

**UNIVERSIDAD NACIONAL DE INGENIERÍA**  
**FACULTAD DE CIENCIAS**



**TESIS**

**“SEPARACIÓN SELECTIVA DE  $^{99}\text{Mo}$  EN MATRIZ  
DE QUITOSANO MODIFICADO CON GLUTARALDEHÍDO  
EN COLUMNA CROMATOGRÁFICA ”**

**PARA OBTENER EL GRADO ACADÉMICO DE MAESTRO EN  
CIENCIAS EN QUÍMICA**

**ELABORADA POR:**

**ERIKA JULISA BARDALES ABANTO**

**ASESORA:**

**Dra. ANA CECILIA VALDERRAMA NEGRÓN**

**LIMA – PERÚ**

**2025**

## **DEDICATORIA**

A mi madre, María Abanto, por inculcarme la perseverancia y siempre decirme que puedo con todo, por ser mi cómplice, mi amiga y una maravillosa persona.

A mi pareja de toda la vida, Erick, por ser mi fortaleza en cada etapa que nos hemos propuesto y por apoyarme en las decisiones que tomo.

A mi hermano Gabriel, por ser mi motivación en la vida, por sorprenderme con sus ocurrencias y hacerme sonreír.

A Frank, por ser pieza fundamental en la familia y estar en cada etapa, siempre con un buen consejo y palabras de confianza.

A mi padre, Hermes Bardales, que estoy convencida que desde el cielo ha sabido guiarme y me ha cuidado mediante su luz espiritual.

## **AGRADECIMIENTOS**

Mi gratitud eterna a las personas que me brindaron su apoyo a lo largo de esta gran travesía para el desarrollo de mi trabajo de tesis.

A mi asesora, la Dra. Ana Valderrama, de quien valoro la dedicación y motivación para orientarme en el desarrollo de mi tesis. Siempre ha estado presente en cualquier duda e inquietud que han surgido en este tiempo y a quien agradezco profundamente.

Agradecer al Msc. Victor Poma, por asesorarme en los conceptos de radiación y gestionar todo trámite necesario para el Instituto Peruano de Energía Nuclear, por convertirse en un amigo de quien estoy totalmente agradecida por su compromiso y dedicación en el proyecto.

Agradecer al personal de la Planta de Producción de Radioisótopos del Instituto Peruano de Energía Nuclear, especialmente a Tania Ñañez Champi, por suministrar las soluciones radiactivas para los ensayos y en el apoyo del control de calidad de las muestras.

Agradecer a Cynthia Cáceres, por su apoyo en las mediciones de difracción de Rayos X de las muestras analizadas en los laboratorios del Instituto Peruano de Energía Nuclear.

Agradecer al Laboratorio de Investigación en Biopolímeros y Metalofármacos (LIBIPMET) de la Universidad Nacional de Ingeniería, por permitirte realizar los ensayos necesarios para la finalización de mi tesis.

Agradecer a mis amistades y colaboradores que de alguna manera contribuyeron en las mediciones de caracterización de los materiales y por sus consejos para la culminación de esta tesis de posgrado, sus comentarios siempre redondearon la idea final de investigación.

Agradecer el apoyo financiero brindado por el gobierno peruano a través del financiamiento de PROCENCIA con contrato N° PE501079985-2022-PROCENCIA para el desarrollo de esta investigación.

# ÍNDICE

|                                                                                                     |      |
|-----------------------------------------------------------------------------------------------------|------|
| ÍNDICE DE FIGURAS .....                                                                             | VI   |
| ÍNDICE DE TABLAS.....                                                                               | IX   |
| RESUMEN .....                                                                                       | XIII |
| ABSTRACT .....                                                                                      | XIV  |
| CAPÍTULO I: INTRODUCCIÓN .....                                                                      | 1    |
| 1.1 INTRODUCCIÓN GENERAL.....                                                                       | 1    |
| 1.2 ESTADO DEL ARTE.....                                                                            | 2    |
| 1.3 PLANTEAMIENTO DEL PROBLEMA .....                                                                | 7    |
| 1.4 JUSTIFICACIÓN DE LA INVESTIGACIÓN .....                                                         | 8    |
| 1.4.1 Justificación Social.....                                                                     | 8    |
| 1.4.2 Justificación científica y técnica. ....                                                      | 8    |
| 1.5 IDENTIFICACIÓN DEL APOORTE CIENTIFICO.....                                                      | 9    |
| 1.6 HIPÓTESIS .....                                                                                 | 9    |
| 1.7 OBJETIVOS.....                                                                                  | 10   |
| 1.7.1 OBJETIVO GENERAL .....                                                                        | 10   |
| 1.7.2 OBJETIVOS ESPECÍFICOS .....                                                                   | 10   |
| CAPÍTULO II: FUNDAMENTO TEÓRICO .....                                                               | 11   |
| 2.1 Quitosano .....                                                                                 | 11   |
| 2.1.1. Propiedades Fisicoquímicas.....                                                              | 11   |
| 2.1.2. Quitosano y glutaraldehído.....                                                              | 12   |
| 2.2 Reacciones involucradas .....                                                                   | 13   |
| 2.2.1 Reacciones involucradas en la síntesis de los polímeros .....                                 | 13   |
| 2.2.2 Reacciones involucradas en la adsorción de <sup>99</sup> Mo.....                              | 14   |
| 2.3. Molibdeno-99 ( <sup>99</sup> Mo).....                                                          | 15   |
| 2.4. Tecnecio-99m ( <sup>99m</sup> Tc).....                                                         | 15   |
| 2.4.1. Técnicas de Separación de <sup>99m</sup> Tc .....                                            | 16   |
| 2.5. Desintegración beta.....                                                                       | 19   |
| CAPÍTULO III: PARTE EXPERIMENTAL .....                                                              | 21   |
| 3.1. Materiales .....                                                                               | 21   |
| 3.2. Metodología.....                                                                               | 23   |
| 3.2.1. Síntesis del polímero de quitosano modificado .....                                          | 24   |
| 3.3. Caracterización del quitosano y polímeros modificados .....                                    | 27   |
| 3.3.1. Determinación del grado de desacetilación por análisis del espectro infrarrojo (FT-IR) ..... | 27   |
| 3.3.2. Determinación del grado de desacetilación por titulación conductimétrica.....                | 28   |
| 3.3.3. Determinación del peso molecular por el método de viscosimetría .....                        | 29   |
| 3.3.4. Caracterización por Espectroscopía infrarroja (FT-IR) .....                                  | 30   |
| 3.3.5. Caracterización por difracción de rayos X (DRX).....                                         | 31   |
| 3.3.6. Caracterización por análisis termogravimétrico (TGA).....                                    | 31   |
| 3.3.7. Caracterización por Microscopía electrónica de Barrido (MEB) .....                           | 32   |
| 3.3.8. Caracterización por Resonancia Magnética Nuclear de fase sólida (ss-RMN) .....               | 32   |
| 3.3.9. Caracterización por Espectroscopia FT- Raman .....                                           | 33   |

|                                                                                                        |    |
|--------------------------------------------------------------------------------------------------------|----|
| 3.3.10. Grado de entrecruzamiento de los polímeros .....                                               | 33 |
| 3.3.11. Determinación del punto de carga cero .....                                                    | 34 |
| 3.4. Factores que influyen en el proceso de adsorción de $^{99}\text{Mo}$ .....                        | 34 |
| 3.4.1. Estudio del efecto de pH en el proceso de adsorción de $^{99}\text{Mo}$ .....                   | 37 |
| 3.4.2. Efecto de la variación de masa del polímero adsorbente sobre $^{99}\text{Mo}$ .....             | 37 |
| 3.5. Estudio de la cinética de adsorción.....                                                          | 37 |
| 3.6. Estudio de la isoterma de adsorción .....                                                         | 38 |
| 3.7. Evaluación de la adsorción de $^{99}\text{Mo}$ por columna cromatográfica.....                    | 40 |
| 3.7.1. Optimización para el ensamblado de la columna cromatográfica .....                              | 40 |
| 3.7.2. Ensamblado de columna cromatográfica .....                                                      | 40 |
| 3.7.3. Determinación del porcentaje de adsorción de $^{99}\text{Mo}$ .....                             | 41 |
| 3.7.4. Determinación del rendimiento de elución del $^{99\text{m}}\text{Tc}$ .....                     | 41 |
| 3.7.5. Control de calidad del $\text{Na}^{99\text{m}}\text{TcO}_4$ final .....                         | 42 |
| CAPÍTULO IV: DISCUSIONES DE RESULTADOS.....                                                            | 43 |
| 4.1. Síntesis del polímero de quitosano entrecruzado .....                                             | 43 |
| 4.2. Caracterización de los polímeros.....                                                             | 44 |
| 4.2.1. Determinación del grado de desacetilación por análisis FT-IR.....                               | 44 |
| 4.2.2. Determinación del grado de desacetilación por titulación conductimétrica.....                   | 46 |
| 4.2.3. Determinación del peso molecular por el método de viscosimetría .....                           | 48 |
| 4.2.4. Espectro infrarrojo FT-IR.....                                                                  | 50 |
| 4.2.5. Caracterización por Difracción de rayos x (DRX).....                                            | 54 |
| 4.2.6. Análisis termogravimétrico (TGA) .....                                                          | 57 |
| 4.2.7. Microscopía electrónica de barrido (MEB).....                                                   | 61 |
| 4.2.8. Resonancia Magnética Nuclear de fase sólida (ssRMN) .....                                       | 65 |
| 4.2.9. Espectroscopía FT-Raman.....                                                                    | 66 |
| 4.2.10 Determinación del grado de entrecruzamiento (G.E) .....                                         | 68 |
| 4.2.11 Análisis de punto de carga cero ( $\text{pH}_{\text{PZC}}$ ). .....                             | 68 |
| 4.3. Factores que influyen en el proceso de adsorción de $^{99}\text{Mo}$ .....                        | 69 |
| 4.3.1. Estudio del tiempo de contacto y cinética de adsorción.....                                     | 70 |
| 4.3.2. Estudio del efecto de pH en el proceso de adsorción de $^{99}\text{Mo}$ .....                   | 73 |
| 4.3.3. Estudio del efecto de la variación de masa del polímero adsorbente sobre $^{99}\text{Mo}$ ..... | 74 |
| 4.4. Estudio de la isoterma de adsorción .....                                                         | 75 |
| 4.5. Estudios de la columna cromatográfica .....                                                       | 76 |
| 4.5.1. Optimización para el ensamblado de la columna cromatográfica .....                              | 76 |
| 4.5.2. Método del ensamblado de la columna cromatográfica.....                                         | 77 |
| 4.5.3. Adsorción de $^{99}\text{Mo}$ y desorción de $^{99\text{m}}\text{Tc}$ .....                     | 78 |
| CONCLUSIONES.....                                                                                      | 82 |
| RECOMENDACIONES.....                                                                                   | 83 |
| BIBLIOGRAFÍA.....                                                                                      | 84 |
| ANEXOS .....                                                                                           | 93 |

## ÍNDICE DE FIGURAS

|           |                                                                                                                       |    |
|-----------|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----|
| Figura 1  | Estructura química del quitosano                                                                                      | 11 |
| Figura 2  | Esquema del comportamiento del quitosano variando el pH                                                               | 12 |
| Figura 3  | Estructura química del glutaraldehído                                                                                 | 13 |
| Figura 4  | Reacciones involucradas en la síntesis de polímeros derivados de quitosano                                            | 13 |
| Figura 5  | Interacción del quitosano entrecruzado con glutaraldehído y la especie de $^{99}\text{MoO}_4^{2-}$                    | 14 |
| Figura 6  | Producción de $^{99}\text{Mo}$ mediante activación neutrónica de $^{98}\text{Mo}$                                     | 15 |
| Figura 7  | Esquema de producción de $^{99\text{m}}\text{Tc}$ a partir de la desintegración $\beta^-$ del $^{99}\text{Mo}$        | 16 |
| Figura 8  | Esquema de producción de $^{99\text{m}}\text{Tc}$ por extracción con solvente MEK                                     | 17 |
| Figura 9  | Esquema de producción de $^{99\text{m}}\text{Tc}$ mediante el generador $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$       | 18 |
| Figura 10 | Proceso general de elución del $^{99\text{m}}\text{TcO}_4^-$ en la columna cromatográfica                             | 19 |
| Figura 11 | Esquema de decaimiento/crecimiento en el sistema del generador de $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$             | 20 |
| Figura 12 | Diagrama del proceso de síntesis de los polímeros de quitosano                                                        | 25 |
| Figura 13 | Polímeros sintetizados de QPCG y QCG                                                                                  | 26 |
| Figura 14 | Equipo de baño termostático empleado en el método viscosimétrico                                                      | 30 |
| Figura 15 | Espectro típico de $^{99}\text{Mo}$ y $^{99\text{m}}\text{Tc}$ obtenido en el detector Canberra de Germanio Hiperpuro | 35 |
| Figura 16 | Sistema de columna cromatográfica empleando la matriz de quitosano con glutaraldehído                                 | 40 |
| Figura 17 | Espectro infrarrojo de la película de QPC al 0,1 % con las líneas base de Baxter                                      | 44 |
| Figura 18 | Espectro infrarrojo de la película de QC al 0,1 % con las líneas base de Baxter                                       | 45 |
| Figura 19 | Valoración conductimétrica para QPC con NaOH                                                                          | 46 |
| Figura 20 | Valoración conductimétrica para QC con NaOH                                                                           | 46 |
| Figura 21 | Esquema de neutralización del quitosano por NaOH durante la titulación                                                | 47 |
| Figura 22 | Curvas de viscosidad vs concentración para determinar el peso molecular de QPC                                        | 48 |
| Figura 23 | Curvas de viscosidad vs concentración para determinar el peso molecular de QC                                         | 49 |
| Figura 24 | Comparación de los espectros FT-IR de QPC y QC                                                                        | 51 |
| Figura 25 | Comparación de los espectros FT-IR de QPC y QPCG-2                                                                    | 52 |
| Figura 26 | Comparación de los espectros FT-IR de QC y QCG-2                                                                      | 52 |
| Figura 27 | Comparación de los espectros FT-IT de los seis polímeros sintetizados                                                 | 53 |

|            |                                                                                                                           |     |
|------------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----|
| Figura 28  | Comparación de los patrones DRX de QPC y QC                                                                               | 55  |
| Figura 29  | Comparación de los patrones DRX de los seis polímeros sintetizados                                                        | 56  |
| Figura 30  | Comparación de los patrones DRX antes y después del entrecruzamiento con glutaraldehído                                   | 56  |
| Figura 31  | Curvas TGA y DTG para QPC                                                                                                 | 58  |
| Figura 32  | Curvas TGA y DTG para QC                                                                                                  | 58  |
| Figura 33  | Comparación de los termogramas antes y después del entrecruzamiento con glutaraldehído                                    | 59  |
| Figura 34  | Curvas TGA y DTG para los polímeros entrecruzados derivados de QPCG                                                       | 60  |
| Figura 35  | Curvas TGA y DTG para los polímeros entrecruzados derivados de QCG                                                        | 60  |
| Figura 36  | Micrografías MEB de QPC y derivados                                                                                       | 63  |
| Figura 37  | Micrografías MEB de QC y derivados                                                                                        | 64  |
| Figura 38  | Análisis MEB-EDS de QPCG-2 y QCG-3 con adsorción de Molibdeno a pH 2                                                      | 65  |
| Figura 39  | Espectros RMN- <sup>13</sup> C de los polímeros antes y después del entrecruzamiento                                      | 66  |
| Figura 40  | Espectros FT-Raman de los quitosanos antes y después del entrecruzamiento                                                 | 67  |
| Figura 41  | Curvas de pH <sub>PZC</sub> para los seis polímeros sintetizados                                                          | 68  |
| Figura 42  | Tipo de vial empleado en la cuantificación de actividad de <sup>99</sup> Mo en el detector Canberra de Germanio Hiperpuro | 70  |
| Figura 43  | Modelo cinético de pseudo primer orden para QPCG-1, QPCG-2 y QPCG-3                                                       | 71  |
| Figura 44  | Modelo cinético de pseudo segundo orden para QPCG-1, QPCG-2 y QPCG-3                                                      | 71  |
| Figura 45  | Modelo cinético de pseudo primer orden para QCG-1, QCG-2 y QCG-3                                                          | 72  |
| Figura 46  | Modelo cinético de pseudo segundo orden para QCG-1, QCG-2 y QCG-3                                                         | 72  |
| Figura 47  | Influencia del pH en la adsorción del ion <sup>99</sup> MoO <sub>4</sub> <sup>-2</sup>                                    | 74  |
| Figura 48  | Influencia de la masa – volumen para los polímeros entrecruzados                                                          | 75  |
| Figura 49  | Optimización de la columna cromatográfica                                                                                 | 77  |
| Figura B.1 | Isotermas obtenidas para los seis polímeros sintetizados                                                                  | 100 |
| Figura B.2 | Parámetros evaluados para el control de calidad de los eluatos de Na <sup>99m</sup> TcO <sub>4</sub>                      | 101 |
| Figura B.3 | Informe de análisis del Na <sup>99m</sup> TcO <sub>4</sub> en la elección del método de ensamblado                        | 102 |
| Figura B.4 | Informe de análisis del Na <sup>99m</sup> TcO <sub>4</sub> en la matriz polimérica                                        | 103 |
| Figura B.5 | Informe de análisis del Na <sup>99m</sup> TcO <sub>4</sub> en la columna de alúmina ácida                                 | 104 |
| Figura B.6 | Informe de análisis del Na <sup>99m</sup> TcO <sub>4</sub> con mayor radiactividad                                        | 105 |

|             |                                                                                                                                                                          |     |
|-------------|--------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----|
| Figura B.7  | Artículo publicado en la revista Results in Chemistry                                                                                                                    | 106 |
| Figura B.8  | Presentación de poster en el Congreso SILAE realizado en Octubre del 2023                                                                                                | 107 |
| Figura B.9  | Presentación oral en el Congreso Internacional de Energía Nuclear (CIEN) realizado en Enero del 2025.                                                                    | 108 |
| Figura B.10 | Presentación de poster en el International Atomic Energy Agency (IAEA) realizado en Polonia en Setiembre del 2024, como parte de la difusión de investigación en el IPEN | 109 |



## ÍNDICE DE TABLAS

|          |                                                                                                         |    |
|----------|---------------------------------------------------------------------------------------------------------|----|
| Tabla 1  | Materiales adsorbentes empleados para la producción de $^{99m}\text{Tc}$                                | 6  |
| Tabla 2  | Reactivos y materiales involucrados en la investigación                                                 | 21 |
| Tabla 3  | Equipos involucrados en la investigación                                                                | 22 |
| Tabla 4  | Fórmulas implicadas en el cálculo de la viscosidad intrínseca                                           | 29 |
| Tabla 5  | Cantidades de quitosano para la síntesis de polímeros entrecruzados                                     | 43 |
| Tabla 6  | Datos de cálculo para la determinación del grado de desacetilación para QPC y QC mediante FT-IR         | 45 |
| Tabla 7  | Datos para la determinación del grado de desacetilación de QPC                                          | 47 |
| Tabla 8  | Datos para la determinación del grado de desacetilación de QC                                           | 47 |
| Tabla 9  | Valores implicados en la determinación de la viscosidad intrínseca para QPC                             | 49 |
| Tabla 10 | Fórmulas implicadas en la determinación de la viscosidad intrínseca para QC                             | 50 |
| Tabla 11 | Resumen de los picos de absorción en FT-IR para QPC y QC                                                | 51 |
| Tabla 12 | Porcentajes de cristalinidad calculados para QPC y QC                                                   | 54 |
| Tabla 13 | Porcentajes de cristalinidad calculados para los polímeros sintetizados                                 | 57 |
| Tabla 14 | Resumen de los porcentajes de pérdida de peso en los polímeros analizados por TGA                       | 61 |
| Tabla 15 | Grado de entrecruzamiento de los quitosanos entrecruzados con glutaraldehído                            | 68 |
| Tabla 16 | Resultados de $\text{pH}_{\text{PZC}}$ para los polímeros de QPC y QC                                   | 69 |
| Tabla 17 | Datos de pseudo primer orden y pseudo segundo orden para QPCG y QCG                                     | 73 |
| Tabla 18 | Resumen de los valores obtenidos en los modelos de isothermas                                           | 76 |
| Tabla 19 | Resultados del análisis del eluato de $^{99m}\text{Tc}$ obtenido por el método seco con alúmina         | 77 |
| Tabla 20 | Resultados del análisis del eluato de $^{99m}\text{Tc}$ obtenido por el método húmedo con alúmina       | 78 |
| Tabla 21 | Resultados del análisis del eluato de $^{99m}\text{Tc}$ obtenido por el método húmedo sin alúmina       | 78 |
| Tabla 22 | Porcentaje de adsorción de $^{99}\text{Mo}$                                                             | 79 |
| Tabla 23 | Rendimiento de elución del $^{99m}\text{Tc}$ en la columna cromatográfica                               | 79 |
| Tabla 24 | Resultados del análisis del $^{99m}\text{Tc}$ eluido de la matriz polimérica                            | 80 |
| Tabla 25 | Resultados del análisis del $^{99m}\text{Tc}$ eluido de la matriz polimérica y pasado por alúmina ácida | 80 |

|           |                                                                                                                              |    |
|-----------|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|----|
| Tabla 26  | Resultados del análisis del $^{99m}\text{Tc}$ eluído de la matriz polimérica con mayor radiactividad                         | 81 |
| Tabla A.1 | Datos implicados en la optimización de la columna cromatográfica                                                             | 93 |
| Tabla A.2 | Datos implicados en el estudio de tiempo de contacto y cinética de adsorción de QPCG                                         | 94 |
| Tabla A.3 | Datos implicados en el estudio de tiempo de contacto y cinética de adsorción de QCG                                          | 95 |
| Tabla A.4 | Datos implicados en el estudio del efecto de pH de QPCG                                                                      | 96 |
| Tabla A.5 | Datos implicados en el estudio del efecto de pH de QCG                                                                       | 97 |
| Tabla A.6 | Datos implicados en el estudio de la variación de masa de QPCG                                                               | 98 |
| Tabla A.7 | Datos implicados en el estudio de la variación de masa de QCG                                                                | 98 |
| Tabla A.8 | Cálculo para determinar la actividad en el día de experimento a partir de la actividad calculada en el equipo Gamma a 185 mm | 99 |
| Tabla A.9 | Cálculo para determinar la adsorción de $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$ en el día del experimento                                   | 99 |

## ABREVIATURAS

|                             |                                                                                   |
|-----------------------------|-----------------------------------------------------------------------------------|
| $A_o$                       | Actividad                                                                         |
| BET                         | Análisis de Brunauer, Emmett, Teller                                              |
| C.A                         | Concentración de actividad                                                        |
| DD                          | Grado de desacetilación                                                           |
| DRX                         | Difracción de rayos X                                                             |
| FT-IR                       | Espectroscopía infrarroja con transformada de Fourier                             |
| FT-Raman                    | Espectroscopía Raman con transformada de Fourier                                  |
| G.E                         | Grado de entrecruzamiento                                                         |
| HAc                         | Ácido acético                                                                     |
| IAEA                        | Agencia Internacional de Energía Atómica                                          |
| IPEN                        | Instituto Peruano de Energía Nuclear                                              |
| IQIMEFA                     | Instituto de Química y Metabolismo del Fármaco                                    |
| $K_d$                       | Coeficiente de distribución                                                       |
| keV                         | Kilo-electronvoltios                                                              |
| LABICER                     | Laboratorio de investigación y certificaciones                                    |
| LIBIPMET                    | Laboratorio de Investigación en Biopolímeros y Metalofármacos                     |
| MA                          | Alúmina mesoporosa                                                                |
| MEB                         | Microscopia electrónica de barrido                                                |
| MEB-EDS                     | Microscopia electrónica de barrido acoplado a energía dispersiva de rayos X       |
| MEK                         | Metiletilcetona                                                                   |
| $\text{MoO}_4^{-2}$         | Ion molibdato                                                                     |
| $^{99}\text{Mo}$            | Molibdeno-99                                                                      |
| $^{99}\text{Mo} (n,\gamma)$ | Molibdeno-99 obtenido por activación neutrónica                                   |
| NaAc                        | Acetato de sodio                                                                  |
| NaCA                        | Laboratory of Nanomaterials and Advanced Ceramics                                 |
| QC                          | Quitosano comercial                                                               |
| QPC                         | Quitosano de pluma de <i>Dosidicus gigas</i> (calamar)                            |
| QCG-1                       | Quitosano comercial entrecruzado con glutaraldehído 50 %                          |
| QCG-2                       | Quitosano comercial entrecruzado con glutaraldehído 40 %                          |
| QCG-3                       | Quitosano comercial entrecruzado con glutaraldehído 25 %                          |
| QPCG-1                      | Quitosano de pluma de <i>Dosidicus gigas</i> entrecruzado con glutaraldehído 50 % |
| QPCG-2                      | Quitosano de pluma de <i>Dosidicus gigas</i> entrecruzado con glutaraldehído 40 % |
| QPCG-3                      | Quitosano de pluma de <i>Dosidicus gigas</i> entrecruzado con glutaraldehído 25 % |

|            |                                                     |
|------------|-----------------------------------------------------|
| PPRR       | Planta de Producción de Radioisótopos               |
| PZC        | Punto de carga cero                                 |
| RAC        | Concentración radiactiva                            |
| $R_L$      | Factor de separación                                |
| SPECT      | Tomografía computarizada por emisión de fotón único |
| ss-RMN     | Resonancia Magnética Nuclear de fase sólida         |
| $TcO_4^-$  | Ion pertecnetato                                    |
| $^{99m}Tc$ | Tecnecio-99 metaestable                             |
| TEAN       | Laboratorio de Técnicas Analíticas Nucleares        |
| TGA        | Análisis termogravimétrico                          |
| U-235      | Uranio-235                                          |
| $X_c$      | Porcentaje de cristalinidad                         |
| XPS        | Espectroscopia fotoelectrónica de rayos X           |

## RESUMEN

En esta investigación, se sintetizó quitosano a partir de pluma de calamar (*Dosidicus gigas*) (QPC) entrecruzados con soluciones de glutaraldehído a las concentraciones de 50, 40 y 25 % con la finalidad de optimizar la adsorción de  $^{99}\text{Mo}$  y obtener un material adsorbente para su aplicación en la columna cromatográfica del generador de  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ . Se realizó la misma metodología de entrecruzamiento a partir de quitosano comercial Sigma-Aldrich (QC) como control. Se determinó un grado de desacetilación de 74,15 % para QPC y 77,65 % para QC. También se determinó el peso molecular que resultó ser de 990,72 kDa para QPC y 722,72 kDa para QC. La caracterización de los polímeros sintetizados se realizó por FT-IR donde se evidenció la reacciones de Schiff por la banda de  $1639\text{ cm}^{-1}$ . Los resultados TGA exhibieron una estabilidad térmica de hasta  $\approx 300\text{ }^{\circ}\text{C}$  para QPC y QC, mientras que los polímeros entrecruzados presentaron una  $T_{\text{max}}$  de descomposición de  $282\text{ }^{\circ}\text{C}$ . Los resultados de DRX mostraron la disminución del índice de cristalinidad después del entrecruzamiento de 53,94 % a 37,58 % para QPC y de 57,87 % a 45,50 % para QC. Los resultados MEB y EDS evidenciaron la presencia del  $^{99}\text{Mo}$  adsorbido sobre la superficie de los polímeros. Los espectros FT-Raman evidenciaron el entrecruzamiento mediante bases de Schiff. El análisis de  $\text{pH}_{\text{PZC}}$  confirmó la carga positiva de los polímeros entrecruzados favoreciendo la mayor capacidad de adsorción del anión  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  a valores de pH bajos entre 2 a 4. Además, se determinó el grado de entrecruzamiento para los polímeros los cuales están alrededor del 80 %. También se evaluaron los factores que influyen en el proceso de adsorción del  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$ , tales como el tiempo de equilibrio, masa del adsorbente y efecto de pH. Con respecto a la cinética de adsorción el modelo que mejor se ajusta es el de pseudo segundo orden. En relación con las isothermas de adsorción exhiben valores máximos del  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  de  $482\text{ mg g}^{-1}$  para QPCG-2 y  $502\text{ mg g}^{-1}$  para QCG-3 con un mejor ajuste al modelo teórico de Langmuir. La capacidad de adsorción del  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  fue de 73,04 % para QPCG-2 y 80,58 % para QCG-3 con valores de desorción de  $^{99\text{m}}\text{TcO}_4^{-2}$  superiores al 80 % ( $n=5$ ).

*Palabras clave:* quitosano, glutaraldehído, adsorbente, generador  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ .

## ABSTRACT

In this research, squid feather (*Dosidicus gigas*) chitosan polymers (QPC) were synthesized cross-linked with glutaraldehyde solutions at concentrations of 50, 40 and 25% with the aim of optimizing the adsorption of  $^{99}\text{Mo}$  and obtaining an adsorbent material for application in the chromatographic column the  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  generator. The same cross-linking methodology was performed using Sigma-Aldrich commercial chitosan (QC) as a control. A degree of deacetylation of 74.15 for QPC and 77.65% for QC was determined. The molecular weight was also determined, which turned out to be 990.72 kDa for QPC and 722.72 kDa for QC. The characterization of the synthesized polymers was carried out by FT-IR where the Schiff reactions were evidenced by the  $1639\text{ cm}^{-1}$  band. The TGA results exhibit a thermal stability of up to  $\approx 300\text{ }^{\circ}\text{C}$  for QPC and QC, while the cross-linked polymers presented a decomposition  $T_{\text{max}}$  of  $282\text{ }^{\circ}\text{C}$ . The XRD results showed the decrease of crystallinity index after cross-linking from 53.94% to 37.58% for QPC and from 57.87% to 45.50% for QC. The SEM and EDS results evidenced the presence of  $^{99}\text{Mo}$  adsorbed on the surface of the polymers. The FT-Raman spectra showed cross-linking through Schiff bases. The  $\text{pH}_{\text{PZC}}$  analysis confirms the positive charge of the cross-linked polymers, favoring the greater adsorption capacity of  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  anion at low pH values between 2 to 4. In addition, the degree of cross-linking has been determined for the polymers, which are around 80 %. The factors that influence the adsorption process of  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  were also evaluated, such as equilibrium time, adsorbent mass and pH effect. Regarding the adsorption kinetics, the model that best fits is the pseudo second order one. About the adsorption isotherms, they exhibit maximum values of  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  of  $482\text{ mg g}^{-1}$  for QPCG-2 and  $502\text{ mg g}^{-1}$  for QCG-3 with a better fit to the Langmuir theoretical model. The adsorption capacity of  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  was 73.04 % for QPCG-2 and 80.58 % for QCG-3 with desorption values of  $^{99\text{m}}\text{TcO}_4^{-2}$  higher than 80 % (n=5).

**Keywords:** chitosan, glutaraldehyde, adsorbent,  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  generator.

# CAPÍTULO I: INTRODUCCIÓN

## 1.1 INTRODUCCIÓN GENERAL

El  $^{99m}\text{Tc}$  es el radioisótopo más utilizado en el diagnóstico de cáncer por imágenes en SPECT (Marlina et al., 2020); considerado como el radionucleido hijo del  $^{99}\text{Mo}$  el cual presenta un tiempo de vida media de 66,7 h y emite rayos gamma de energías entre 739 a 780 keV. La alta energía de los rayos gamma emitidos provoca una dosis de radiación perjudicial para los pacientes en la toma de muestras, además de alteraciones en las imágenes que conlleva a un diagnóstico erróneo (Sarkodie, 2020). Por otro lado, el  $^{99m}\text{Tc}$  presenta un tiempo de vida media de 6 h con rayos gamma puros de 140 keV, apropiados para ser fotografiados mediante SPECT, de ahí su importancia en la medicina nuclear (Saptiama et al., 2016). El  $^{99m}\text{Tc}$  se obtiene de un generador de  $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$  basado en la cromatografía en columna, donde el radioisótopo es obtenido en el eluido en forma de pertecnetato de sodio ( $\text{Na}^{99m}\text{TcO}_4$ ) mediante la desintegración beta ( $\beta^-$ ) del  $^{99}\text{Mo}$  (Pimlott & Sutherland, 2011). La eficiencia en el proceso de elución y la calidad del  $^{99m}\text{Tc}$  están determinadas por el uso del polímero adsorbente en la cromatografía en columna basado en quitosano de pluma de *Dosidicus gigas* entrecruzado con glutaraldehído, para contribuir con la detección de cáncer mediante imágenes SPECT en los diversos hospitales y centros de salud de todas las zonas del país (Chakravarty et al., 2019).

## 1.2 ESTADO DEL ARTE

Los radiofármacos son ampliamente utilizados en la medicina nuclear para la detección del cáncer mediante diagnóstico por imágenes de SPECT (Barca et al., 2022). El  $^{99m}\text{Tc}$  es el radioisótopo de mayor importancia para la producción de radiofármacos considerado como el radionucleido hijo del  $^{99}\text{Mo}$  obtenido mediante la desintegración  $\beta^-$ , con una eficiencia del 87,5 % (Marlina et al., 2020). Existen pocas formas de obtener  $^{99m}\text{Tc}$ . En el Perú, se obtiene a partir de  $^{99}\text{Mo}$  en grandes reactores nucleares de 10 MW de potencia mediante activación neutrónica en el IPEN y como medida de descentralizar la producción para proveer del radioisótopo a cualquier hora y lugar se están implementando generadores portátiles de  $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$ .

El generador de  $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$  se basa en la cromatografía en columna con un material adsorbente como alúmina, donde el ion  $^{99}\text{MoO}_4^{2-}$  (molibdato) y el agente adsorbente conforman la columna, mientras que el  $^{99m}\text{Tc}$  se obtiene en el eluido como producto final luego de  $\sim 23$  h (Marlina et al., 2020) utilizando una solución salina (NaCl 0,9 %) como eluyente (Hasan & Prelas, 2020). Sin embargo, la capacidad de adsorción de  $^{99}\text{Mo}$  de alta actividad específica es de solo  $20 \text{ mg g}^{-1}$  de alúmina en la columna cromatográfica, haciendo limitada su aplicación para  $^{99}\text{Mo}$  (n,y) de baja actividad específica obtenido por activación neutrónica.

Para mejorar la eficiencia del generador, el principal desafío radica en desarrollar materiales con alta capacidad de adsorción de  $^{99}\text{Mo}$  (n,y) de baja actividad específica (Chakravarty et al., 2019). Munir et al. (2020) han investigado la capacidad de adsorción de la alúmina mesoporosa (MA) obtenida de residuos de papel de aluminio la cual otorga una capacidad de adsorción de  $^{99}\text{Mo}$  (n,y) de  $60,2 \pm 1,5 \text{ mg g}^{-1}$  de MA con área superficial específica de  $209,8 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$  y rendimiento de elución de  $^{99m}\text{Tc}$  mayor al 98 % a pH de 5,5 siendo un método sencillo, ecológico y de alto rendimiento en la elución del  $^{99m}\text{Tc}$  (Munir et al., 2020). La capacidad de adsorción de un material está influenciada por la estructura cristalina y área superficial específica (Suzuki et al., 2018). Se han investigado nanopartículas de alúmina (2 a 4 nm) como material adsorbente de  $^{99}\text{Mo}$  (n,y) para el generador de  $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$ , el material mesoporoso otorga una alta capacidad de adsorción de  $230 \text{ mg g}^{-1}$  de alúmina con un rendimiento de elución del 80 % hasta dos semanas; además, la máxima adsorción del  $^{99}\text{Mo}$  se dio a pH de 3,0 debido a la carga positiva que



adquiere la alúmina mesoporosa y que se atrae electrostáticamente con el ion cargado negativamente  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  (Chakravarty et al., 2019).

Para conocer la capacidad de adsorción de  $^{99}\text{Mo}$  (n,γ) de diversos materiales, existen estudios con zirconio, donde los investigadores han evaluado la capacidad adsorbente de nanozirconio monoclinico, nanozirconio ortorrómbico, zirconio sulfatado y zirconio fosfatado los cuales han sido sintetizados por el método sol-gel y para determinar la capacidad de adsorción de  $^{99}\text{Mo}$  en la columna cromatográfica, los materiales de zirconio están en contacto con la solución de  $\text{Na}_2^{99}\text{MoO}_4$  variando las condiciones de pH y temperatura. Los resultados exhiben que las capacidades de adsorción de  $^{99}\text{Mo}$  son  $76,9 \text{ mg g}^{-1}$ ;  $150,1 \text{ mg g}^{-1}$ ;  $15,58 \text{ mg g}^{-1}$  y  $12,74 \text{ mg g}^{-1}$  respectivamente. El material de nanozirconio ortorrómbico exhibe la mayor capacidad de adsorción de  $150,1 \text{ mg g}^{-1}$  a  $90^\circ\text{C}$  a pH 3 y puede ser un buen candidato para el generador de  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  (Marlina et al., 2020). También, se ha estudiado acerca de la estructura metal orgánica (MOF, de las siglas en inglés, metal organic framework) de zirconio, conocida como UiO-66 otorgando una máxima capacidad de adsorción de  $^{99}\text{Mo}$  (n,γ) de  $335 \text{ mg g}^{-1}$  a pH 3. El  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  eluido presenta una eficiencia de 60 a 70% durante seis días consecutivos, manteniendo  $^{99}\text{Mo}$  por encima de los valores permitidos para su empleo en el generador (Ma & et al., 2022).

Por otra parte, los polímeros son considerados materiales con alta capacidad de adsorción. El quitosano es un biopolímero con gran capacidad adsorbente de metales (Begum et al., 2021), biodegradable (Priyadarshi & Rhim, 2020), biocompatible (Baharlouei & Rahman, 2022) y no tóxico (Abhinaya et al., 2021). El quitosano es insoluble en agua y solventes orgánicos pero es soluble en solución ácida; ya que, los grupos  $-\text{NH}_2$  presentan un pKa de 6,5 que en medio ácido se cargan positivamente (Martínez-Mejía et al., 2019) y tiende a formar un gel que limita su aplicación en la columna de adsorción del generador de  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ ; sin embargo, muchas investigaciones informaron que la modificación química y física en la estructura molecular del quitosano mejora la resistencia frente a medios ácidos o básicos; tal como la modificación química por adición de agentes reticulantes. El entrecruzamiento de quitosano con glutaraldehído permite mejorar la estabilidad y resistencia mecánica en un amplio rango de pH (Galan et al., 2021). Debido al medio ácido, los grupos  $-\text{NH}_2$  del quitosano son protonados a  $-\text{NH}_3^+$  favoreciendo la interacción electrostática con aniones.

Poon et al. (2014) han investigado el comportamiento del quitosano y glutaraldehído en solución de ácido acético ( $\text{pH}=3.3\text{--}3.9$ ) y su capacidad de adsorción en tres soluciones con concentraciones fijas de p-nitrofenol a pH variable (4,6; 6,6 y 9,0). El análisis de potencial zeta del polímero de quitosano y glutaraldehído en medio ácido exhibe un punto isoeléctrico a pH 9,5; con ello se deduce que la carga superficial para las condiciones de trabajo a pH 4,6; 6,6 y 9,0 es positiva. También, el pKa informado del colorante de p-nitrofenol es 7,15; entonces a pH 4,6; existe su forma protonada, mientras que a pH 6,6 casi el 58% está protonada y lo restante está en forma neutra (por ser un pH cercano al pka) y a pH 9,0 predomina la forma aniónica del p-nitrofenol. Los estudios determinaron que la mayor capacidad de adsorción del anión fenolato se da a pH 9,0 mediante la interacción electrostática con los grupos  $\text{NH}_3^+$  del polímero reticulado en medio ácido (Poon et al., 2014).

Galan et al. (2021) han estudiado el polímero entrecruzado a base de perlas de quitosano y glutaraldehído en medio ácido para evaluar su capacidad de adsorción sobre el colorante RB4 (Reactive Blue 4). A pH 2, los grupos  $-\text{NH}_2$  del quitosano se protonan, mientras que los grupos  $\text{SO}_3^{-2}$  del colorante se cargan negativamente favoreciendo la adsorción mediante la interacción electrostática; además mencionan que la adsorción se favorece a mayor cantidad del polímero debido al aumento de los sitios de adsorción en la superficie; sin embargo, cuando se incrementa la cantidad del colorante existe una saturación producto de la repulsión electrostática entre los grupos funcionales de la propia molécula provocando una baja adsorción de colorante (Galan et al., 2021).

También, Schio et al. (2022) han sintetizado quitosano (CS) a partir de camarones rosados (*Penaeus brasiliensis*) y lo ha entrecruzado con glutaraldehído (GLUT) o epíclorhidrina (EPIC) en medio ácido con una matriz polimérica de *Luffa cylindrica* (LC) para la inmovilización/soporte del quitosano reticulado y ha evaluado la capacidad de adsorción sobre el colorante FR17 (Food red 17) en un pH de trabajo de 2 a 5, determinando que el pH 2 favorece la remoción del colorante. El LC/CS/GLUT y el LC/CS/EPIC presentaron una adsorción eficiente del colorante FR17 de  $77,66 \text{ mg g}^{-1}$  y  $43,01 \text{ mg g}^{-1}$  de adsorbente, respectivamente, a pH 2, esto se debe a que los grupos amino del quitosano se protonan fácilmente a pH menor a su  $\text{pH}_{\text{pzc}}$ , la superficie del adsorbente está cargada positivamente e interactúan con especies negativas, logrando evidenciar la interacción electrostática (Schio et al., 2022). Por lo tanto, la interacción electrostática

que se logra entre especies negativas y los grupos amino protonados ( $\text{NH}_3^+$ ) del polímero de quitosano entrecruzado con glutaraldehído en medio ácido es aprovechado en la adsorción de  $^{99}\text{Mo}$  que se encuentra en forma de  $\text{MoO}_4^{2-}$  en el generador portátil basado en columna cromatográfica.

Hasan (2019) ha sintetizado quitosano entrecruzado con glutaraldehído (MPCM) en medio ácido a 70 °C. El MPCM resulta ser un cristal amorfo con área superficial de  $25 \text{ m}^2 \text{ g}^{-1}$ , volumen de poro de  $0,012 \text{ cm}^3 \text{ g}^{-1}$ , punto de carga cero (PZC) de 8,8 con mayor resistencia a los ácidos y fuerza mecánica que el material sin modificación hasta la temperatura de 100°C. Presenta una capacidad de adsorción de  $^{99}\text{Mo}$  de  $700 \text{ mg g}^{-1}$  de adsorbente, con un rendimiento de  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  superior al 80%, siendo un material adecuado para su aplicación en el generador de  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  (Shameen Hasan, 2019). Además, se debe tener en cuenta que la separación y purificación de los radioisótopos en el generador de  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  es fundamental para el uso radiofarmacéutico e inyección al paciente, el límite estándar de  $^{99}\text{Mo}$  en el eluato debe ser inferior a  $0,15 \text{ } \mu\text{Ci } ^{99}\text{Mo}$  por  $\text{mCi } ^{99\text{m}}\text{Tc}$  según la Farmacopea de Estados Unidos (Suzuki et al., 2018). De manera similar, Chattopadhyay et al. (2017) han analizado el polímero de quitosano comercial entrecruzado con glutaraldehído (CCM) en una columna cromatográfica obteniendo soluciones transparentes de  $\text{Na}^{99\text{m}}\text{TcO}_4$  de pH 5–6 y pureza radioquímica de 99 %. La eficiencia de elución de  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  en la forma oxidada y no oxidada del polímero CCM es alrededor del 75 % y 40 %, respectivamente, con mínimas trazas inferiores a  $10 \text{ } \mu\text{g mL}^{-1}$  de Al y Mo. El polímero de quitosano reticulado con glutaraldehído presenta una alta capacidad de adsorción de  $^{99}\text{Mo}$  de  $\sim 500\text{--}600 \text{ mg g}^{-1}$  de CCM y puede utilizarse para preparar un generador de  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  utilizando  $^{99}\text{Mo}$  de baja actividad específica. El entrecruzamiento con glutaraldehído mejora las propiedades del quitosano; ya que, la modificación química aumenta la accesibilidad de los sitios de unión del polímero CCM y  $^{99}\text{Mo}$  (n,  $\gamma$ ) mejorando la calidad física, como la resistencia a los ácidos y la radiación (Chattopadhyay et al., 2017).

Las actuales investigaciones se centran en el desarrollo de materiales con alta capacidad de adsorción a base de quitosano en medio ácido y modificados químicamente con glutaraldehído para mejorar las propiedades físicas y químicas para su posterior aplicación en la adsorción de  $^{99}\text{Mo}$  de baja actividad específica en el generador de  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  con la finalidad de obtener como eluato  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ , además el radiofármaco debe

cumplir con los estándares de pureza radioquímica y esterilidad para su uso en detección de cáncer.

La tabla 1 muestra algunos materiales adsorbentes aplicados en la cromatografía en columna del generador de  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  reportados en la literatura.

