d'élution, seuls des monomères sont néanmoins attendus dans ce cas. L'optimisation des colonnes actuelles, utilisant de l'alumine, a pour but d'augmenter leur capacité d'échange [1].

Dans ce cadre, l'utilisation des hydroxydes doubles lamellaires (HDLs), aussi appelée argiles anioniques ou hydrotalcite (formule générale : $\text{M}^{2+}_{1-x}\text{M}^{3+}_x(\text{OH})_2(\text{A}^{n-})_{x/n} \cdot m\text{H}_2\text{O}$), a fait l'objet d'études exploratoires [2]. La sorption des ions sur ces solides implique un phénomène très différent de l'alumine (échange anionique au lieu de complexation de sphère externe), permettant de garder une forte affinité dans toute la gamme de pH. Les structures lamellaires sont stabilisées par des interactions électrostatiques et des liaisons hydrogènes. Ainsi, la sorption de polyoxométallates est favorisée, du fait de leur charge négative élevée. La spéciation des ions échangés ayant un impact direct sur le phénomène d'élution (sélectivité, efficacité, cinétique,...), il est important de caractériser les ions Mo(VI) et W(VI) présents dans les HDLs.

Notre équipe développe depuis de nombreuses années l'utilisation de la spectroscopie infrarouge en réflexion totale atténuée (ATR-IR) pour déterminer la spéciation de surface des oxyanions sorbés. Les analyses *in situ* nous ont permis de suivre en temps réel les spectres des espèces échangées avec les ions initialement présents dans les hydroxydes doubles lamellaires (ions sulfate et carbonate). Nous avons ainsi identifié les mécanismes de sorption des ions (poly)molybdate et (poly)tungstate sur ces argiles anioniques et obtenu des informations sur la spéciation de ces anions [3]. L'influence du pH et de la concentration en solution a été mise en évidence. L'espèce préférentiellement échangé dans les deux cas est un polyoxoanion du type $\text{M}_7\text{O}_{24}^{6-}$. Nous avons ainsi pu déterminer l'ordre de sélectivité général : $\text{M}_7\text{O}_{24}^{6-} > \text{CO}_3^{2-} > \text{MO}_4^{2-} > \text{SO}_4^{2-} > \text{ReO}_4^-, \text{TcO}_4^-$.

¹ A. Dash, F.F Knapp, M.R.A. Pillai, *Nuclear Medicine and Biology*, **40**, (2013), 167-176

² J. Serrano, V. Bertin, S. Bulbulian, *Langmuir*, **16**, (2000), 3355-3360

³ A. Davantès, G. Lefèvre, *J. Phys. Chem. A*, **117**, (2013), 12922-12929