**Tabla 1**

*Materiales adsorbentes empleados para la producción de  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ .*

| <b>Material adsorbente</b> | <b>Capacidad de adsorción de <math>^{99}\text{Mo}</math> (mg g<sup>-1</sup>)</b> | <b>Rendimiento de Elución de <math>^{99\text{m}}\text{Tc}</math> (%)</b> | <b>Tiempo de elución</b> | <b>Referencias</b>           |
|----------------------------|----------------------------------------------------------------------------------|--------------------------------------------------------------------------|--------------------------|------------------------------|
| Alúmina mesoporosa         | 60,2                                                                             | 98                                                                       | 3 días                   | (Munir et al., 2020)         |
| Alúmina en nanopartículas  | 230                                                                              | 80                                                                       | 2 semanas                | (Chakravarty et al., 2019)   |
| Nanozirconio ortorrómbico  | 150,1                                                                            | -                                                                        | -                        | (Marlina et al., 2020)       |
| UiO-66                     | 335                                                                              | 60-70                                                                    | 6 días                   | (Ma et al., 2022)            |
| CCM oxidado                | ~500–600                                                                         | 75                                                                       | -                        | (Chattopadhyay et al., 2017) |
| MPCM                       | 700                                                                              | 80                                                                       | -                        | (Shameen Hasan, 2019)        |
| QPCG-2                     | 482,3                                                                            | 83                                                                       | 5 días                   | Esta investigación           |

### 1.3 PLANTEAMIENTO DEL PROBLEMA

El  $^{99}\text{Mo}$  es generado en nuestro país por el Instituto Peruano de Energía Nuclear (IPEN) mediante activación neutrónica de  $^{98}\text{MoO}_3$  en grandes reactores nucleares de 10 MW de potencia; produciendo  $^{99}\text{Mo}$  de baja actividad específica que mediante su desintegración  $\beta^-$  produce  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  (Gilmore, 2008). Debido a la importancia del  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  en la detección de cáncer (Vallejos-Sologuren et al., 2020) se debe realizar la separación radioquímica del  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  y  $^{99}\text{Mo}$ , para ello se utiliza el método de extracción por solvente empleando metiletilcetona (MEK) seguido de una columna de alúmina para la purificación del radioisótopo; sin embargo, como parte del método se requiere la evaporación del solvente dejando muchos residuos químicos volátiles. Para evitar esto, se buscan otras alternativas de separación radioquímica como la cromatografía en columna con alúmina, sin embargo, su capacidad de adsorción de  $^{99}\text{Mo}$  es de  $20 \text{ mg g}^{-1}$  cuando se emplea  $^{99}\text{Mo}$  de alta actividad específica producido mediante fisión nuclear (Chakravarty et al., 2019). No obstante, la capacidad de adsorción se limita cuando se emplea  $^{99}\text{Mo}$  de baja actividad específica obtenido por activación neutrónica en el IPEN; ya que, requiere una columna muy larga de alúmina para adsorber mínimas cantidades de  $^{99}\text{Mo}$  y dejando enormes volúmenes de eluato para recuperar el  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ; además, la concentración radiactiva (RAC) del  $\text{TcO}_4^-$  se vuelve inaceptablemente baja para su uso como radiofármaco. Para superar esto y hacer más eficiente la separación de los radioisótopos por cromatografía en columna con  $^{99}\text{Mo}$  de baja actividad específica, se buscan materiales con alta capacidad de adsorción (Marlina et al., 2020) para ser implementados en generadores portátiles de  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  que ayuden a descentralizar la producción de los radioisótopos y proveer de ellos a cualquier hora y lugar.

Se han sintetizado polímeros de quitosano de *Dosidicus gigas* en medio ácido entrecruzados con glutaraldehído a las concentraciones de 50, 40 y 25 %. La presente investigación consiste en evaluar la capacidad de adsorción de  $^{99}\text{Mo}$  y desorción de  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  de un material empleado en la cromatografía en columna del generador de  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ . Por lo tanto, se plantea la siguiente pregunta: ¿El polímero a base de quitosano será un material capaz de adsorber al molibdeno 99 ( $^{99}\text{Mo}$ ) de baja actividad específica para su aplicación en la producción del radioisótopo de uso médico, tecnecio 99 metaestable ( $^{99\text{m}}\text{Tc}$ )?

## 1.4 JUSTIFICACIÓN DE LA INVESTIGACIÓN

### 1.4.1 Justificación Social.

El cáncer es la mayor causa de muerte a nivel mundial (Vallejos-Sologuren et al., 2020); sin embargo, con el uso de marcadores tumorales, tecnología de imágenes y otros métodos biológicos se puede lograr la detección del cáncer en su etapa temprana y evitar el deceso del paciente a causa de la enfermedad (Pei et al., 2021). El  $^{99m}\text{Tc}$  es el radioisótopo más utilizado en medicina nuclear con fines de diagnóstico de cáncer; ya que, a diferencia de otros radioisótopos producidos en ciclotrones, puede producirse por la desintegración  $\beta^-$  del  $^{99}\text{Mo}$  ( $t_{1/2} = 67$  h, 739-780 keV) utilizando generadores disponibles comercialmente (Pimlott & Sutherland, 2011).

Actualmente, la mayoría de los hospitales presentan un rango de energía de 100-200 keV para las instalaciones de imágenes médicas. La energía del  $^{99m}\text{Tc}$  es adecuada; ya que, presenta baja energía de rayos  $\gamma$  emitidos de 140 keV; los cuales escapan del cuerpo humano con facilidad (Mukiza et al., 2018). Además, el tiempo de vida media de 6 h es suficiente para ser detectados mediante cámaras gamma (SPECT) para obtener imágenes de enfermedades oncológicas, óseas, renales, hepáticas, hepatobiliares, cardíacas y otras patologías, causando muy poco daño al órgano fotografiado del paciente. Debido a ello, los generadores de  $^{99m}\text{Tc}$  son de gran importancia en la medicina nuclear; sin embargo, su elevado costo de importación, dependiendo del país proveniente, contribuye a la necesidad de desarrollar generadores portátiles del radioisótopo en nuestro país, teniendo en cuenta la calidad del  $^{99m}\text{Tc}$ .

### 1.4.2 Justificación científica y técnica.

El sistema de cromatografía en columna del generador de  $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$  está en constante mejora al investigar materiales con alta capacidad de adsorción de  $^{99}\text{Mo}$ . Se plantea sintetizar un material con alta capacidad de adsorción de  $^{99}\text{Mo}$  basado en quitosano (obtenido de pluma del calamar gigante) entrecruzado con glutaraldehído, donde la capacidad de adsorción del quitosano permite adsorber el  $^{99}\text{Mo}$  en la columna cromatográfica para que pasado el tiempo de formación se eluya el  $^{99m}\text{Tc}$  de alta calidad, aprovechando este sistema y evitando el método convencional de extracción Líquido-Líquido con solventes contaminantes para la obtención del  $^{99m}\text{Tc}$ .

## 1.5 IDENTIFICACIÓN DEL APORTE CIENTIFICO

La literatura ha reportado el uso de quitosano comercial entrecruzado con glutaraldehído; sin embargo, en este trabajo se estudia el quitosano de pluma de *Dosidicus gigas* que no ha tenido aplicación en la columna cromatográfica para otorgarle un valor agregado a un residuo marino y que muchas veces puede causar enfermedades a la salud pública. Finalmente, en esta investigación se busca evaluar la capacidad de adsorción del polímero de quitosano de pluma de *Dosidicus gigas* entrecruzado con glutaraldehído para emplearlo como material adsorbente de  $^{99}\text{Mo}$  de baja actividad específica en la columna cromatográfica implementado en los generadores portátiles, cuyo sistema se puede distribuir para los diversos centros médicos y hospitales encargados de realizar tomografías para detección de cáncer y mejorar la competitividad tecnológica de nuestro país.

## 1.6 HIPÓTESIS

Los generadores portátiles de  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  son esenciales en hospitales y centros de salud, estos suministran el  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  para el diagnóstico de cáncer por imágenes SPECT; por ello, es necesario optimizar la producción de este radioisótopo. Se emplea el polímero de quitosano entrecruzado con glutaraldehído debido a su alta capacidad de adsorción de  $^{99}\text{Mo}$  ( $n,\gamma$ ); este entrecruzamiento mejora las propiedades químicas y térmicas, la estabilidad, rigidez estructural y permeabilidad del biopolímero, entre otros (Pavoni et al., 2021); así como la resistencia a los ácidos y la fuerza mecánica de la partícula de quitosano (Shameen Hasan, 2019). Además, los grupos  $-\text{OH}$  y  $-\text{NH}_2$  del polímero modificado facilitan la interacción con el  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  en la columna cromatográfica del generador, mediante interacción electrostática con los grupos  $-\text{NH}_3^+$  del quitosano en medio ácido.

En esta investigación, se estudiará el entrecruzamiento del polímero de quitosano de pluma de calamar con glutaraldehído, para evaluar la capacidad de adsorción de  $^{99}\text{Mo}$  de baja actividad específica, el polímero de quitosano entrecruzado presenta mayor capacidad de adsorción de  $^{99}\text{Mo}$  con respecto al  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  (Shameen Hasan, 2019), disponiendo una alternativa de material adsorbente para su aplicación en la columna cromatográfica del generador portátil e implementarlos en hospitales y centros de salud para contribuir en el diagnóstico de cáncer.

## 1.7 OBJETIVOS

### 1.7.1 OBJETIVO GENERAL

Producir un polímero adsorbente de  $^{99}\text{Mo}$  a partir de quitosano modificado con glutaraldehído para su posible aplicación en un generador de  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  para la producción de  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  como radioisótopo empleado en el diagnóstico de cáncer.

### 1.7.2 OBJETIVOS ESPECÍFICOS

1. Sintetizar los polímeros entrecruzados de quitosano de pluma de *Dosidicus gigas* en medio ácido con soluciones de glutaraldehído a las concentraciones de 50, 40 y 25 %.

2. Caracterizar los polímeros sintetizados mediante técnicas espectroscopía infrarroja, difracción de rayos X, análisis termogravimétrico, microscopía electrónica de barrido, resonancia magnética Nuclear de fase sólida y espectroscopía Raman.

3. Determinar los factores que influyen en el proceso de adsorción entre los polímeros de quitosano sintetizados y el ion  $\text{MoO}_4^{2-}$ , tales como el tiempo de equilibrio, masa del adsorbente y efecto de pH.

4. Determinar la cinética de adsorción y las isothermas de adsorción para los polímeros de quitosano sintetizados.

5. Evaluar la capacidad de adsorción de  $\text{MoO}_4^{2-}$  mediante la cromatografía en columna empleando el polímero de quitosano óptimo y determinar el porcentaje de adsorción.

6. Determinar la eficiencia del proceso de elución y realizar las pruebas de control de calidad al producto final de pertecnetato  $[^{99\text{m}}\text{Tc}]\text{TcO}_4^-$  producido en el generador  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  aplicando el polímero de quitosano óptimo como material adsorbente en la columna cromatográfica.



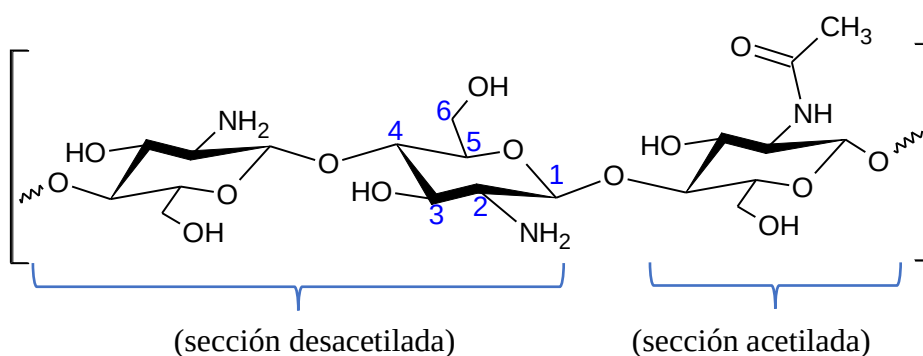
## CAPÍTULO II: FUNDAMENTO TEÓRICO

### 2.1 Quitosano

El quitosano es un copolímero compuesto aleatoriamente de unidades de 2-acetilamina-2-desoxi- $\beta$ -D-Glucopiranosas (sección acetilada) y 2-amino-2-desoxi- $\beta$ -D-Glucopiranosas (sección desacetilada). Es considerado un polisacárido debido a que sus unidades monoméricas están unidas por enlaces  $\beta(1\rightarrow4)$ -glucosídicos (Ardean et al., 2021). El quitosano se obtiene de la N-desacetilación de la quitina, que se encuentra en fuentes naturales como alas de insectos (escarabajos, cucarachas), paredes celulares de hongos y algas; así como también en el exoesqueleto o caparazón de muchos crustáceos o la pluma de calamar (Brion-Roby et al., 2018; Rico Rodriguez, 2013). Como se muestra en la figura 1, se denomina quitosano cuando la sección desacetilada o el grado de desacetilación de la quitina es mayor al 50 %. El grado de desacetilación le confiere a la molécula diferentes propiedades y es uno de los pasos fundamentales para determinar la calidad del quitosano (Giraldo, 2015). Se han numerado los carbonos en el esqueleto de quitosano, como se muestra a continuación:

**Figura 1**

*Estructura química del quitosano*



Fuente: Tomado de (Zargar et al., 2015)

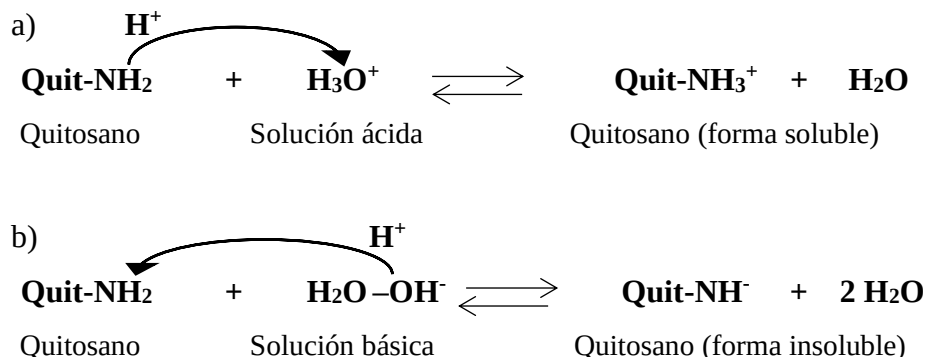
#### 2.1.1. Propiedades Fisicoquímicas

El quitosano es un polisacárido que a diferencia de otros se comporta con carácter básico otorgándole propiedades únicas, donde los grupos  $-\text{NH}_2$  y  $-\text{OH}$  le confieren la capacidad de adsorción de iones metálicos mediante interacciones electrostáticas o enlaces de coordinación (Brion-Roby et al., 2018). La solubilidad del quitosano está relacionada al grado de desacetilación y al peso molecular. Los grupos amino  $-\text{NH}_2$  se protonan en medios ácidos de  $\text{pH} < 5$  que incrementan la solubilidad, con poca

accesibilidad de sus grupos funcionales y favorecen la formación de geles (Galan et al., 2021; Shameen Hasan, 2019). La figura 2 muestra el comportamiento del quitosano en medio ácido o básico.

**Figura 2**

*Esquema del comportamiento del quitosano variando el pH*



Nota: A bajas condiciones de pH (a), altas condiciones de pH (b)

Fuente: Adaptado de (Wadhwa et al., 2010)

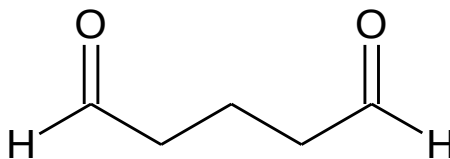
### 2.1.2. Quitosano y glutaraldehído

El quitosano puro es un material blando de baja resistencia mecánica y física. Para mejorar las propiedades del quitosano se requiere la modificación física o química. Las investigaciones se han centrado en estudiar quitosano entrecruzado químicamente con glutaraldehído debido a la disminución drástica de la solubilidad en medios ácidos al brindar estabilidad en un amplio rango de pH, resistencia a la radiación, mejora en las propiedades físicas y mecánicas (Brion-Roby et al., 2018; Chattopadhyay et al., 2017; Pighinelli & Kucharska, 2013).

La figura 3 muestra la estructura del glutaraldehído o 1,5-pentanodial, que es una molécula ampliamente utilizada en el entrecruzamiento de quitosano para la aplicación de la adsorción de metales pesados (Altun, 2020; Salehi et al., 2022), eliminación de colorantes (Khapre et al., 2021; Reghioua et al., 2021), inmovilización enzimática (Bui et al., 2020; Malhotra & Basir, 2020; Rafiee & Rezaee, 2021), entre otros.

**Figura 3**

*Estructura química del glutaraldehído*



Fuente: Tomado de (Sehmi et al., 2016)

## 2.2 Reacciones involucradas

Las posibles reacciones involucradas en esta investigación se han clasificado en dos etapas fundamentales. La primera etapa consiste en la síntesis de los polímeros de quitosano de pluma de *Dosidicus gigas* entrecruzado con glutaraldehído y la segunda etapa consiste en el mecanismo de adsorción propuesto para los polímeros modificados con respecto al  $^{99}\text{Mo}$  que se encuentra como ion  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$ .

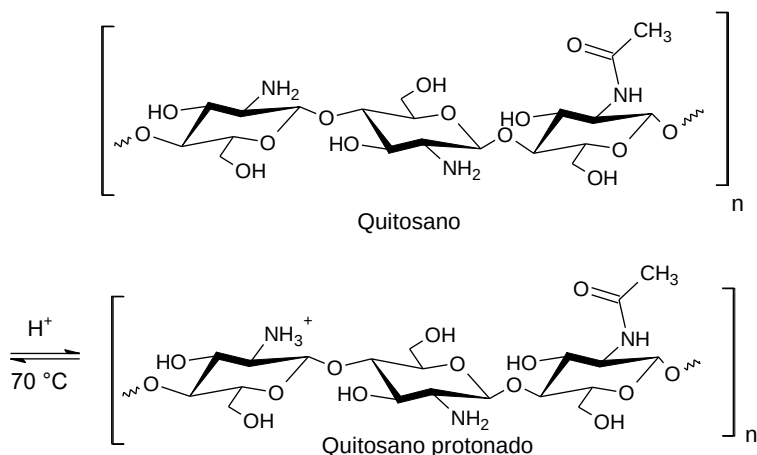
### 2.2.1 Reacciones involucradas en la síntesis de los polímeros

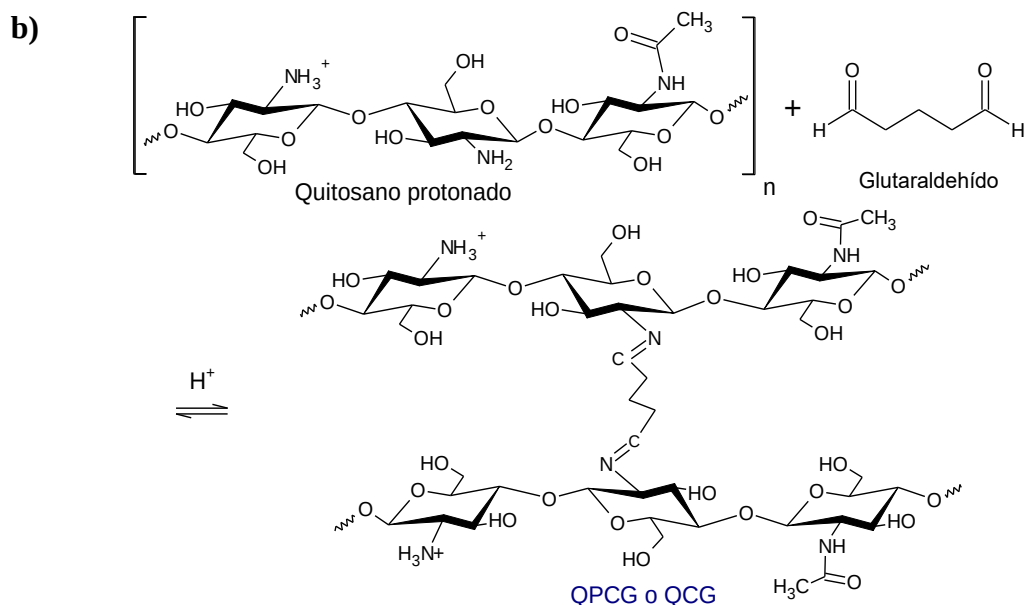
La síntesis de los polímeros de quitosano entrecruzado con glutaraldehído se ha realizado en un medio ácido (HCl) a la temperatura de 70 °C bajo agitación constante. A estas condiciones de trabajo se espera que algunos grupos  $-\text{NH}_2$  de los monómeros del quitosano se protonen hasta  $-\text{NH}_3^+$  y otros reaccionen mediante la clásica reacción de bases de Schiff como se presenta en la figura 4.

**Figura 4**

*Reacciones involucradas en la síntesis de polímeros derivados de quitosano*

a)





Nota: Estructura del quitosano protonado (a), Reacción entre el quitosano y glutaraldehído (b).

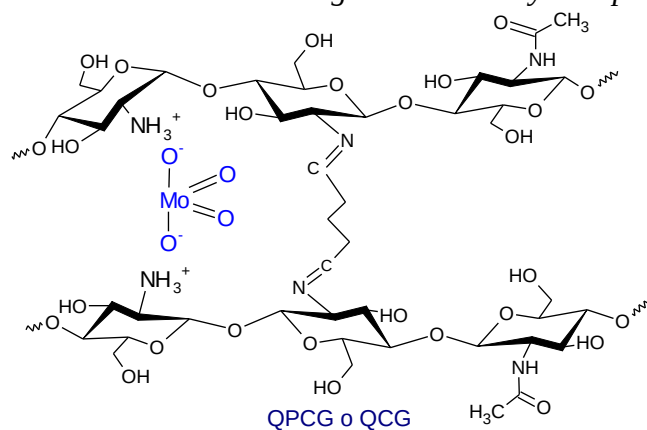
Fuente: Tomado de (Shameen Hasan, 2019)

### 2.2.2 Reacciones involucradas en la adsorción de $^{99}\text{Mo}$

El  $^{99}\text{Mo}$  se encuentra como ion  $^{99}\text{MoO}_4^{2-}$  e interacciona con los polímeros de quitosano modificados. En el ion  $^{99}\text{MoO}_4^{2-}$ , el molibdeno está unido a dos oxígenos mediante enlace doble y a otros dos oxígenos mediante enlace coordinado o dativo provocando la carga negativa de dos oxígenos en la estructura y favoreciendo la interacción electrostática con los grupos amino cargados positivamente ( $-\text{NH}_3^+$ ) de los polímeros de quitosano modificados en medio ácido. El quitosano entrecruzado con glutaraldehído en medio ácido sobresale como un material con alta capacidad de adsorción de sustancias cargadas negativamente (Saheed et al., 2021; Schio et al., 2022).

#### Figura 5

Interacción del quitosano entrecruzado con glutaraldehído y la especie de  $^{99}\text{MoO}_4^{2-}$



Fuente: Tomado de (Shameen Hasan, 2019)

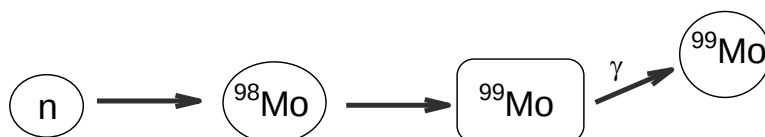
### 2.3. Molibdeno-99 ( $^{99}\text{Mo}$ )

El molibdeno es un elemento químico de número atómico 42 que se encuentra en el grupo 6 de la tabla periódica. El molibdeno posee 35 isótopos conocidos con masas atómicas del 83 al 117, de los cuales solo siete son naturales, pero cinco son estables, de masas atómicas del 94 al 98. El  $^{98}\text{Mo}$  es el isótopo estable más común que comprende el 24 % de abundancia en el planeta Tierra y es de gran interés para la producción de  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ; radioisótopo importante en el diagnóstico de cáncer por imágenes en medicina nuclear (Saptiama et al., 2021).

El  $^{99}\text{Mo}$  se puede obtener por fisión nuclear de U-235 generando  $^{99}\text{Mo}$  de alta actividad específica; sin embargo, el rendimiento de solo el 6% de  $^{99}\text{Mo}$  como producto y la liberación de una serie de residuos, tales como: Sr-89, Sr-90, Ru-103, y I-131, I-132 y Te-132 (Ma & et al., 2022; Moreno, 2019), la disminución de la vida operativa de los reactores nucleares al estar en un mantenimiento periódico dificultan su aplicación (Ma et al., 2022). En el Perú, la producción de  $^{99}\text{Mo}$  se lleva a cabo mediante la técnica de activación neutrónica empleando  $^{98}\text{MoO}_3$  el cual es irradiado con un flujo de neutrones térmicos (n) para generar  $^{99}\text{Mo}$  y rayos gamma ( $\gamma$ ) como se muestra en la figura 6. A pesar de que, bajo esta ruta se obtiene  $^{99}\text{Mo}$  de baja actividad específica el interés es cada vez mayor; ya que, es fácilmente producido en un reactor nuclear sin dejar residuos que generen altas energías y es empleado en generadores portátiles de  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  para contribuir a la descentralización de producción de  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  en nuestro país (Chakravarty et al., 2019).

**Figura 6**

*Producción de  $^{99}\text{Mo}$  mediante activación neutrónica de  $^{98}\text{Mo}$*



Fuente: Tomado de (Hasan & Prelas, 2020)

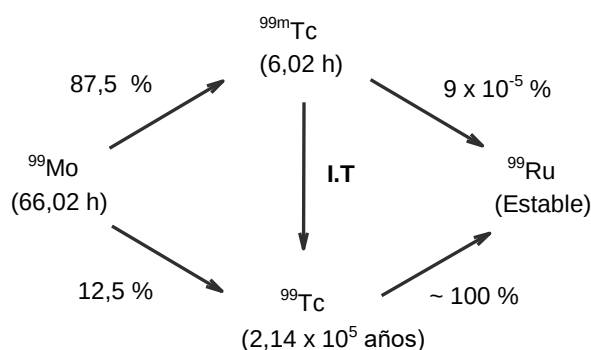
### 2.4. Tecnecio-99m ( $^{99\text{m}}\text{Tc}$ )

El tecnecio es el elemento químico más ligero con número atómico 43, primer elemento sintético reportado (Rathmann S. et al., 2019) y químicamente inerte con estados de oxidación del uno al siete (Shameen Hasan, 2019). Presenta 51 isótopos que

van desde el Tc-85 hasta el Tc-120, siendo los dos más investigados el  $^{99}\text{Tc}$  y  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ , este último debido a su aplicación en la medicina nuclear (Rathmann S. et al., 2019). Es considerado como el radioisótopo de diagnóstico ideal, porque presenta un tiempo de vida media de 6 h y emite rayos gamma de baja energía de 140 keV que escapan del cuerpo humano con facilidad y son ideales para la toma de imágenes por SPECT (Marlina et al., 2020; Uzunov et al., 2018). El  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  es el radionucleido hijo del  $^{99}\text{Mo}$  que se produce mediante la desintegración  $\beta^-$  con una eficiencia del 87,5 % (Ma & et al., 2022) como se muestra en la figura 7. También se obtiene  $^{99}\text{Tc}$  con una eficiencia del 12,5 % y eventualmente estos radioisótopos se descomponen en  $^{99}\text{Ru}$  estable (Saptiama et al., 2016).

**Figura 7**

*Esquema de producción de  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  a partir de la desintegración  $\beta^-$  del  $^{99}\text{Mo}$ .*



Fuente: Tomado de (Saptiama et al., 2016).

#### **2.4.1. Técnicas de Separación de $^{99\text{m}}\text{Tc}$**

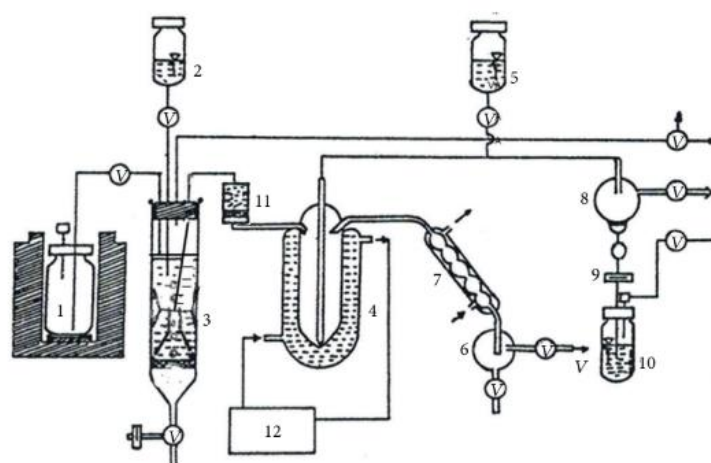
La separación del  $^{99}\text{Mo}$  y  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  requiere métodos sencillos y con alta pureza radioquímica para su aplicación en medicina nuclear (Chakravarty et al., 2019). Existen dos técnicas ampliamente utilizadas para la producción de  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  empleando  $^{99}\text{Mo}$  de baja actividad específica que son la extracción por solvente y el generador de  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  (M. Ahmad et al., 2014).

**2.4.1.1 Extracción con solvente.** Es la técnica más común para la separación de los radioisótopos  $^{99}\text{Mo}$  y  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ , aplicada desde los años ochenta. Se investigaron varios solventes para la extracción de  $^{99\text{m}}\text{TcO}_4^-$  a partir de soluciones acuosas alcalinas de  $^{99}\text{Mo}$ , como son las acetonas, trioctilamina, cloruro de tricaprilmetilamonio (Aliquat-336), éteres de corona; sin embargo, la metiletilcetona (MEK) resulta ser el mejor candidato para la extracción de  $^{99\text{m}}\text{TcO}_4^-$ , debido a su alta estabilidad a la radiación, superiores

rendimientos de extracción y bajo punto de ebullición de 79,64 °C. En la figura 8, se muestra el proceso de extracción por solvente que consiste en: añadir una mezcla de MEK y H<sub>2</sub>O<sub>2</sub> acuoso al 1 % sobre la solución alcalina de <sup>99</sup>Mo objetivo preparado con NaOH al 5,0 mol L<sup>-1</sup> y llevar a agitación mecánica, luego el peróxido se añade para mantener al <sup>99m</sup>Tc del <sup>99m</sup>TcO<sub>4</sub><sup>-</sup> con estado de oxidación +7. El sobrenadante MEK/solución de <sup>99m</sup>Tc/fase orgánica que contiene al <sup>99m</sup>Tc extraído, se elimina mediante succión efectuada mediante una presión negativa y se pasa a través de una columna de alúmina ácida con el objetivo de eliminar restos de <sup>99</sup>Mo extraídos en la solución MEK. Seguidamente, la solución de <sup>99m</sup>Tc con MEK se transfiere a un evaporador que se calienta a 70 °C con agitación negativa leve para acelerar el proceso de evaporación del solvente. Eliminado el solvente, se procede a añadir la solución estéril de NaCl al 0,9 % para recuperar el <sup>99m</sup>Tc en forma de Na<sup>99m</sup>TcO<sub>4</sub> disuelto en la solución salina, que finalmente se esteriliza al pasar a través del filtro Millipore y se reserva en un vial estéril para realizar el control de calidad final del producto (M. Ahmad et al., 2014).

**Figura 8**

*Esquema de producción de <sup>99m</sup>Tc por extracción con solvente MEK*



Nota: **1:** solución alcalina de <sup>99</sup>MoO<sub>4</sub><sup>-2</sup>, **2:** disolvente MEK, **3:** extractor, **4:** evaporador MEK, **5:** solución salina, **6:** receptor MEK, **7:** condensador, **8:** receptor de solución de <sup>99m</sup>Tc, **9:** filtro Millipore, **10:** vial de solución final de <sup>99m</sup>TcO<sub>4</sub><sup>-</sup>, **11:** columna de alúmina ácida, **12:** circulator de agua 70 °C y **V:** válvula o línea de vacío.

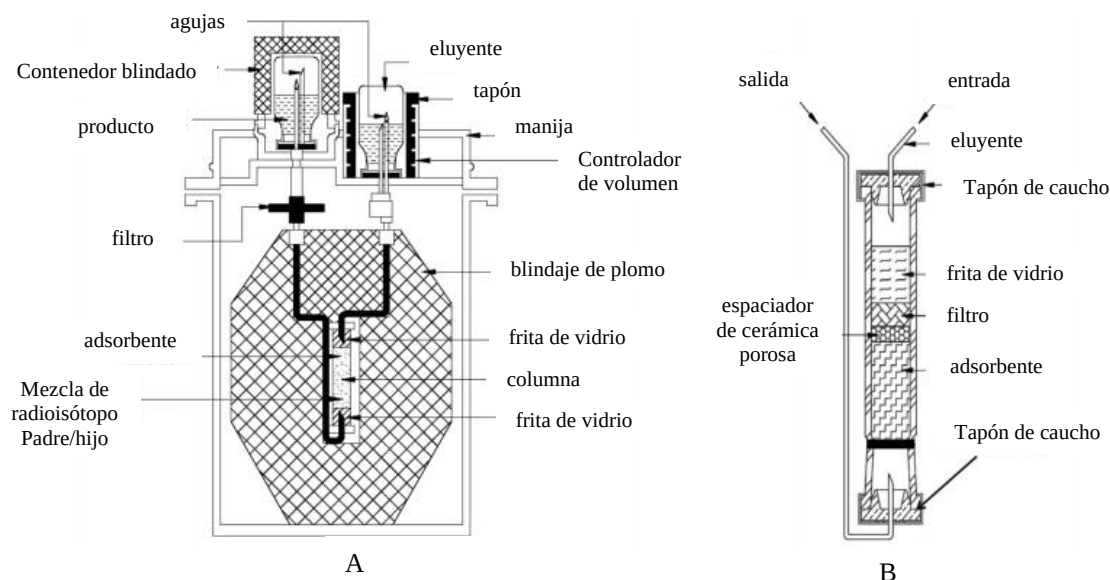
Fuente: Tomado de (M. Ahmad et al., 2014).

**2.4.1.2 Generador de <sup>99</sup>Mo/<sup>99m</sup>Tc.** Es otra técnica ampliamente utilizada para la producción de <sup>99m</sup>TcO<sub>4</sub><sup>-</sup> que se basa en la columna cromatográfica, cuyo principio de separación es la diferencia de afinidad de adsorción del <sup>99</sup>Mo y <sup>99m</sup>Tc (Dash et al., 2013).

El objetivo de este proceso es encontrar una alta adsorción del  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  que es retenido por algunas resinas o materiales de adsorción, permitiendo que el  $^{99\text{m}}\text{TcO}_4^-$  quede separado selectivamente (Gumiela, 2018). La cromatografía en columna con alúmina ácida se diferencia de la extracción con solvente por ser más ecoamigable; debido a que no deja grandes cantidades de solventes tóxicos en evaporación, además de ser más sencilla. Sin embargo, la alúmina ácida presenta una limitada capacidad de adsorción de  $^{99}\text{Mo}$  de solo  $20 \text{ mg g}^{-1}$  de alúmina cuando se emplea  $^{99}\text{Mo}$  de alta actividad específica (obtenido por fisión nuclear); lo que dificulta su uso solo como material adsorbente cuando se emplea  $^{99}\text{Mo}$  de baja actividad específica (obtenido por activación neutrónica). Pero, la baja actividad específica se contrarresta empleando materiales de alta capacidad de adsorción en la columna cromatográfica del generador (Saptiama et al., 2021). La figura 9 muestra el esquema del generador  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ .

**Figura 9**

*Esquema de producción de  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  mediante el generador  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$*



Nota: Esquema de un generador industrial (A), armado de la columna cromatográfica al interior del generador (B).

Fuente: Tomado de (Dash et al., 2013).

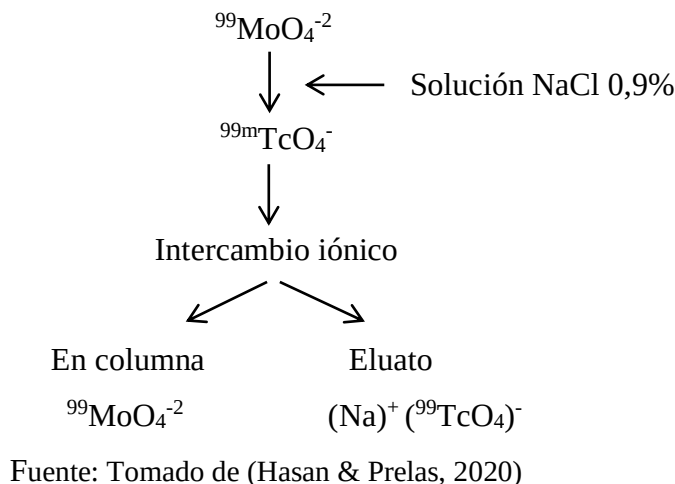
La figura 10 muestra el proceso de elución de  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  en el generador, la especie de  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  está adsorbida en la columna cromatográfica y decae periódicamente hasta  $^{99\text{m}}\text{TcO}_4^-$ , luego es recuperado por intercambio iónico al inyectar una solución de NaCl 0,9 % como eluyente. El  $^{99\text{m}}\text{TcO}_4^-$  está menos unido a la columna por tener una sola carga y es eluido con mayor facilidad al aplicar la solución salina produciendo  $\text{Na}^{99\text{m}}\text{TcO}_4$



(Uzunov et al., 2018). Además, el material adsorbente de quitosano ácido entrecruzado con glutaraldehído en la columna cromatográfica favorece la desorción del  $\text{Na}^{99\text{m}}\text{TcO}_4$ ; ya que, la especie de  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  es altamente soluble en medio básico y no en medio ácido, favoreciendo su retención en la parte superior de la columna (Hasan & Prelas, 2020).

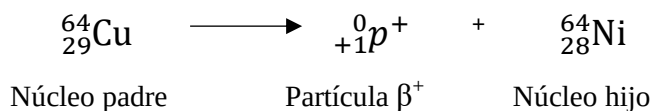
**Figura 10**

*Proceso general de elución del  $^{99\text{m}}\text{TcO}_4^-$  en la columna cromatográfica*

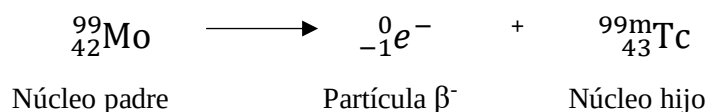


## 2.5. Desintegración beta

Es un tipo de desintegración radiactiva donde se da un cambio al interior del núcleo del átomo de manera espontánea emitiendo partículas o radiación electromagnética. La descomposición radiactiva está impulsada para mantener constante la masa del átomo (Gilmore, 2008). La desintegración  $\beta$  se refiere a la desintegración de un núcleo padre a un núcleo hijo mediante la emisión de partículas beta. Si un núcleo emite una partícula beta, puede liberar un electrón (desintegración  $\beta^-$ ) o positrón (desintegración  $\beta^+$ ). En ese sentido, el número másico del núcleo hijo sigue siendo igual al del padre, pero el núcleo hijo formará un elemento diferente. La desintegración  $\beta^+$  se lleva a cabo cuando un protón se convierte en un neutrón al interior del núcleo del átomo; manteniendo el mismo número de masa, pero disminuyendo el número atómico del núcleo padre. A continuación, se muestra un ejemplo sobre desintegración  $\beta^+$ :



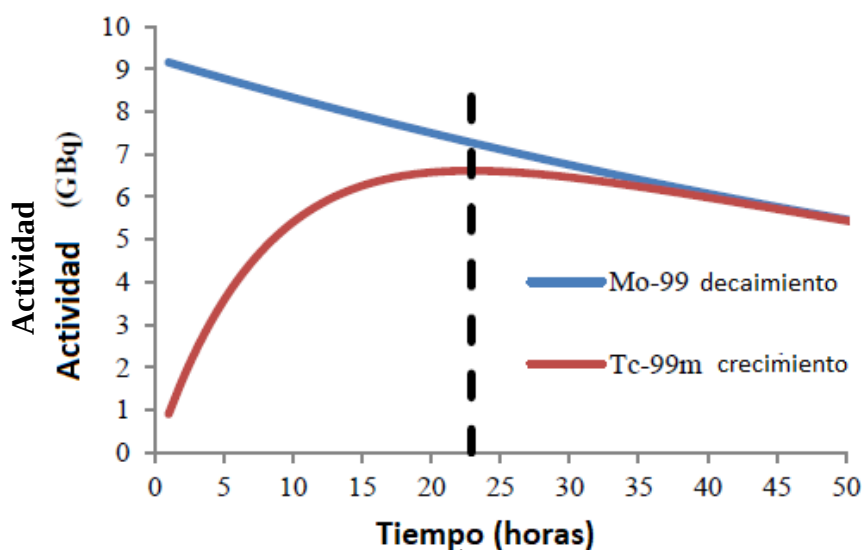
La desintegración  $\beta^-$  se lleva a cabo cuando un neutrón se convierte en un protón dentro del núcleo y se libera un electrón, manteniendo el mismo número de masa; a continuación, se muestra la desintegración  $\beta^-$  del  $^{99}\text{Mo}$  hacia  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  (Gilmore, 2008):



El  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  se obtiene mediante la desintegración  $\beta^-$  del  $^{99}\text{Mo}$ . La figura 11 muestra el decaimiento/crecimiento en el sistema del generador de  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  donde la máxima actividad de  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  se obtiene luego de 22,89 horas de tiempo de crecimiento. En general, para obtener  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  con la máxima radiactividad, el sistema de generador de  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  se debe eluir cada ~23 horas para lograr alcanzar una eficiencia del 87,5 % de  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  (Ma & et al., 2022) partiendo desde  $^{99}\text{Mo}$  de baja actividad específica.

**Figura 11**

*Esquema de decaimiento/crecimiento en el sistema del generador de  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$*



Fuente: Adaptado de (Saptiama et al., 2016).

## CAPÍTULO III: PARTE EXPERIMENTAL

### 3.1. Materiales

La Tabla 2 muestra los reactivos y materiales involucrados en la investigación.

**Tabla 2**

*Reactivos y materiales involucrados en la investigación*

| Compuesto                                                            | Especificaciones                                                                      | Ubicación |
|----------------------------------------------------------------------|---------------------------------------------------------------------------------------|-----------|
| Quitosano comercial de peso molecular medio                          | (Sigma-Aldrich; CAS: 448877 – 50G, 77,65 % desacetilado; 722,72 kDa)                  | IPEN      |
| Trióxido de Molibdeno (MoO <sub>3</sub> ) activado                   | (Irradiado por la PPRR)                                                               | IPEN      |
| Ácido clorhídrico (HCl)                                              | (Sigma-Aldrich; 36,5-38,0 %; 1,18 g mL <sup>-1</sup> )                                | IPEN      |
| Glutaraldehído (OHC(CH <sub>2</sub> ) <sub>3</sub> CHO)              | (Sigma-Aldrich; 100,12 g mol <sup>-1</sup> ; solución 50 %; 1,13 g cm <sup>-3</sup> ) | IPEN      |
| Hidróxido de Sodio (NaOH)                                            | (Merck, 40,00 g mol <sup>-1</sup> , CAS: 1310-73-2)                                   | IPEN      |
| Monoetanolamina (HOCH <sub>2</sub> CH <sub>2</sub> NH <sub>2</sub> ) | (Merck, 61,08 g mol <sup>-1</sup> , CAS: 141-43-5)                                    | IPEN      |
| Etanol Absoluto (CH <sub>3</sub> CH <sub>2</sub> OH)                 | (Merck, 46,07 g mol <sup>-1</sup> ; CAS: 64-17-5; 99,5 %)                             | IPEN      |
| Acetato de Sodio Anhidro (CH <sub>3</sub> COONa)                     | (Merck; 82,03 g mol <sup>-1</sup> ; CAS: 127-09-3; 99,0 %)                            | IPEN      |
| Ácido acético (CH <sub>3</sub> COOH)                                 | (Merck; 60,05 g mol <sup>-1</sup> ; CAS: 64-19-7; 99,0 %)                             | IPEN      |
| Cloruro de Sodio (NaCl)                                              | (Merck; 58,44 g mol <sup>-1</sup> ; CAS:7647-14-5; 99,0 %)                            | IPEN      |
| Filtros Millipore                                                    | (Merck; 0,2 µm x 47 mm Φ)                                                             | IPEN      |
| Viales de vidrio con tapa                                            | (Enviplast; 5 mL )                                                                    | IPEN      |
| Viscosímetro capilar                                                 | (Ubbelohde; 10 mL)                                                                    | LIBIPMET  |
| Tubos cónicos para centrífuga                                        | (Kyntel; 15mL)                                                                        | IPEN      |
| Indicador de glutaraldehído                                          | (Macherey Nagel; 0,5 – 2,5 %)                                                         | IPEN      |

La Tabla 3 muestra los equipos involucrados en la presente investigación.

**Tabla 3**

*Equipos involucrados en la investigación*

| <b>Equipo</b>                                                    | <b>Modelo</b>                                | <b>Ubicación</b>                                             |
|------------------------------------------------------------------|----------------------------------------------|--------------------------------------------------------------|
| Detector Canberra de Germanio Hiperpuro                          | Mirion Technologies<br>Modelo GC7019         | TEAN/ Dirección de Investigación y Desarrollo / IPEN         |
| Espectrofotómetro infrarrojo con transformada de Fourier (FT-IR) | Shimadzu IR Prestige 21 por ATR              | LIBIPMET/ Facultad de Ciencias/ UNI                          |
| Espectrómetro de difracción de rayos X (DRX)                     | Rigaku Modelo Miniflex 2                     | TEAN / Dirección de Investigación y Desarrollo / IPEN        |
| Análisis Termogravimétrico (TGA)                                 | Perkin Elmer modelo STA 6000                 | LABICER/ Facultad de Ciencias/ UNI                           |
| Microscopio de Barrido Electrónico (MEB-EDS)                     | Zeiss modelo Evo MA10                        | LABICER/ Facultad de Ciencias/ UNI                           |
| Resonancia magnética Nuclear de estado sólido (ss-RMN)           | Bruker UltraShield                           | NaCA / Sao Carlos Institute of Physics/ Brasil               |
| Espectroscopía Raman con Transformada de Fourier (FT-Raman)      | Thermo Fisher Scientific modelo Nicolet iS50 | CONICET / IQUIMEFA / Universidad de Buenos Aires / Argentina |

### 3.2. Metodología

Se propone sintetizar un polímero con alta capacidad de adsorción, utilizando quitosano de pluma de *Dosidicus gigas* proveniente del distrito de Pucusana (Lima-Perú) y quitosano comercial, modificado químicamente con glutaraldehído para evaluar su capacidad de adsorción  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  en la columna cromatográfica del generador de  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ . El QPC fue adquirido de una previa investigación; para su obtención, se realizó la desproteinización de las plumas tratadas con  $\text{NaOH}$   $0,3 \text{ mol L}^{-1}$  en la relación de 1:10 (peso muestra/volumen de  $\text{NaOH}$ ) a  $80^\circ\text{C}$  por 1 h en agitación constante; seguidamente se lavó y filtró con agua desionizada hasta alcanzar el pH neutro y se secó a  $60^\circ\text{C}$  en estufa hasta tener un peso constante. Se realizó la desacetilación de la  $\beta$ -quitina con  $\text{NaOH}$  al 40% a  $80^\circ\text{C}$  por 3 h en agitación constante y atmósfera de  $\text{N}_{2(\text{g})}$  ultrapuro. Finalmente, se lavó con agua desionizada hasta alcanzar el pH neutro y se secó con liofilizador para la obtención de QPC.

En esta investigación, se ha entrecruzado el quitosano en medio ácido con glutaraldehído mediante bases de Schiff que se forman entre el grupo  $-\text{NH}_2$  del quitosano y  $-\text{CHO}$  del glutaraldehído. El grupo amina del quitosano se carga positivamente y puede interaccionar con el  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  de la columna cromatográfica mediante interacción electrostática lo que permite la adsorción del  $^{99}\text{Mo}$ , donde se ha evaluado la influencia del agente entrecruzante empleando soluciones de glutaraldehído a las concentraciones de 50%, 40% o 25%. La alta adsorción de  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  en la columna cromatográfica favorece la eficiencia de elución de  $^{99\text{m}}\text{TcO}_4^-$  que es el radioisótopo de interés en la investigación por su aplicación en la medicina nuclear. Además, se formularon polímeros de QC entrecruzado con glutaraldehído a las mismas concentraciones como control. El trabajo de investigación se ha dividido en tres partes:

- 1) Sintetizar y caracterizar los polímeros entrecruzados con glutaraldehído a las concentraciones de 50, 40 o 25 % empleando el quitosano de *Dosidicus gigas* y el comercial.

- 2) Determinar los factores que influyen en el proceso de adsorción del  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  empleando el polímero de quitosano entrecruzado de *Dosidicus gigas* y el quitosano comercial; tales como, el tiempo de equilibrio, efecto de pH, masa del adsorbente, cinética e isothermas de adsorción, para seleccionar un polímero de quitosano de *Dosidicus gigas* óptimo.

3) Evaluar la capacidad de adsorción y desorción de los polímeros en la columna cromatográfica y realizar las pruebas de control de calidad al producto final del ion  $^{99m}\text{TcO}_4^-$  producido en el generador  $^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}$ .

### **3.2.1. Síntesis del polímero de quitosano modificado**

La síntesis de los polímeros entrecruzados con glutaraldehído a partir de quitosano de pluma de *Dosidicus gigas* (QPC) y quitosano comercial (QC) se realiza siguiendo la metodología patentada por Hassan (Unites States Patente N° US 2013/0039822 A1, 2013), donde todas las reacciones son llevadas a cabo bajo condiciones atmosféricas.

En la figura 12 se muestra el diagrama del proceso de síntesis para los polímeros entrecruzados donde se utilizó una masa inicial de 12 g para QPC y 8 g para QC para generar los seis polímeros en estudio. La metodología consiste en colocar 4 g de quitosano puro (QPC o QC) con 300 mL de agua bidestilada y 1 mL de  $\text{CH}_3\text{COOH}$  glacial en un balón y luego se mantiene bajo agitación a 350 rpm por 2 h a 70 °C para favorecer la solubilidad del quitosano. Posteriormente, se dejó enfriar por 20 min y se adicionó gota a gota 4 mL de  $\text{HCl}_{(\text{cc})}$  manteniendo la agitación por 1 h a 70 °C para la acidificación del gel; completado el tiempo se añadió 6 mL de la solución de glutaraldehído de concentraciones de 50, 40 o 25 % v/v según sea el caso, bajo agitación a 450 rpm por 1 h a 70 °C observándose la formación de un gel semi-sólido.

El producto final se lavó con una solución de monoetanolamina al 2% para quitar el glutaraldehído residual y la masa resultante se dejó sumergida en 1 L de solución de  $\text{NaOH}$  0,1 mol  $\text{L}^{-1}$  por 16 h. Después de ello, la masa resultante fue lavada con  $\text{HCl}$  0,1 mol  $\text{L}^{-1}$  y finalmente con agua bidestilada hasta obtener un pH neutro. Finalmente, se generaron los seis polímeros detallados a continuación:

**QPCG-1:** Quitosano de pluma de *Dosidicus gigas* entrecruzado con glutaraldehído 50 %.

**QPCG-2:** Quitosano de pluma de *Dosidicus gigas* entrecruzado con glutaraldehído 40 %.

**QPCG-3:** Quitosano de pluma de *Dosidicus gigas* entrecruzado con glutaraldehído 25 %.

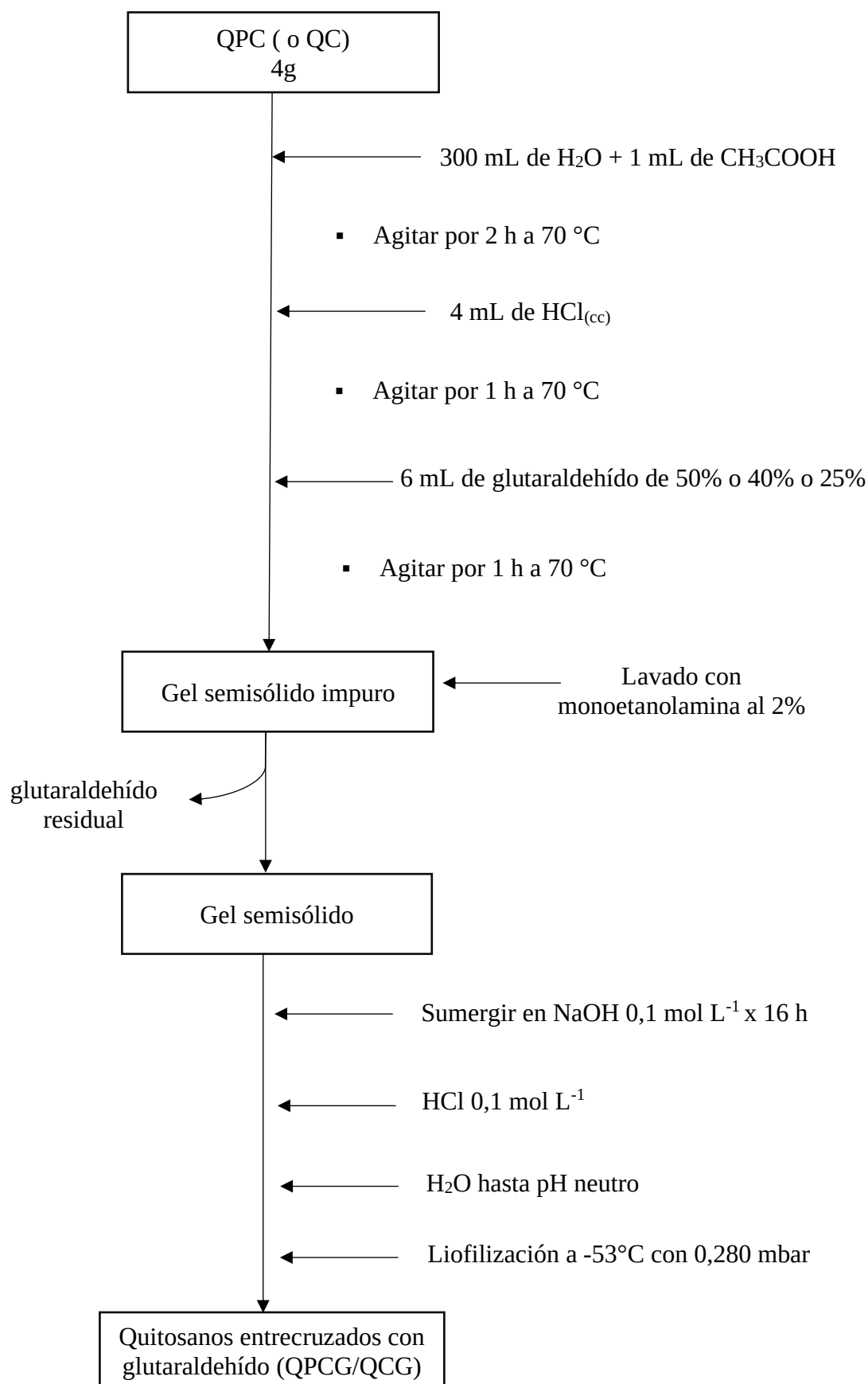
**QCG-1 :** Quitosano comercial entrecruzado con glutaraldehído 50 %.

**QCG-2 :** Quitosano comercial entrecruzado con glutaraldehído 40 %.

**QCG-3 :** Quitosano comercial entrecruzado con glutaraldehído 25 %.

**Figura 12**

*Diagrama del proceso de síntesis de los polímeros de quitosano*



Finalmente, como pretratamiento para el secado de las muestras los polímeros sintetizados fueron congelados a  $-70^{\circ}\text{C}$  en la ultra congeladora, luego se secaron las muestras en el liofilizador de marca LABCONCO ubicado en la Universidad Nacional de Ingeniería (UNI) a  $-53^{\circ}\text{C}$  con 0,280 mbar hasta sequedad; para posteriormente moler las muestras en el mortero de ágata y tamizarlas en malla # 35, proporcionando las muestras finales de QPCG-1, QPCG-2, QPCG-3, QCG-1, QCG-2 y QCG-3 como se muestra en la figura 13.

### Figura 13

*Polímeros sintetizados de QPCG y QCG*

A)



B)



Nota: Quitosano entrecruzado con glutaraldehído de (A) pluma de *Dosidicus gigas*, (B) comercial.



### **3.3. Caracterización del quitosano y polímeros modificados**

Las técnicas de caracterización que se muestran a continuación se han realizado a los polímeros de quitosano antes y después del entrecruzamiento con glutaraldehído con la finalidad de identificar la obtención de quitosano de la fuente marina y evidenciar el entrecruzamiento. Se detalla las muestras analizadas en cada sección, según se indica.

#### **3.3.1. Determinación del grado de desacetilación por análisis del espectro infrarrojo (FT-IR)**

El grado de desacetilación (DD) es uno de los parámetros más importantes en la caracterización del quitosano ya que afecta sus propiedades fisicoquímicas. La desacetilación es la conversión de quitina en quitosano y se refiere a la proporción de unidades d-glucosamina (Sánchez-Machado et al., 2018). Muchos investigadores discernen el quitosano de la quitina cuando el grado de desacetilación es mayor o igual al 50% (Giraldo, 2015). El grado de desacetilación de los quitosanos comerciales se encuentra en el rango de 70 a 90 % (Hussain et al., 2013) y se clasifican como quitosanos de parcial hacia altamente desacetilados. A mayor grado de desacetilación se tiene mayor disponibilidad de los grupos  $\text{NH}_2$ , que permiten la protonación hasta  $-\text{NH}_3^+$  en medios ácidos favoreciendo la adsorción de especies cargadas negativamente (Mathaba & Daramola, 2020; Saheed et al., 2021).

El análisis del espectro infrarrojo es un método relativamente sencillo, rápido, de bajo costo para la determinación del grado de desacetilación (Camarotti et al., 2022), pero presenta una desventaja; ya que el quitosano es de naturaleza higroscópica y puede otorgar errores por la adsorción de la humedad; sin embargo, esto se supera generando una película quitosano. Por ello, el análisis del espectro infrarrojo en películas de quitosano es un método adecuado para la determinación del grado de desacetilación en polímeros. La metodología consiste en elaborar una película de quitosano y determinar los grupos funcionales mediante FT-IR. Soluciones de QPC y QC al 0,1 %  $\text{m v}^{-1}$  con  $\text{CH}_3\text{COOH}$  al 1,0 % fueron preparadas. Se pesó 0,1 g de los quitosanos en polvo para cada caso, se enrasó en una fiola de 100 mL y se agitó hasta disolución. La solución se esparció en una placa petri y se secó en estufa a 60 °C por 5 h, luego se lavó dos veces con una solución amoniacal al 8 %, dos veces con agua desionizada y finalmente con metanol. La película obtenida, se secó a 60 °C hasta peso constante (Khan et al., 2002). Se tomó la lectura con un espectrofotómetro Shimadzu IR modelo Prestige 21 localizado

en el Laboratorio de Fisicoquímica de la Facultad de Ciencias- UNI. Las lecturas se realizaron por ATR en modo de transmitancia en el rango de 4000 a 400 cm<sup>-1</sup>. El grado de desacetilación se determinó mediante la fórmula de Baxter:

$$\% \overline{NH_2} = 100 - \left( \frac{A_{1655}}{A_{3450}} \right) \times 115 \quad (1)$$

$$A_{1655} = \text{Log} \left( \frac{DF}{DE} \right) \quad (2)$$

$$A_{3450} = \text{Log} \left( \frac{AC}{AB} \right) \quad (3)$$

Donde; %  $\overline{NH_2}$ : representa el grado de desacetilación o el número de grupos amino;  $A_{1655}$ : absorbancia para los grupos C=O del N-acetilo;  $A_{3450}$ : absorbancia para los grupos -OH; **DF y AC**: corresponden a las distancias hasta las líneas base señaladas según la longitud de onda; **DE y AB**: distancias hasta los picos de absorción según el grupo funcional de interés.

### 3.3.2. Determinación del grado de desacetilación por titulación conductimétrica

Otro método muy utilizado para la determinación del % DD en quitosano, es el de titulación conductimétrica. La conductancia de una muestra está en función de la sumatoria de conductividad de los iones H<sup>+</sup> y OH<sup>-</sup> en solución; debido a que son los iones más conductores, además son directamente proporcionales a la temperatura y concentración (Chirinos, 2013). Para la metodología se disolvieron 250 mg de QPC o QC en 20 mL de HCl 0,05 mol L<sup>-1</sup> y se mantuvo bajo agitación constante a 300 rpm por 18 h a 25 °C. La solución obtenida se enrasó en una fiola de 250 mL con agua desionizada, se extrajeron 3 alícuotas de 50 mL que se titularon poco a poco con NaOH previamente estandarizado de 0,10 y 0,09 mol L<sup>-1</sup> para QPC y QC, respectivamente. Seguidamente se midió la conductividad en μS cm<sup>-1</sup> para cada volumen titulado repitiendo tres veces cada medida conductimétrica y se determinó el grado de desacetilación mediante la fórmula:

$$\% \overline{NH_2} = \frac{161 \times (V_2 - V_1) \times [\text{NaOH}] \times 100}{m} \quad (4)$$

Donde; %  $\overline{NH_2}$ : representa el grado de desacetilación o el número de grupos amino, **Factor 161**: masa molecular de las unidades monoméricas del quitosano (g mol<sup>-1</sup>); **V<sub>2</sub> y V<sub>1</sub>**: volúmenes de solución de NaOH correspondientes a los puntos de deflexión en litros (L), **[NaOH]**: molaridad de la solución NaOH (mol L<sup>-1</sup>) y **m**: masa de la muestra en gramos (g).

### 3.3.3. Determinación del peso molecular por el método de viscosimetría

El peso molecular de un polímero brinda información de la distribución de los monómeros presentes; el tamaño de la cadena está directamente relacionada al peso molecular. El peso molecular de los polímeros es el peso promedio de los monómeros y brinda información de la longitud de la cadena. El peso molecular de los quitosanos comerciales oscilan entre 50 a 2000 kDa clasificándose como quitosano de peso molecular bajo (< 100 kDa), medio (100 a 1000 kDa) y alto (> 1000 kDa) (Mourya et al., 2011; Santoso et al., 2020). La viscosimetría es un método práctico y rápido que se utiliza para determinar el peso molecular promedio de un polímero. Cuando un polímero es disuelto en un líquido, ambos fluyen en la disolución aumentando la viscosidad que depende del peso molecular, la concentración, la temperatura y la fuerza iónica (Bégin & Van Calsteren, 1999).

El peso molecular promedio ( $\bar{M}_v$ ) de un polímero está directamente relacionada a su viscosidad intrínseca  $[\eta]$  y se determina mediante la fórmula de Mark-Houwink-Sakurada con los valores de K y  $\alpha$  que dependen de la temperatura, naturaleza del buffer y el grado de desacetilación de los quitosanos. Según el grado de desacetilación de QPC y QC obtenido previamente, se ha escogido el buffer de ácido acético/acetato de sodio (0,25 mol L<sup>-1</sup> HAc/0,25 mol L<sup>-1</sup> NaAc) y valores de K =  $1,57 \times 10^{-5}$  L g<sup>-1</sup> y  $\alpha = 0,79$  (Kasaai, 2007). Para determinar el valor de  $[\eta]$  se recurre a las fórmulas mostradas en la tabla 4.

**Tabla 4**

*Fórmulas implicadas en el cálculo de la viscosidad intrínseca*

| Nombre común                          | Símbolo y ecuación que lo define                                                 |
|---------------------------------------|----------------------------------------------------------------------------------|
| Viscosidad relativa ( $\eta_r$ )      | $\eta_r = t / t_0$                                                               |
| Viscosidad específica ( $\eta_{sp}$ ) | $\eta_{sp} = \eta_r - 1$                                                         |
| Viscosidad reducida ( $\eta_{red}$ )  | $\eta_{red} = \eta_{sp} / C$                                                     |
| Viscosidad inherente ( $\eta_{inh}$ ) | $\eta_{inh} = (\ln \eta_r) / C$                                                  |
| Viscosidad intrínseca ( $\eta$ )      | $[\eta] = \lim_{C \rightarrow 0} \eta_{red} = \lim_{C \rightarrow 0} \eta_{inh}$ |

El peso molecular promedio del quitosano es calculado mediante la ecuación 5 de Mark-Houwink-Sakurada, como se muestra a continuación.

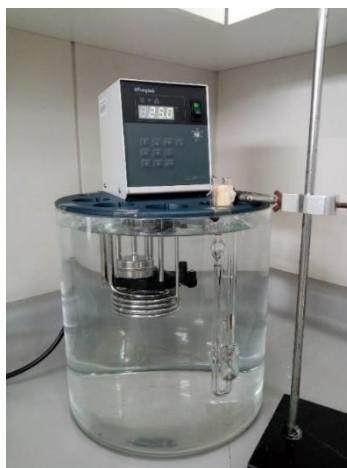
$$[\eta] = K. (\overline{M}_V)^\alpha \quad (5)$$

Donde;  $[\eta]$  : viscosidad intrínseca del quitosano despolimerizado, "K" y " $\alpha$ " son constantes para un determinado de sistema ( $K = 1,57 \times 10^{-5} \text{ L g}^{-1}$  y  $\alpha = 0,79$ ) (Arulmoorthy et al., 2019; Kasaai, 2007).

Para determinar los pesos moleculares de QPC y QC, se disolvió por separado 151,6 mg de QPC y 174,86 mg de QC con 50 mL de solución buffer para cada caso, por 400 rpm por 24 h a 25 °C. Se prepararon soluciones a distintas concentraciones de quitosano de  $\sim 1$ ; 1,5; 2,0 y 3,0 g L<sup>-1</sup> para QPC y  $\sim 2$ ; 2,5; 3,0 y 3,5 g L<sup>-1</sup> para QC en fioles de 10 mL con el mismo buffer. Se midieron los tiempos de caída con un cronómetro, de 10 mL de cada solución sobre dos puntos fijos en el viscosímetro capilar de vidrio marca Ubbelohde (Costa et al., 2015) sumergido en el baño termostático de marca Fungilab como se muestra en la figura 14.

#### **Figura 14**

*Equipo de baño termostático empleado en el método viscosimétrico*



#### **3.3.4. Caracterización por Espectroscopía infrarroja (FT-IR)**

Los espectros FT-IR confirman la presencia de grupos funcionales en la estructura de los polímeros. Las lecturas FT-IR de las ocho muestras fueron obtenidos con un espectrofotómetro Shimadzu IR modelo Prestige 21 con reflectancia total atenuada (ATR) en el rango de 4000-400 cm<sup>-1</sup> localizado en el Laboratorio de Fisicoquímica de la Facultad de Ciencias-UNI.

### 3.3.5. Caracterización por difracción de rayos X (DRX)

Los polímeros pueden ser semicristalinos o amorfos dependiendo de su peso molecular, los monómeros que lo conforman y su historial térmico. La cristalinidad de un polímero se refiere al grado de ordenamiento de las cadenas del polímero y se entiende como el empaquetamiento de largas cadenas moleculares para generar una disposición atómica ordenada en ciertas regiones (Crawford & Quinn, 2017). Las regiones ordenadas (cristalitos) tienen la propiedad de dispersar los rayos X que provienen de la fuente del equipo, estos ángulos de dispersión ( $2\theta$ ) son captados por el detector y generan el difractograma en el análisis DRX. El difractograma exhibe los picos de difracción o los denominados “halos” cuando se tratan de polímeros que ayudan a identificar la muestra analizada (Forsgren et al., 2013; Karava et al., 2020). El quitosano es un polímero semicristalino; ya que, presenta regiones cristalinas dispersas en un material amorfo. La cristalinidad del quitosano se debe a los fuertes puente de hidrógeno intramoleculares en sus grupos -OH e intermoleculares entre los grupos -NH<sub>2</sub> y -OH (Li et al., 2013; Saita et al., 2012).

Los difractogramas se realizan en función del ángulo de dispersión ( $2\theta$ ) versus la intensidad. El porcentaje de cristalinidad ( $X_c$ ) de las muestras, se calcula con la ecuación 6, donde las áreas respectivas del difractograma se determinan a través del programa Origin 2023:

$$X_c (\%) = \frac{A_c}{A_t} \times 100 \quad (6)$$

Donde; **A<sub>c</sub>**: Sumatoria de las áreas bajo los picos que representas la región cristalina y **A<sub>t</sub>**: área total de la región amorfa y cristalina.

Se utilizó un equipo difractómetro de rayos X marca Rigaku de modelo Miniflex 2, con tubo de cobre ubicado en el IPEN y las muestras se midieron con ángulo  $5^\circ < 2\theta < 70^\circ$ , longitud de onda de 1,54 Å, paso de 0,01 y 0,6 s (Moussout et al., 2016).

### 3.3.6. Caracterización por análisis termogravimétrico (TGA)

El análisis termogravimétrico (TGA) y termogravimetría diferencial (DTG) brindan información del comportamiento térmico de las muestras. Las curvas TGA de quitosano presentan dos principales intervalos de temperatura de pérdida de peso. El primero de 20 a 125 °C con 7 a 10 % en pérdida de peso, corresponde a la etapa de

evaporación de H<sub>2</sub>O adsorbida en los quitosanos (deshidratación) (Wegrzynowska-Drzymalska et al., 2020). El segundo paso de 240 a 400 °C viene a ser la principal etapa de descomposición asociada a 40-60 % en pérdida de peso correspondiente a la despolimerización de cadenas poliméricas y la escisión de enlaces glucosídicos por la degradación térmica. A partir de 400°C ocurre la destrucción térmica del anillo de la piranosa en los quitosanos y la descomposición del carbono residual (Moussout et al., 2016). Adicionalmente, la primera derivada de la curva TGA se denomina DTG y se realiza para simplificar la lectura de los picos que aparecen muy cercanos en el termograma de pérdida de peso y temperatura. La curva DTG exhibe picos a la temperatura establecida y el pico máximo ( $T_{max}$ ) (Singha & Thakur, 2008).

Las curvas TGA y DTG de las muestras de quitosano antes y después del entrecruzamiento con glutaraldehído se realizaron en el equipo analizador térmico simultáneo STA 6000 de marca Perkin Elmer ubicado en el Laboratorio de Fisicoquímica de la Facultad de Ciencias-UNI y se han estudiado muestras de 8 a 20 mg, en el rango de temperatura de 30 a 550 °C con una velocidad de calentamiento de 10 °C min<sup>-1</sup>, el cual permitirá un mejor monitoreo de cambios físicos y químicos en los polímeros, con un flujo de N<sub>2</sub>(g) a un caudal de 20 mL min<sup>-1</sup> (Gallardo et al., 2019).

### **3.3.7. Caracterización por Microscopía electrónica de Barrido (MEB)**

Las micrografías brindan información de la superficie y morfología de los ocho polímeros de estudio. Para ello, se preparó una fiola de 100 mL que contenía 1mL <sup>99</sup>Mo de 4,03 mCi que se enrasó con HCl y NaOH al 0,1 mol L<sup>-1</sup> de pH 2, se tomó una alícuota de 10 mL de la solución y se añadió sobre 0,11 g de QPCG-2 o QCG-3 y se dejó agitando 5 y 100 min, respectivamente. Posteriormente, los polímeros con mayor porcentaje de adsorción del <sup>99</sup>MoO<sub>4</sub><sup>-2</sup> (QPCG-2 y QCG-3) determinados en los cálculos de actividad fueron analizados mediante MEB acoplado a Espectroscopía dispersiva de Rayos X (MEB-EDS) para evidenciar la presencia de molibdeno. Se ha empleado el equipo de MEB por emisión termoiónica marca Zeiss modelo Evo MA10 ubicado en el Laboratorio de Microscopia Electrónica de la Facultad de Ciencias-UNI.

### **3.3.8. Caracterización por Resonancia Magnética Nuclear de fase sólida (ss-RMN)**

La Resonancia magnética Nuclear de estado sólido (ss-RMN) al igual que la RMN de muestras líquidas brinda información estructural de la molécula mediante las

interacciones magnéticas de los núcleos atómicos. Mediante el ss-RMN se puede estudiar diversos tipos de muestras sólidas como polvos, metales, vidrio, caucho y superconductores (Zwanziger & Spiess, 2005). Se analizaron las muestras QPC, QC, QPCG-2 y QCG-3 en un espectrómetro Bruker UltraShield de 600,13 MHz equipado con un imán de 14,1 T que funciona a frecuencias de Larmor de 150 MHz para  $^{13}\text{C}$  en el laboratorio CONICET de Universidad de Buenos Aires en Argentina. Los experimentos de  $^{13}\text{C}$  CP-MAS (polarización cruzada y giro de ángulo mágico) se realizaron en una sonda MAS de 3,2 mm. El tiempo de contacto durante la CP fue de 2 ms. La secuencia SPINAL64 (pequeña alternancia incremental de fase con 64 pasos) se utilizó para el desacoplamiento heteronuclear durante la adquisición. CT: 2 ms, frecuencia de repetición 5 s, NS: 4096.

### **3.3.9. Caracterización por Espectroscopia FT- Raman**

Es una técnica espectroscópica que proporciona información estructural permitiendo identificar las moléculas. Se hace incidir luz monocromática (láser) a la muestras que generan vibraciones moleculares y excitaciones en el sistema, que alteran la energía de los fotones de incidencia. El cambio de energía proporciona el espectro Raman que brinda información similar y complementaria a la espectroscopia Infrarroja.

Las mediciones FT-Raman de QPC, QC, QPCG-2 y QCG-3 se obtuvieron empleado un rayo láser de excitación de 1064 nm usando una potencia de 0,5 W y acumulando 400 escaneos a la resolución de  $8\text{ cm}^{-1}$  con un espectrómetro avanzado Nicolet iS50 de la marca Thermo Fisher en el laboratorio CONICET de la Universidad de Buenos Aires en Argentina.

### **3.3.10. Grado de entrecruzamiento de los polímeros**

El grado de entrecruzamiento (G.E) de los seis polímeros entrecruzados se han realizado mediante el método de extracción por Soxhlet (Hirschl et al., 2013) utilizando como solvente ácido acético al 5%, a esta baja concentración se solubiliza la fracción no entrecruzada, mientras que la fracción entrecruzada es la fracción insoluble determinada por los enlaces del quitosano y glutaraldehído. Finalizado el tiempo de reflujo, los geles son secados en la estufa por otras 24 horas a  $60\text{ }^{\circ}\text{C}$  para eliminar el solvente y realizar el posterior pesado de las muestras. Para la metodología se pesaron muestras de 0,5 g ( $W_1$ ) de los polímeros entrecruzados, se colocaron en el cartucho y se extrajo en el equipo

Soxhlet con ácido acético al 5% a 70°C por 24 h. Luego del tratamiento, el residuo insoluble fue secado a 60°C por 24 h y pesado ( $W_2$ ). El grado de entrecruzamiento (contenido de gel) se calculó siguiendo la ecuación:

$$G.E. (\%) = \frac{W_2}{W_1} \times 100 \quad (7)$$

Donde;  $W_2$ : peso luego de la extracción,  $W_1$ : peso inicial de la muestra

### **3.3.11. Determinación del punto de carga cero**

El punto de carga cero ( $pH_{PZC}$ ) es un parámetro importante en la capacidad de adsorción de un material que estudia el efecto de pH (Mincke et al., 2019; Rawat & Maiti, 2021) y brinda información acerca de la estabilidad potencial de un polímero en solución. El  $pH_{PZC}$  se define como el pH donde la carga total neta (interna y externa) de las partículas del material adsorbente es neutra; es decir, donde el número de sitios positivos es igual al número de sitios negativos (Alarcón Barrón, 2019). A partir del valor del  $pH_{PZC}$  se puede establecer la carga que posee un material en variación al medio de pH que se emplea. Si la solución de pH es menor al valor del  $pH_{PZC}$ , los materiales polímeros tendrán carga positiva; por el contrario, si la solución de pH es mayor al valor del  $pH_{PZC}$ , los materiales tendrán carga negativa (Jawad et al., 2016; Velempini et al., 2019).

Para determinar el  $pH_{PZC}$  de los QPCG y QCG se utilizó el método de la derivada de pH simple. Se prepararon soluciones de HCl y NaOH al 0,1 mol L<sup>-1</sup> en el rango de pH de 2 a 12; luego se pesó 0,03 g de polímero adsorbente y se mezcló con 30 mL de cada solución preparada a determinado pH con una agitación constante de 120 rpm durante 48 h a temperatura ambiente (Islam et al., 2017). Finalmente, se filtró y se midió el pH de equilibrio de cada solución. Se realizó un gráfico entre la diferencia del ( $pH_{Final} - pH_{inicial}$ ) vs  $pH_{inicial}$  para identificar el punto de intersección de la regresión lineal con el eje X; es decir, el pH en el que el  $pH_{inicial} = pH_{final}$  es el punto de carga cero (Rawat & Maiti, 2021).

### **3.4. Factores que influyen en el proceso de adsorción de <sup>99</sup>Mo**

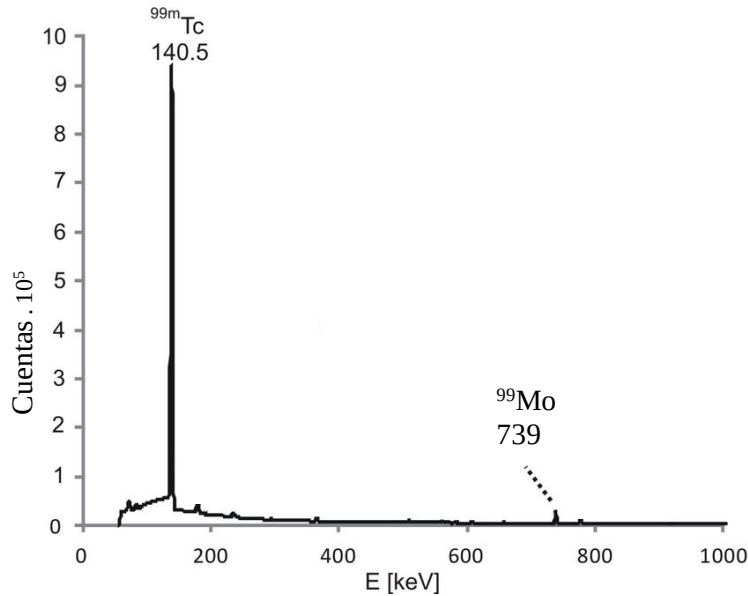
Los análisis de adsorción se realizaron con <sup>99</sup>Mo (n,γ) irradiado en el reactor Nuclear RP-10 de 10 Megavatios de potencia y flujo de 10<sup>14</sup> n cm<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup> del IPEN ubicado en Huarangal, Carabayllo-Perú. En la figura 15, se muestra un espectro típico obtenido por espectroscopia gamma de alta resolución con detector de germanio de alta pureza, modelo GC7019 de la marca Mirion Technologies, Eficiencia 75 %, Resolución 22.2



keV; donde el eje Y corresponde a las cuentas en el equipo y el eje X corresponde a las energías en kilo-electronvoltios (keV) de los radioisótopos. En el pico de 739 keV aparece solo  $^{99}\text{Mo}$  y en 140 keV aparece  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  y  $^{99}\text{Mo}$  cuya actividad fue calculado con las ecuaciones del 8-11 y para determinar el área de  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  puro se ha restado la contribución del  $^{99}\text{Mo}$  aplicando la fórmula 12 y 13.

**Figura 15**

*Espectro típico de  $^{99}\text{Mo}$  y  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  obtenido en el detector Canberra de Germanio Hiperpuro*



Fuente : Adaptado de (Bzymek et al., 2016)

A continuación, se presentan las ecuaciones para el cálculo de actividad de los radioisótopos:

- **Cálculo de la actividad por espectrometría gamma:**

$$A_0 = \frac{P \cdot e^{\lambda \cdot t_d} \cdot \frac{t_r}{t_v} \cdot \lambda}{\eta \cdot h \cdot (1 - e^{-\lambda \cdot t_r}) \cdot 37000} \quad (8)$$

Donde; **P**: Área neta del fotopico analizado en cuentas acumuladas,  **$\lambda$** : Periodo de semidesintegración del radioisótopo ( $\text{s}^{-1}$ ),  **$t_d$** : tiempo de decaimiento (s),  **$t_r$** : Tiempo real del conteo (s),  **$t_v$** : Tiempo vivo del conteo (s),  **$\eta$** : Eficiencia del detector,  **$h$** : Abundancia absoluta del rayo gamma en fotones emitidos por desintegración,  **$A_0$** : Actividad a tiempo de decaimiento cero ( $\mu\text{Ci}$ ).

- **Cálculo de la concentración de actividad por espectrometría gamma:**

$$C.A = \frac{A_0}{V} \quad (9)$$

Donde; **C.A**: concentración de la actividad, **A<sub>0</sub>**: Actividad a tiempo de decaimiento cero (μCi) y **V**: volumen de la alícuota de la solución en contacto con el polímero (mL).

- **Cálculo del porcentaje de adsorción por espectrometría gamma:**

$$P (\%) = \frac{C.A (blanco) - C.A (polímero)}{C.A (blanco)} \times 100\% \quad (10)$$

Donde; **C. A (blanco)**: concentración de la actividad del radioisótopo sin contacto con el polímero (μCi mL<sup>-1</sup>), **C. A (polímero)**: concentración de la actividad del radioisótopo en contacto con el polímero (μCi mL<sup>-1</sup>).

- **Cálculo del coeficiente de distribución por espectrometría gamma:**

$$K_d = \frac{C.A (blanco) - C.A (polímero)}{C.A (polímero)} \times \frac{V}{m} \quad (11)$$

Donde; **K<sub>d</sub>**: coeficiente de distribución, **C. A (blanco)**: concentración de la actividad del radioisótopo sin contacto con el polímero (μCi mL<sup>-1</sup>), **C. A (polímero)**: concentración de la actividad del radioisótopo en contacto con el polímero (μCi mL<sup>-1</sup>), **V**: volumen analizado (mL) y **m**: masa del polímero (g).

- **Cálculo de la contribución de <sup>99</sup>Mo en el pico de 140 keV**

$$\frac{A_1}{\eta_1 h_1} = \frac{A_2}{\eta_2 h_2} \quad (12)$$

Donde; **A<sub>1</sub>**: área problema de <sup>99</sup>Mo en 140 keV, **η<sub>1</sub>**: Eficiencia del vial calculado para <sup>99</sup>Mo en 140 keV, **h<sub>1</sub>**: Abundancia absoluta del rayo gamma de <sup>99</sup>Mo a 140 keV. **A<sub>2</sub>**: área calculada de <sup>99</sup>Mo en 739 keV, **η<sub>2</sub>**: Eficiencia del vial calculado para <sup>99</sup>Mo en 739 keV, **h<sub>2</sub>**: Abundancia absoluta del rayo gamma de <sup>99</sup>Mo a 739 keV.

- **Cálculo de la contribución de <sup>99</sup>Mo en el pico de 140 keV**

$$A = A_0 \times e^{-\lambda t} \quad (13)$$

Donde; **A**: actividad en el tiempo t , **A<sub>0</sub>** : actividad inicial, **λ**: Periodo de semidesintegración del radioisótopo (s<sup>-1</sup>), **t** : Tiempo transcurrido(s).

### **3.4.1. Estudio del efecto de pH en el proceso de adsorción de $^{99}\text{Mo}$**

El pH es uno de los parámetros importantes, ya que, una variación puede afectar las cargas de los grupos funcionales de los materiales adsorbentes (Velempini et al., 2019). Se estudió el efecto de la variación de pH en la capacidad de adsorción de los QPCG y QCG sobre  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$ ; para ello, se prepararon soluciones de HCl y NaOH al 0,1 mol L<sup>-1</sup> en el rango de pH de 2 a 13; luego se pesaron 0,1 g de QPCG y QCG, a los cuales se les añadió 9 mL de la solución correspondiente de pH con 1 mL de la solución de  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  para cada muestra, finalmente se filtró y reservó 1 mL de la solución en viales con tapón de butilo para su posterior medición por espectrofotometría gamma.

### **3.4.2. Efecto de la variación de masa del polímero adsorbente sobre $^{99}\text{Mo}$**

Para este análisis, se pesaron réplicas de QPCG y QCG de 0,05; 0,1; 0,2 y 0,4 g en tubos cónicos; seguidamente se añadieron 10 mL de la solución  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  previamente diluida en una fiola de 250 mL, cada muestra se llevó a agitación constante en el equipo orbital VXR basic Vibrax de la marca IKA a 600 rpm al tiempo óptimo de agitación obtenido en el estudio de tiempo de contacto para luego filtrar al vacío con filtros de 0,22  $\mu\text{m}$  de porosidad y 47  $\mu\text{m}$  de diámetro en embudo Büchner de vidrio y reservar 1 mL del filtrado en viales de vidrio con tapón de butilo para finalmente medir la actividad en el espectrómetro gamma.

### **3.5. Estudio de la cinética de adsorción**

Se pesaron ocho réplicas de QPCG y QCG de 0,1 g; seguidamente se añadieron 10 mL de una solución de  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  y se llevaron a agitación constante en el equipo orbital VXR basic Vibrax de la marca IKA, a diferentes tiempos de 5, 15, 30, 60, 100 y 120 min. Pasado el tiempo indicado, cada muestra era filtrada al vacío con filtros de 0,22  $\mu\text{m}$  de porosidad y 47  $\mu\text{m}$  de diámetro en embudo Büchner de vidrio para reservar 1 mL del filtrado en viales de vidrio con tapón de butilo para finalmente medir la actividad en el espectrómetro gamma. Se analizó si la cinética de adsorción rige un modelo de pseudo primer o segundo orden empleando las ecuaciones 14 y 15.

El modelo cinético de pseudo primer orden es un proceso rápido que se basa en la fisisorción, el cual está relacionada a enlace débiles como las fuerzas de Van der Waals que determinan la adsorción por difusión a través de la interfase. El modelo cinético de pseudo segundo orden es un proceso lento que se basa en la quimisorción, relacionado a

la adsorción del adsorbato en la superficie del adsorbente mediante enlaces fuertes como interacciones electrostáticas, quelación, enlaces de coordinación, enlaces covalentes, enlaces metálico y depende de la capacidad de adsorción del material y no de la concentración de adsorbato en la solución (Sahoo & Prelot, 2020).

- **Modelo de pseudo primer orden:**

$$\log (q_e - q_t) = \log(q_e) - \frac{k_1}{2,303} t \quad (14)$$

Donde  $k_1$ : Constante cinética de velocidad de primer orden ( $\text{min}^{-1}$ ),  $q_t$ : Cantidad adsorbida de adsorbato en función al tiempo ( $\text{mg g}^{-1}$ ),  $q_e$ : Cantidad adsorbida de adsorbato en el equilibrio ( $\text{mg g}^{-1}$ ),  $t$ : Tiempo transcurrido (min).

- **Modelo de pseudo segundo orden:**

$$\frac{t}{q_t} = \frac{1}{k_2 q_e^2} + \frac{1}{q_e} t \quad (15)$$

Donde;  $q_t$ : Cantidad adsorbida de adsorbato en función al tiempo ( $\text{mg g}^{-1}$ ),  $k_2$ : Constante cinética de velocidad de segundo orden ( $\text{mg}^{-1}\text{g min}^{-1}$ ),  $q_e$ : Cantidad adsorbida de adsorbato en el equilibrio ( $\text{mg g}^{-1}$ ),  $t$ : Tiempo transcurrido (min).

### 3.6. Estudio de la isoterma de adsorción

La isoterma de adsorción es una herramienta que ayuda para describir la interacción entre el adsorbato y el adsorbente (Fu et al., 2021). Para ello, se prepararon diez soluciones del ion  $\text{MoO}_4^{2-}$  a partir de la sal de molibdato de sodio dihidratado ( $\text{Na}_2\text{MoO}_4 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ ) con concentraciones de  $4,2 \text{ mmol L}^{-1}$  hasta  $167 \text{ mmol L}^{-1}$  en fioles de 50 mL que contenían 10 mL de la solución de  $^{99}\text{Mo}$  como radiotrazador a pH óptimo y se enrasó con buffer de ácido acético/acetato de sodio  $0,1 \text{ mol L}^{-1}$ . Se pesaron 10 réplicas de 0,1 g de los seis polímeros entrecruzados en tubos cónicos, se adicionaron 10 mL de la solución previamente preparada del ion  $^{99}\text{MoO}_4^{2-}$  y se dejó en agitación según el tiempo de contacto óptimo por grupo. Luego, se filtró y tomó una alícuota de 1 mL en viales de vidrio con tapón de butilo. Finalmente se midió la actividad de las muestras en un espectrómetro gamma para analizar los datos de equilibrio con ayuda de los modelos de isothermas teóricas de Langmuir, Freundlich, Temkin y Dubinin-Radushkevich mediante las ecuaciones del 16 al 22:

- **Modelo de Langmuir:**

$$\frac{C_e}{q_e} = \frac{1}{K_L \cdot q_m} + \frac{C_e}{q_m} \quad (16)$$

$$R_L = \frac{1}{1 + K_L \cdot C_i} \quad (17)$$

Donde;  $C_e$ : concentración del adsorbato en el equilibrio en solución después de la adsorción ( $\text{mg L}^{-1}$ ),  $q_e$ : capacidad de adsorción en el equilibrio ( $\text{mg g}^{-1}$ ),  $K_L$ : constante de Langmuir relacionada a la energía de adsorción ( $\text{L mg}^{-1}$ ),  $q_m$ : máxima capacidad de adsorción teórica de Langmuir ( $\text{mg g}^{-1}$ ),  $C_i$ : concentración inicial de iones metálicos ( $\text{mg}^{-1}\text{L}$ ) y  $R_L$ : factor de separación.

- **Modelo de Freundlich:**

$$\ln(q_e) = \frac{1}{n} \ln C_e + \ln K_f \quad (18)$$

Donde;  $C_e$ : concentración del adsorbato en el equilibrio en solución después de la adsorción ( $\text{mg L}^{-1}$ ),  $q_e$ : capacidad de adsorción en el equilibrio ( $\text{mg g}^{-1}$ ),  $K_f$ : constante de Freundlich de capacidad de adsorción  $1/n$ ; constante de Freundlich de intensidad de adsorción.

- **Modelo de Temkin:**

$$q_e = B \ln A + B \ln C_e \quad (19)$$

Donde;  $C_e$ : concentración del adsorbato en el equilibrio en solución después de la adsorción ( $\text{mg L}^{-1}$ ),  $q_e$ : capacidad de adsorción en el equilibrio ( $\text{mg g}^{-1}$ ),  $A$ : es la constante de unión en equilibrio correspondiente a la máxima energía de unión ( $\text{L mg}^{-1}$ ) y  $B$ : constante relacionada al calor de adsorción.

- **Modelo de Dubinin-Radushkevich:**

$$\ln(q_e) = \ln(q_m) - \beta \epsilon^2 \quad (20)$$

$$\epsilon = RT \ln \left( 1 + \frac{1}{C_e} \right) \quad (21)$$

$$E = \frac{1}{\sqrt{2\beta}} \quad (22)$$

Donde;  $q_e$ : cantidad de adsorbato adsorbido por unidad de peso de adsorbente en el equilibrio ( $\text{mg g}^{-1}$ );  $q_m$ : máxima capacidad de adsorción del adsorbente ( $\text{mg g}^{-1}$ );  $\beta$ : constante relacionada a la capacidad de adsorción;  $\epsilon$ : potencial de Polanyi relacionado a la concentración de equilibrio ( $\text{kJ}^2 \text{mol}^{-2}$ );  $R$ : constante de los gases ( $8,314 \text{ J mol}^{-1} \text{K}^{-1}$ ),  $T$ : temperatura del proceso (K),  $C_e$ : concentración del adsorbato en el equilibrio en solución luego de la adsorción ( $\text{mg L}^{-1}$ ),  $E$ : es la constante de energía libre media, indica la capacidad de adsorción por molécula de adsorbato cuando es transferido a la superficie de la matriz sólida desde el infinito de la solución ( $\text{kJ mol}^{-1}$ ).

### 3.7. Evaluación de la adsorción de $^{99}\text{Mo}$ por columna cromatográfica

#### 3.7.1. Optimización para el ensamblado de la columna cromatográfica

El  $^{99}\text{MoO}_4^{2-}$  en forma de  $\text{Na}_2\text{MoO}_4$ , se obtuvo por irradiación de  $\text{MoO}_3$  natural en el reactor Nuclear RP-10 de 10 Megavatios de potencia y flujo de  $10^{14} \text{ cm}^{-2} \text{ s}^{-1}$  del IPEN. La optimización de la columna cromatográfica se llevó a cabo diluyendo soluciones de  $^{99}\text{Mo}$  proporcionados por la PPRR y sometiendo a la adsorción de los polímeros entrecruzados óptimos. Se tomaron volúmenes de 10; 5; 2; 1,6; 1,2; 0,9; 0,6 y 0,3 mL; se enrasaron con HCl y NaOH al 0,1 mol  $\text{L}^{-1}$  de pH 2 en fioles de 25 mL. Se agitaron ocho réplicas de 0,4 g de QPCG-2 o QCG-3 con 10 mL de solución del ion  $^{99}\text{MoO}_4^{2-}$  por 5 y 100 min respectivamente, luego se filtró y se tomó una alícuota de 1 mL de la solución inicial y del filtrado (rotulados con F, tabla A.1 véase anexo) en viales de vidrio con tapón de butilo para finalmente medir la actividad en el espectrómetro gamma mediante las ecuaciones del 8 al 10.

#### 3.7.2. Ensamblado de columna cromatográfica

El proceso de adsorción se desarrolló en columna cromatográfica o buretas acondicionadas con “frita de vidrio” en la punta; seguidamente se colocó el polímero adsorbente y luego en la parte superior se rellena con “frita de vidrio” nuevamente. Se colocó la solución de iones  $^{99}\text{MoO}_4^{2-}$  con actividad inicial conocida y se eluyó con NaCl 0,9 % a las ~23 horas para lograr alcanzar una eficiencia del 87,5 % de  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  (Ma & et al., 2022). La elución debe contener el  $\text{Na } ^{99\text{m}}\text{TcO}_4^-$ , donde el  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  fue detectado a 140 keV y cuantificado en el detector Canberra de Germanio Hiperpuro con la ecuación 8.

#### Figura 16

*Sistema de Columna cromatográfica empleando la matriz de quitosano con glutaraldehído*



Fuente : Elaboración propia

Para el empaquetado de la columna cromatográfica del generador  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  se probaron dos metodologías. Se ha evaluado empaquetar el polímero en seco o húmedo para garantizar una mayor pureza radioquímica de los eluatos mediante las pruebas del control de calidad realizados por la PPRR del IPEN. Se ha empleado 0,4 g de QPCG-2 con 10 mL de la solución de  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  previamente diluida a la relación de 1,2 mL del  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  en solución de HCl y NaOH al 0,1 mol L<sup>-1</sup> de pH 2 en fioles de 25 mL.

Para el primer método, se pesaron 0,4 g de QPCG-2 y se trasvasó con 100 mL de agua desionizada a la columna cromatográfica, se secó la columna por presión y se añadieron los 10 mL de la solución de  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  previamente diluida. Para el segundo método, se trasvasaron 0,4 g de QPCG-2 en seco a la columna y se añadieron los 10 mL de la  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  previamente diluida. Pasada las 23 horas se eluyeron ambas columnas y los eluatos se hacen pasar por una columna de 5 g de alúmina ácida activada (50–200 mesh) como protocolo para el control de calidad realizado por la PPRR.

### **3.7.3. Determinación del porcentaje de adsorción de $^{99}\text{Mo}$**

El porcentaje de adsorción del ion  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  se ha determinado agitando 0,4 g de QPCG-2 o QCG-3 con 10 mL de la solución de  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  de cierta actividad previamente diluida a la relación de 1,2 mL del  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  en solución de HCl y NaOH al 0,1 mol L<sup>-1</sup> de pH 2 en una fiola de 25 mL. Luego de la agitación, se filtró y se midió la actividad de 1 mL la solución filtrada de ambos polímeros y de la solución inicial de  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$ .

### **3.7.4. Determinación del rendimiento de elución del $^{99\text{m}}\text{Tc}$**

El  $^{99}\text{Mo}$  (n,γ) se encuentra como la especie de ion  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$ , este se adsorbe en la columna cromatográfica y decae periódicamente hasta  $^{99\text{m}}\text{TcO}_4^{-}$ , luego es recuperado por intercambio iónico al inyectar una solución de NaCl 0,9 % produciendo  $\text{Na}^{99\text{m}}\text{TcO}_4$  como eluido (Uzunov et al., 2018). El rendimiento de elución del  $^{99\text{m}}\text{TcO}_4^{-}$  se estudió por cinco días cada 23 h para las dos columna ensamblada con QPCG-2 y QCG-3 empleando la solución de  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  de cierta actividad previamente diluida a la relación de 1,2 mL del  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  en solución de HCl y NaOH al 0,1 mol L<sup>-1</sup> de pH 2 en una fiola de 25 mL. Se añadió 20 mL de la solución sobre 0,8 g de polímero entrecruzado.

### 3.7.5. Control de calidad del $\text{Na}^{99\text{m}}\text{TcO}_4$ final

El control de calidad de los eluatos fue reportado por la PPRR del IPEN, quienes realizaron ensayos fisicoquímicos y nucleares, tales como: aspecto, pH, determinación de alúmina, identificación y pureza radionucleídica, relación radiactiva  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  e identificación de otros radionúclidos emisores gamma (figura B.1, véase anexo). Esto con la finalidad de cumplir con los estándares de calidad para radioisótopos direccionados a la medicina nuclear. Se colocó una alícuota de muestra de cada fracción de eluato en un trozo de papel de filtro y se midió en el espectrómetro gamma acoplado con el detector Canberra de Germanio Hiperpuro calibrado y un analizador multicanal (MCA). Se utilizó un contenedor de plomo para eliminar claramente un fotón de  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  de 140 keV. La actividad de ruptura del  $^{99}\text{Mo}$  se midió en un pico de rayos gamma de 739 keV (Saptiama et al., 2016). El sistema de generador de  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  fue eluído cada 23 h y la calidad de los eluatos se ha determinado mediante las ecuaciones 23 y 24 (Chakravarty et al., 2019).

$$\text{Porcentaje de elución (\%)} = \frac{A_S}{A_2} \times 100 \quad (23)$$

Donde;  $A_S$ : actividad experimental del  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  eluído de la columna cromatográfica,  $A_2$ : actividad teórica esperada del  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  y se calcula con la siguiente ecuación :

$$A_2 = A_1 \times 0,875 \times \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} \times (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) \quad (24)$$

Donde;  $A_1$ : actividad del  $^{99}\text{Mo}$ ,  $\lambda_1$ : constante de decaimiento del  $^{99}\text{Mo}$ ,  $\lambda_2$ : constante de decaimiento del  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  y  $t$ : tiempo permitido para el crecimiento del eluato.



## CAPÍTULO IV: DISCUSIONES DE RESULTADOS

### 4.1. Síntesis del polímero de quitosano entrecruzado

La tabla 5 muestra las masas iniciales de quitosanos empleados y las masas finales de los polímeros obtenidos luego de la liofilización.

**Tabla 5**

*Cantidades de quitosano para la síntesis de polímeros entrecruzados*

| Código de polímeros | Concentración de glutaraldehído (%) | Masa inicial de quitosano (g) | Masa final de quitosano entrecruzado (g) | Rendimiento (%) |
|---------------------|-------------------------------------|-------------------------------|------------------------------------------|-----------------|
| QPCG- 1             | 50                                  | 12                            | 10,91                                    | 90,92           |
| QPCG- 2             | 40                                  | 12                            | 10,64                                    | 88,67           |
| QPCG-3              | 25                                  | 12                            | 8,07                                     | 67,25           |
| QCG-1               | 50                                  | 8                             | 7,88                                     | 98,5            |
| QCG-2               | 40                                  | 8                             | 7,55                                     | 94,38           |
| QCG-3               | 25                                  | 8                             | 6,00                                     | 75,00           |

El rendimiento en la síntesis de los polímeros es superior para los derivados de QC, debido a mayor porcentaje de grupos  $-NH_2$  disponibles para entrecruzar con el glutaraldehído. En la síntesis, el  $CH_3COOH$  glacial juega un papel importante en la solubilidad del quitosano; ya que posee grupos  $-COOH$  que interactúan con los grupos  $-NH_2$  del quitosano mediante puentes de hidrógeno facilitando su disolución (Huang & Tsai, 2020). También la adición del HCl concentrado puede protonar los grupos  $-NH_2$  del quitosano hasta  $-NH_3^+$  dejándolo cargado para una posible interacción electrostática. La incorporación de la solución de glutaraldehído sea al 50, 40 o 25 % permite la formación de un gel semi-sólido que intensifica su color con el aumento de la concentración del glutaraldehído desde un amarillo tenue a rojo ladrillo (Monteiro & Airoidi, 1999). El gel se forma por la reacción de bases de Schiff entre los grupos  $-NH_2$  del quitosano y  $-OH$  del glutaraldehído (Martínez-Mejía et al., 2019). El producto final se lavó con una solución de monoetanolamina al 2% para eliminar el glutaraldehído que no ha reaccionado previamente; es decir, el glutaraldehído residual (Levy et al., 2001); ya que los grupos  $-NH_2$  de la monoetanolamina interactúan con los grupos  $-OH$  del glutaraldehído y así eliminar el glutaraldehído residual (Shameen Hasan, 2019).

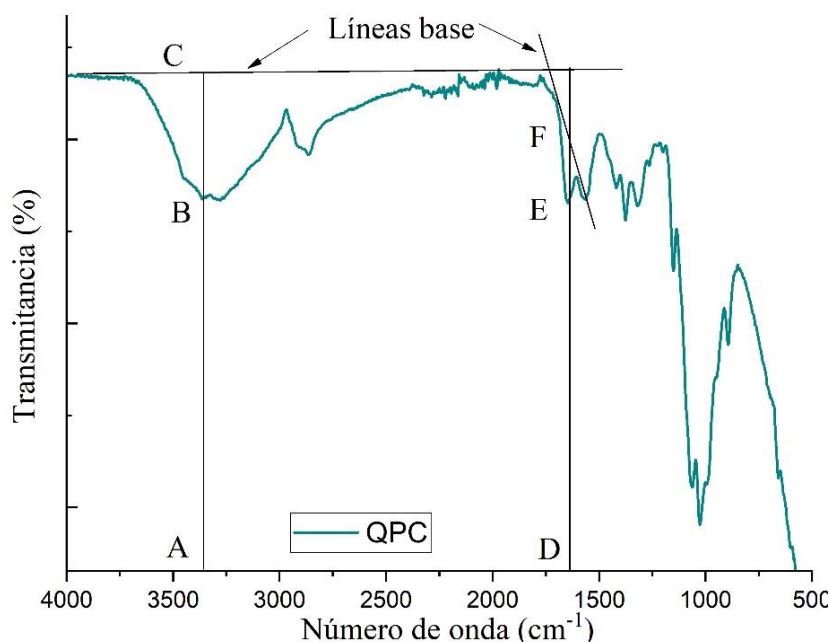
## 4.2. Caracterización de los polímeros

### 4.2.1. Determinación del grado de desacetilación por análisis FT-IR

El grado de desacetilación de QPC y QC se ha calculado con la ecuación propuesta por Baxter (1992) que involucra la banda de  $3450\text{ cm}^{-1}$  para los grupos  $-\text{OH}$  y la banda de amida I a  $1655\text{ cm}^{-1}$  que corresponde al contenido de grupos  $\text{C}=\text{O}$  del N-acetilo (Brugnerotto et al., 2001), como fórmula mejorada de la propuesta por Domszy y Roberts (1985). Domszy y Roberts proponen otra línea base para el cálculo del contenido de amidas I que otros investigadores habían sugerido para la banda de amida II ( $1560\text{ cm}^{-1}$ ); además, cuando se analizaban muestras completamente desacetiladas en el que la banda de amida I está ausente, se obtiene un valor de N-acetilación del 3 a 5% haciéndolo un cálculo inexacto (Baxter et al., 1992); por esto, se ha elegido las líneas base propuestas por Baxter como se muestran en la figura 17 y 18 donde se toma la línea base para la banda de amida I a  $1655\text{ cm}^{-1}$  (Chirinos, 2013; Rondón Millán, 2013). El espectro infrarrojo de las películas de quitosano nos permite calcular el grado de desacetilación de las muestras.

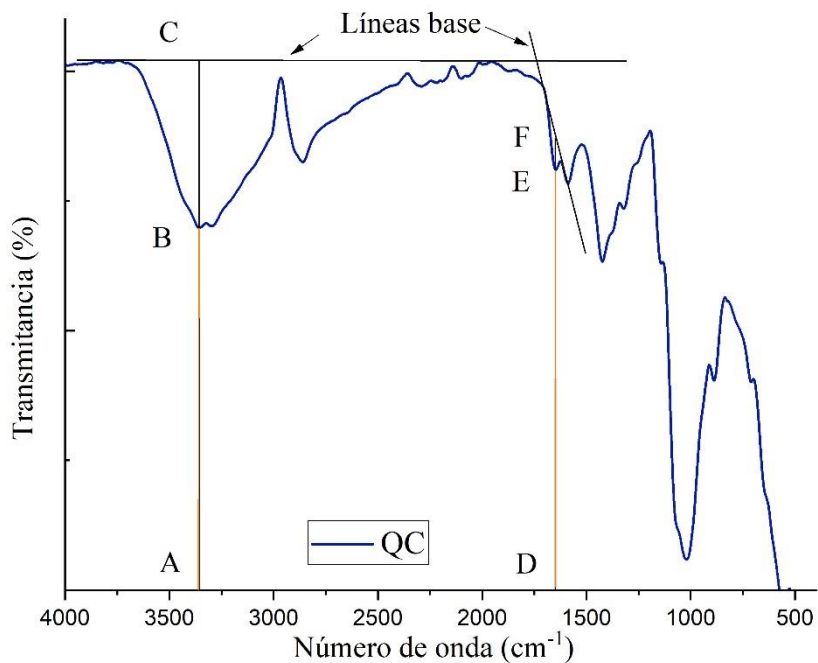
**Figura 17**

*Espectro infrarrojo de la película de QPC al 0,1 % con las líneas base de Baxter*



**Figura 18**

*Espectro infrarrojo de la película de QC al 0,1 % con las líneas base de Baxter*



Se han determinado los segmentos AB, AC, DE y DF como se muestra en la tabla 6 para emplearlos en las ecuaciones 2 y 3. Finalmente empleando la ecuación 1 se determinó el grado de desacetilación de 73,44 % para QPC y 77,65 % para QC.

**Tabla 6**

*Datos de cálculo para la determinación del grado de desacetilación para QPC y QC mediante FT-IR.*

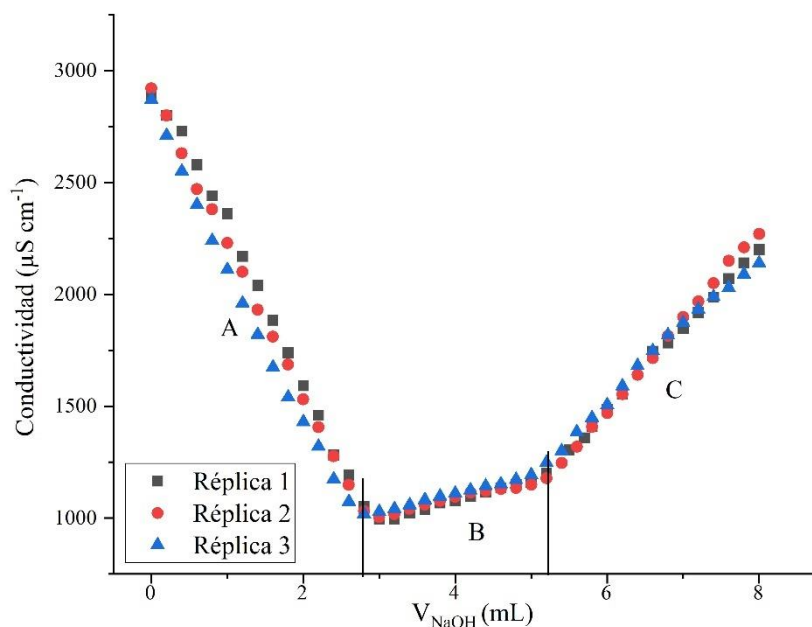
| SEGMENTO                                    | MUESTRA |       |
|---------------------------------------------|---------|-------|
|                                             | QPC     | QC    |
| DF                                          | 39,80   | 8,72  |
| DE                                          | 29,89   | 8,10  |
| AC                                          | 50,00   | 10,20 |
| AB                                          | 14,47   | 6,98  |
| $\log (DF/DE) = A_{1655}$                   | 0,12    | 0,03  |
| $\log (AC/AB) = A_{3450}$                   | 0,54    | 0,16  |
| Grado de desacetilación (%NH <sub>2</sub> ) | 73,44   | 77,65 |

#### 4.2.2. Determinación del grado de desacetilación por titulación conductimétrica

Las figuras 19 y 20 corresponden a las curvas generadas por el volumen titulado versus la conductividad para QPC y QC, respectivamente. Las curvas presentan buena linealidad antes y después del punto de equivalencia presentando tres segmentos marcados como puntos A, B y C.

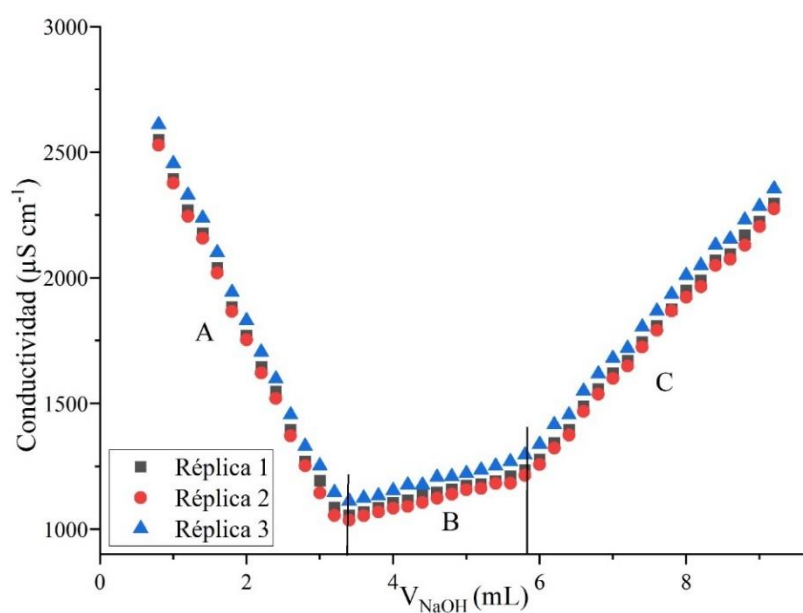
**Figura 19**

*Valoración conductimétrica para QPC con NaOH*



**Figura 20**

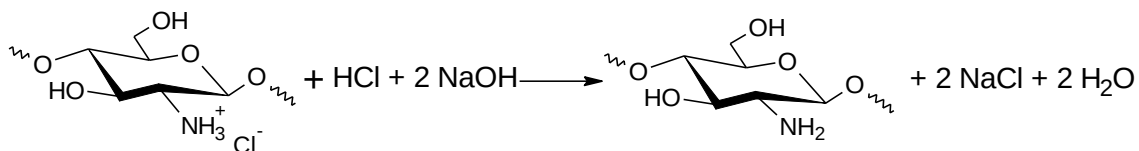
*Valoración conductimétrica para QC con NaOH*



El tramo A representa la neutralización del exceso de HCl incorporado inicialmente para la disolución de los quitosanos, el tramo B representa la neutralización de los grupos amonio, el tramo C representa el exceso de NaOH en la solución (de Alvarenga et al., 2010). El proceso de neutralización se muestra en la figura 21.

**Figura 21**

*Esquema de neutralización del quitosano por NaOH durante la titulación*



Los valores mostrados en la tabla 7 y 8 corresponden al grado de desacetilación (%  $\overline{\text{NH}_2}$ ) de 74,60 % para QPC y 77,01 % para QC calculados mediante la fórmula 4.

**Tabla 7**

*Datos para la determinación del grado de desacetilación de QPC*

| N°<br>réplica | Masa<br>(g) | [NaOH]<br>(mol L <sup>-1</sup> ) | Tramo   | intercepto<br>b | pendiente<br>m | V1<br>(mL) | V2<br>(mL) | ΔV<br>(L) | %<br>NH <sub>2</sub> | % NH <sub>2</sub><br>promedio |
|---------------|-------------|----------------------------------|---------|-----------------|----------------|------------|------------|-----------|----------------------|-------------------------------|
| 1             | 0,05006     | 0,10058                          | A       | 2985,7          | -686,3         |            |            |           |                      |                               |
|               |             |                                  | B       | 711,22          | 91,84          | 2,924      | 5,172      | 0,0022    | 72,73                |                               |
|               |             |                                  | C       | -634,04         | 354,99         |            |            |           |                      |                               |
| A             |             |                                  | 2894,80 | -665,19         |                |            |            |           |                      |                               |
| 2             |             |                                  | B       | 788,10          | 74,41          | 2,870      | 5,244      | 0,0023    | 76,81                | <b>74,60</b>                  |
| C             |             |                                  | -774,19 | 377,88          |                |            |            |           |                      |                               |
| A             |             |                                  | 2805,4  | -675,88         |                |            |            |           |                      |                               |
| 3             |             |                                  | B       | 788,95          | 80,14          | 2,708      | 5,003      | 0.0023    | 74,26                |                               |
| C             |             |                                  | -477,9  | 333,34          |                |            |            |           |                      |                               |

**Tabla 8**

*Datos para la determinación del grado de desacetilación de QC.*

| N°<br>réplica | Masa<br>(g) | [NaOH]<br>(mol L <sup>-1</sup> ) | Tramo   | intercepto<br>b | pendiente<br>m | V1<br>(mL) | V2<br>(mL) | ΔV<br>(L) | %<br>NH <sub>2</sub> | % NH <sub>2</sub><br>promedio |
|---------------|-------------|----------------------------------|---------|-----------------|----------------|------------|------------|-----------|----------------------|-------------------------------|
| 1             | 0,0500      | 0,0935                           | A       | 3015,20         | -614,42        |            |            |           |                      |                               |
|               |             |                                  | B       | 823,96          | 69,21          | 3,205      | 5,782      | 0,0026    | 77,22                |                               |
|               |             |                                  | C       | -603,25         | 316,08         |            |            |           |                      |                               |
| A             |             |                                  | 3075,60 | -614,97         |                |            |            |           |                      |                               |
| 2             |             |                                  | B       | 869,47          | 71,12          | 3,216      | 5,762      | 0,0025    | 76,31                | <b>77,01</b>                  |
| C             |             |                                  | -537,80 | 315,37          |                |            |            |           |                      |                               |
| A             |             |                                  | 3003,00 | -620,11         |                |            |            |           |                      |                               |
| 3             |             |                                  | B       | 805,23          | 68,99          | 3,189      | 5,774      | 0,0026    | 77,48                |                               |
| C             |             |                                  | -613,27 | 314,64          |                |            |            |           |                      |                               |

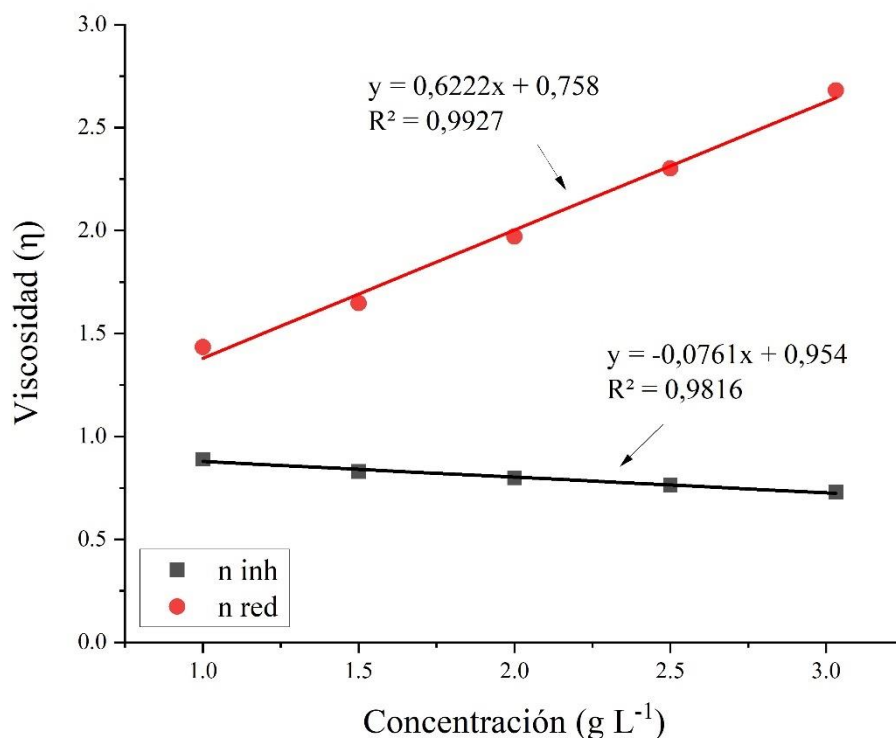
Con estos valores, se deduce que el QC presenta mayor porcentaje de grupos  $\text{-NH}_2$  disponibles en su estructura para reaccionar con el glutaraldehído, favoreciendo la formación de grupos  $\text{-NH}_3^+$  para la interacción electrostática con el ion  $\text{MoO}_4^{2-}$ , cuando se someten los polímeros al medio ácido.

#### 4.2.3. Determinación del peso molecular por el método de viscosimetría

En las figuras 22 y 23 se muestran las curvas de viscosidad-concentración implicadas en el cálculo del peso molecular viscosimétrico de QPC y QC, respectivamente, donde se trazaron los conjuntos de datos para la viscosidad reducida ( $\eta_{\text{red}}$ ) y para la viscosidad inherente ( $\eta_{\text{inh}}$ ) en función a la concentración de los quitosanos. Se realiza la regresión lineal para  $\eta_{\text{red}}$  y  $\eta_{\text{inh}}$  generando ecuaciones de la recta del tipo  $Y = mX + b$ , donde  $b$  es el valor del intercepto para cada recta ajustada. La extrapolación cuando la concentración de quitosano es cero genera el valor de  $[\eta]$  que es el promedio de los valores de  $b$  de  $\eta_{\text{red}}$  y  $\eta_{\text{inh}}$  (Czechowska-Biskup et al., 2018). Los valores de  $R^2$  presentan valores superiores a 0,98 indicando una buena correlación de la data.

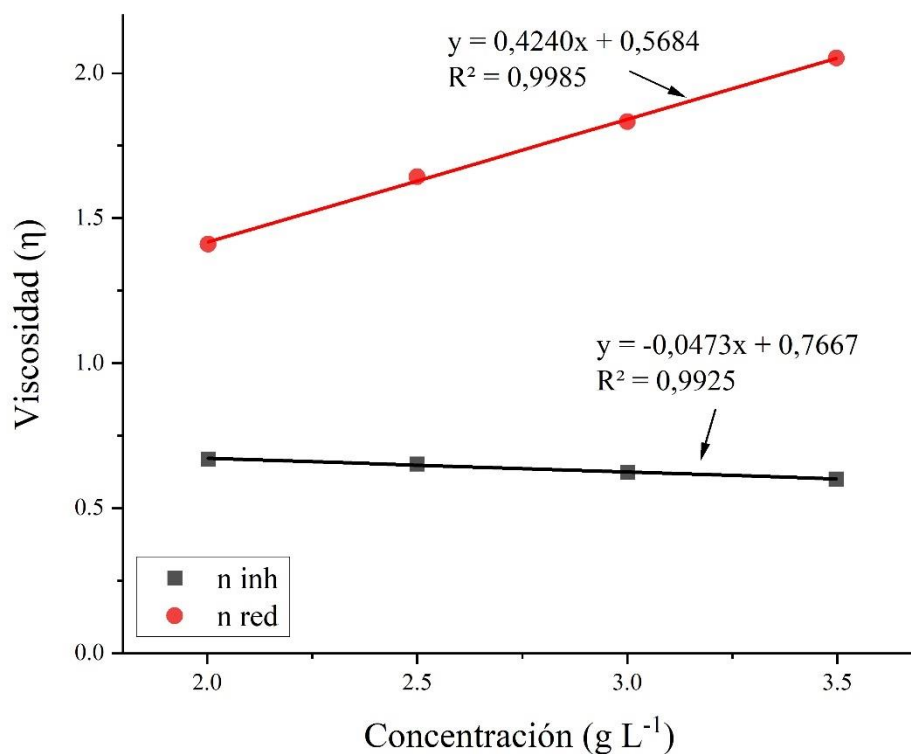
**Figura 22**

*Curvas de viscosidad vs concentración para determinar el peso molecular de QPC*



**Figura 23**

Curvas de viscosidad vs concentración para determinar el peso molecular de QC



Las tablas 9 y 10 muestran los valores obtenidos para el cálculo de  $[\eta]$  empleando las fórmulas de la tabla 4. Se ha utilizado la ecuación 5 de Mark-Houwink-Sakurada para determinar el peso molecular promedio que resulta ser de 990,72 para QPC y 722,72 para QC. Según la referencia de Kassai (2007) el peso molecular para el buffer escogido oscila desde 25 a 2220 kDa haciendo coherente los resultados obtenidos y clasificando a los quitosanos con peso molecular medio.

**Tabla 9**

Valores implicados en la determinación de la viscosidad intrínseca para QPC

| Concentración<br>(g L <sup>-1</sup> ) | Tiempo<br>promedio<br>(s) | $\eta_r$ | $\eta_{sp}$ | $\eta_{red}$ | $\eta_{inh}$ | $[\eta]$ | $M_v$<br>(kDa) |
|---------------------------------------|---------------------------|----------|-------------|--------------|--------------|----------|----------------|
| 0,0000                                | 197,48                    | 1,0000   | 0,0000      |              |              |          |                |
| 1,0000                                | 480,53                    | 2,4333   | 1,4333      | 1,4333       | 0,8893       |          |                |
| 1,5000                                | 685,37                    | 3,4706   | 2,4706      | 1,6471       | 0,8296       |          |                |
| 2,0000                                | 975,55                    | 4,9401   | 3,9401      | 1,9700       | 0,7987       | 0,85645  | <b>990,72</b>  |
| 2,5000                                | 1333,55                   | 6,7530   | 5,7530      | 2,3012       | 0,7640       |          |                |
| 3,0320                                | 1802,45                   | 9,1274   | 8,1274      | 2,6806       | 0,7293       |          |                |

**Tabla 10***Valores implicados en la determinación de la viscosidad intrínseca para QC*

| Concentración<br>(g L <sup>-1</sup> ) | Tiempo<br>promedio<br>(s) | $\eta_r$ | $\eta_{sp}$ | $\eta_{red}$ | $\eta_{inh}$ | $[\eta]$ | Mv<br>(kDa)   |
|---------------------------------------|---------------------------|----------|-------------|--------------|--------------|----------|---------------|
| 0,000                                 | 190,5940                  | 1,0000   | 0,0000      |              |              |          |               |
| 2,0030                                | 729,1160                  | 3,8255   | 2,8255      | 1,4106       | 0,6698       |          |               |
| 2,4997                                | 973,4360                  | 5,1074   | 4,1074      | 1,6431       | 0,6524       | 0,66755  | <b>722,72</b> |
| 3,0005                                | 1238,4425                 | 6,4978   | 5,4978      | 1,8323       | 0,6237       |          |               |
| 3,4972                                | 1558,3525                 | 8,1763   | 7,1763      | 2,0520       | 0,6008       |          |               |

**4.2.4. Espectro infrarrojo FT-IR**

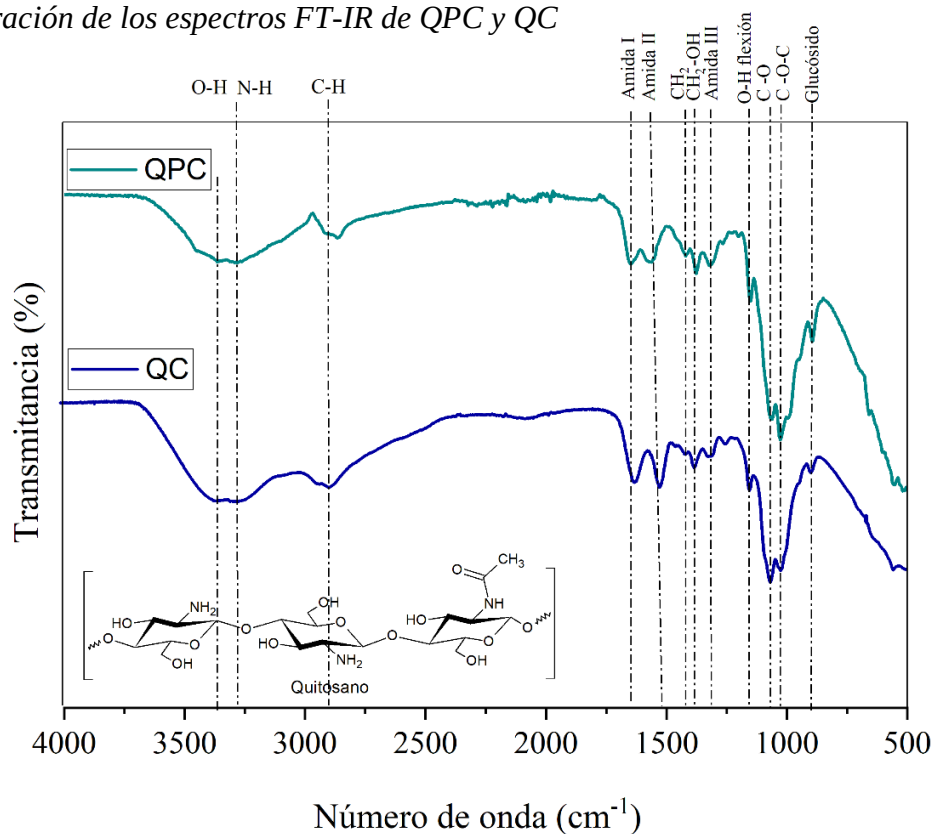
La figura 24 muestra una comparación de los espectros FT-IR de QPC y QC con bandas características de 3600-3200 cm<sup>-1</sup> que se atribuyen a la vibración de estiramiento de O-H y N-H primarias (Mincke et al., 2019). Las bandas de 2930-2880 cm<sup>-1</sup> corresponden a la vibración de estiramiento del grupo C-H (Vijayalakshmi et al., 2016). La banda a 1650 cm<sup>-1</sup> corresponde a los grupos C=O del N-acetil residual en la amida I, la banda a 1550 cm<sup>-1</sup> se le atribuye a la flexión N-H en la amida II y 1320 cm<sup>-1</sup> corresponde al estiramiento C-N en la amida III (Dong et al., 2001; Hermiyati et al., 2019). La banda a 1420 cm<sup>-1</sup> se atribuye a la flexión de CH<sub>2</sub> y 1378 cm<sup>-1</sup> se atribuye a CH<sub>2</sub>-OH o las deformaciones simétricas de CH<sub>3</sub> (Yasmeen et al., 2016). La banda a ~1260 cm<sup>-1</sup> hace referencia a la flexión O-H del quitosano (Queiroz et al., 2015). Además, las bandas de 1200-1020 cm<sup>-1</sup> corresponden a la vibración de estiramiento de los grupos C-O y C-O-C (Shavandi et al., 2016). La banda de 900-870 cm<sup>-1</sup> se atribuye a la absorción del β-(1,4) glucosídico en el quitosano (Abdelmalek et al., 2017).

Por otra parte, las bandas a ~1630 cm<sup>-1</sup> aparecen solo si el grado de desacetilación es superior al 50 % y alrededor de 1115 cm<sup>-1</sup> solo si es inferior al 50%; tanto para QPC y QC se evidencian bandas de 1640 y 1639 cm<sup>-1</sup>, respectivamente y no se observan bandas presentes alrededor de 1115 cm<sup>-1</sup>; esto confirma un valor superior de 50 % para el grado de desacetilación en las muestras (Dong et al., 2001). La tabla 11 muestra una comparación entre los picos de las señales FT-IR de QPC y QC evidenciando la obtención del quitosano a partir de la pluma de calamar y confirmando que se trata de la molécula en mención.



**Figura 24**

*Comparación de los espectros FT-IR de QPC y QC*



**Tabla 11**

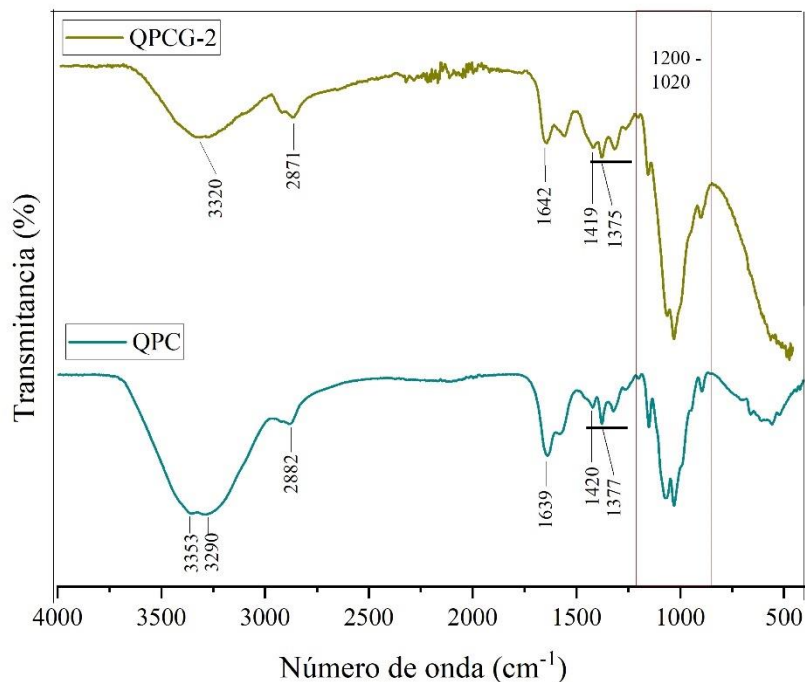
*Resumen de las bandas de absorción en FT-IR para QPC y QC*

| Número de onda (cm <sup>-1</sup> ) | Asignación             | QPC<br>Número de onda (cm <sup>-1</sup> ) | QC<br>Número de onda (cm <sup>-1</sup> ) |
|------------------------------------|------------------------|-------------------------------------------|------------------------------------------|
| 3600 - 3200                        | O-H                    | 3353                                      | 3356                                     |
| 3450 - 3200                        | N-H                    | 3290                                      | 3275                                     |
| 2930 - 2880                        | C-H                    | 2882                                      | 2882                                     |
| 1630                               | amidas I               | 1639                                      | 1629                                     |
| 1550                               | amidas II              | 1578                                      | 1544                                     |
| 1320                               | amidas III             | 1321                                      | 1319                                     |
| 1420                               | CH <sub>2</sub>        | 1420                                      | 1419                                     |
| 1378                               | CH <sub>2</sub> -OH    | 1377                                      | 1378                                     |
| 1260                               | O-H                    | 1260                                      | 1253                                     |
| 1200 - 1020                        | C-O                    | 1150                                      | 1151                                     |
|                                    | C-O-C                  | 1065                                      | 1065                                     |
|                                    |                        | 1030                                      | 1023                                     |
| 900 - 870                          | β-(1,4)<br>glucosídico | 895                                       | 896                                      |

Se ha seleccionado un polímero entrecruzado con glutaraldehído derivado de quitosano de pluma de calamar y uno derivado del quitosano comercial para compararlos con sus respectivos quitosanos prístinos. Las figuras 25 y 26 corresponden a las comparaciones entre QPC con QPCG-2 y QC con QCG-2, respectivamente.

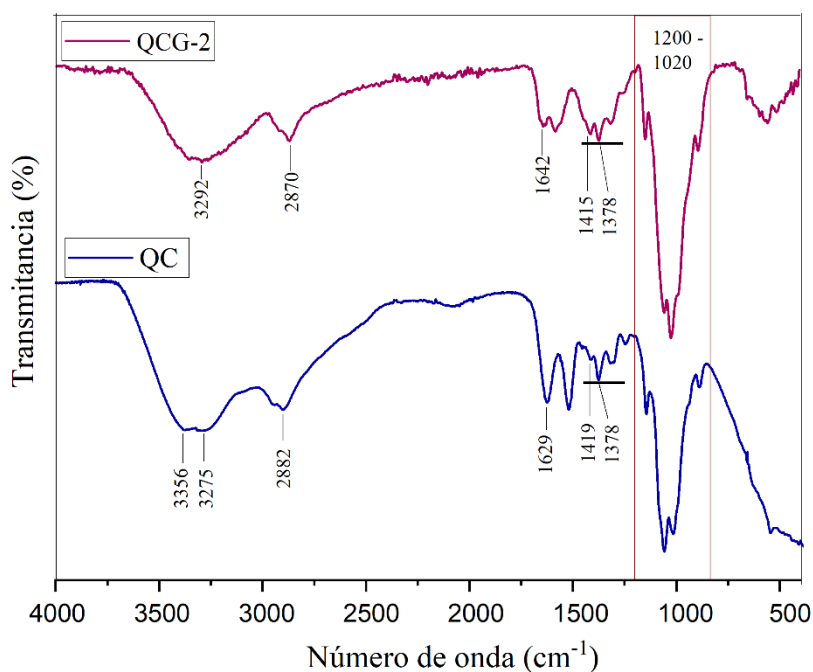
**Figura 25**

*Comparación de los espectros FT-IR de QPC y QPCG-2*



**Figura 26**

*Comparación de los espectros FT-IR de QC y QCG-2*



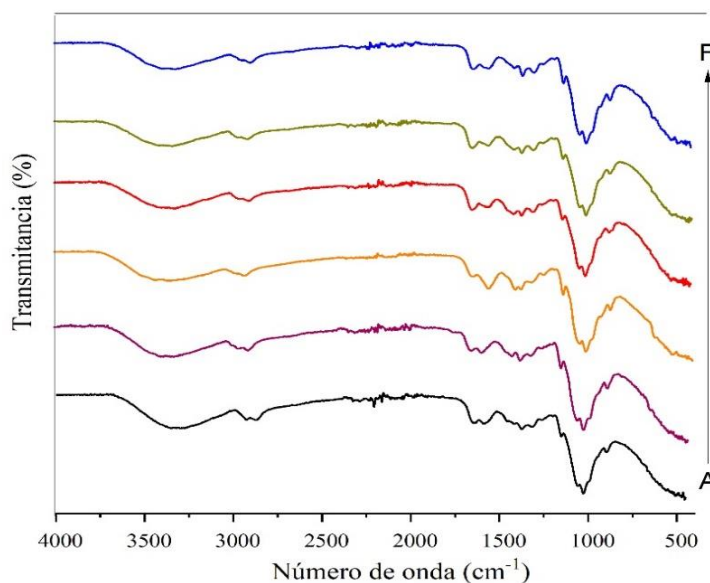
Los polímeros entrecruzados presentan una disminución de intensidad en las bandas de O-H y N-H primarias de  $3600\text{-}3200\text{ cm}^{-1}$  debido a que en el entrecruzamiento con glutaraldehído los grupos amino reaccionan con los aldehído del glutaraldehído formando bases de Schiff; así como se ha detallado en la figura 4, para las posibles reacciones involucradas en el entrecruzamiento. Por tal motivo, se observa una sola banda a  $3320\text{ cm}^{-1}$  para QPCG-2 (figura 25) y  $3292\text{ cm}^{-1}$  para QCG-2 (figura 26) probablemente por la vibración de estiramiento de N-H primarias que se traslapa sobre la banda de menor intensidad de los grupos -OH que están presentes sin reaccionar en C6 de la estructura del quitosano. También, se ha observado una mayor intensidad de las bandas de  $1200\text{ a }1020\text{ cm}^{-1}$  de QPCG-2 y QCG-2, esto podría atribuirse a la ruptura de algunos acetales entre los monómeros debido al medio ácido.

La incorporación del glutaraldehído adiciona enlaces -CH<sub>2</sub> en los polímeros entrecruzados, incrementando el pico a  $1422\text{ cm}^{-1}$  que se asigna a la flexión -CH<sub>2</sub> en QPC y QC. Cabe mencionar que cuando dos sustancias reaccionan entre sí, se presentan desplazamientos en los picos espectrales característicos (Ramasubramaniam et al., 2014), en todos los picos mencionados se ha observado ligeros desplazamientos de su número de onda luego del entrecruzamiento con glutaraldehído en comparación a los quitosanos sin modificación, concluyendo que se han generado los polímeros de quitosano entrecruzados con glutaraldehído.

El entrecruzamiento de QPC y QC con glutaraldehído a las diferentes concentraciones de 50, 40 y 25 % generaron los seis polímeros. Los espectros son similares ya que poseen los mismos grupos funcionales y se adjunta la figura 27 corroborando los espectros FT-IR obtenidos para cada una de las muestras.

**Figura 27**

*Comparación de los espectros FT-IR de los seis polímeros sintetizados*



*Nota:* Espectro de los polímeros después del entrecruzamiento con glutaraldehído, como se indica a continuación: A) QCG-1, B) QCG-2, C) QCG-3, D) QPCG-1, E) QPCG-2 y F) QPCG-3.

#### **4.2.5. Caracterización por Difracción de rayos x (DRX)**

La tabla 12 presenta los porcentajes de cristalinidad de las muestras que otorgan valores de 53,94 % para QPC y 57,87 % para QC que han sido calculados mediante la ecuación 6; corroborando lo reportado en la literatura.

**Tabla 12**

*Porcentajes de cristalinidad calculados para QPC y QC*

| Muestras   | Área 10 | Área 20 | Área total | Porcentaje de cristalinidad (%) |
|------------|---------|---------|------------|---------------------------------|
| <b>QPC</b> | 1580,52 | 5420,09 | 12976,15   | 53,94                           |
| <b>QC</b>  | 1584,35 | 6671,63 | 14266,05   | 57,87                           |

Donde: Área 10: es el área bajo el  $2\theta \approx 10^\circ$  y Área 20: es el área bajo el  $2\theta \approx 20^\circ$ .

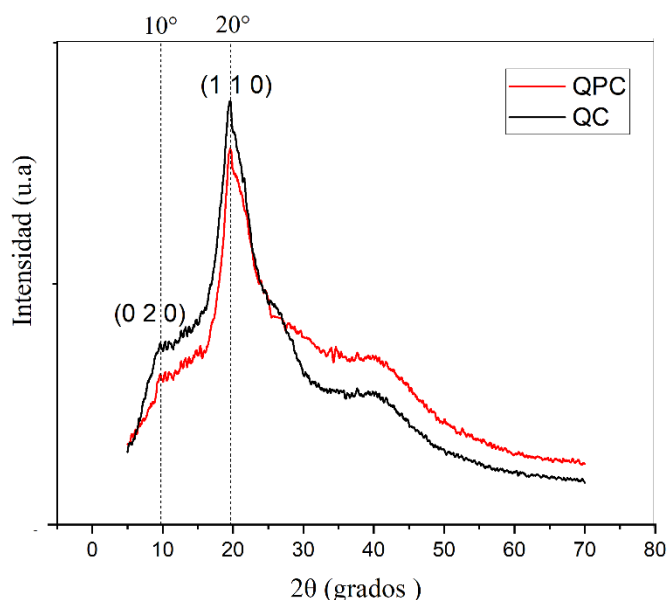
Además, el grado de cristalinidad del quitosano está relacionado a su grado de desacetilación: a mayor grado de desacetilación, mayor será su cristalinidad. En la tabla 6, se determinó un mayor grado de desacetilación para QC, siendo congruente con su valor superior para el grado de cristalinidad en comparación a QPC. Esto se relaciona a

que los monómeros de quitosano con mayor grado de desacetilación presentan menor contenido de grandes grupos acetilos que promueven la flexibilidad de las cadenas para interaccionar mediante fuerzas de puente de hidrógeno favoreciendo su cristalinidad (L. O. Ahmad et al., 2015).

La figura 28 corresponde a los patrones DRX de QPC y QC; donde se observan los halos característicos de  $2\theta \approx 9-10^\circ$  por la difracción de red (0 2 0) y de  $2\theta \approx 19-20^\circ$  por la difracción de red (1 1 0) siendo este último de mayor intensidad. El primer halo se atribuye a la secuencia del N-acetil-glucosamina y el segundo es asignado por la secuencia de N-glucosamina en la cadena polimérica (Karava et al., 2020; Moussout et al., 2016; Raut et al., 2016). Según la literatura, el quitosano exhibe un porcentaje de cristalinidad de 38 a 80 % (Pires et al., 2014; Yuan et al., 2011).

### Figura 28

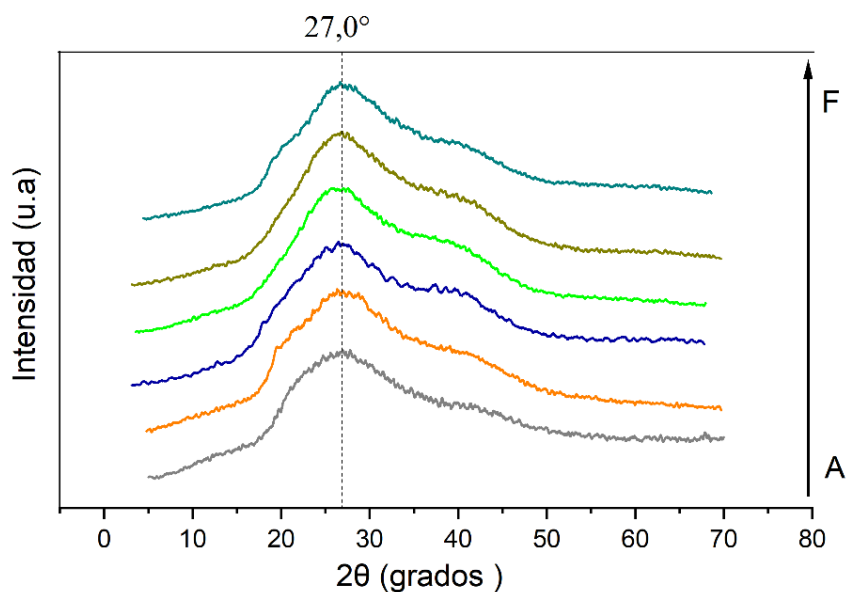
*Comparación de los patrones DRX de QPC y QC*



De igual manera, se analizó el comportamiento estructural de los quitosanos después del entrecruzamiento con glutaraldehído. En la figura 29, se han comparado los seis polímeros evidenciando la similitud entre ellos

**Figura 29**

*Comparación de los patrones DRX de los seis polímeros sintetizados*

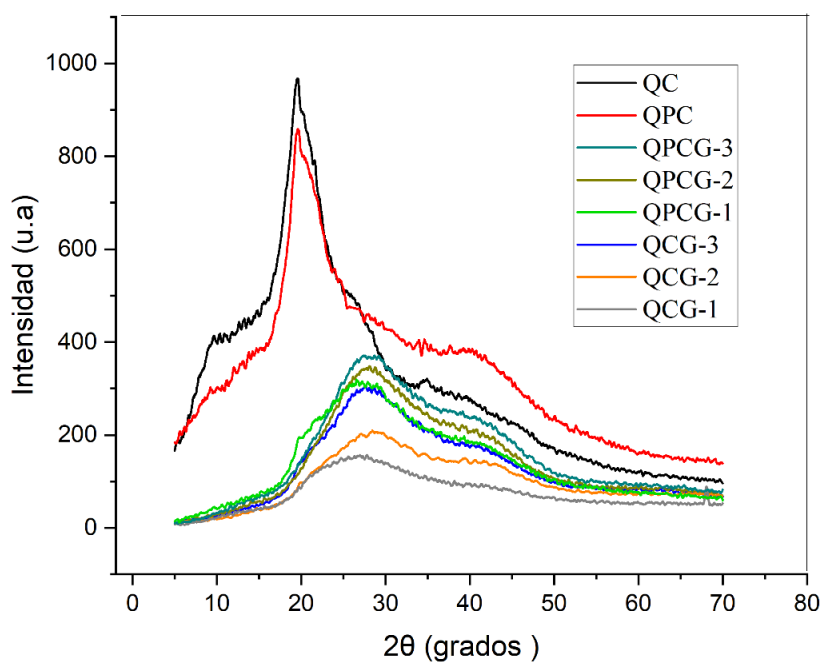


Nota: Patrones DRX de A) QCG-1, B) QCG-2, C) QCG-3, D) QPCG-1, E) QPCG-2 y F) QPCG-3.

En la figura 30, se evidencia el cambio estructural antes y después del entrecruzamiento observándose la desaparición del halo de  $2\theta \approx 10^\circ$  en comparación a los patrones de difracción de QPC y QC.

**Figura 30**

*Comparación de los patrones DRX antes y después del entrecruzamiento con glutaraldehído*



Se observó una disminución de intensidad, ensanchamiento y un desplazamiento del halo de  $2\theta \approx 20^\circ$  hasta  $27^\circ$ , también la disminución de intensidad y ensanchamiento en el halo de  $2\theta \approx 40^\circ$  (Shameen Hasan, 2019), los cuales podrían corresponder a la deformación de los puentes de hidrógeno en el quitosano por la sustitución de los grupos -OH destruyendo las regiones cristalinas originadas por el empaquetamiento de las cadenas de quitosano y generando la formación de quitosano-glutaraldehído amorfo (Li et al., 2013; Sarathchandiran et al., 2019).

Finalmente, se calculó el porcentaje de cristalinidad de los polímeros entrecruzados con la ecuación 6 y se determinaron los valores mostrados en la tabla 13; con ello, se evidencia que el grado de cristalinidad disminuye con la adición del agente entrecruzante de glutaraldehído (López-Cervantes et al., 2018; Mahmoudian et al., 2020; Sánchez-Machado et al., 2018), a menor grado de cristalinidad se favorece la adsorción debido a una mayor accesibilidad del adsorbato para unirse a los sitios activos del adsorbente.

**Tabla 13**

*Grados de cristalinidad calculados para los polímeros sintetizados*

| Muestras | Área 20 | Área total | Grado de cristalinidad (%) |
|----------|---------|------------|----------------------------|
| QPCG-1   | 4051,16 | 9642,50    | 42,01                      |
| QPCG-2   | 3878,99 | 8477,63    | 45,76                      |
| QPCG-3   | 3675,18 | 7661,46    | 47,97                      |
| QCG-1    | 1877,73 | 4467,67    | 42,03                      |
| QCG-2    | 3687,28 | 8169,73    | 45,13                      |
| QCG-3    | 2746,93 | 5815,64    | 47,26                      |

Donde; Área 20: es el área bajo el  $2\theta \approx 20^\circ$ .

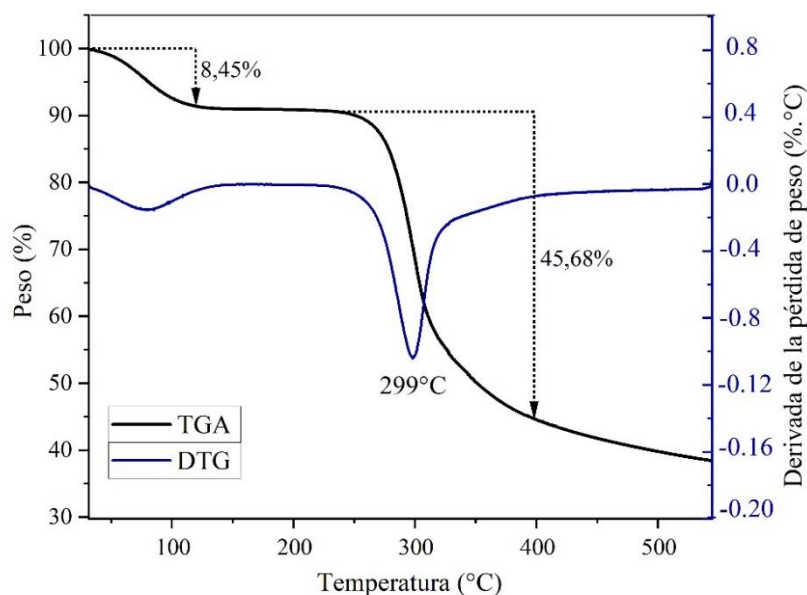
#### 4.2.6. Análisis termogravimétrico (TGA)

En la figura 31 se muestran las curvas TGA para QPC. Se tiene el paso I de 34 a  $121^\circ\text{C}$  con 8,45 % en pérdida de peso y el paso II de descomposición de 240 a  $399^\circ\text{C}$  con 45,68 % en pérdida de peso. En el caso de QC, en la figura 32 se muestra la curva TGA, se tiene el paso I de 33 a  $122^\circ\text{C}$  con 8,14 % en pérdida de peso y el paso II de descomposición de 240 a  $400^\circ\text{C}$  con 45,98 % en pérdida de peso. Además, con las curvas DTG se muestra la temperatura máxima de descomposición para QPC y QC a  $\approx 300^\circ\text{C}$

(Wang et al., 2020; Wegrzynowska-Drzymalska et al., 2020) demostrando la similitud de los quitosanos y confirmando la presencia del polímero obtenido de la pluma de *Dosidicus gigas*.

**Figura 31**

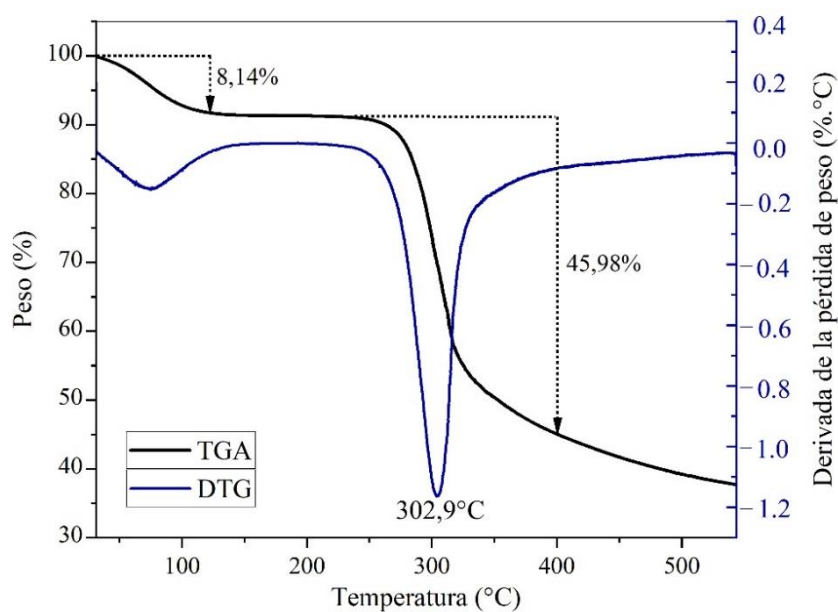
Curvas TGA y DTG para QPC



Cabe resaltar que las mínimas variaciones en pérdida de peso de los quitosanos se deben a las diferencias en el peso molecular, grado desacetilación y otros factores que intervienen en el análisis termogravimétrico (Hemalatha et al., 2014).

**Figura 32**

Curvas TGA y DTG para QC



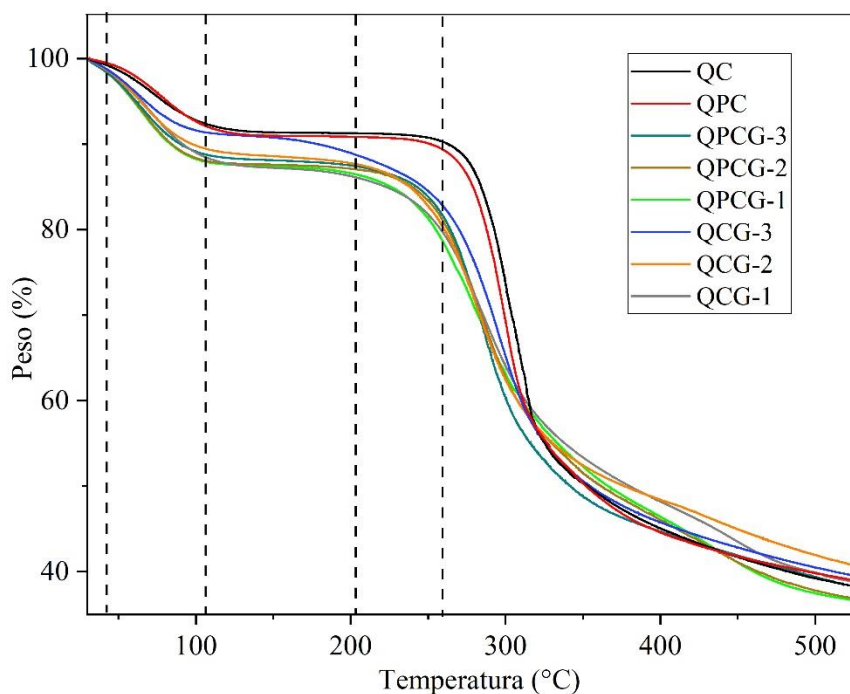


La diferencia de 3,9 °C de QPC y QC en las temperaturas máximas reportadas por la curva DTG, nos indica que el quitosano comercial presenta una ligera mayor estabilidad térmica que el quitosano obtenido de la pluma de *Dosidicus gigas*.

En la figura 33, se comparó la estabilidad térmica de los seis polímeros entrecruzados con los quitosanos antes de la modificación (QPC y QC) evidenciando que las pérdidas de peso se dan a un rango menor de temperatura en los polímeros modificados; esto se puede atribuir al efecto de la reticulación; ya que, reduce los enlaces de H intermoleculares entre los monómeros de quitosano adyacentes disminuyendo la estabilidad térmica (Beppu et al., 2007). El análisis TGA se realizó con el fin de conocer el comportamiento térmico de los polímeros para otras posibles aplicaciones, ya que en esta aplicación de adsorción no usamos calentamiento.

**Figura 33**

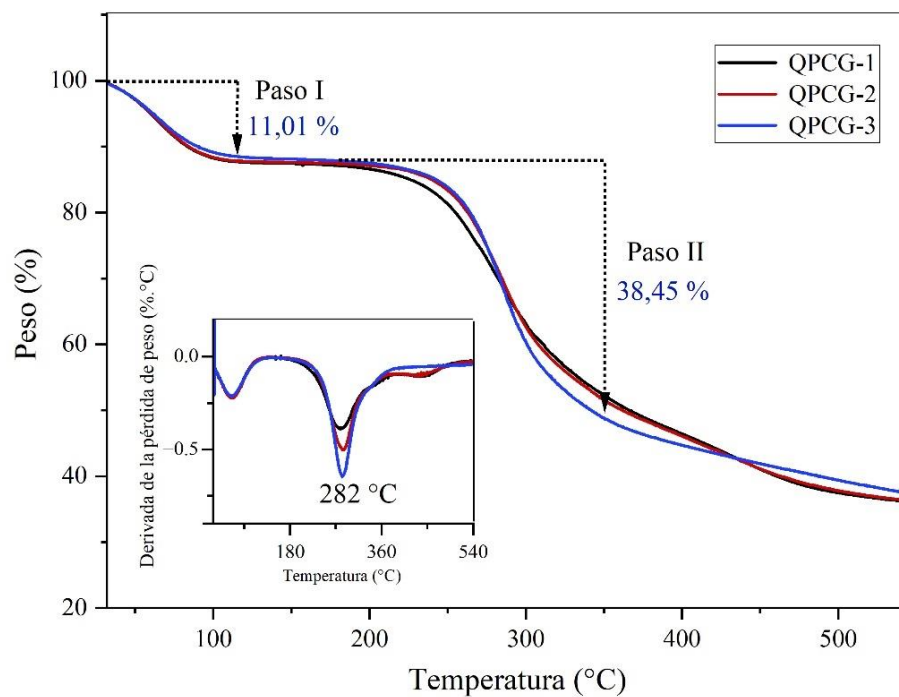
*Comparación de los termogramas antes y después del entrecruzamiento con glutaraldehído*



Las figuras 34 y 35 muestran los resultados termogravimétricos para los polímeros entrecruzados con glutaraldehído de QPCG y QCG, respectivamente.

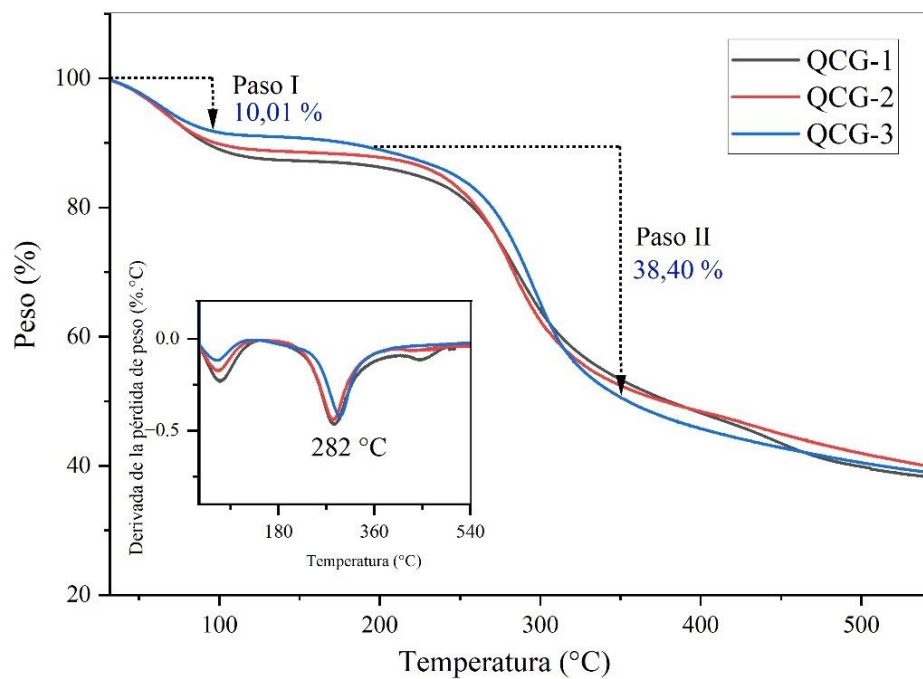
**Figura 34**

*Curvas TGA y DTG para los polímeros entrecruzados derivados de QPCG*



**Figura 35**

*Curvas TGA y DTG para los polímeros entrecruzados derivados de QCG*



En la tabla 14 se han resumido los porcentajes de pérdidas de peso en los pasos I y II para los quitosanos y sus derivados entrecruzados.

**Tabla 14**

*Resumen de los porcentajes de pérdida de peso en los polímeros analizados por TGA*

| <b>Muestra</b> | <b>Paso I</b> | <b>Paso II</b> | <b>Muestra</b> | <b>Paso I</b> | <b>Paso II</b> |
|----------------|---------------|----------------|----------------|---------------|----------------|
|                | <b>(%)</b>    | <b>(%)</b>     |                | <b>(%)</b>    | <b>(%)</b>     |
| <b>QPC</b>     | 8,45          | 45,68          | <b>QC</b>      | 8,14          | 45,98          |
| <b>QPCG-1</b>  | 11,80         | 35,64          | <b>QCG-1</b>   | 10,97         | 33,89          |
| <b>QPCG-2</b>  | 11,69         | 36,01          | <b>QCG-2</b>   | 10,39         | 35,41          |
| <b>QPCG-3</b>  | 11,01         | 38,45          | <b>QCG-3</b>   | 10,01         | 38,40          |

La deshidratación de los polímeros entrecruzados se dio a la temperatura entre 30 a 96°C y con mayores porcentajes de pérdidas de peso en comparación a los quitosanos sin modificación, indicando que los polímeros entrecruzados son más hidrofílicos, esto se puede atribuir a que el glutaraldehído tiene carácter hidrofílico y aumenta la capacidad higroscópica del quitosano. Además, debido a la carga electrostática de los grupos  $\text{-NH}_3^+$  de los polímeros entrecruzados las cadenas poliméricas se expandirían permitiendo una mayor interacción con las moléculas de agua. En el paso II, la temperatura máxima de descomposición de los polímeros entrecruzados de 282 °C es ligeramente inferior a la de los quitosanos sin modificación de  $\approx 300$  °C. Esto puede asignarse a que la incorporación del  $\text{HCl}_{(\text{cc})}$  en la síntesis de los polímeros entrecruzados hidroliza algunos enlaces glucosídicos entre las piranosas del quitosano disminuyendo la pérdida de peso a la temperatura de 180 a 350 °C (Aljbour et al., 2019).

Además, en las figuras 34 y 35 se ha observado una tendencia en los termogramas cuando se varía la concentración de la solución de glutaraldehído de 50, 40 y 25 %, donde los polímeros con mayor concentración de agente entrecruzante (QPCG-1 y QCG-1) poseen los termogramas más distantes a los quitosanos sin modificación (QPC y QC).

#### **4.2.7. Microscopía electrónica de barrido (MEB)**

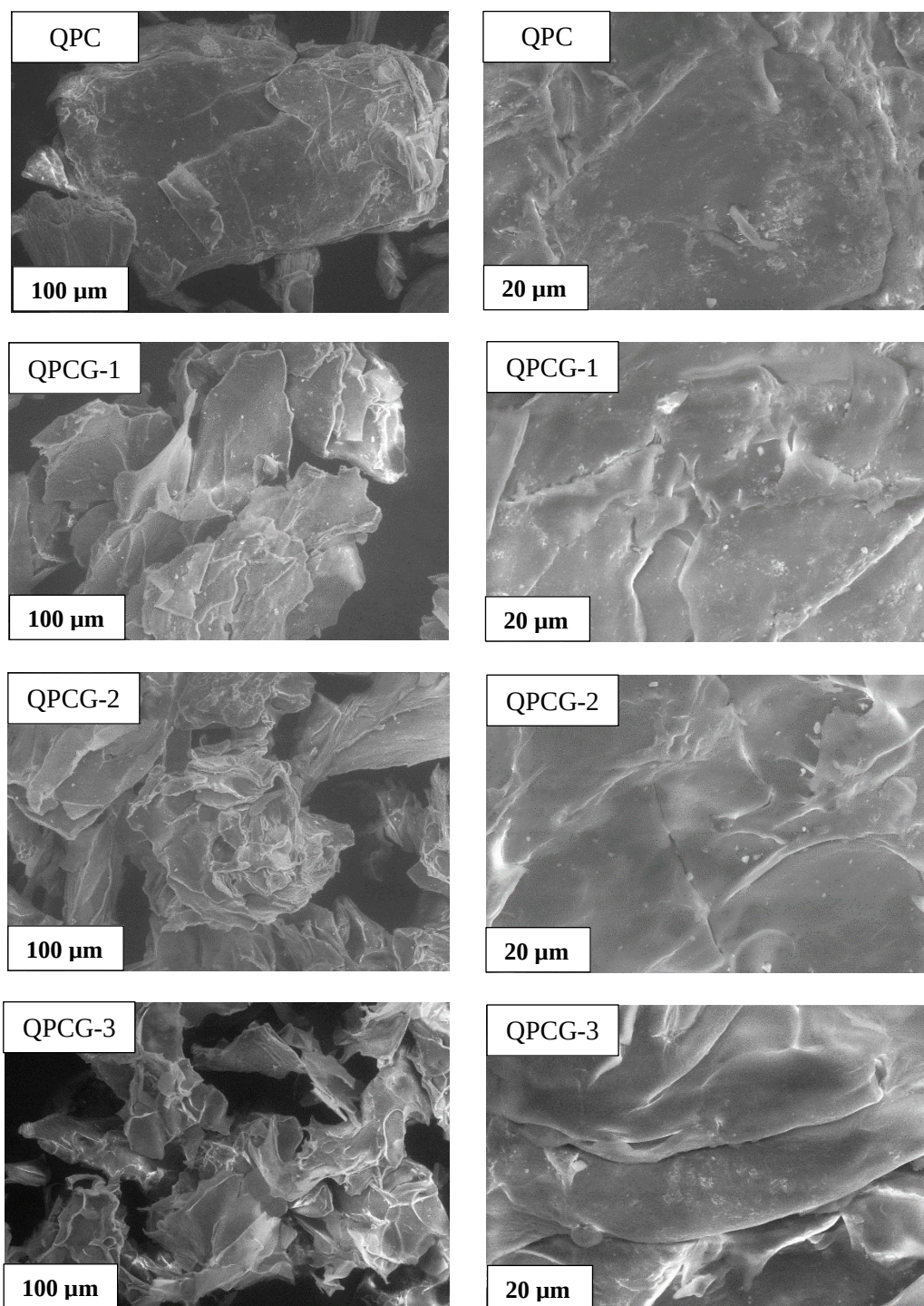
La figura 36 y 37 muestra las micrografías MEB de las muestras antes y después del entrecruzamiento con glutaraldehído en dos aumentos diferentes (250x , 1500x ). Las

imágenes MEB indicaron la diferencia en la morfología microscópica de las superficies entre los quitosanos y los polímeros entrecruzados con glutaraldehído al 50, 40 y 25 %. La literatura ha reportado para el quitosano una micrografía con superficie suave, lisa y plana; se ha observado una similitud morfológica entre QPC y QC como un material probablemente sin porosidad, liso, plano, casi circular confirmando la presencia de quitosano. Sin embargo, al aumento de 250X se observa para QPC una estructura laminada con un ligero incremento de pliegues y partículas granulares característico de un quitosano extraído de calamar (Huang & Tsai, 2020) similar a una nube (Li et al., 2013). Las diferencias morfológicas de las muestras se atribuyen al grado de desacetilación y grado de entrecruzamiento (Mirzaei B. et al., 2013)

Por otra parte, los polímeros entrecruzados con glutaraldehído exhiben superficies ásperas, con mayor rugosidad y pliegues por la incorporación del agente entrecruzante (Galan et al., 2021) dando lugar a que el glutaraldehído ha reaccionado con el quitosano en la superficie y contribuye a una cinética de adsorción de pseudo segundo orden como se detalla más adelante en la tabla 17 donde se indica una adsorción de  $^{99}\text{Mo}$  por quimisorción y no por fisisorción ; ya que, las micrografías a los aumentos de 1500X para los polímeros sintetizados no muestran materiales con porosidad.

**Figura 36**

*Micrografías MEB de QPC y derivados*

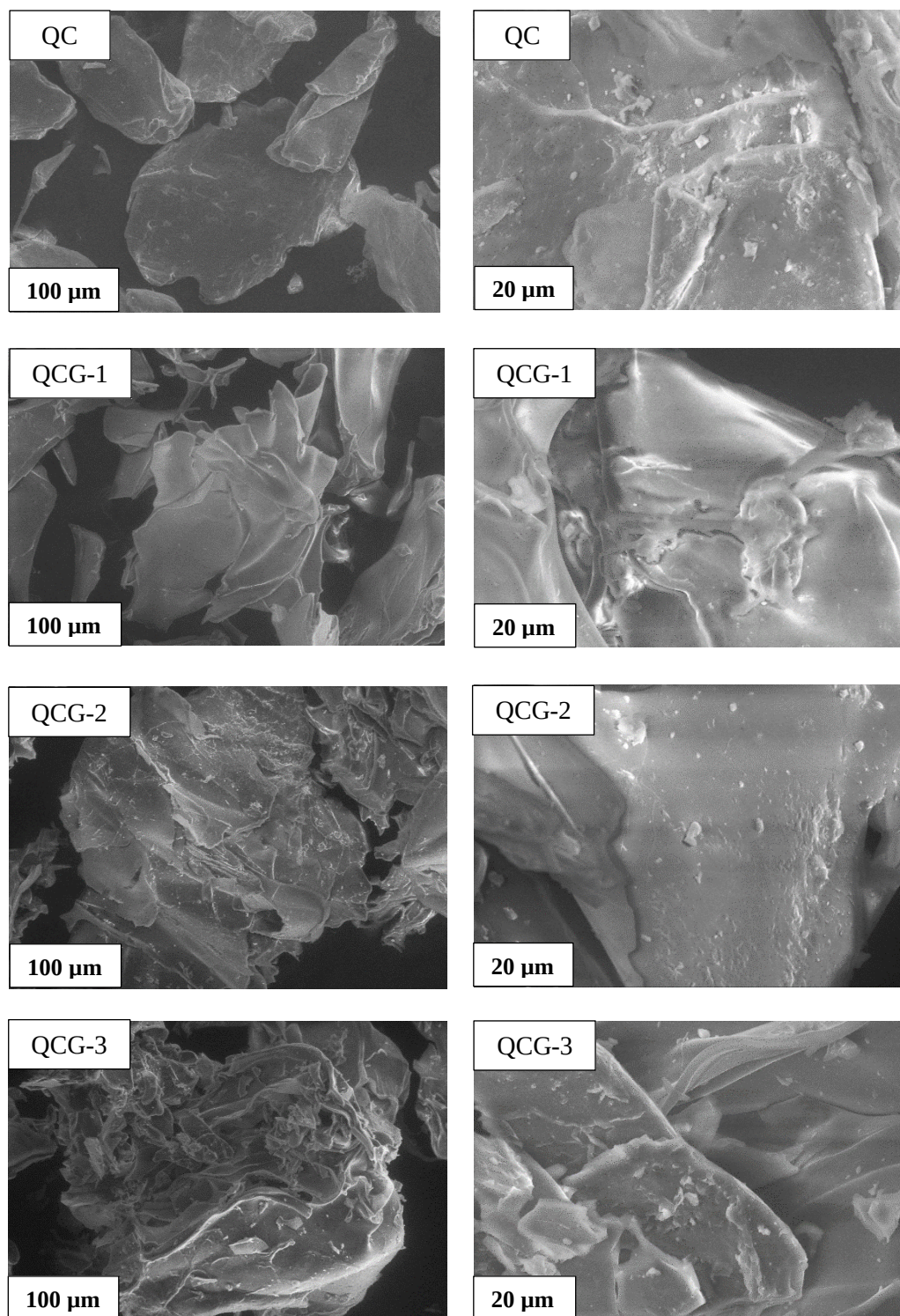


Nota: Micrografías de las muestras a los aumentos de 250X y 1500X.



**Figura 37**

*Micrografías MEB de QC y derivados*

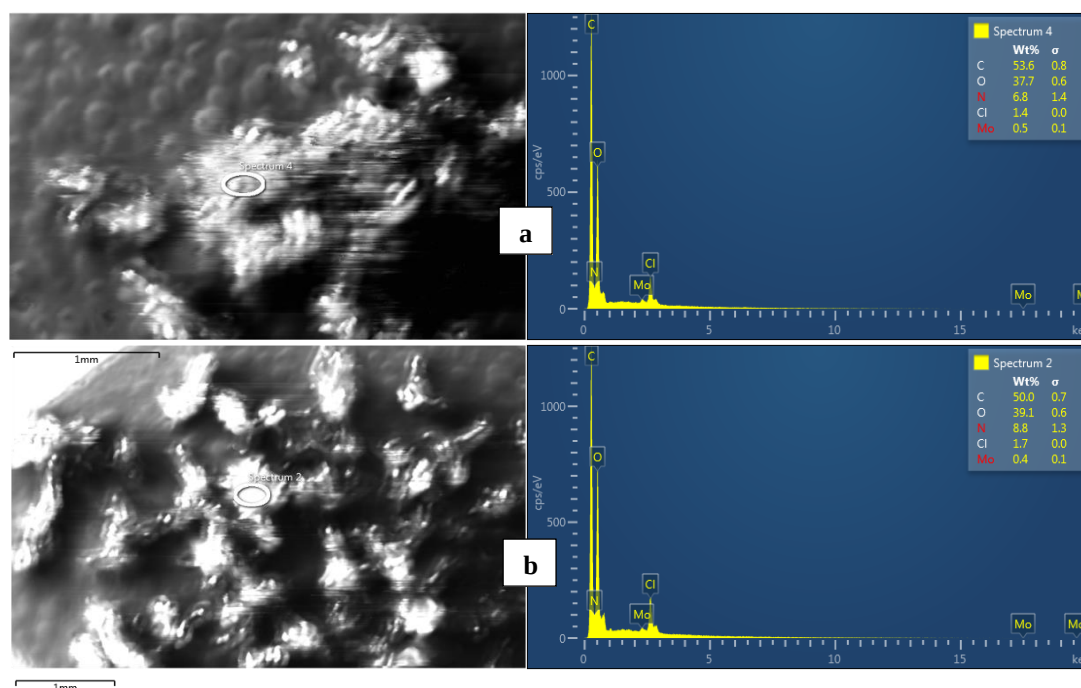


Nota: Micrografías de las muestras a los aumentos de 250X y 1500X.

Posteriormente, el análisis MEB-EDS confirmó la adsorción de molibdeno (Mo) por los polímeros de QPCG-2 y QCG-3 como se muestra en la figura 38. Las micrografías presentan un color brillante que evidencia la presencia de Mo adsorbido. En el análisis EDS se hace incidir electrones acelerados a la muestra que tienen la energía necesaria para arrancar un electrón de la capa interna atómica y dejar un agujero libre de electrón. Un electrón de la capa superior llena el agujero y emite rayos X que son propios de cada elemento (Hodoroaba, 2019), debido a esto se ha evidenciado la presencia de los picos de carbono (C), oxígeno (O), nitrógeno (N) y molibdeno (Mo), mientras que la presencia del cloro (Cl) es por el medio de trabajo a pH 2. En el análisis cualitativo de EDS, la radiación del  $^{99}\text{Mo}$  se dejó decaer por un periodo de tiempo para evitar la exposición del analista instrumental disminuyendo la concentración del metal.

**Figura 38**

*Análisis MEB-EDS de QPCG-2 y QCG-3 con adsorción de Molibdeno a pH 2*



Nota : Análisis SEM-EDS de a) QPCG-2 and b) QCG-3 con adsorción de Molibdeno a pH 2.

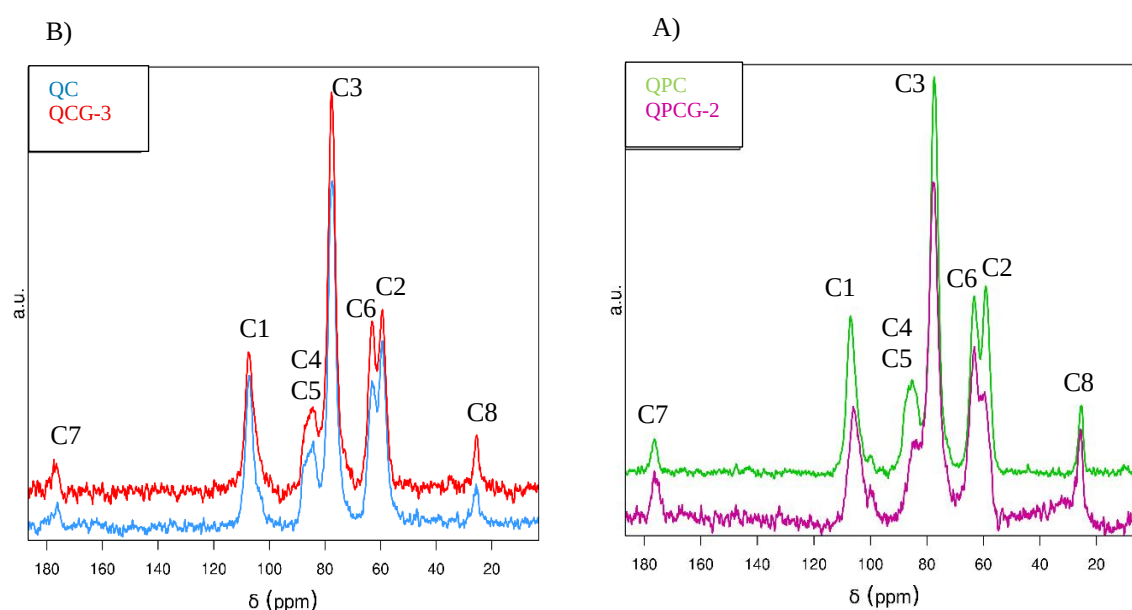
#### 4.2.8. Resonancia Magnética Nuclear de fase sólida (ssRMN)

La figura 39 muestra el espectro RMN- $^{13}\text{C}$  de QPC y QC con señales de absorbancia características de quitosanos prístinos de C7, C1, C4, C5, C3, C6, C2 y C8 a 175,2, 101,1, 81,3, 79,5, 70,5, 58,2, 53,5 y 20,2 ppm (Bandara et al., 2018; Son et al., 2021). Luego del entrecruzamiento, los cambios más evidentes de QPCG-2 y QCG-3 son

los que se dan en el C2 del quitosano (59 ppm), el que tiene unido el resto  $\text{-NH}_2$ . Esta señal, está perturbada por la reacción de las bases de Schiff entre el grupo  $\text{-NH}_2$  del quitosano y el grupo  $\text{-C=O}$  del glutaraldehído para la formación del nuevo enlace  $\text{-C=N-}$  (imina). También, se observa un ligero ensanchamiento en C1 (107 ppm) y C4 (85 ppm), podría interpretarse que, en medio ácido, los acetales se hidrolizan afectando el desplazamiento de esos carbonos. Sin embargo, no se observa una señal clara de la imina que se espera a 169 ppm como en otras investigaciones (Bradshaw et al., 2011) la intensidad relativa del carbono unido a una amina es más sensible que el unido a base de Schiff y a menor tiempo de relajación mayor es la intensidad.

### Figura 39

*Espectros RMN- $^{13}\text{C}$  de los polímeros antes y después del entrecruzamiento*



#### 4.2.9. Espectroscopía FT-Raman

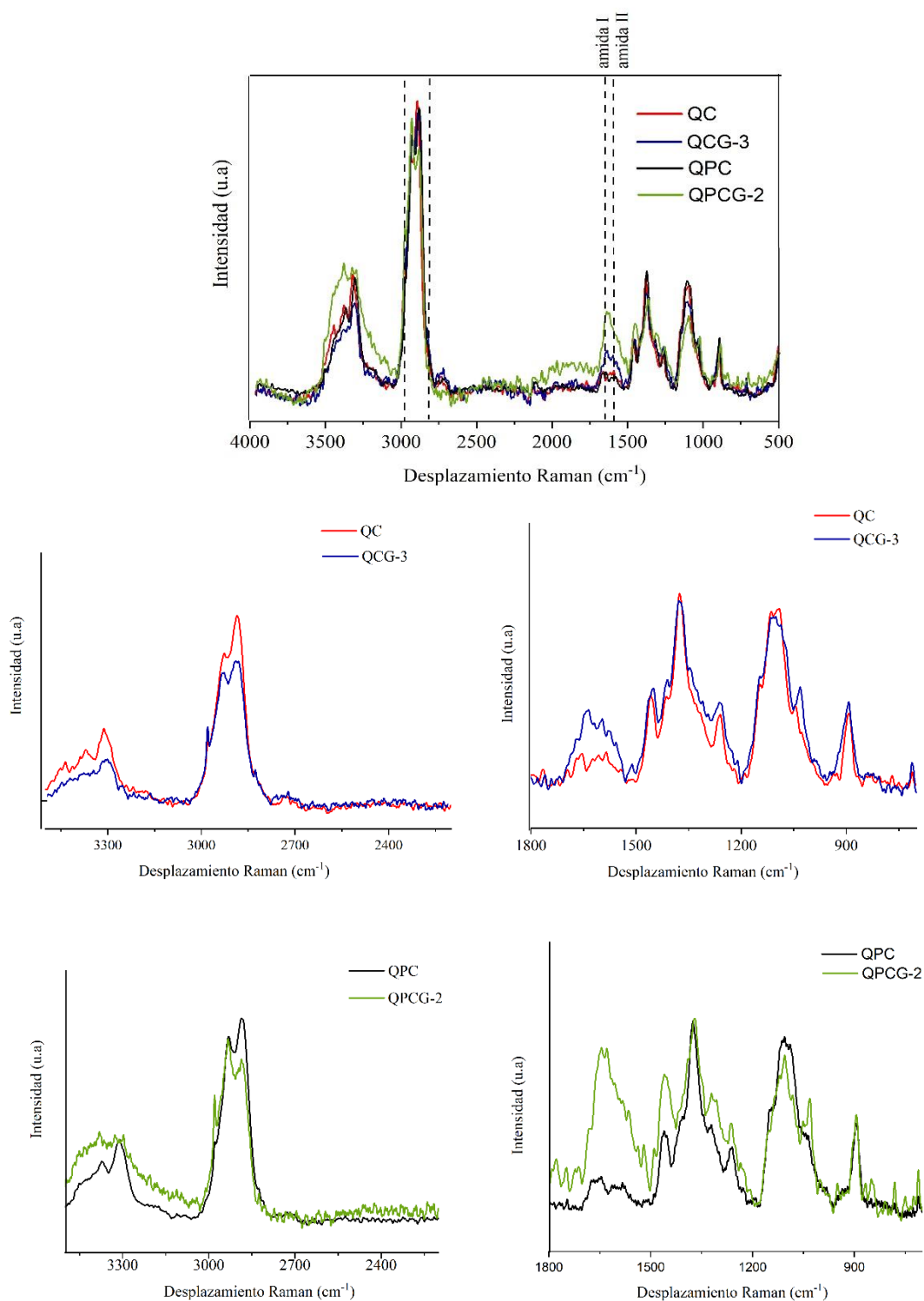
La espectroscopía Raman detecta cambios en las transiciones que son parte de la energía de una frecuencia excitante, responde a enlaces simétricos o apolares y diatómicas homonucleares que son inactivas en el FT-IR. Los rangos en los que aparecen las señales en el espectro FT-Raman son comparables al FT-IR. Las comparaciones de los espectros FT-Raman de los derivados de quitosano comercial y de pluma de calamar se observan en la figura 40. El cociente 2931/2884 aumenta luego de entrecruzamiento en ambos casos. En QPCG-2 se invierte, pero QPC ya tiene una relación 2931/2884 mayor que QC. Esto demostraría la adición de un esqueleto carbonado insaturado al material; dado que estas señales corresponden a carbonos simétricos y asimétricos que se asignan a los  $\text{-CH}_2\text{-}$  de la cadena del glutaraldehído. La zona de amida I ( $1680\text{-}1620\text{ cm}^{-1}$ ) y amida II ( $1600\text{-}$



1560  $\text{cm}^{-1}$ ), ligeramente diferenciables en los espectros de los quitosanos prístinos, se superponen por el aumento de intensidad de una señal ancha con un centro cercano a los 1640  $\text{cm}^{-1}$ . Esta estaría asociada al enlace formado (-C=N-) en el entrecruzamiento del quitosano y glutaraldehído.

**Figura 40**

*Espectros FT-Raman de los quitosanos antes y después del entrecruzamiento*



#### 4.2.10 Determinación del grado de entrecruzamiento (G.E)

La tabla 15 resume el G.E de los polímeros de quitosano entrecruzados con glutaraldehído, que han sido calculados con la ecuación 7, demostrando que a mayor concentración de glutaraldehído mayor será el entrecruzamiento.

**Tabla 15**

*Grado de entrecruzamiento de los quitosanos entrecruzados con glutaraldehído*

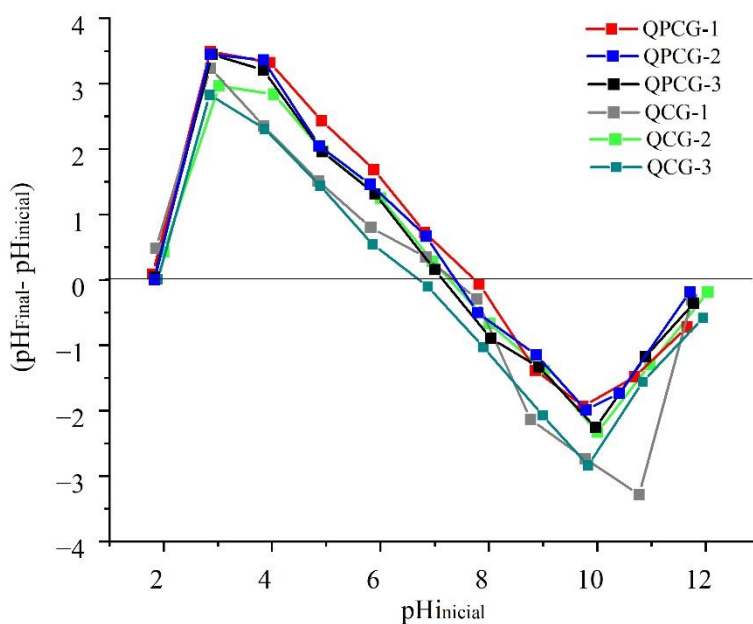
|                         | QPCG-1 | QPCG-2 | QPCG-3 | QCG-1  | QCG-2  | QCG-3  |
|-------------------------|--------|--------|--------|--------|--------|--------|
| <b>Peso inicial (g)</b> | 0,4892 | 0,5009 | 0,4306 | 0,4917 | 0,4881 | 0,4690 |
| <b>Peso final (g)</b>   | 0,4492 | 0,4478 | 0,3568 | 0,4341 | 0,4246 | 0,3791 |
| <b>% G.E</b>            | 91,83  | 89,39  | 82,87  | 88,29  | 86,99  | 80,83  |

#### 4.2.11 Análisis de punto de carga cero ( $pH_{PZC}$ ).

En la figura 41 se muestra el análisis de punto de carga cero para los polímeros de QPCG-1, QPCG-2, QPCG-3, QCG-1, QCG-2 y QCG-3 como control.

**Figura 41**

*Curvas de  $pH_{PZC}$  para los seis polímeros sintetizados*



El análisis de punto de carga cero, confirma que los polímeros presentan una carga total positiva cuando se emplean soluciones con valores de pH menores al  $pH_{PZC}$  y, por el contrario; los polímeros presentan una carga total negativa cuando se emplean

soluciones con valores de pH mayores al  $pH_{PZC}$ . Esto nos ayuda a entender la capacidad de adsorción que tienen los polímeros frente a las soluciones de  $^{99}\text{Mo}$  en el estudio de la influencia de pH. Se observó una mayor capacidad de adsorción de los polímeros a valores de pH bajos entre 2 a 4 debido a que los grupos  $-\text{NH}_2$  del quitosano se protonan hasta  $-\text{NH}_3^+$  y favorecen la interacción electrostática entre la especie cargada negativamente de  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$ ; sin embargo, la capacidad de adsorción de los polímeros disminuye a medida que aumenta el pH del medio. Los valores del  $pH_{PZC}$  se han resumido en la tabla 16.

**Tabla 16**

*Resultados del  $pH_{PZC}$  para los polímeros de QPC y QC*

| Código de polímeros | Concentración de glutaraldehído (%) | $pH_{PZC}$ |
|---------------------|-------------------------------------|------------|
| QPCG-1              | 50                                  | 8,00       |
| QPCG-2              | 40                                  | 7,61       |
| QPCG-3              | 25                                  | 7,39       |
| QCG-1               | 50                                  | 7,50       |
| QCG-2               | 40                                  | 7,26       |
| QCG-3               | 25                                  | 7,00       |

En la tabla 16 podemos observar que la concentración de glutaraldehído para la síntesis de los polímeros influye directamente en el  $pH_{PZC}$ ; se observa que a medida que disminuye la concentración de glutaraldehído desde 50% hasta 25 %, los valores de  $pH_{PZC}$  también disminuyen. Los valores obtenidos son coherentes; ya que, el valor reportado del  $pH_{PZC}$  para quitosano puro está en el rango de pH de 6,2 a 6,8 (Shameen Hasan, 2019).

#### 4.3. Factores que influyen en el proceso de adsorción de $^{99}\text{Mo}$

Las soluciones radiactivas fueron analizadas en el detector Canberra de Germanio Hiperpuro, el cual nos brinda la información necesaria de la actividad de  $^{99}\text{Mo}$  presente en las muestras para cada análisis mostrado a continuación. Se ha trabajado con 1 mL de solución radiactiva contenida en viales de 5 mL de capacidad, para cuantificar el porcentaje de adsorción de los polímeros frente a  $^{99}\text{Mo}$ .

## Figura 42

*Tipo de vial empleado en la cuantificación de actividad de  $^{99}\text{Mo}$  en el detector Canberra de Germanio Hiperpuro*



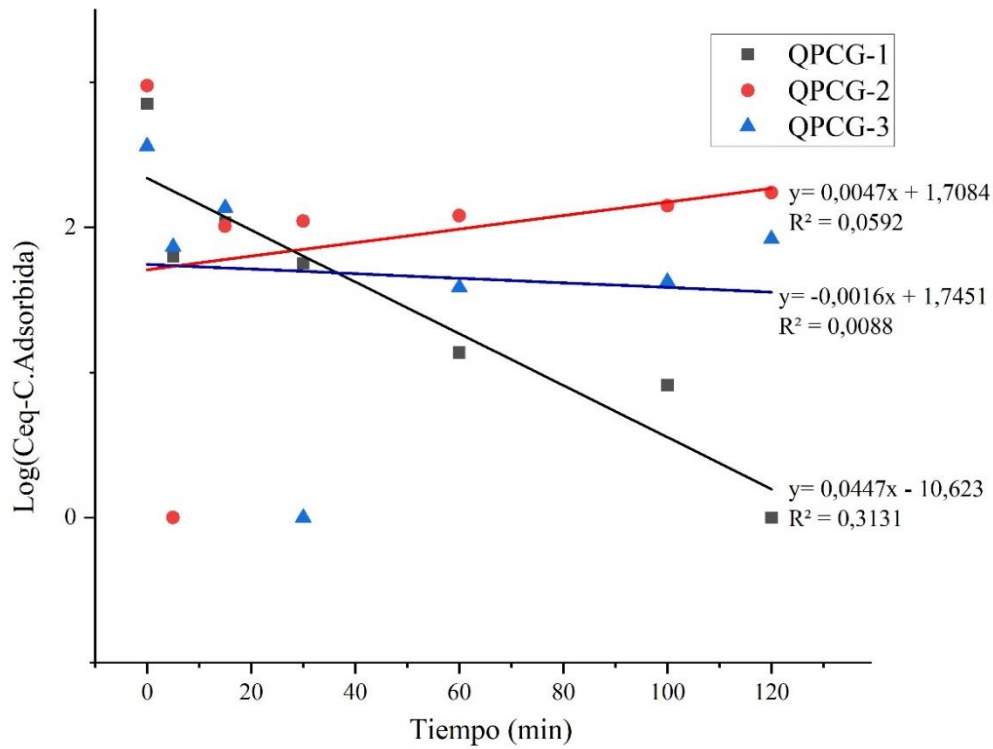
### 4.3.1. Estudio del tiempo de contacto y cinética de adsorción

Los tiempos de agitación óptimos para QPCG-1, QPCG-2, QPCG-3, QCG-1, QCG-2 y QCG-3 resultaron ser de 120, 5, 30, 60, 120 y 100 min, respectivamente. Se observa que la cantidad adsorbida de  $^{99}\text{Mo}$  aumentaba con el tiempo de contacto hasta alcanzar el equilibrio y luego disminuye levemente, este hecho puede deberse a que inicialmente los sitios de adsorción están disponibles para la adsorción de iones  $\text{MoO}_4^{2-}$ ; sin embargo, disminuye con la ocupación de los sitios activos manteniéndose casi constante la curva de adsorción para poder cuantificar el porcentaje de adsorción de los polímeros. Las tablas A.2 y A.3 (véase Anexo) exhiben los datos implicados en el cálculo.

Seguidamente, se ha estudiado la cinética de adsorción de los polímeros para conocer el mecanismo de adsorción de  $^{99}\text{MoO}_4^{2-}$ , que depende en gran medida de la interacción de las moléculas de adsorbato y adsorbente. En la figuras del 43 al 46 se evidencia que la adsorción de los polímeros está influenciada por el modelo cinético de pseudo segundo orden, pues exhibe un coeficiente de correlación  $R^2 \sim 1$  como se resume en la tabla 17 y se interpreta que los iones de  $\text{MoO}_4^{2-}$  se adsorben en la superficie de los polímeros sintetizados mediante quimisorción por enlaces iónicos o electrostáticos (Pandey, 2021). La constante  $q_e$  es la cantidad de iones de  $\text{MoO}_4^{2-}$  adsorbidos en el equilibrio en  $\mu\text{Ci g}^{-1}$ ,  $K_1$  y  $K_2$  son las constantes de velocidad, cuyos valores han sido determinados con las ecuaciones 14 y 15.

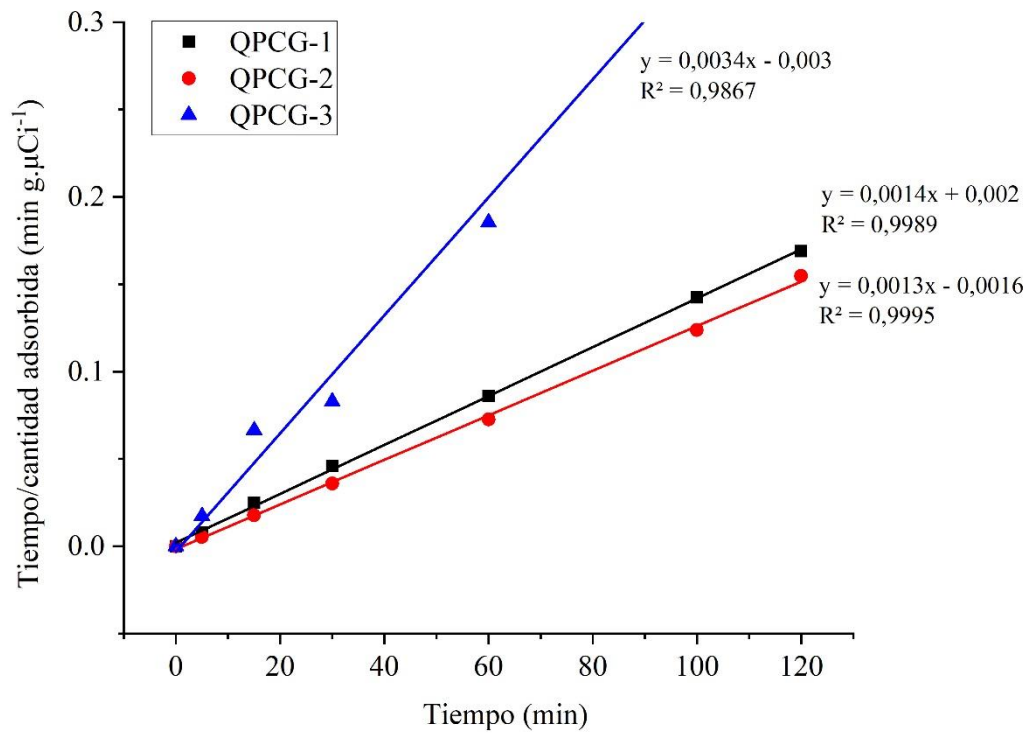
**Figura 43**

*Modelo cinético de pseudo primer orden para QPCG-1, QPCG-2 y QPCG-3*



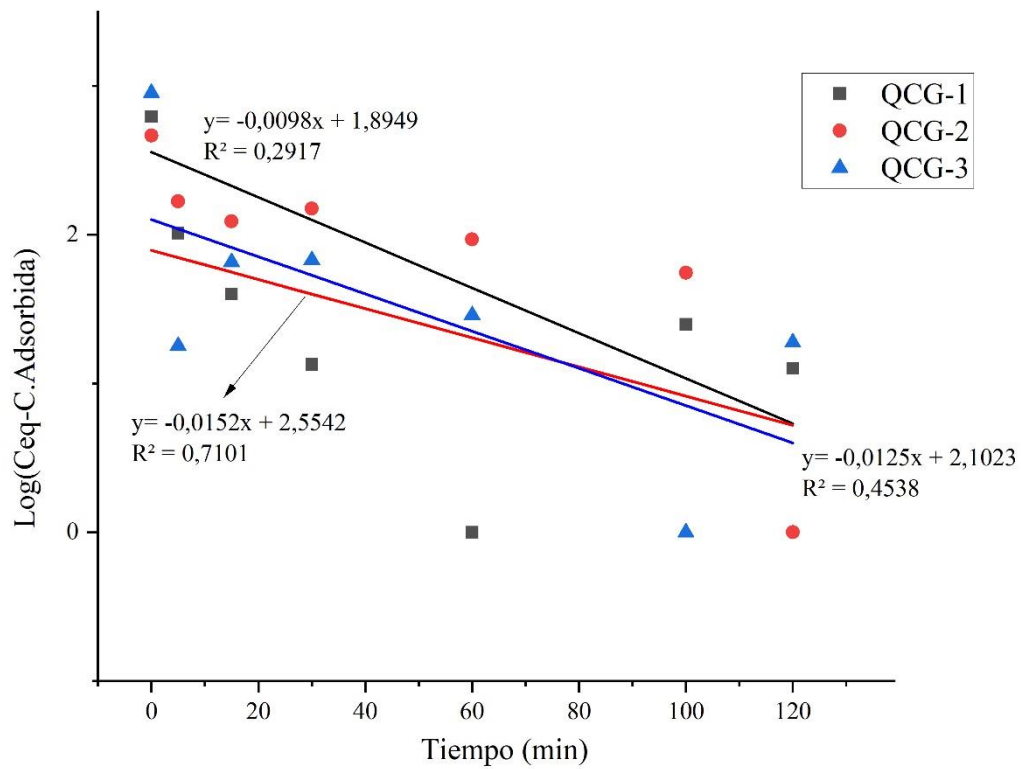
**Figura 44**

*Modelo cinético de pseudo segundo orden para QPCG-1, QPCG-2 y QPCG-3*



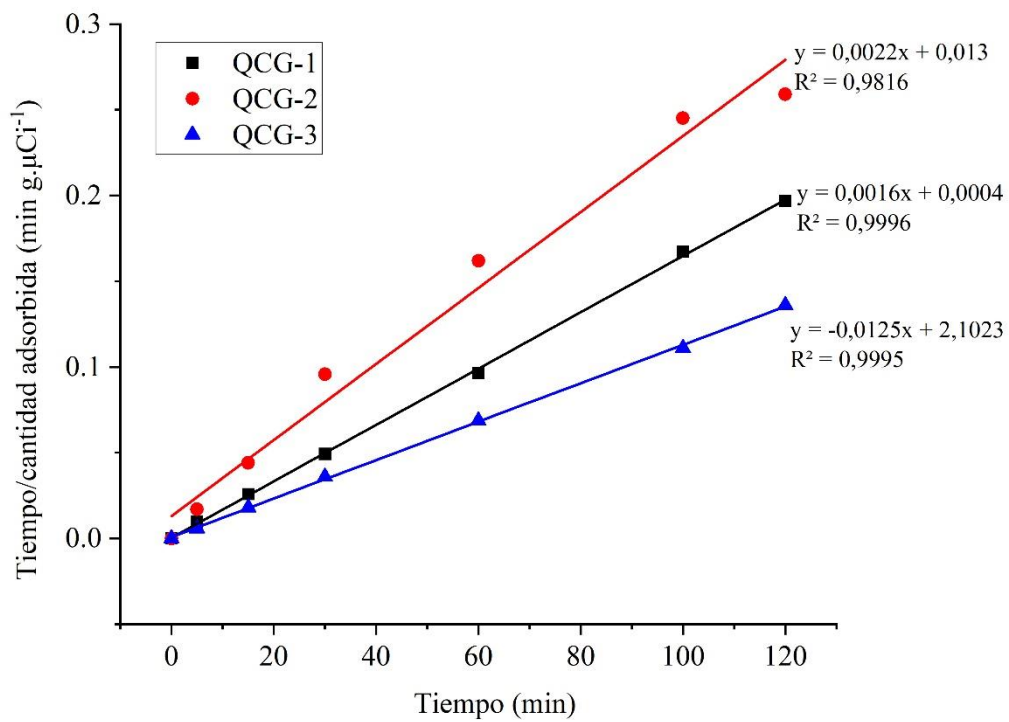
**Figura 45**

*Modelo cinético de pseudo primer orden para QCG-1, QCG-2 y QCG-3*



**Figura 46**

*Modelo cinético de pseudo segundo orden para QCG-1, QCG-2 y QCG-3*



En la tabla 17 se evidencia la mayor adsorción de QCG-3 de 891,91  $\mu\text{Ci g}^{-1}$  y de QPCG-2 de 783,77  $\mu\text{Ci g}^{-1}$  ajustándose al modelo de pseudo segundo orden.

**Tabla 17**

*Datos de pseudo primer orden y pseudo segundo orden para QPCG y QCG*

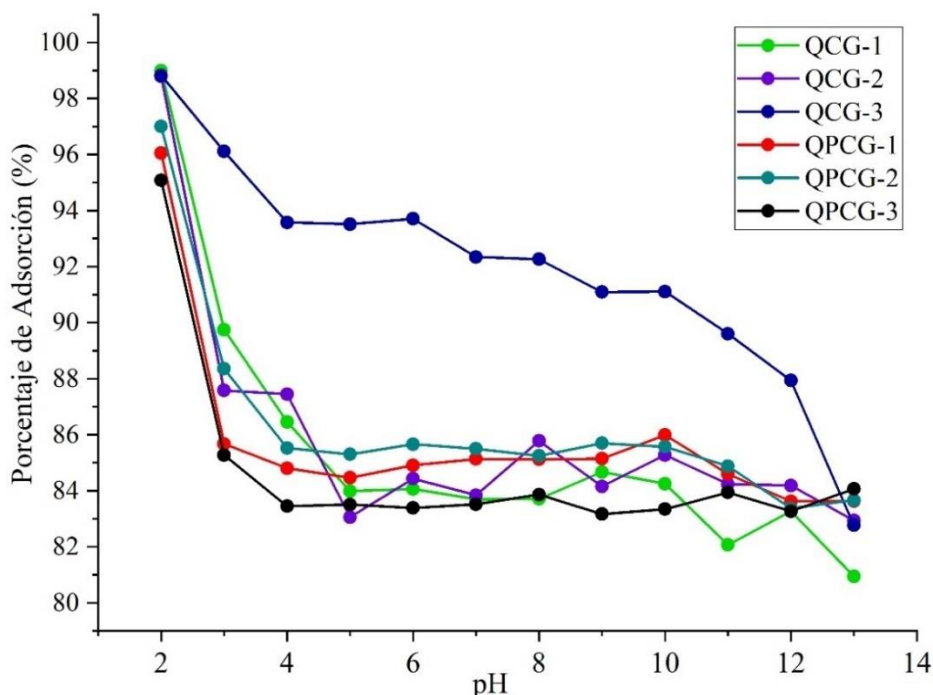
| Cinética de pseudo primer orden |                                    |                                                    |        | Cinética de pseudo segundo orden   |                                                                                |        |
|---------------------------------|------------------------------------|----------------------------------------------------|--------|------------------------------------|--------------------------------------------------------------------------------|--------|
| Código                          | $q_e$<br>( $\mu\text{Ci g}^{-1}$ ) | $K_1$<br>( $\text{min}^{-1}$ )<br>$\times 10^{-2}$ | $R^2$  | $q_e$<br>( $\mu\text{Ci g}^{-1}$ ) | $K_2$<br>( $\text{min}^{-1} \text{g } \mu\text{Ci}^{-1}$ )<br>$\times 10^{-2}$ | $R^2$  |
| <b>QPCG-1</b>                   | 218,30                             | 4,11                                               | 0,3131 | 714,51                             | 0,0986                                                                         | 0,9995 |
| <b>QPCG-2</b>                   | 51,09                              | -1,07                                              | 0,0592 | <b>783,77</b>                      | -0,1                                                                           | 0,9989 |
| <b>QPCG-3</b>                   | 55,60                              | 0,37                                               | 0,0088 | 295,83                             | 0,38                                                                           | 0,9867 |
| <b>QCG-1</b>                    | 78,50                              | 2,26                                               | 0,2917 | 608,16                             | 0,71                                                                           | 0,9996 |
| <b>QCG-2</b>                    | 358,23                             | 3,50                                               | 0,7101 | 450,93                             | 0,04                                                                           | 0,9816 |
| <b>QCG-3</b>                    | 126,57                             | 2,88                                               | 0,4538 | <b>891,91</b>                      | 0,16                                                                           | 0,9995 |

#### 4.3.2. Estudio del efecto de pH en el proceso de adsorción de $^{99}\text{Mo}$

Los polímeros se han agitado según los tiempos optimizados en el estudio de tiempo de contacto de 120, 5 y 30 min para QPCG-1, QPCG-2 y QPCG-3; así como de 60, 120 y 100 min para QCG-1, QCG-2 y QCG-3, respectivamente y se ha calculado la actividad con las ecuaciones del 8 al 10. El pH de la solución es muy importante; ya que, según el punto de carga cero obtenido previamente para los polímeros; estos van a presentar cargas positivas en soluciones de pH menor al  $\text{pH}_{\text{PZC}}$ , pero cargas negativas si el pH de la solución es mayor  $\text{pH}_{\text{PZC}}$  influyendo en la adsorción de especies negativas o positivas respectivamente. En la figura 47 se observa que para los seis polímeros entrecruzados existe un mayor porcentaje de adsorción a pH 2 que son superiores al 95% confirmando la adsorción por interacción electrostática entre los grupos  $-\text{NH}_3^+$  del quitosano en medio ácido y los iones  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$ . Estos datos son similares al propuesto por Hasan (2019) quien obtuvo mayores porcentajes de adsorción de  $^{99}\text{Mo}$  a pH 3 empleando un quitosano comercial entrecruzado con glutaraldehído al 50 %.

**Figura 47**

*Influencia del pH en la adsorción del ion  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$*



Las tablas A.4 y A.5 (véase Anexo) exhiben los datos implicados en el cálculo donde QPCG\_pH\_Bk y QCG\_pH\_Bk corresponden a la actividad inicial de una solución de  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$ .

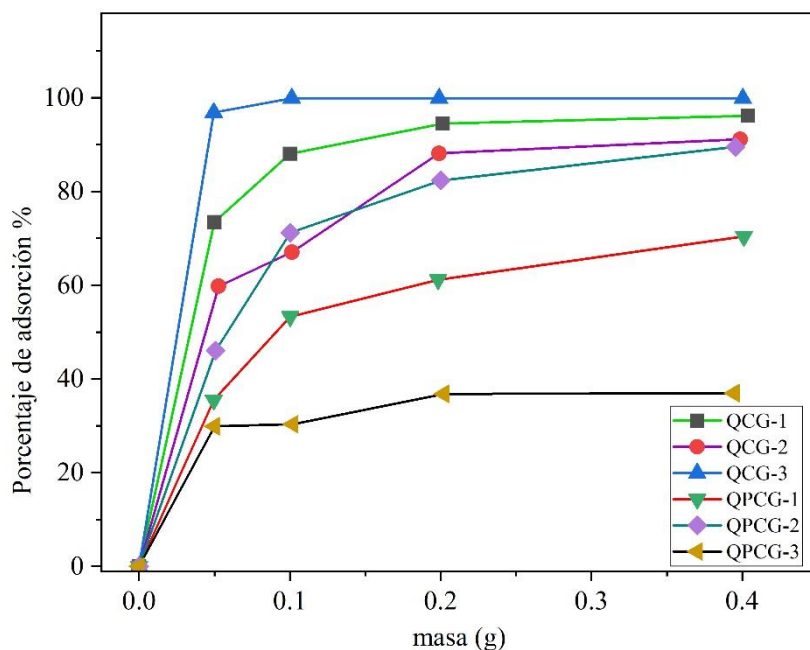
#### **4.3.3. Estudio del efecto de la variación de masa del polímero adsorbente sobre $^{99}\text{Mo}$**

La figura 48 indica que al incrementar la masa hasta los  $\sim 0,4$  g el porcentaje de adsorción también aumenta para los seis polímeros entrecruzados, respaldado en el hecho que, al existir mayor cantidad de material adsorbente, existirán mayores sitios de interacción con los iones  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$ . Los quitosanos poseen carácter policationico en medios ácidos, su capacidad para formar puentes de hidrógeno, de van der Waals e interacciones electrostáticas, lo convierten en un material adsorbente eficiente (da Silva Alves et al., 2021). Este análisis nos ayuda a conocer la relación óptima entre la masa del polímero (adsorbente) y el volumen de la solución de  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  (adsorbato) para garantizar la alta adsorción cuando se apliquen en la columna cromatográfica del generador de  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$ .



**Figura 48**

*Influencia de la masa – volumen para los polímeros entrecruzados*



Las tablas A.6 y A.7 (véase Anexo) exhiben los datos implicados en el cálculo donde QPCG\_BK\_MV y QCG\_BK\_MV corresponden a la actividad inicial de una solución de  $^{99}\text{Mo}$ . También se ha calculado la actividad resultante en cada muestra filtrada luego del tiempo de agitación óptimo de las masas correspondientes de los polímeros entrecruzados con 10 mL de solución de  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$ . En los polímeros derivados del quitosano natural se tiene mayor porcentaje de adsorción 89,6 % para los  $\sim 0,4$  g de QPCG-2. En el caso de quitosano comercial, la data exhibe valores máximos de adsorción del 99,9% para QCG-3.

#### 4.4. Estudio de la isoterma de adsorción

La tabla 18 muestra los parámetros obtenidos en el estudio de las isotermas de adsorción. Los polímeros siguen un mejor ajuste con el modelo teórico de Langmuir por presentar un  $R^2$  cercano a 1, interpretándose como los iones  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  se adsorben en forma de monocapa sobre la superficie de los polímeros de quitosano entrecruzado con glutaraldehído. La capacidad de adsorción máxima ( $q_m, L$ ) para los polímeros sintetizados oscila entre 473,123 hasta 502,964  $\text{mg g}^{-1}$ , además los valores de  $R_L$  en el rango de  $0 < R_L < 1$ , indican la adsorción favorable de los iones  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  por los polímeros entrecruzados (Abdel-Halim et al., 2006; Nandiyanto et al., 2020). La figura B.1 (véase

Anexo) muestra los cuatro modelos de isothermas generadas para los seis polímeros entrecruzados.

**Tabla 18**

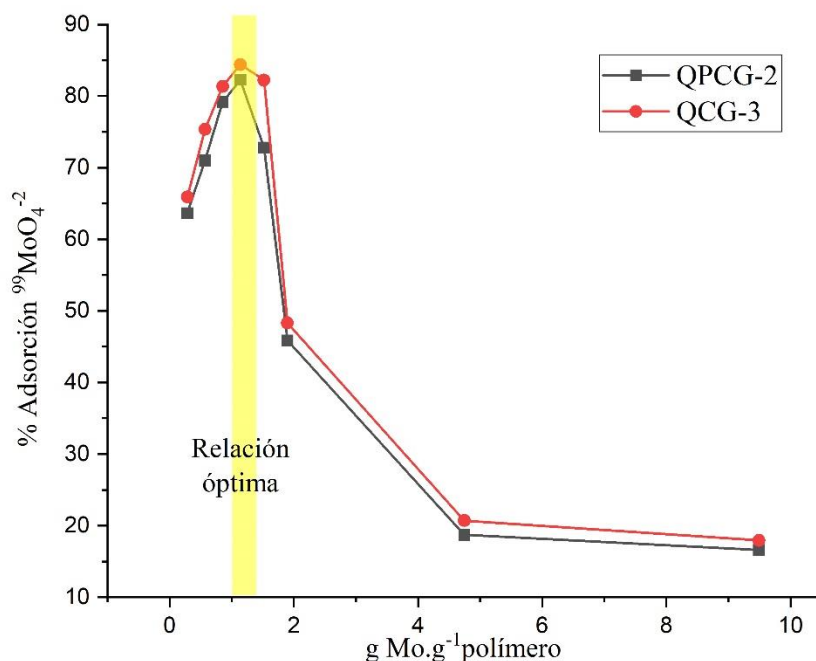
*Resumen de los valores obtenidos en los modelos de isothermas*

| Modelos de Isotherma        | Parámetros  | Unidad                                | Polímeros en estudio |          |          |          |          |          |
|-----------------------------|-------------|---------------------------------------|----------------------|----------|----------|----------|----------|----------|
|                             |             |                                       | QPCG-1               | QPCG-2   | QPCG-3   | QCG-1    | QCG-2    | QCG-3    |
| <b>Langmuir</b>             | $R^2$       | -                                     | 0,976                | 0,974    | 0,979    | 0,983    | 0,990    | 0,986    |
|                             | $q_{m,L}$   | (mg. g <sup>-1</sup> )                | 478,626              | 482,246  | 473,479  | 473,123  | 496,185  | 502,964  |
|                             | $K_L$       | (L.mg <sup>-1</sup> )                 | 0,050                | 0,045    | 0,044    | 0,082    | 0,089    | 0,066    |
|                             | $R_L$       | -                                     | 0,034                | 0,037    | 0,037    | 0,022    | 0,020    | 0,027    |
| <b>Freundlich</b>           | $R^2$       | -                                     | 0,878                | 0,880    | 0,860    | 0,897    | 0,899    | 0,878    |
|                             | $n$         | -                                     | 2,525                | 2,541    | 2,387    | 2,711    | 2,555    | 2,546    |
|                             | $K_f$       | (L.mg <sup>-1</sup> )                 | 0,705                | 0,679    | 0,716    | 0,723    | 0,824    | 0,774    |
| <b>Temkin</b>               | $R^2$       | -                                     | 0,972                | 0,966    | 0,972    | 0,981    | 0,988    | 0,985    |
|                             | $A$         | (L.mg <sup>-1</sup> )                 | 2,920                | 2,591    | 2,018    | 5,722    | 4,629    | 3,606    |
|                             | $B$         | (J.mol <sup>-1</sup> )                | 60,206               | 61,227   | 63,222   | 56,384   | 61,804   | 63,333   |
| <b>Dubinin-Radushkevich</b> | $R^2$       | -                                     | 0,905                | 0,903    | 0,884    | 0,931    | 0,936    | 0,909    |
|                             | $q_{m,D-R}$ | (mg. g <sup>-1</sup> )                | 944,083              | 919,986  | 988,562  | 919,861  | 1052,673 | 1026,58  |
|                             | $\beta$     | (mol <sup>2</sup> .KJ <sup>-2</sup> ) | 3,85E-09             | 3,86E-09 | 4.15E-09 | 3,45E-09 | 3,68E-09 | 3,78E-09 |
|                             | $E$         | (J.mol <sup>-1</sup> )                | 11397,88             | 11387,43 | 10979,76 | 12031,10 | 11656,83 | 11507,58 |

#### 4.5. Estudios de la columna cromatográfica

##### 4.5.1. Optimización para el ensamblado de la columna cromatográfica

Considerando que en la PPRR trabajan bajo la misma metodología para obtener el Na<sub>2</sub>MoO<sub>4</sub> en un proceso estandarizado, validado y reproducible cada semana que se puede seguir se siguió una serie de diluciones para determinar la relación óptima en el ensamblado de la columna, ya que se desconoce la masa inicial. La figura 49 evidencia que a mayores concentraciones el porcentaje de adsorción es del 16,61 % para QPCG-2 y 17,95 % para QCG-3, probablemente a que el sistema está muy saturado y los espacios de monocapa ya están ocupados impidiendo una mayor adsorción del ion <sup>99</sup>MoO<sub>4</sub><sup>-2</sup>. Sin embargo, a medida que la relación de dilución aumenta hasta el 1,2 mL de solución del ion <sup>99</sup>Mo en 10 mL se logra el máximo porcentaje de adsorción de 82,26 % y 84,39 % para QPCG-2 y QCG-3, respectivamente. Sin embargo, a menores concentraciones se observa como disminuye la adsorción.

**Figura 49***Optimización de la columna cromatográfica***4.5.2. Método del ensamblado de la columna cromatográfica**

La comparación del análisis del control de calidad de los eluatos de <sup>99m</sup>Tc obtenido en los dos métodos de ensamblado, polímero seco o húmedo, se muestran en las tablas 19 y 20. Se empleó un volumen de 5 mL como eluyente. Los análisis exhiben mejores resultados de pureza radionucleídica de 89,82 % y relación radiactiva (<sup>99</sup>Mo/<sup>99m</sup>Tc) de 0,21 para el método húmedo pasado por alúmina, justificando la elección del método para las pruebas siguientes.

**Tabla 19***Resultados del análisis del eluato de <sup>99m</sup>Tc obtenido por el método seco con alúmina*

| Ensayo                                                      | Especificación                                          | Resultado                                               |
|-------------------------------------------------------------|---------------------------------------------------------|---------------------------------------------------------|
| <b>Aspecto</b>                                              | Solución límpida e incolora                             | Solución límpida e incolora                             |
| <b>pH</b>                                                   | 4,5 a 7,5                                               | 6,5                                                     |
| <b>pureza radioquímica</b>                                  | ≥ 95 %                                                  | 88,97 %                                                 |
| <b>pureza radionucleídica</b>                               | ≥ 99,996 % <sup>99m</sup> Tc                            | 75,15 %                                                 |
| <b>Determinación del <sup>99</sup>Mo</b>                    | ≤0,043 μCi de <sup>99</sup> Mo/mCi de <sup>99m</sup> Tc | 330,59 μCi de <sup>99</sup> Mo/mCi de <sup>99m</sup> Tc |
| <b>Relación radiactiva <sup>99</sup>Mo/<sup>99m</sup>Tc</b> | -                                                       | 0,63                                                    |

**Tabla 20**

*Resultados del análisis del eluato de  $^{99m}\text{Tc}$  obtenido por el método húmedo con alúmina*

| Ensayo                                                                 | Especificación                                                                | Resultado                                                                 |
|------------------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------------------|---------------------------------------------------------------------------|
| <b>Aspecto</b>                                                         | Solución límpida e incolora                                                   | Solución límpida e incolora                                               |
| <b>pH</b>                                                              | 4,5 a 7,5                                                                     | 7,0                                                                       |
| <b>pureza radioquímica</b>                                             | $\geq 95 \%$                                                                  | 87,67 %                                                                   |
| <b>pureza radionucleídica</b>                                          | $\geq 99,996 \%$ $^{99m}\text{Tc}$                                            | 89,82 %                                                                   |
| <b>Determinación del <math>^{99}\text{Mo}</math></b>                   | $\leq 0,043 \mu\text{Ci}$ de $^{99}\text{Mo}/\text{mCi}$ de $^{99m}\text{Tc}$ | 113,31 $\mu\text{Ci}$ de $^{99}\text{Mo}/\text{mCi}$ de $^{99m}\text{Tc}$ |
| <b>Relación radiactiva <math>^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}</math></b> | -                                                                             | 0,21                                                                      |

Además, en la tabla 21 se reporta el resultado de análisis del eluato de  $^{99m}\text{Tc}$  obtenido por el método húmedo sin pasar por alúmina; es decir, solo a través de la columna con polímero de QPCG-2 como matriz adsorbente. Se observa la disminución de los valores de la tabla 20 con respecto a la tabla 21 observándose mayor porcentaje de  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  en el eluido de  $^{99m}\text{TcO}_4^-$ . El informe de análisis de las tres muestras se adjunta en la figura B.3 (véase anexo).

**Tabla 21**

*Resultados del análisis del eluato de  $^{99m}\text{Tc}$  obtenido por el método húmedo sin alúmina*

| Ensayo                                                                 | Especificación                                                                | Resultado                                                                 |
|------------------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------------------|---------------------------------------------------------------------------|
| <b>Aspecto</b>                                                         | Solución límpida e incolora                                                   | Solución límpida e incolora                                               |
| <b>pH</b>                                                              | 4,5 a 7,5                                                                     | 6,5                                                                       |
| <b>pureza radioquímica</b>                                             | $\geq 95 \%$                                                                  | 79,21 %                                                                   |
| <b>pureza radionucleídica</b>                                          | $\geq 99,996 \%$ $^{99m}\text{Tc}$                                            | 69,51 %                                                                   |
| <b>Determinación del <math>^{99}\text{Mo}</math></b>                   | $\leq 0,043 \mu\text{Ci}$ de $^{99}\text{Mo}/\text{mCi}$ de $^{99m}\text{Tc}$ | 438,56 $\mu\text{Ci}$ de $^{99}\text{Mo}/\text{mCi}$ de $^{99m}\text{Tc}$ |
| <b>Relación radiactiva <math>^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}</math></b> | -                                                                             | 0,86                                                                      |

#### 4.5.3. Adsorción de $^{99}\text{Mo}$ y desorción de $^{99m}\text{Tc}$

La actividad de los radioisótopos es dependiente del tiempo. La tabla 22 muestra la actividad calculada en  $\mu\text{Ci}$  a la fecha del experimento empleando la ecuación 13. La actividad inicial de la solución de  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  fue de 27,99  $\mu\text{Ci}$  y de los filtrados resultó ser de 6,85  $\mu\text{Ci}$  para QCG-3 y 9,51  $\mu\text{Ci}$  para QPCG-2. El porcentaje de adsorción del ion

$^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  se calculó mediante la fórmula 10 resultando ser de 80,58 % y 73,04 % para QCG-3 y QPCG-2 respectivamente. Las tablas A.8 y A.9 (véase anexo) involucran el cálculo para determinar el porcentaje de adsorción.

**Tabla 22**

*Porcentaje de adsorción de  $^{99}\text{Mo}$*

| Código                   | Fecha de Medición | Actividad ( $\mu\text{Ci}$ ) | Fecha de experimento | Actividad Experimental ( $\mu\text{Ci}$ ) | Adsorción $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$ (%) |
|--------------------------|-------------------|------------------------------|----------------------|-------------------------------------------|----------------------------------------|
| $^{99}\text{Mo}$ inicial | 19/01/2024        | 13,393                       | 15/01/2024           | 27,99                                     |                                        |
| QCG-3                    | 18/01/2024        | 3,432                        | 15/01/2024           | 6,85                                      | <b>80,58</b>                           |
| QPCG-2                   | 17/01/2024        | 6,025                        | 15/01/2024           | 9,51                                      | <b>73,04</b>                           |

Siguiendo la misma metodología de ensamblado y proporciones se estudió la desorción del  $^{99\text{m}}\text{TcO}_4^-$  para dos columnas ensambladas con QCG-3 y QPCG-2 con la misma solución de  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  inicial obteniéndose rendimientos superiores al 80 % en los cinco días de elución del  $^{99\text{m}}\text{TcO}_4^-$  con NaCl 0,9 % como se indica en la tabla 23.

**Tabla 23**

*Rendimiento de elución del  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  en la columna cromatográfica*

| Polímero | Elución N° | Tiempo de crecimiento (h) | Actividad esperada de $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ( $\mu\text{Ci}$ ) | Actividad experimental de $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ( $\mu\text{Ci}$ ) | Rendimiento de elución (%) |
|----------|------------|---------------------------|-------------------------------------------------------------------|-----------------------------------------------------------------------|----------------------------|
| QCG-3    | 1          | 23                        | 287,38                                                            | 250,03                                                                | 87,00                      |
|          | 2          | 23                        | 211,84                                                            | 192,82                                                                | 91,02                      |
|          | 3          | 23                        | 223,46                                                            | 196,40                                                                | 87,89                      |
|          | 4          | 23                        | 343,75                                                            | 293,92                                                                | 85,50                      |
|          | 5          | 23                        | 419,78                                                            | 376,61                                                                | 89,72                      |
| QPCG-2   | 1          | 23                        | 479,68                                                            | 398,72                                                                | 83,12                      |
|          | 2          | 23                        | 760,39                                                            | 610,99                                                                | 80,35                      |
|          | 3          | 23                        | 630,32                                                            | 518,90                                                                | 82,32                      |
|          | 4          | 23                        | 369,29                                                            | 316,79                                                                | 85,78                      |
|          | 5          | 23                        | 367,49                                                            | 305,65                                                                | 83,17                      |

La tabla 24 y 25 muestran los reportes de análisis de la PPRR para los eluatos de  $^{99\text{m}}\text{TcO}_4^-$ . Se trabajó en un sistema de doble columna aplicando 4 mL como eluyente. El eluato obtenido a través del QPCG-2 exhibió una pureza radionucleídica de 80,84 % y de 98,90 % cuando se pasa por los 5 g de alúmina ácida.

La figuras B.4 y B.5 (véase anexo) corresponden al control de calidad de 1 mL del eluato pasado por la matriz de polímero entrecruzado (E1-TC-99m) seguida de la columna de alúmina ácida (E2-TC-99m). La radiactividad obtenida para E1-TC-99m fue de 167,7  $\mu\text{Ci mL}^{-1}$  y para E2-TC-99m fue de 63,48  $\mu\text{Ci mL}^{-1}$ . Esto se interpreta como la matriz polimérica deja pasar trazas de  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  incrementando la actividad del E1-TC-99m.

**Tabla 24**

*Resultados del análisis del  $^{99m}\text{Tc}$  eluido de la matriz polimérica*

| Ensayo                                                                 | Especificación                                         | Resultado                                                          |
|------------------------------------------------------------------------|--------------------------------------------------------|--------------------------------------------------------------------|
| <b>Aspecto</b>                                                         | Solución límpida e incolora                            | Solución límpida e incolora                                        |
| <b>pH</b>                                                              | 4,5 a 7,5                                              | 6,5                                                                |
| <b>pureza radionucleídica</b>                                          | $\geq 99,996 \%$ $^{99m}\text{Tc}$                     | 80,94 %                                                            |
| <b>Determinación del <math>^{99}\text{Mo}</math></b>                   | $\leq 0,043 \mu\text{Ci}$ de $^{99m}\text{Tc}$         | 235,41 $\mu\text{Ci}$ de $^{99}\text{Mo/mCi}$ de $^{99m}\text{Tc}$ |
| <b>Relación radiactiva <math>^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}</math></b> | -                                                      | 0,48                                                               |
| <b>Otros radionúclidos emisores gamma</b>                              | $\leq 0,02 \mu\text{Ci mCi}^{-1}$ de $^{99m}\text{Tc}$ | No detectado                                                       |

**Tabla 25**

*Resultados del análisis del  $^{99m}\text{Tc}$  eluido de la matriz polimérica y pasado por alúmina ácida*

| Ensayo                                                                 | Especificación                                         | Resultado                                                         |
|------------------------------------------------------------------------|--------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------|
| <b>Aspecto</b>                                                         | Solución límpida e incolora                            | Solución límpida e incolora                                       |
| <b>pH</b>                                                              | 4,5 a 7,5                                              | 6,0                                                               |
| <b>pureza radionucleídica</b>                                          | $\geq 99,996 \%$ $^{99m}\text{Tc}$                     | 98,90 %                                                           |
| <b>Determinación del <math>^{99}\text{Mo}</math></b>                   | $\leq 0,043 \mu\text{Ci}$ de $^{99m}\text{Tc}$         | 11,11 $\mu\text{Ci}$ de $^{99}\text{Mo/mCi}$ de $^{99m}\text{Tc}$ |
| <b>Relación radiactiva <math>^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}</math></b> | -                                                      | -                                                                 |
| <b>Otros radionúclidos emisores gamma</b>                              | $\leq 0,02 \mu\text{Ci mCi}^{-1}$ de $^{99m}\text{Tc}$ | No detectado                                                      |

Por otra parte, para subsanar las observaciones de la figura B.5 (véase anexo) se solicitó  $^{99}\text{Mo}$  de mayor radiactividad de hasta 10  $\text{mCi mL}^{-1}$  aproximadamente, con la intención de obtener valores de radiación superiores a 1  $\text{mCi mL}^{-1}$  en los eluatos. Posteriormente, se logró obtener eluatos con 2,43  $\text{mCi mL}^{-1}$  (figura B.6, véase anexo); sin

embargo, la alta actividad perjudica al proceso de adsorción del polímero entrecruzado evidenciándose en la disminución de la pureza radionucleídica de 80,94 % (tabla 24) hasta 69,34 % (tabla 26); así como el aumento de la relación radiactiva de 0,48 a 0,80. El reporte de análisis de la PPRR se adjunta en la figura B.6 (véase anexo).

**Tabla 26**

*Resultados del análisis del  $^{99m}\text{Tc}$  eluido de la matriz polimérica con mayor radiactividad*

| Ensayo                                                                 | Especificación                                                                | Resultado                                                                 |
|------------------------------------------------------------------------|-------------------------------------------------------------------------------|---------------------------------------------------------------------------|
| <b>Aspecto</b>                                                         | Solución límpida e incolora                                                   | Solución límpida e incolora                                               |
| <b>pH</b>                                                              | 4,5 a 7,5                                                                     | 6,5                                                                       |
| <b>pureza radionucleídica</b>                                          | $\geq 99,996 \%$ $^{99m}\text{Tc}$                                            | 69,34 %                                                                   |
| <b>Determinación del <math>^{99}\text{Mo}</math></b>                   | $\leq 0,043 \mu\text{Ci}$ de $^{99}\text{Mo}/\text{mCi}$ de $^{99m}\text{Tc}$ | 442,18 $\mu\text{Ci}$ de $^{99}\text{Mo}/\text{mCi}$ de $^{99m}\text{Tc}$ |
| <b>Relación radiactiva <math>^{99}\text{Mo}/^{99m}\text{Tc}</math></b> | -                                                                             | 0,80                                                                      |
| <b>Otros radionúclidos emisores gamma</b>                              | $\leq 0,02 \mu\text{Ci.mCi}^{-1}$ de $^{99m}\text{Tc}$                        | 0,004 $\mu\text{Ci}$ de $\text{Nb92m}/\text{mCi}$ de $^{99m}\text{Tc}$    |

## CONCLUSIONES

- Las técnicas de caracterización por FT-IR, MEB-EDS, DRX, TGA, RMN y FT-Raman confirmaron la síntesis de los polímeros de quitosano de *Dosidicus gigas* en medio ácido con glutaraldehído a las concentraciones de 50, 40 y 25 % mediante la formación de las bases de Schiff con grados de entrecruzamiento del  $\sim 85$  %.
- El análisis de  $pH_{PZC}$  confirma la carga positiva de los polímeros entrecruzados favoreciendo la mayor capacidad de adsorción del anión  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  a valores de pH entre 2 a 4. En los estudios de adsorción del ion  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  con los polímeros entrecruzados se determinó la mayor adsorción para QPCG-2 y QCG-3 quienes presentan un porcentaje de adsorción de 97 % y 99,8 %, respectivamente a pH 2.
- Se determinó que la adsorción de los iones  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  empleando los polímeros entrecruzados con glutaraldehído sigue un modelo de pseudo segundo orden por presentar un  $R^2$  cercano a 1 el cual indica que la adsorción es por quimisorción, interpretándose como los iones  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  se adsorben fuertemente en la superficie de los polímeros sintetizados mediante enlaces iónicos o electrostáticos a través de la carga negativa del ion  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  y las cargas positivas de los grupos  $-\text{NH}_2$  en medio ácido de los polímeros de quitosano.
- Con respecto a las isothermas de adsorción de  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  se encontró un mejor ajuste con el modelo de Langmuir que se entiende como los iones  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  ocupan un espacio en la superficie de los polímeros sintetizados hasta formar una monocapa.
- En los estudios de columna cromatográfica se ha determinado un porcentaje de adsorción de  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  de 73,04 % para QPCG-2 y 80,58 % para QCG-3 a pH 2 con rendimientos de elución superiores al 83 % en cinco días consecutivos.
- A medida que se aumenta la radiactividad del  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  inicial, el polímero es más sensible y al parecer se degrada; ya que permite el paso de trazas de  $^{99}\text{Mo}$  en los eluatos de  $^{99m}\text{TcO}_4^-$  evidenciándose como mayor impureza en los análisis reportados por la PPRR.



## RECOMENDACIONES

- Determinar el número de repeticiones máximos de elución para QPCG-2 evitando la disminución del rendimiento de elución de  $\text{Na}^{99\text{m}}\text{TcO}_4$ .
- Evaluar el reciclaje del material adsorbente de  $^{99}\text{Mo}$  luego de su aplicación en la columna cromatográfica, donde el  $^{99}\text{Mo}$  decae a Ru estable en el tiempo.

## BIBLIOGRAFÍA

- Abdel-Halim, E. S., Abou-Okeil, A., & Hashem, A. (2006). Adsorption of Cr (VI) oxyanions onto modified wood pulp. *Polymer - Plastics Technology and Engineering*, 45(1), 71–76. <https://doi.org/10.1080/03602550500373519>
- Abdelmalek, B. E., Sila, A., Haddar, A., Bougatef, A., & Ayadi, M. A. (2017).  $\beta$ -Chitin and chitosan from squid gladius: Biological activities of chitosan and its application as clarifying agent for apple juice. *International Journal of Biological Macromolecules*, 104, 953–962. <https://doi.org/10.1016/j.ijbiomac.2017.06.107>
- Abhinaya, M., Parthiban, R., Kumar, P. S., & Vo, D. V. N. (2021). A review on cleaner strategies for extraction of chitosan and its application in toxic pollutant removal. *Environmental Research*, 196, 110996. <https://doi.org/10.1016/j.envres.2021.110996>
- Ahmad, L. O., Permana, D., Wahab, Sabarwati, S. H., Ramadhan, L. O. A. N., & Rianse, U. (2015). Improved Chitosan Production from Tiger Shrimp Shell Waste (*Penaeus monodon*) by Multistage Deacetylation Method and Effect of Bleaching. *Advances in Environmental and Geological Science and Engineering*, January 2016, 373–378.
- Ahmad, M., Vandegrift, G., & Cristini, P. (2014). Molybdenum-99 (99Mo): Past, Present, and Future. *Science and Technology of Nuclear Installations*, 2014. <https://doi.org/10.1155/2014/839369>
- Alarcón Barrón, M. (2019). Tesis para obtener el grado de maestria: Efecto del plasma de descarga luminiscente en la capacidad de adsorción del colorante amarillento mediante perlas de quitosano-tripolifosfato de sodio.
- Aljbour, N. D., Beg, M. D. H., & Gim bun, J. (2019). Acid Hydrolysis of Chitosan to Oligomers Using Hydrochloric Acid. *Chemical Engineering and Technology*, 42(9), 1741–1746. <https://doi.org/10.1002/ceat.201800527>
- Altun, T. (2020). Preparation and application of glutaraldehyde cross-linked chitosan coated bentonite clay capsules: chromium(vi) removal from aqueous solution. *Revista Chil Chem Soc*, 65(2), 1–8.
- Ardean, C., Davidescu, C. M., & Neme, N. S. (2021). *Ardean2021*
- Arulmoorthy, M. P., Anbarasi, G., Srinivasan, M., & Vishnupriya, B. (2019). Biosynthesis and characterization of chitosan based hydrogel: A potential in vitro wound healing agent. *Materials Today: Proceedings*, 48, 263–275. <https://doi.org/10.1016/j.matpr.2020.07.186>
- Baharlouei, P., & Rahman, A. (2022). Chitin and Chitosan : Prospective Biomedical Applications in. *Marine Drugs*, 20(7), 460.
- Bandara, S., Carnegie, C. anne, Johnson, C., Akindoju, F., Williams, E., Swaby, J. M., Oki, A., & Carson, L. E. (2018). Synthesis and characterization of Zinc/Chitosan-Folic acid complex. *Heliyon*, 4(8), e00737. <https://doi.org/10.1016/j.heliyon.2018.e00737>
- Barca, C., Griessinger, C. M., Faust, A., Depke, D., Essler, M., Windhorst, A. D., Devoogdt, N., Brindle, K. M., Schäfers, M., Zinnhardt, B., & Jacobs, A. H. (2022). Expanding theranostic radiopharmaceuticals for tumor diagnosis and therapy. *Pharmaceuticals*, 15(1), 1–20. <https://doi.org/10.3390/ph15010013>
- Baxter, A., Dillon, M., Anthony Taylor, K. D., & Roberts, G. A. F. (1992). Improved method for i.r. determination of the degree of N-acetylation of chitosan. *International Journal of Biological Macromolecules*, 14(3), 166–169. [https://doi.org/10.1016/S0141-8130\(05\)80007-8](https://doi.org/10.1016/S0141-8130(05)80007-8)
- Bégin, A., & Van Calsteren, M. R. (1999). Antimicrobial films produced from chitosan.

- International Journal of Biological Macromolecules*, 26(1), 63–67.  
[https://doi.org/10.1016/S0141-8130\(99\)00064-1](https://doi.org/10.1016/S0141-8130(99)00064-1)
- Begum, S., Yuhana, N. Y., Md Saleh, N., Kamarudin, N. H. N., & Sulong, A. B. (2021). Review of chitosan composite as a heavy metal adsorbent: Material preparation and properties. *Carbohydrate Polymers*, 259(December 2020), 117613.  
<https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2021.117613>
- Beppu, M. M., Vieira, R. S., Aimoli, C. G., & Santana, C. C. (2007). Crosslinking of chitosan membranes using glutaraldehyde: Effect on ion permeability and water absorption. *Journal of Membrane Science*, 301(1–2), 126–130.  
<https://doi.org/10.1016/j.memsci.2007.06.015>
- Bradshaw, M., Zou, J., Byrne, L., Swaminathan Iyer, K., Stewart, S. G., & Raston, C. L. (2011). Pd(ii) conjugated chitosan nanofibre mats for application in Heck cross-coupling reactions. *Chemical Communications*, 47(45), 12292–12294.  
<https://doi.org/10.1039/c1cc14717j>
- Brion-Roby, R., Gagnon, J., Nosrati, S., Deschênes, J. S., & Chabot, B. (2018). Adsorption and desorption of molybdenum(VI) in contaminated water using a chitosan sorbent. *Journal of Water Process Engineering*, 23(September 2017), 13–19. <https://doi.org/10.1016/j.jwpe.2018.02.016>
- Brugnerotto, J., Lizardi, J., Goycoolea, F. M., Argüelles-Monal, W., Desbrières, J., & Rinaudo, M. (2001). An infrared investigation in relation with chitin and chitosan characterization. *Polymer*, 42(8), 3569–3580. [https://doi.org/10.1016/S0032-3861\(00\)00713-8](https://doi.org/10.1016/S0032-3861(00)00713-8)
- Bui, T. H., Lee, W., Jeon, S. B., Kim, K. W., & Lee, Y. (2020). Enhanced Gold(III) adsorption using glutaraldehyde-crosslinked chitosan beads: Effect of crosslinking degree on adsorption selectivity, capacity, and mechanism. *Separation and Purification Technology*, 248(October 2019), 116989.  
<https://doi.org/10.1016/j.seppur.2020.116989>
- Bzymek, E., Konefał, A., Orlef, A., Maniakowski, Z., Szewczuk, M., Sokół, M., & Zipper, W. (2016). Test of production of  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  by means of typical medical linear accelerators used in teleradiotherapy. *Acta Physica Polonica B*, 47(3), 777–782. <https://doi.org/10.5506/APhysPolB.47.777>
- Camarotti, A., Batista, D. L., Paiva, W. D. S., Ernesto, F., & Neto, D. S. (2022). Polysaccharides of Microbial Origin. *Polysaccharides of Microbial Origin, March*.  
<https://doi.org/10.1007/978-3-030-42215-8>
- Chakravarty, R., Bahadur, J., Lohar, S., Sarma, H. D., Sen, D., Mishra, R., Chakraborty, S., & Dash, A. (2019). Solid state synthesis of mesoporous alumina: A viable strategy for preparation of an advanced nanosorbent for  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  generator technology. *Microporous and Mesoporous Materials*, 287(April), 271–279.  
<https://doi.org/10.1016/j.micromeso.2019.06.020>
- Chattopadhyay, S., Das, S. S., Alam, M. N., & Madhusmita. (2017). Preparation of  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  generator based on cross-linked chitosan polymer using low-specific activity ( $n,\gamma$ ) $^{99}\text{Mo}$ . *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 313(3), 647–653. <https://doi.org/10.1007/s10967-017-5315-x>
- Chirinos, A. (2013). *Efecto del quitosano sobre la germinación y preservación de la semilla de calabacín (Cucurbita pepo)* |. September 2014.  
<https://doi.org/10.13140/2.1.3448.2565>
- Costa, C. N., Teixeira, V. G., Delpech, M. C., Souza, J. V. S., & Costa, M. A. S. (2015). Viscometric study of chitosan solutions in acetic acid/sodium acetate and acetic acid/sodium chloride. *Carbohydrate Polymers*, 133, 245–250.  
<https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2015.06.094>

- Crawford, C. B., & Quinn, B. (2017). Physiochemical properties and degradation. In *Microplastic Pollutants*. <https://doi.org/10.1016/b978-0-12-809406-8.00004-9>
- Czechowska-Biskup, R., Wach, R. A., Rosiak, J. M., & Ulański, P. (2018). Procedure for determination of the molecular weight of Chitosan by viscometry. *Progress on Chemistry and Application of Chitin and Its Derivatives*, 23, 45–54. <https://doi.org/10.15259/PCACD.23.04>
- da Silva Alves, D. C., Healy, B., Pinto, L. A. d. A., Cadaval, T. R. S., & Breslin, C. B. (2021). Recent developments in Chitosan-based adsorbents for the removal of pollutants from aqueous environments. *Molecules*, 26(3). <https://doi.org/10.3390/molecules26030594>
- Dash, A., Knapp, F. F., & Pillai, M. R. A. (2013). Industrial radionuclide generators: A potential step towards accelerating radiotracer investigations in industry. *RSC Advances*, 3(35), 14890–14909. <https://doi.org/10.1039/c3ra41639a>
- de Alvarenga, E. S., Pereira de Oliveira, C., & Roberto Bellato, C. (2010). An approach to understanding the deacetylation degree of chitosan. *Carbohydrate Polymers*, 80(4), 1155–1160. <https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2010.01.037>
- Dong, Y., Xu, C., Wang, J., Wang, M., Wu, Y., & Ruan, Y. (2001). Determination of degree of substitution for N-acylated chitosan using IR spectra. *Science in China, Series B: Chemistry*, 44(2), 216–224. <https://doi.org/10.1007/BF02879541>
- Forsgren, J., Frykstrand, S., Grandfield, K., Mhraryan, A., & Strømme, M. (2013). A Template-Free, Ultra-Adsorbing, High Surface Area Carbonate Nanostructure. *PLoS ONE*, 8(7), 1–8. <https://doi.org/10.1371/journal.pone.0068486>
- Fu, Y., Sun, Y., Zheng, Y., Jiang, J., Yang, C., Wang, J., & Hu, J. (2021). New network polymer functionalized magnetic-mesoporous nanoparticle for rapid adsorption of Hg(II) and sequential efficient reutilization as a catalyst. *Separation and Purification Technology*, 259(October 2020), 118112. <https://doi.org/10.1016/j.seppur.2020.118112>
- Galan, J., Trilleras, J., Zapata, P. A., Arana, V. A., & Grande-Tovar, C. D. (2021). Optimization of chitosan glutaraldehyde-crosslinked beads for reactive blue 4 anionic dye removal using a surface response methodology. *Life*, 11(2), 1–20. <https://doi.org/10.3390/life11020085>
- Gallardo, M. G. C., Barbosa, R. C., Fook, M. V. L., & Sabino, M. A. (2019). Synthesis and characterization of a novel biomaterial based on chitosan modified with amino acids. *Revista Materia*, 24(3). <https://doi.org/10.1590/s1517-707620190003.0710>
- Gilmore, G. R. (2008). Practical gamma-ray spectrometry. In *Spectrochimica Acta Part A: Molecular and Biomolecular Spectroscopy* (2nd ed., Vol. 52, Issue 3). [https://doi.org/10.1016/s0584-8539\(96\)90113-0](https://doi.org/10.1016/s0584-8539(96)90113-0)
- Giraldo, J. (2015). Propiedades, obtención, caracterización y aplicaciones del quitosano. *University of Concepcion, MAY*. <https://doi.org/10.13140/RG.2.1.3350.9287>
- Gumiela, M. (2018). Cyclotron production of <sup>99m</sup>Tc: Comparison of known separation technologies for isolation of <sup>99m</sup>Tc from molybdenum targets. *Nuclear Medicine and Biology*, 58, 33–41. <https://doi.org/10.1016/j.nucmedbio.2017.11.001>
- Hasan, S., & Prelas, M. A. (2020). Molybdenum-99 production pathways and the sorbents for <sup>99</sup>Mo/<sup>99m</sup>Tc generator systems using (n, γ) <sup>99</sup>Mo: a review. *SN Applied Sciences*, 2(11). <https://doi.org/10.1007/s42452-020-03524-1>
- Hemalatha, T., Krithiga, G., Charannya Sozheesvari, S., Krishnakumar, S., & Sastry, T. (2014). International Journal of Pharmacy Practice. *International Journal of Pharmacy Practice*, 5(2), 76–82. [https://www.researchgate.net/profile/sadia-shakeel/publication/259933991\\_fixed\\_dose\\_combination\\_understanding\\_of\\_imminent\\_pharmacist/links/0a85e52e9f65f8fb66000000/fixed-dose-combination-](https://www.researchgate.net/profile/sadia-shakeel/publication/259933991_fixed_dose_combination_understanding_of_imminent_pharmacist/links/0a85e52e9f65f8fb66000000/fixed-dose-combination-)

- understanding-of-imminent-pharmacist.
- Hermiyati, I., Iswahyuni, I., & Juhana, S. (2019). Synthesis of Chitosan from the Scales of Starry Trigger Fish (*Abalistes Stelaris*). *Oriental Journal of Chemistry*, 35(1), 377–383. <https://doi.org/10.13005/ojc/350147>
- Hirschl, C., Biebl-Rydlo, M., Debiasio, M., Mühleisen, W., Neumaier, L., Scherf, W., Oreski, G., Eder, G., Chernev, B., Schwab, W., & Kraft, M. (2013). Determining the degree of crosslinking of ethylene vinyl acetate photovoltaic module encapsulants - A comparative study. *Solar Energy Materials and Solar Cells*, 116, 203–218. <https://doi.org/10.1016/j.solmat.2013.04.022>
- Hodoroaba, V. D. (2019). Energy-dispersive X-ray spectroscopy (EDS). In *Characterization of Nanoparticles: Measurement Processes for Nanoparticles* (Issue X). Elsevier Inc. <https://doi.org/10.1016/B978-0-12-814182-3.00021-3>
- Huang, Y. L., & Tsai, Y. H. (2020). Extraction of chitosan from squid pen waste by high hydrostatic pressure: Effects on physicochemical properties and antioxidant activities of chitosan. *International Journal of Biological Macromolecules*, 160, 677–687. <https://doi.org/10.1016/j.ijbiomac.2020.05.252>
- Hussain, M. R., Iman, M., & Maji, T. K. (2013). Determination of Degree of Deacetylation of Chitosan and Their Effect on The Release Behavior of Essential Oil from Chitosan and Chitosan-Gelatin Complex Microcapsules. *International Journal of Advanced Engineering Applications*, 2(4), 4–12. <https://www.researchgate.net/publication/284503182>
- Islam, M. A., Sabar, S., Benhouria, A., Khanday, W. A., Asif, M., & Hameed, B. H. (2017). Nanoporous activated carbon prepared from karanj (*Pongamia pinnata*) fruit hulls for methylene blue adsorption. *Journal of the Taiwan Institute of Chemical Engineers*, 74, 96–104. <https://doi.org/10.1016/j.jtice.2017.01.016>
- Jawad, R. J., Halim, M., Ismail, S., & Siajam, S. I. (2016). Removal of Residual Oil from Palm Oil Mill Effluent by Novel Adsorbent of Alginate and Mangrove Composite Beads Coated by Chitosan. *Iranica Journal of Energy and Environment*, 7(4), 393–400. <https://doi.org/10.5829/idosi.wasj.2016.34.9.200>
- Karava, A., Lazaridou, M., Nanaki, S., Michailidou, G., Christodoulou, E., Kostoglou, M., Iatrou, H., & Bikiaris, D. N. (2020). Chitosan derivatives with mucoadhesive and antimicrobial properties for simultaneous nanoencapsulation and extended ocular release formulations of dexamethasone and chloramphenicol drugs. *Pharmaceutics*, 12(6), 1–29. <https://doi.org/10.3390/pharmaceutics12060594>
- Kasaai, M. R. (2007). Calculation of Mark-Houwink-Sakurada (MHS) equation viscometric constants for chitosan in any solvent-temperature system using experimental reported viscometric constants data. *Carbohydrate Polymers*, 68(3), 477–488. <https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2006.11.006>
- Khan, T. A., Peh, K. K., & Ch'ng, H. S. (2002). Reporting degree of deacetylation values of chitosan: The influence of analytical methods. *Journal of Pharmacy and Pharmaceutical Sciences*, 5(3), 205–212.
- Khapre, M. A., Pandey, S., & Jugade, R. M. (2021). Glutaraldehyde-cross-linked chitosan–alginate composite for organic dyes removal from aqueous solutions. *International Journal of Biological Macromolecules*, 190(September), 862–875. <https://doi.org/10.1016/j.ijbiomac.2021.09.026>
- Levy, M. A., Tsai, Y. H., Reaume, A., & Bray, T. M. (2001). Cellular response of antioxidant metalloproteins in Cu/Zn SOD transgenic mice exposed to hyperoxia. *American Journal of Physiology - Lung Cellular and Molecular Physiology*, 281(1 25-1), 172–182. <https://doi.org/10.1152/ajplung.2001.281.1.1172>
- Li, B., Shan, C. L., Zhou, Q., Fang, Y., Wang, Y. L., Xu, F., Han, L. R., Ibrahim, M.,

- Guo, L. B., Xie, G. L., & Sun, G. C. (2013). Synthesis, characterization, and antibacterial activity of cross-linked chitosan-glutaraldehyde. *Marine Drugs*, 11(5), 1534–1552. <https://doi.org/10.3390/md11051534>
- López-Cervantes, J., Sánchez-Machado, D. I., Sánchez-Duarte, R. G., & Correa-Murrieta, M. A. (2018). Study of a fixed-bed column in the adsorption of an azo dye from an aqueous medium using a chitosan–glutaraldehyde biosorbent. *Adsorption Science and Technology*, 36(1–2), 215–232. <https://doi.org/10.1177/0263617416688021>
- Ma, C., & et al. (2022). Adsorption of molybdenum on Zr-based MOFs for potential application in the 99Mo/99mTc generator. *Applied Surface Science*, 572(August 2021), 151340. <https://doi.org/10.1016/j.apsusc.2021.151340>
- Ma, C., Wolterbeek, H. T., Denkova, A. G., & Crespo, P. S. (2022). Porphyrinic metal–organic frameworks as molybdenum adsorbents for the 99Mo/99mTc generator. *Inorganic Chemistry*, 11. <https://doi.org/10.1039/d2qi01919a>
- Mahmoudian, M. H., Fazlzadeh, M., Niari, M. H., Azari, A., & Lima, E. C. (2020). A novel silica supported chitosan/glutaraldehyde as an efficient sorbent in solid phase extraction coupling with HPLC for the determination of Penicillin G from water and wastewater samples. *Arabian Journal of Chemistry*, 13(9), 7147–7159. <https://doi.org/10.1016/j.arabjc.2020.07.020>
- Malhotra, I., & Basir, S. F. (2020). Application of Invertase Immobilized on Chitosan Using Glutaraldehyde or Tris(Hydroxymethyl)Phosphine as Cross-Linking Agent to Produce Bioethanol. *Applied Biochemistry and Biotechnology*, 191(2), 838–851. <https://doi.org/10.1007/s12010-019-03162-3>
- Marlina, Lestari, E., Abidin, Hambali, Saptiama, I., Febriana, S., Kadarisman, Awaludin, R., Tanase, M., Nishikata, K., & Tsuchiya, K. (2020). Molybdenum-99 (99Mo) adsorption profile of zirconia-based materials for 99Mo/99mTc generator application. *Atom Indonesia*, 46(2), 91–97. <https://doi.org/10.17146/aij.2020.914>
- Martínez-Mejía, G., Vázquez-Torres, N. A., Castell-Rodríguez, A., del Río, J. M., Corea, M., & Jiménez-Juárez, R. (2019). Synthesis of new chitosan-glutaraldehyde scaffolds for tissue engineering using Schiff reactions. *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects*, 579. <https://doi.org/10.1016/j.colsurfa.2019.123658>
- Mathaba, M., & Daramola, M. O. (2020). Effect of chitosan’s degree of deacetylation on the performance of pes membrane infused with chitosan during amd treatment. *Membranes*, 10(3). <https://doi.org/10.3390/membranes10030052>
- Mincke, S., Asere, T. G., Verheye, I., Folens, K., Vanden Bussche, F., Lapeire, L., Verbeken, K., Van Der Voort, P., Tessema, D. A., Fufa, F., Du Laing, G., & Stevens, C. V. (2019). Functionalized chitosan adsorbents allow recovery of palladium and platinum from acidic aqueous solutions. *Green Chemistry*, 21(9), 2295–2306. <https://doi.org/10.1039/c9gc00166b>
- Mirzaei B., E., Ramazani, A., Shafiee, M., & Danaei, M. (2013). Studies on glutaraldehyde crosslinked chitosan hydrogel properties for drug delivery systems. *International Journal of Polymeric Materials and Polymeric Biomaterials*, 62(11), 605–611. <https://doi.org/10.1080/00914037.2013.769165>
- Monteiro, A. ., & Airoidi, C. (1999). Some studies of crosslinking chitosan–glutaraldehyde interaction in a homogeneous system. *International Journal of Biological Macromolecules*, 26, 119–128. [https://doi.org/10.1016/S0141-8130\(99\)00068-9](https://doi.org/10.1016/S0141-8130(99)00068-9)
- Moreno, M. (2019). *Aseguramiento de los resultados obtenidos en el proceso: “Separación de Ru-103 y I-131 de Molibdeno-99 producto de fisión” utilizando*

*espectrometría gamma.*

- Mourya, V. K., Inamdar, N. N., & Choudhari, Y. M. (2011). Chitooligosaccharides: Synthesis, characterization and applications. *Polymer Science - Series A*, 53(7), 583–612. <https://doi.org/10.1134/S0965545X11070066>
- Moussout, H., Ahlafi, H., Aazza, M., & Bourakhouadar, M. (2016). Kinetics and mechanism of the thermal degradation of biopolymers chitin and chitosan using thermogravimetric analysis. *Polymer Degradation and Stability*, 130, 1–9. <https://doi.org/10.1016/j.polymdegradstab.2016.05.016>
- Mukiza, J., Byamukama, E., Sezirahiga, J., Ngbolua, K. N., & Ndebwanimana, V. (2018). A review on technetium and rhenium based radiopharmaceuticals for diagnostic imaging and therapeutic nuclear medicine. *Rwanda Medical Journal*, 75(1), 14–22.
- Munir, M., Sriyono, Abidin, Sarmini, E., Saptiama, I., Kadarisman, & Marlina. (2020). Development of mesoporous  $\gamma$ -alumina from aluminium foil waste for 99Mo/99mTc generator. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 326(1), 87–96. <https://doi.org/10.1007/s10967-020-07288-1>
- Nandiyanto, A. B. D., Girsang, G. C. S., Maryanti, R., Ragadhita, R., Anggraeni, S., Fauzi, F. M., Sakinah, P., Astuti, A. P., Usdiyana, D., Fiandini, M., Dewi, M. W., & Al-Obaidi, A. S. M. (2020). Isotherm adsorption characteristics of carbon microparticles prepared from pineapple peel waste. *Communications in Science and Technology*, 5(1), 31–39. <https://doi.org/10.21924/cst.5.1.2020.176>
- Pandey, L. M. (2021). Surface engineering of nano-sorbents for the removal of heavy metals: Interfacial aspects. *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 9(1), 104586. <https://doi.org/10.1016/j.jece.2020.104586>
- Pavoni, J. M. F., dos Santos, N. Z., May, I. C., Pollo, L. D., & Tessaro, I. C. (2021). Impact of acid type and glutaraldehyde crosslinking in the physicochemical and mechanical properties and biodegradability of chitosan films. *Polymer Bulletin*, 78(2), 981–1000. <https://doi.org/10.1007/s00289-020-03140-4>
- Pei, P., Liu, T., Shen, W., Liu, Z., & Yang, K. (2021). Biomaterial-mediated internal radioisotope therapy. *Materials Horizons*, 8(5), 1348–1366. <https://doi.org/10.1039/d0mh01761b>
- Pighinelli, L., & Kucharska, M. (2013). Chitosan-hydroxyapatite composites. *Carbohydrate Polymers*, 93(1), 256–262. <https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2012.06.004>
- Pimlott, S. L., & Sutherland, A. (2011). Molecular tracers for the PET and SPECT imaging of disease. *Chemical Society Reviews*, 40(1), 149–162. <https://doi.org/10.1039/b922628c>
- Pires, C. T. G. V. M. T., Vilela, J. A. P., & Airoidi, C. (2014). The Effect of Chitin Alkaline Deacetylation at Different Condition on Particle Properties. *Procedia Chemistry*, 9, 220–225. <https://doi.org/10.1016/j.proche.2014.05.026>
- Poon, L., Wilson, L. D., & Headley, J. V. (2014). Chitosan-glutaraldehyde copolymers and their sorption properties. *Carbohydrate Polymers*, 109, 92–101. <https://doi.org/10.1016/j.carbpol.2014.02.086>
- Priyadarshi, R., & Rhim, J. W. (2020). Chitosan-based biodegradable functional films for food packaging applications. *Innovative Food Science and Emerging Technologies*, 62(April), 102346. <https://doi.org/10.1016/j.ifset.2020.102346>
- Queiroz, M. F., Melo, K. R. T., Sabry, D. A., Sassaki, G. L., & Rocha, H. A. O. (2015). Does the use of chitosan contribute to oxalate kidney stone formation? *Marine Drugs*, 13(1), 141–158. <https://doi.org/10.3390/md13010141>
- Rafiee, F., & Rezaee, M. (2021). Different strategies for the lipase immobilization on the chitosan based supports and their applications. *International Journal of Biological*

- Macromolecules*, 179, 170–195. <https://doi.org/10.1016/j.ijbiomac.2021.02.198>
- Ramasubramaniam, S., Govindarajan, C., Nasreen, K., & Sudha, P. N. (2014). Removal of cadmium (II) ions from aqueous solution using chitosan/starch polymer blend. *Composite Interfaces*, 21(2), 95–109. <https://doi.org/10.1080/15685543.2013.834199>
- Rathmann S., Ahmad, Z., & S, S. (2019). Radiopharmaceutical chemistry. *Applied Radiology*, 4(5). <https://doi.org/10.1007/978-3-319-98947-1>
- Raut, A. V., Satvekar, R. K., Rohiwal, S. S., Tiwari, A. P., Gnanamani, A., Pushpavanam, S., Nanaware, S. G., & Pawar, S. H. (2016). In vitro biocompatibility and antimicrobial activity of chitin monomer obtain from hollow fiber membrane. *Designed Monomers and Polymers*, 19(5), 445–455. <https://doi.org/10.1080/15685551.2016.1169379>
- Rawat, S., & Maiti, A. (2021). Facile preparation of iron oxyhydroxide–biopolymer (Chitosan/Alginate) beads and their comparative insights into arsenic removal. *Separation and Purification Technology*, 272(February), 118983. <https://doi.org/10.1016/j.seppur.2021.118983>
- Reghioua, A., Barkat, D., Jawad, A. H., Abdulhameed, A. S., Rangabhashiyam, S., Khan, M. R., & ALOthman, Z. A. (2021). Magnetic Chitosan-Glutaraldehyde/Zinc Oxide/Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> Nanocomposite: Optimization and Adsorptive Mechanism of Remazol Brilliant Blue R Dye Removal. *Journal of Polymers and the Environment*, 29(12), 3932–3947. <https://doi.org/10.1007/s10924-021-02160-z>
- Rico Rodriguez, F. (2013). Estudio de la aplicación de recubrimientos comestibles de quitosano y su combinación con aceites esenciales sobre la vida útil del mango (mangifera indica l.). *Universidad Nacional de Colombia*, 115.
- Rondón Millán, J. J. (2013). Estudios con películas de quitosano y ácidos carboxílicos obtenidos de fuentes naturales. *Researchgate.Net*, June 2013. [http://www.researchgate.net/publication/242650503\\_Estudios\\_con\\_pelculas\\_de\\_quitosano\\_y\\_cidos\\_carboxlicos\\_obtenidos\\_de\\_fuentes\\_naturales/file/60b7d51d47183de5d7.pdf](http://www.researchgate.net/publication/242650503_Estudios_con_pelculas_de_quitosano_y_cidos_carboxlicos_obtenidos_de_fuentes_naturales/file/60b7d51d47183de5d7.pdf)
- Saheed, I. O., Oh, W. Da, & Suah, F. B. M. (2021). Chitosan modifications for adsorption of pollutants – A review. *Journal of Hazardous Materials*, 408, 124889. <https://doi.org/10.1016/j.jhazmat.2020.124889>
- Sahoo, T. R., & Prelot, B. (2020). Adsorption processes for the removal of contaminants from wastewater: The perspective role of nanomaterials and nanotechnology. In *Nanomaterials for the Detection and Removal of Wastewater Pollutants*. Elsevier Inc. <https://doi.org/10.1016/B978-0-12-818489-9.00007-4>
- Saita, K., Nagaoka, S., Shirosaki, T., Horikawa, M., Matsuda, S., & Ihara, H. (2012). Preparation and characterization of dispersible chitosan particles with borate crosslinking and their antimicrobial and antifungal activity. *Carbohydrate Research*, 349, 52–58. <https://doi.org/10.1016/j.carres.2011.12.017>
- Salehi, N., Moghimi, A., & Shahbazi, H. (2022). Preparation of cross-linked magnetic chitosan with methionine-glutaraldehyde for removal of heavy metals from aqueous solutions. *International Journal of Environmental Analytical Chemistry*, 102(10), 2305–2321. <https://doi.org/10.1080/03067319.2020.1753718>
- Sánchez-Machado, D. I., López-Cervantes, J., Correa-Murrieta, M. A., Sánchez-Duarte, R. G., Cruz-Flores, P., & la Mora-López, G. S. (2018). *Chitosan* (In Nonvita).
- Santoso, J., Adiputra, K. C., Soerdirga, L. C., & Tarman, K. (2020). Effect of acetic acid hydrolysis on the characteristics of water soluble chitosan. *IOP Conference Series: Earth and Environmental Science*, 414(1). <https://doi.org/10.1088/1755-1315/414/1/012021>



- Saptiama, I., Lestari, E., Sarmini, E., Lubis, H., Marlina, & Mutalib, A. (2016). Development of  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  generator system for production of medical radionuclide  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  using a neutron-activated  $^{99}\text{Mo}$  and zirconium based material (ZBM) as its adsorbent. *Atom Indonesia*, 42(3), 115–121. <https://doi.org/10.17146/aij.2016.531>
- Saptiama, I., Nurmanjaya, A., Rindiantono, F., Marlina, Lestari, A. M., Nugraheni, N. F., & Mujamilah. (2021). Synthesis and characterization of mesoporous gamma-alumina by glucose as soft-template for molybdenum-99 adsorption: High and low molar ratio of water to aluminium isopropoxide effect. *IOP Conference Series: Earth and Environmental Science*, 927(1), 2–8. <https://doi.org/10.1088/1755-1315/927/1/012005>
- Sarathchandiran, I., Koumaravelou, K., & Selvasudha, N. (2019). Interaction pattern and in vitro, in vivo release behavior of simvastatin-loaded chitosan nanoformulation. *Drug Development and Industrial Pharmacy*, 45(11), 1725–1739. <https://doi.org/10.1080/03639045.2019.1656225>
- Sarkodie, A. A. (2020). Assessment of the quality and suitability of radiopharmaceutical cold kits and  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  generator used at the nuclear medicine unit, Korle-Bu teaching Hospital, Accra. *Effects of Social Media Use on the Academic Performance of Students of Public Tertiary Institutions in Ghana*, 10206539, 1–13.
- Schio, R. da R., da Boit Martinello, K., Netto, M. S., Silva, L. F. O., Mallmann, E. S., & Dotto, G. L. (2022). Adsorption performance of Food Red 17 dye using an eco-friendly material based on *Luffa cylindrica* and chitosan. *Journal of Molecular Liquids*, 349, 118144. <https://doi.org/10.1016/j.molliq.2021.118144>
- Sehmi, S. K., Allan, E., MacRobert, A. J., & Parkin, I. (2016). The bactericidal activity of glutaraldehyde-impregnated polyurethane. *MicrobiologyOpen*, 5(5), 891–897. <https://doi.org/10.1002/mbo3.378>
- Shameen Hasan. (2019). *Patente hassan actualizada 2019-US10500564.pdf*.
- Shavandi, A., Bekhit, A. E. D. A., Sun, Z., & Ali, M. A. (2016). Bio-scaffolds produced from irradiated squid pen and crab chitosan with hydroxyapatite/ $\beta$ -tricalcium phosphate for bone-tissue engineering. *International Journal of Biological Macromolecules*, 93, 1446–1456. <https://doi.org/10.1016/j.ijbiomac.2016.04.046>
- Singha, A. S., & Thakur, V. K. (2008). Mechanical properties of natural fibre reinforced polymer composites. *Bulletin of Materials Science*, 31(5), 791–799. <https://doi.org/10.1007/s12034-008-0126-x>
- Son, Y., Hwang, I., Nho, C., Kim, S., & Kim, S. (2021). Determination of Carbohydrate Composition in Mealworm. *Foods*, 10(640).
- Suzuki, Y., Kitagawa, T., Namekawa, Y., Matsukura, M., Nishikata, K., Mimura, H., & Tsuchiya, K. (2018). Molybdenum Adsorption and Desorption Properties of Alumina with Different Surface Structures for  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  Generators. *Transactions of the Materials Research Society of Japan*, 43(2), 75–80. <https://doi.org/10.14723/tmrsj.43.75>
- Uzunov, N., Yordanova, G., Salim, S., Stancheva, N., Mineva, V., Meléndez-Alafort, L., & Rosato, A. (2018). Quality assurance of  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  radionuclide generators. *Acta Scientifica Naturalis*, 5(1), 40–47. <https://doi.org/10.2478/asn-2018-0006>
- Vallejos-Sologuren, C. S., Aguilar-Cartagena, A., & Flores-Flores, C. J. (2020). Situacion de cáncer en el Perú. *Diagnóstico*, 59(2), 77–85. <http://142.44.242.51/index.php/diagnostico/article/view/221/225>
- Velempini, T., Pillay, K., Mbianda, X. Y., & Arotiba, O. A. (2019). Carboxymethyl cellulose thiol-imprinted polymers: Synthesis, characterization and selective  $\text{Hg(II)}$  adsorption. *Journal of Environmental Sciences (China)*, 79(Ii), 280–296.

- <https://doi.org/10.1016/j.jes.2018.11.022>
- Vijayalakshmi, BM, D., & PN, S. (2016). Synthesis, Characterization and Applications of Nanochitosan/Sodium Alginate/Microcrystalline Cellulose Film. *Journal of Nanomedicine & Nanotechnology*, 07(06). <https://doi.org/10.4172/2157-7439.1000419>
- Wadhwa, S., Paliwal, R., Rai Paliwal, S., & P. Vyas, S. (2010). Chitosan and its Role in Ocular Therapeutics. *Mini-Reviews in Medicinal Chemistry*, 9(14), 1639–1647. <https://doi.org/10.2174/138955709791012292>
- Wang, F., Hu, S., Shi, F., Huang, K., & Li, J. (2020). A non-enzymatic sensor based on fc-chit/cnt@cu nanohybrids for electrochemical detection of glucose. *Polymers*, 12(10), 1–12. <https://doi.org/10.3390/polym12102419>
- Wegrzynowska-Drzymalska, K., Grebicka, P., Mlynarczyk, D. T., Chelminiak-Dudkiewicz, D., Kaczmarek, H., Goslinski, T., & Ziegler-Borowska, M. (2020). Crosslinking of chitosan with dialdehyde chitosan as a new approach for biomedical applications. *Materials*, 13(15), 1–27. <https://doi.org/10.3390/ma13153413>
- Yasmeen, S., Kabiraz, M., Saha, B., Qadir, M., Gafur, M., & Masum, S. (2016). Chromium (VI) Ions Removal from Tannery Effluent using Chitosan-Microcrystalline Cellulose Composite as Adsorbent. *International Research Journal of Pure and Applied Chemistry*, 10(4), 1–14. <https://doi.org/10.9734/irjpac/2016/23315>
- Yuan, Y., Chesnutt, B. M., Haggard, W. O., & Bumgardner, J. D. (2011). Deacetylation of chitosan: Material characterization and in vitro evaluation via albumin adsorption and pre-osteoblastic cell cultures. *Materials*, 4(8), 1399–1416. <https://doi.org/10.3390/ma4081399>
- Zargar, V., Asghari, M., & Dashti, A. (2015). A Review on Chitin and Chitosan Polymers: Structure, Chemistry, Solubility, Derivatives, and Applications. *ChemBioEng Reviews*, 2(3), 204–226. <https://doi.org/10.1002/cben.201400025>
- Zwanziger, J. W., & Spiess, H. W. (2005). Nuclear magnetic resonance spectroscopy techniques | solid-state. *Encyclopedia of Analytical Science*, V6-358-V6-366. <https://doi.org/10.1016/B0-12-369397-7/00416-7>

## ANEXOS

**Tabla A.1**

*Datos implicados en la optimización de la columna cromatográfica*

| Código         | Área 739 KeV<br>(Mo) | Actividad<br>(μCi) | Adsorción<br><sup>99</sup> MoO <sub>4</sub> <sup>-2</sup> (%) |
|----------------|----------------------|--------------------|---------------------------------------------------------------|
| Mo99_10en25    | 24202                | 0,969              |                                                               |
| Mo99_10en25_F  | 28898,39             | 0,808              | <b>16,60</b>                                                  |
| Mo99_5en25     | 18183,87             | 0,502              |                                                               |
| Mo99_5en25_F   | 14786,45             | 0,408              | <b>18,72</b>                                                  |
| Mo99_2en25     | 7516,2               | 0,205              |                                                               |
| Mo99_2en25_F   | 4019,57              | 0,111              | <b>45,97</b>                                                  |
| Mo99_1,6en25   | 1478,57              | 0,169              |                                                               |
| Mo99_1,6en25_F | 363,30               | 0,046              | <b>72,92</b>                                                  |
| Mo99_1,2en25   | 1271,16              | 0,141              |                                                               |
| Mo99_1,2en25_F | 225,84               | 0,025              | <b>82,00</b>                                                  |
| Mo99_0,9en25   | 2103,40              | 0,095              |                                                               |
| Mo99_0,9en25_F | 571,55               | 0,020              | <b>78,94</b>                                                  |
| Mo99_0,6en25   | 493,18               | 0,069              |                                                               |
| Mo99_0,6en25_F | 167,70               | 0,020              | <b>71,44</b>                                                  |
| Mo99_0,3en25   | 1271,81              | 0,044              |                                                               |
| Mo99_0,3en25_F | 314,54               | 0,016              | <b>63,14</b>                                                  |

**Tabla A.2***Datos implicados en el estudio de tiempo de contacto y cinética de adsorción de QPCG*

| Código        | Tiempo de agitación (min) | Actividad $^{99}\text{Mo}$ ( $\mu\text{Ci}$ ) | Cantidad adsorbida ( $\mu\text{Ci.g}^{-1}$ ) | Log ( $C_{\text{eq}} - C_{\text{adsorbida}}$ ) | Tiempo/Cantidad adsorbida (min.g. $\mu\text{Ci}^{-1}$ ) | Adsorción $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$ (%) |
|---------------|---------------------------|-----------------------------------------------|----------------------------------------------|------------------------------------------------|---------------------------------------------------------|----------------------------------------|
| QPCG-1-BK     | 0                         | 12,003                                        | 0                                            | 2,852                                          | 0                                                       | 0                                      |
| QPCG-1-Mo-5   | 5                         | 5,533                                         | 647,747                                      | 1,799                                          | 0,008                                                   | 53,90                                  |
| QPCG-1-Mo-15  | 15                        | 5,988                                         | 603,296                                      | 2,031                                          | 0,025                                                   | 50,11                                  |
| QPCG-1-Mo-30  | 30                        | 5,486                                         | 654,252                                      | 1,751                                          | 0,046                                                   | 54,29                                  |
| QPCG-1-Mo-60  | 60                        | 5,081                                         | 696,912                                      | 1,137                                          | 0,086                                                   | 57,67                                  |
| QPCG-1-Mo-100 | 100                       | 5,024                                         | 702,461                                      | 0,912                                          | 0,142                                                   | 58,15                                  |
| QPCG-1-Mo-120 | 120                       | 4,904                                         | 710,631                                      | 0                                              | 0,169                                                   | 59,15                                  |
| QPCG-2-BK     | 0                         | 12,003                                        | 0                                            | 2,977                                          | 0                                                       | 0                                      |
| QPCG-2-Mo-5   | 5                         | 2,563                                         | 948,672                                      | 0                                              | 0,005                                                   | 78,65                                  |
| QPCG-2-Mo-15  | 15                        | 3,561                                         | 846,585                                      | 2,009                                          | 0,018                                                   | 70,33                                  |
| QPCG-2-Mo-30  | 30                        | 3,624                                         | 837,954                                      | 2,044                                          | 0,036                                                   | 69,81                                  |
| QPCG-2-Mo-60  | 60                        | 3,757                                         | 827,959                                      | 2,082                                          | 0,072                                                   | 68,70                                  |
| QPCG-2-Mo-100 | 100                       | 3,948                                         | 807,980                                      | 2,148                                          | 0,124                                                   | 67,11                                  |
| QPCG-2-Mo-120 | 120                       | 4,265                                         | 775,443                                      | 2,239                                          | 0,155                                                   | 64,47                                  |
| QPCG-3-BK     | 0                         | 12,003                                        | 0                                            | 2,559                                          | 0                                                       | 0                                      |
| QPCG-3-Mo-5   | 5                         | 9,128                                         | 288,997                                      | 1,866                                          | 0,017                                                   | 23,96                                  |
| QPCG-3-Mo-15  | 15                        | 9,760                                         | 226,193                                      | 2,134                                          | 0,066                                                   | 18,69                                  |
| QPCG-3-Mo-30  | 30                        | 8,397                                         | 362,370                                      | 0                                              | 0,083                                                   | 30,04                                  |
| QPCG-3-Mo-60  | 60                        | 8,774                                         | 323,807                                      | 1,586                                          | 0,185                                                   | 26,90                                  |
| QPCG-3-Mo-100 | 100                       | 8,801                                         | 320,135                                      | 1,626                                          | 0,312                                                   | 26,68                                  |
| QPCG-3-Mo-120 | 120                       | 9,219                                         | 279,019                                      | 1,921                                          | 0,430                                                   | 23,20                                  |

**Tabla A.3***Datos implicados en el estudio de tiempo de contacto y cinética de adsorción de QCG*

| Código       | Tiempo de agitación (min) | Actividad $^{99}\text{Mo}$ ( $\mu\text{Ci}$ ) | Cantidad adsorbida ( $\mu\text{Ci}\cdot\text{g}^{-1}$ ) | Log ( $C_{\text{eq-}} C_{\text{adsorbida}}$ ) | Tiempo/Cantidad adsorbida (min.g. $\mu\text{Ci}^{-1}$ ) | Adsorción $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$ (%) |
|--------------|---------------------------|-----------------------------------------------|---------------------------------------------------------|-----------------------------------------------|---------------------------------------------------------|----------------------------------------|
| QCG-1-BK     | 0                         | 6,585                                         | 0                                                       | 2,794                                         | 0                                                       | 0                                      |
| QCG-1-Mo-5   | 5                         | 1,857                                         | 519,843                                                 | 2,011                                         | 0,010                                                   | 71,86                                  |
| QCG-1-Mo-15  | 15                        | 1,219                                         | 582,456                                                 | 1,600                                         | 0,026                                                   | 81,53                                  |
| QCG-1-Mo-30  | 30                        | 1,082                                         | 608,858                                                 | 1,128                                         | 0,049                                                   | 83,62                                  |
| QCG-1-Mo-60  | 60                        | 0,546                                         | 622,297                                                 | 0                                             | 0,096                                                   | 91,73                                  |
| QCG-1-Mo-100 | 100                       | 0,726                                         | 597,338                                                 | 1,397                                         | 0,167                                                   | 89,00                                  |
| QCG-1-Mo-120 | 120                       | 0,564                                         | 609,675                                                 | 1,101                                         | 0,197                                                   | 91,46                                  |
| QCG-2-BK     | 0                         | 10,06                                         | 0                                                       | 2,666                                         | 0                                                       | 0                                      |
| QCG-2-Mo-5   | 5                         | 6,777                                         | 295,424                                                 | 2,225                                         | 0,017                                                   | 17,02                                  |
| QCG-2-Mo-15  | 15                        | 6,769                                         | 340,291                                                 | 2,090                                         | 0,044                                                   | 41,02                                  |
| QCG-2-Mo-30  | 30                        | 6,427                                         | 313,593                                                 | 2,175                                         | 0,096                                                   | 45,14                                  |
| QCG-2-Mo-60  | 60                        | 5,825                                         | 370,302                                                 | 1,968                                         | 0,162                                                   | 42,04                                  |
| QCG-2-Mo-100 | 100                       | 5,449                                         | 407,908                                                 | 1,743                                         | 0,245                                                   | 40,13                                  |
| QCG-2-Mo-120 | 120                       | 5,082                                         | 463,254                                                 | 0                                             | 0,259                                                   | 53,99                                  |
| QCG-3-BK     | 0                         | 8,257                                         | 0                                                       | 2,954                                         | 0                                                       | 0                                      |
| QCG-3-Mo-5   | 5                         | 0,019                                         | 882,404                                                 | 1,253                                         | 0,006                                                   | 99,77                                  |
| QCG-3-Mo-15  | 15                        | 0,008                                         | 834,805                                                 | 1,816                                         | 0,018                                                   | 99,89                                  |
| QCG-3-Mo-30  | 30                        | 0,015                                         | 832,947                                                 | 1,828                                         | 0,036                                                   | 99,81                                  |
| QCG-3-Mo-60  | 60                        | 0,009                                         | 871,493                                                 | 1,460                                         | 0,069                                                   | 99,88                                  |
| QCG-3-Mo-100 | 100                       | 0,008                                         | 900,318                                                 | 0                                             | 0,111                                                   | 99,90                                  |
| QCG-3-Mo-120 | 120                       | 0,009                                         | 881,382                                                 | 1,277                                         | 0,136                                                   | 99,88                                  |

**Tabla A.4**

*Datos implicados en el estudio del efecto de pH de QPCG*

| Código       | Tiempo de agitación (min) | Masa de polímero (g) | Concentración actividad ( $\mu\text{Ci mL}^{-1}$ ) | Cantidad adsorbida ( $\mu\text{Ci g}^{-1}$ polímero) | Adsorción $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$ (%) |
|--------------|---------------------------|----------------------|----------------------------------------------------|------------------------------------------------------|----------------------------------------|
| QPCG-1_pH_Bk | 0                         | 0                    | 7,628                                              | 0                                                    | 0                                      |
| QPCG-1_pH_2  | 120                       | 0,09926              | 0,301                                              | 738,192                                              | 96,05                                  |
| QPCG-1_pH_3  | 120                       | 0,09810              | 1,093                                              | 666,213                                              | 85,67                                  |
| QPCG-1_pH_4  | 120                       | 0,09790              | 1,159                                              | 660,783                                              | 84,80                                  |
| QPCG-1_pH_5  | 120                       | 0,09632              | 1,185                                              | 668,948                                              | 84,46                                  |
| QPCG-1_pH_6  | 120                       | 0,09860              | 1,151                                              | 656,911                                              | 84,91                                  |
| QPCG-1_pH_7  | 120                       | 0,09994              | 1,134                                              | 649,816                                              | 85,13                                  |
| QPCG-1_pH_8  | 120                       | 0,09990              | 1,135                                              | 650,006                                              | 85,12                                  |
| QPCG-1_pH_9  | 120                       | 0,09661              | 1,133                                              | 672,305                                              | 85,14                                  |
| QPCG-1_pH_10 | 120                       | 0,09870              | 1,069                                              | 664,611                                              | 85,99                                  |
| QPCG-1_pH_11 | 120                       | 0,09787              | 1,175                                              | 659,418                                              | 84,60                                  |
| QPCG-1_pH_12 | 120                       | 0,09760              | 1,249                                              | 653,609                                              | 83,62                                  |
| QPCG-1_pH_13 | 120                       | 0,09590              | 1,249                                              | 665,271                                              | 83,63                                  |
| QPCG-2_pH_Bk | 0                         | 0                    | 7,628                                              | 0                                                    | 0                                      |
| QPCG-2_pH_2  | 5                         | 0,09740              | 0,229                                              | 759,725                                              | 97,00                                  |
| QPCG-2_pH_3  | 5                         | 0,09770              | 0,888                                              | 689,883                                              | 88,36                                  |
| QPCG-2_pH_4  | 5                         | 0,09870              | 1,104                                              | 661,018                                              | 85,52                                  |
| QPCG-2_pH_5  | 5                         | 0,09674              | 1,122                                              | 672,616                                              | 85,30                                  |
| QPCG-2_pH_6  | 5                         | 0,09620              | 1,094                                              | 679,281                                              | 85,66                                  |
| QPCG-2_pH_7  | 5                         | 0,09840              | 1,106                                              | 662,838                                              | 85,50                                  |
| QPCG-2_pH_8  | 5                         | 0,09670              | 1,125                                              | 672,514                                              | 85,25                                  |
| QPCG-2_pH_9  | 5                         | 0,09694              | 1,091                                              | 674,377                                              | 85,70                                  |
| QPCG-2_pH_10 | 5                         | 0,09670              | 1,101                                              | 675,050                                              | 85,57                                  |
| QPCG-2_pH_11 | 5                         | 0,09941              | 1,154                                              | 651,311                                              | 84,88                                  |
| QPCG-2_pH_12 | 5                         | 0,09900              | 1,269                                              | 642,412                                              | 83,37                                  |
| QPCG-2_pH_13 | 5                         | 0,09752              | 1,246                                              | 654,463                                              | 83,66                                  |
| QPCG-3_pH_Bk | 0                         | 0                    | 7,628                                              | 0                                                    | 0                                      |
| QPCG-3_pH_2  | 30                        | 0,09730              | 0,376                                              | 745,414                                              | 95,08                                  |
| QPCG-3_pH_3  | 30                        | 0,09692              | 1,123                                              | 671,184                                              | 85,27                                  |
| QPCG-3_pH_4  | 30                        | 0,09660              | 1,263                                              | 658,981                                              | 83,45                                  |
| QPCG-3_pH_5  | 30                        | 0,09690              | 1,258                                              | 657,419                                              | 83,51                                  |
| QPCG-3_pH_6  | 30                        | 0,09844              | 1,267                                              | 646,210                                              | 83,39                                  |
| QPCG-3_pH_7  | 30                        | 0,09815              | 1,257                                              | 649,115                                              | 83,52                                  |
| QPCG-3_pH_8  | 30                        | 0,09858              | 1,231                                              | 648,959                                              | 83,86                                  |
| QPCG-3_pH_9  | 30                        | 0,09650              | 1,284                                              | 657,465                                              | 83,17                                  |
| QPCG-3_pH_10 | 30                        | 0,09850              | 1,271                                              | 645,466                                              | 83,34                                  |
| QPCG-3_pH_11 | 30                        | 0,09847              | 1,225                                              | 650,284                                              | 83,94                                  |
| QPCG-3_pH_12 | 30                        | 0,09730              | 1,277                                              | 652,822                                              | 83,27                                  |
| QPCG-3_pH_13 | 30                        | 0,09672              | 1,216                                              | 663,030                                              | 84,06                                  |

**Tabla A.5**

*Datos implicados en el estudio del efecto de pH de QCG*

| Código      | Tiempo de agitación (min) | Masa de polímero (g) | Concentración actividad ( $\mu\text{Ci mL}^{-1}$ ) | Cantidad adsorbida ( $\mu\text{Ci g}^{-1}$ polímero) | Adsorción $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$ (%) |
|-------------|---------------------------|----------------------|----------------------------------------------------|------------------------------------------------------|----------------------------------------|
| QCG-1_pH_Bk | 0                         | 0                    | 6,824                                              | 0                                                    | 0                                      |
| QCG-1_pH_2  | 60                        | 0,11713              | 0,069                                              | 576,988                                              | 98,99                                  |
| QCG-1_pH_3  | 60                        | 0,09069              | 0,700                                              | 675,644                                              | 89,75                                  |
| QCG-1_pH_4  | 60                        | 0,10750              | 0,925                                              | 549,085                                              | 86,46                                  |
| QCG-1_pH_5  | 60                        | 0,09770              | 1,093                                              | 586,894                                              | 83,99                                  |
| QCG-1_pH_6  | 60                        | 0,11372              | 1,088                                              | 504,657                                              | 84,06                                  |
| QCG-1_pH_7  | 60                        | 0,11907              | 1,113                                              | 479,910                                              | 83,70                                  |
| QCG-1_pH_8  | 60                        | 0,10937              | 1,112                                              | 522,554                                              | 83,71                                  |
| QCG-1_pH_9  | 60                        | 0,10536              | 1,047                                              | 548,638                                              | 84,67                                  |
| QCG-1_pH_10 | 60                        | 0,10576              | 1,075                                              | 543,870                                              | 84,25                                  |
| QCG-1_pH_11 | 60                        | 0,10534              | 1,224                                              | 531,894                                              | 82,07                                  |
| QCG-1_pH_12 | 60                        | 0,10483              | 1,142                                              | 542,313                                              | 83,27                                  |
| QCG-1_pH_13 | 60                        | 0,10246              | 1,301                                              | 539,355                                              | 80,94                                  |
| QCG-2_pH_Bk | 0                         | 0                    | 6,824                                              | 0                                                    | 0                                      |
| QCG-2_pH_2  | 120                       | 0,10085              | 0,080                                              | 668,768                                              | 98,79                                  |
| QCG-2_pH_3  | 120                       | 0,10643              | 0,845                                              | 561,803                                              | 87,58                                  |
| QCG-2_pH_4  | 120                       | 0,09577              | 0,854                                              | 623,406                                              | 87,45                                  |
| QCG-2_pH_5  | 120                       | 0,09289              | 1,154                                              | 610,462                                              | 83,06                                  |
| QCG-2_pH_6  | 120                       | 0,10757              | 1,060                                              | 535,861                                              | 84,43                                  |
| QCG-2_pH_7  | 120                       | 0,09035              | 1,100                                              | 633,550                                              | 83,84                                  |
| QCG-2_pH_8  | 120                       | 0,09332              | 0,968                                              | 627,583                                              | 85,78                                  |
| QCG-2_pH_9  | 120                       | 0,09565              | 1,079                                              | 600,672                                              | 84,15                                  |
| QCG-2_pH_10 | 120                       | 0,09156              | 1,002                                              | 635,845                                              | 85,27                                  |
| QCG-2_pH_11 | 120                       | 0,10236              | 1,073                                              | 561,843                                              | 84,24                                  |
| QCG-2_pH_12 | 120                       | 0,11666              | 1,077                                              | 492,665                                              | 84,18                                  |
| QCG-2_pH_13 | 120                       | 0,09063              | 1,162                                              | 624,782                                              | 82,94                                  |
| QCG-3_pH_Bk | 0                         | 0                    | 6,824                                              | 0                                                    | 0                                      |
| QCG-3_pH_2  | 100                       | 0,09389              | 0,080                                              | 718,623                                              | 98,83                                  |
| QCG-3_pH_3  | 100                       | 0,09118              | 0,197                                              | 727,131                                              | 97,11                                  |
| QCG-3_pH_4  | 100                       | 0,09788              | 0,097                                              | 687,586                                              | 98,58                                  |
| QCG-3_pH_5  | 100                       | 0,09525              | 0,238                                              | 691,777                                              | 96,51                                  |
| QCG-3_pH_6  | 100                       | 0,11004              | 0,225                                              | 599,990                                              | 96,71                                  |
| QCG-3_pH_7  | 100                       | 0,11343              | 0,181                                              | 585,898                                              | 97,34                                  |
| QCG-3_pH_8  | 100                       | 0,09320              | 0,241                                              | 706,646                                              | 96,47                                  |
| QCG-3_pH_9  | 100                       | 0,09232              | 0,308                                              | 706,171                                              | 95,49                                  |
| QCG-3_pH_10 | 100                       | 0,09779              | 0,269                                              | 670,691                                              | 96,07                                  |
| QCG-3_pH_11 | 100                       | 0,09231              | 0,369                                              | 699,675                                              | 94,60                                  |
| QCG-3_pH_12 | 100                       | 0,09457              | 0,892                                              | 627,604                                              | 86,94                                  |
| QCG-3_pH_13 | 100                       | 0,09947              | 1,245                                              | 561,221                                              | 81,77                                  |

**Tabla A.6**

*Datos implicados en el estudio de la variación de masa de QPCG*

| Código       | Masa del polímero (g) | Tiempo de agitación (min) | Actividad (μCi) | Cantidad adsorbida (μCi g <sup>-1</sup> polímero) | Adsorción <sup>99</sup> MoO <sub>4</sub> <sup>-2</sup> (%) |
|--------------|-----------------------|---------------------------|-----------------|---------------------------------------------------|------------------------------------------------------------|
| QPCG-1_BK_MV | 0                     | 0                         | 5,747           | 0                                                 | 0                                                          |
| QPCG-1_1     | 0,04950               | 120                       | 3,706           | 41,250                                            | 35,527                                                     |
| QPCG-1_2     | 0,10019               | 120                       | 2,684           | 30,577                                            | 53,303                                                     |
| QPCG-1_3     | 0,19833               | 120                       | 2,231           | 17,732                                            | 61,188                                                     |
| QPCG-1_4     | 0,40110               | 120                       | 1,700           | 10,090                                            | 70,415                                                     |
| QPCG-2_BK_MV | 0                     | 0                         | 5,747           | 0                                                 | 0                                                          |
| QPCG-2_1     | 0,0507                | 5                         | 3,101           | 52,205                                            | 46,052                                                     |
| QPCG-2_2     | 0,1003                | 5                         | 1,654           | 40,809                                            | 71,217                                                     |
| QPCG-2_3     | 0,2001                | 5                         | 1,014           | 23,656                                            | 82,359                                                     |
| QPCG-2_4     | 0,3956                | 5                         | 0,600           | 13,012                                            | 89,563                                                     |
| QPCG-3_BK_MV | 0                     | 0                         | 5,747           | 0                                                 | 0                                                          |
| QPCG-3_1     | 0,05000               | 30                        | 4,029           | 34,376                                            | 29,906                                                     |
| QPCG-3_2     | 0,10210               | 30                        | 4,003           | 17,087                                            | 30,355                                                     |
| QPCG-3_3     | 0,20220               | 30                        | 3,631           | 10,467                                            | 36,825                                                     |
| QPCG-3_4     | 0,39480               | 30                        | 3,621           | 5,385                                             | 36,992                                                     |

**Tabla A.7**

*Datos implicados en el estudio de la variación de masa de QCG*

| Código      | Masa del polímero (g) | Tiempo (min) | Actividad (μCi) | Cantidad adsorbida (μCi g <sup>-1</sup> polímero) | Adsorción <sup>99</sup> MoO <sub>4</sub> <sup>-2</sup> (%) |
|-------------|-----------------------|--------------|-----------------|---------------------------------------------------|------------------------------------------------------------|
| QCG-1_BK_MV | 0                     | 60           | 2,394           | 0                                                 | 0                                                          |
| QCG-1_1     | 0,0499                | 60           | 0,635           | 35,235                                            | 73,461                                                     |
| QCG-1_2     | 0,1000                | 60           | 0,286           | 21,079                                            | 88,052                                                     |
| QCG-1_3     | 0,2013                | 60           | 0,132           | 11,235                                            | 94,486                                                     |
| QCG-1_4     | 0,4038                | 60           | 0,092           | 5,702                                             | 96,172                                                     |
| QCG-2_BK_MV | 0                     | 120          | 2,358           | 0                                                 | 0                                                          |
| QCG-2_1     | 0,0527                | 120          | 0,948           | 26,763                                            | 59,809                                                     |
| QCG-2_2     | 0,1014                | 120          | 0,776           | 15,608                                            | 67,089                                                     |
| QCG-2_3     | 0,1990                | 120          | 0,279           | 10,450                                            | 88,159                                                     |
| QCG-2_4     | 0,3987                | 120          | 0,209           | 5,391                                             | 91,136                                                     |
| QCG-3_BK_MV | 0                     | 100          | 2,144           | 0                                                 | 0                                                          |
| QCG-3_1     | 0,0495                | 100          | 0,068           | 41,954                                            | 96,832                                                     |
| QCG-3_2     | 0,1012                | 100          | 0,002           | 21,165                                            | 99,889                                                     |
| QCG-3_3     | 0,1990                | 100          | 0,002           | 10,764                                            | 99,886                                                     |
| QCG-3_4     | 0,4004                | 100          | 0,002           | 5,349                                             | 99,892                                                     |



**Tabla A.8**

*Cálculo para determinar la actividad en el día de experimento a partir de la actividad calculada en el equipo Gamma a 185 mm.*

| Descripción            | Medición gamma | Experimental   |
|------------------------|----------------|----------------|
| <b>Hora</b>            | 10:31:33 a. m. | 14:00:00 p. m. |
| <b>Fecha</b>           | 19/01/2024     | 15/01/2024     |
| <b>Actividad (μCi)</b> | 13,393         | <b>35,25</b>   |
| <b>Tiempo</b>          |                | 319214,13      |

✓ Cálculo de la actividad inicial experimental con la ecuación 13 de decaimiento

- Tiempo de semidesintegración (h) = 66,192
- Tiempo de semidesintegración (s) = 238291,2
- Constante de semidesintegración ( $s^{-1}$ ) =  $\frac{\text{LN}(2)}{238291,2} = 2,9088\text{E-}06$

$$= (\text{Fecha 1} - \text{Fecha 2}) \times 23 \times 3600 + (\text{Hora 1} - \text{Hora 2}) \times 23 \times 3600$$

$$= (19/01/2024 - 15/01/2024) \times 23 \times 3600 + (10:31:33 \text{ a.m} - 14:00:00 \text{ p.m}) \times 23 \times 3600$$

$$= 319214,13$$

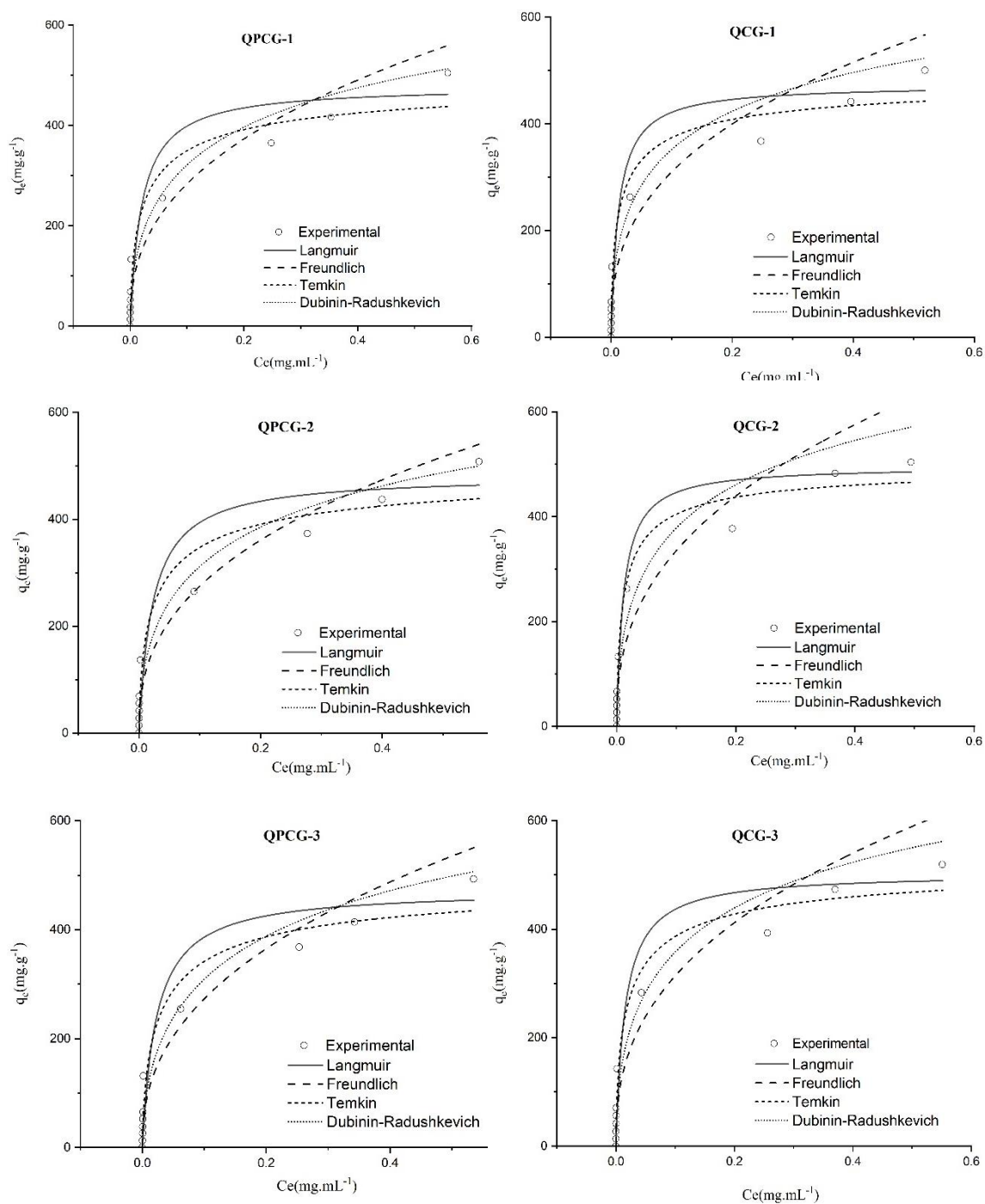
**Tabla A.9**

*Cálculo para determinar la adsorción de  $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$  en el día del experimento*

| Polímero | Descripción                   | $^{99}\text{Mo}$ Inicial-Armado | Medición gamma | Experimento   | Adsorción $^{99}\text{MoO}_4^{-2}$ (%) |
|----------|-------------------------------|---------------------------------|----------------|---------------|----------------------------------------|
| QPCG-2   | <b>Hora</b>                   | 2:00:00 p. m.                   | 11:26:02 a. m. | 2:00:00 p. m  | <b>73,04</b>                           |
|          | <b>Fecha</b>                  | 15/01/2024                      | 17/01/2024     | 15/01/2024    |                                        |
|          | <b>Actividad (μci)</b>        | <b>35,25</b>                    | 6,025          | <b>9,51</b>   |                                        |
|          | <b>Tiempo</b>                 | 319214,13                       | -              | 156746,92     |                                        |
|          | <b>Act. empaquetada (μci)</b> | 25,75                           |                |               |                                        |
| QCG-3    | <b>Hora</b>                   | 2:00:00 p. m.                   | 10:48:11 a. m. | 2:00:00 p. m. | <b>80,58</b>                           |
|          | <b>Fecha</b>                  | 15/01/2024                      | 18/01/2024     | 15/01/2024    |                                        |
|          | <b>Actividad (μci)</b>        | <b>35,25</b>                    | 3,432          | <b>6,85</b>   |                                        |
|          | <b>Tiempo</b>                 | 319214,13                       |                | 237370,54     |                                        |
|          | <b>Act. empaquetada (μci)</b> | 28,41                           |                |               |                                        |

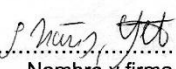
**Figura B.1**

*Isotermas obtenidas para los seis polímeros sintetizados*



## Figura B.2

Parámetros evaluados para el control de calidad de los eluatos de  $\text{Na } ^{99\text{m}}\text{TcO}_4$

| SOLICITUD DE ANÁLISIS                                                                                                                                                                                                                          |                                                                                                                                               |
|------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| RE051-CC00-PPRR                                                                                                                                                                                                                                | VERSION: 02                                                                                                                                   |
| N° 112-24                                                                                                                                                                                                                                      |                                                                                                                                               |
| <b>1. PROCEDENCIA</b>                                                                                                                                                                                                                          |                                                                                                                                               |
| a. Remitente                                                                                                                                                                                                                                   | : MSc. Victor Raul Poma Llantoy                                                                                                               |
| b. Área                                                                                                                                                                                                                                        | : Laboratorio de Técnicas Analíticas (TEAN) - INDE                                                                                            |
| c. Responsable                                                                                                                                                                                                                                 | : Pablo Mendoza                                                                                                                               |
| d. Fecha de recepción:                                                                                                                                                                                                                         | 19/03/2024 Hora: 10:30:00 am                                                                                                                  |
| <b>2. DATOS DE LA MUESTRA</b>                                                                                                                                                                                                                  |                                                                                                                                               |
| a. Identificación                                                                                                                                                                                                                              | : M1-Tc-99m                                                                                                                                   |
| b. N° de unidades                                                                                                                                                                                                                              | : 01                                                                                                                                          |
| c. Tipo de envase                                                                                                                                                                                                                              | : Vidrio borosilicato                                                                                                                         |
| d. Cantidad                                                                                                                                                                                                                                    | : 1 mL                                                                                                                                        |
| e. Descripción                                                                                                                                                                                                                                 | : Eluato de tecnecio 99 metaestable                                                                                                           |
| <b>3. ANÁLISIS SOLICITADOS:</b>                                                                                                                                                                                                                |                                                                                                                                               |
| a. Físicos-químicos:                                                                                                                                                                                                                           |                                                                                                                                               |
| i. <u>Aspecto</u>                                                                                                                                                                                                                              |                                                                                                                                               |
| ii. <u>pH</u>                                                                                                                                                                                                                                  |                                                                                                                                               |
| iii. Determinación de $\text{Al}^{+3}$                                                                                                                                                                                                         |                                                                                                                                               |
| iv. Determinación de MEC                                                                                                                                                                                                                       |                                                                                                                                               |
| v. <u>Pureza radioquímica</u>                                                                                                                                                                                                                  |                                                                                                                                               |
| vi. Control de agua destilada                                                                                                                                                                                                                  |                                                                                                                                               |
| vii. Control de agua bidestilada                                                                                                                                                                                                               |                                                                                                                                               |
| viii. Control de agua potable.                                                                                                                                                                                                                 |                                                                                                                                               |
| ix. Otros                                                                                                                                                                                                                                      |                                                                                                                                               |
| b. Nucleares:                                                                                                                                                                                                                                  |                                                                                                                                               |
| i. Identificación radionucleídica                                                                                                                                                                                                              |                                                                                                                                               |
| ii. Pureza radionucleídica                                                                                                                                                                                                                     |                                                                                                                                               |
| iii. Determinación de Mo 99                                                                                                                                                                                                                    |                                                                                                                                               |
| iv. Relación radioactiva Mo 99 / Tc 99m                                                                                                                                                                                                        |                                                                                                                                               |
| v. Otros radionúclidos emisores gamma                                                                                                                                                                                                          |                                                                                                                                               |
| vi. Valoración de radioactividad                                                                                                                                                                                                               |                                                                                                                                               |
| vii. Medición radioactiva de filtros                                                                                                                                                                                                           |                                                                                                                                               |
| viii. Otros                                                                                                                                                                                                                                    |                                                                                                                                               |
| c. Biológicos:                                                                                                                                                                                                                                 |                                                                                                                                               |
| i. Esterilidad                                                                                                                                                                                                                                 |                                                                                                                                               |
| ii. Endotoxinas bacterianas                                                                                                                                                                                                                    |                                                                                                                                               |
| iii. Recuento microbiano                                                                                                                                                                                                                       |                                                                                                                                               |
| iv. Control microbiológico de área                                                                                                                                                                                                             |                                                                                                                                               |
| v. Otros                                                                                                                                                                                                                                       |                                                                                                                                               |
| <b>4. Observaciones:</b>                                                                                                                                                                                                                       |                                                                                                                                               |
| <br>Firmado digitalmente por POMA<br>LLANTOY Victor Raul FAU<br>20131371253 soft<br>Motivo: Soy el autor del documento<br>Fecha: 18.03.2024 11:10:28 -05:00 | <br>Nombre y firma<br>de la persona que recibe la muestra |
| Nombre y firma<br>Jefe del Departamento o Área                                                                                                                                                                                                 |                                                                                                                                               |

SISCALIDAD \ RE051-CC00-PPRR 1/1  
Prohibido su reproducción total o parcial sin autorización de la PPRR - IPEN.

**Figura B.3***Informe de análisis del Na <sup>99m</sup>TcO<sub>4</sub> en la elección del método de ensamblado***6. RESULTADOS:****1. M1-TC-99m****a. Fisicoquímicos:**

| FECHA    | ENSAYO              | ESPECIFICACIÓN                     | RESULTADO | CONDICIÓN   |
|----------|---------------------|------------------------------------|-----------|-------------|
| 23-04-24 | Aspecto             | Solución acuosa límpida e incolora | -         | Conforme    |
| 23-04-24 | pH                  | 4,5 a 7,5                          | 6,5       | Conforme    |
| 23-04-24 | Pureza radioquímica | ≥ 95 %                             | 79,21%    | No conforme |

**b. Nucleares:**

| FECHA    | ENSAYO                          | ESPECIFICACIÓN                   | RESULTADO                       | CONDICIÓN   |
|----------|---------------------------------|----------------------------------|---------------------------------|-------------|
| 23-04-24 | Pureza radionucleídica          | ≥ 99,996 % Tc99m                 | 69,51 %                         | No conforme |
| 23-04-24 | Determinación de Mo99           | ≤ 0,043 µCi de Mo99/mCi de Tc99m | 438,56 µCi de Mo99/mCi de Tc99m | No Conforme |
| 23-04-24 | Relación radioactiva Mo99/Tc99m | -----                            | 0,86                            | -----       |

**2. M2-TC-99m****a. Fisicoquímicos**

| FECHA    | ENSAYO              | ESPECIFICACIÓN                     | RESULTADO | CONDICIÓN   |
|----------|---------------------|------------------------------------|-----------|-------------|
| 23-04-24 | Aspecto             | Solución acuosa límpida e incolora | -         | Conforme    |
| 23-04-24 | pH                  | 4,5 a 7,5                          | 7,0       | Conforme    |
| 23-04-24 | Pureza radioquímica | ≥ 95 %                             | 87,67 %   | No conforme |

**b. Nucleares:**

| FECHA    | ENSAYO                          | ESPECIFICACIÓN                   | RESULTADO                       | CONDICIÓN   |
|----------|---------------------------------|----------------------------------|---------------------------------|-------------|
| 23-04-24 | Pureza radionucleídica          | ≥ 99,996 % Tc99m                 | 89,82 %                         | No conforme |
| 23-04-24 | Determinación de Mo99           | ≤ 0,043 µCi de Mo99/mCi de Tc99m | 113,31 µCi de Mo99/mCi de Tc99m | No Conforme |
| 23-04-24 | Relación radioactiva Mo99/Tc99m | -----                            | 0,21                            | -----       |

**3. M3-TC-99m****a. Fisicoquímicos:**

| FECHA    | ENSAYO              | ESPECIFICACIÓN                     | RESULTADO | CONDICIÓN   |
|----------|---------------------|------------------------------------|-----------|-------------|
| 23-04-24 | Aspecto             | Solución acuosa límpida e incolora | -         | Conforme    |
| 23-04-24 | pH                  | 4,5 a 7,5                          | 6,5       | Conforme    |
| 23-04-24 | Pureza radioquímica | ≥ 95 %                             | 88,97 %   | No conforme |

**b. Nucleares:**

| FECHA    | ENSAYO                          | ESPECIFICACIÓN                   | RESULTADO                       | CONDICIÓN   |
|----------|---------------------------------|----------------------------------|---------------------------------|-------------|
| 23-04-24 | Pureza radionucleídica          | ≥ 99,996 % Tc99m                 | 75,15 %                         | No conforme |
| 23-04-24 | Determinación de Mo99           | ≤ 0,043 µCi de Mo99/mCi de Tc99m | 330,59 µCi de Mo99/mCi de Tc99m | No Conforme |
| 23-04-24 | Relación radioactiva Mo99/Tc99m | -----                            | 0,63                            | -----       |

## Figura B.4

### Informe de análisis del $\text{Na } ^{99\text{m}}\text{TcO}_4$ en la matriz polimérica

#### INFORME DE ANÁLISIS

RE052-CC00-PPRR

VERSION: 01

N° 128-24

1. RE051-CC00-PPRR N°: 12824
2. Remitente: TEAN-INDE
3. Fecha de recepción de la muestra: 09-04-24
4. DATOS DE LA MUESTRA
  - a. Identificación : E1-Tc-99m, E2-Tc-99m
  - b. N° de unidades: 02
  - c. Tipo de envase: Vidrio borosilicato
  - d. Cantidad: 1 mL c/u
  - e. Descripción: Eluato de Tc99m

#### 5. ANÁLISIS SOLICITADOS:

##### a Físicoquímicos:

- i. Aspecto
- ii. pH
- iv. Pureza radioquímica
- v. Determinación de Aluminio (+3)

##### b. Nucleares:

- i. Identificación radionucleídica
- ii. Pureza radionucleídica
- iii. Determinación de Mo99
- iv. Relación radioactiva Mo99/Tc99m
- v. Otros radionúclidos emisores gamma
- vi. Valoración de radioactividad

#### 6. RESULTADOS:

##### 1. Muestra E1-TC-99m

##### a. Físicoquímicos:

| FECHA    | ENSAYO                   | ESPECIFICACIÓN                     | RESULTADO | CONDICIÓN   |
|----------|--------------------------|------------------------------------|-----------|-------------|
| 09-04-24 | Aspecto                  | Solución acuosa límpida e incolora | -         | Conforme    |
| 09-04-24 | pH                       | 4,5 a 7,5                          | 6,5       | Conforme    |
| 09-04-24 | Determinación de Al (+3) | ≤ 10 ppm                           | > 20 ppm  | No Conforme |

##### b. Nucleares:

| FECHA    | ENSAYO                             | ESPECIFICACIÓN                   | RESULTADO                       | CONDICIÓN   |
|----------|------------------------------------|----------------------------------|---------------------------------|-------------|
| 09-04-24 | Identificación radionucleídica     | $0,140 \pm 0,0025$ MeV           | 0,14044 MeV                     | Conforme    |
| 09-04-24 | Pureza radionucleídica             | ≥ 99,996 % Tc99m                 | 80,94 %                         | No conforme |
| 09-04-24 | Determinación de Mo99              | ≤ 0,043 μCi de Mo99/mCi de Tc99m | 235.41 μCi de Mo99/mCi de Tc99m | No Conforme |
| 09-04-24 | Relación radioactiva Mo99/Tc99m    | -----                            | 0,48                            | -----       |
| 09-04-24 | Otros radionúclidos emisores gamma | ≤ 0,02 μCi/mCi de Tc99m          | No detectado                    | Conforme    |

## Figura B.5

### Informe de análisis del $\text{Na } ^{99\text{m}}\text{TcO}_4$ en la columna de alúmina ácida

#### INFORME DE ANÁLISIS

RE052-CC00-PPRR

VERSION: 01

#### 2. Muestra E2-Tc-99m

##### a. Fisicoquímicos

| FECHA    | ENSAYO                   | ESPECIFICACIÓN                     | RESULTADO | CONDICIÓN |
|----------|--------------------------|------------------------------------|-----------|-----------|
| 09-04-24 | Aspecto                  | Solución acuosa límpida e incolora | -         | Conforme  |
| 09-04-24 | pH                       | 4,5 a 7,5                          | 6,0       | Conforme  |
| 09-04-24 | Determinación de Al (+3) | $\leq 10$ ppm                      | 10 ppm    | Conforme  |

##### b. Nucleares:

| FECHA    | ENSAYO                             | ESPECIFICACIÓN                                   | RESULTADO                                 | CONDICIÓN   |
|----------|------------------------------------|--------------------------------------------------|-------------------------------------------|-------------|
| 09-04-24 | Identificación radionucleídica     | $0,140 \pm 0.0025$ MeV                           | 0,14038 MeV                               | Conforme    |
| 09-04-24 | Pureza radionucleídica             | $\geq 99,996$ % Tc99m                            | 98.90 %                                   | No conforme |
| 09-04-24 | Determinación de Mo99              | $\leq 0,043$ $\mu\text{Ci}$ de Mo99/mCi de Tc99m | 11,11 $\mu\text{Ci}$ de Mo99/mCi de Tc99m | No Conforme |
| 09-04-24 | Otros radionúclidos emisores gamma | $\leq 0,02$ $\mu\text{Ci}/\text{mCi}$ de Tc99m   | No detectable                             | Conforme    |

#### 7. OBSERVACIONES:

Con respecto a la muestra E1-Tc-99m:

- La radiactividad de la muestra recibida fue de 167,7  $\mu\text{Ci}/\text{mL}$  de Tc99m Hora: 11:30 h
- No se realizó la Pureza radioquímica por tener radiactividad menor a 1mCi/mL
- La valoración de radioactividad no aplica.

Con respecto a la muestra E2-Tc-99m:

- La radiactividad de la muestra recibida fue de 63,48  $\mu\text{Ci}/\text{mL}$  de Tc99m
- No se realizó la Pureza radioquímica por tener radiactividad menor a 1mCi/mL
- La valoración de radioactividad no aplica.
- La relación radioactiva Mo99/Tc99m no aplica

**RECOMENDACIÓN:** Para la determinación de Pureza Radioquímica, se requiere contar con una muestra cuya concentración de radiactividad sea  $\geq$  de 1mCi/mL.

#### 8. FECHA: 10-03-24

.....  
Q.F. Eleazar Aliaga Rojas  
C.Q.F.P. N° 16120  
Jefe del Dpto. de Control de Calidad  
Planta de Producción de Tc-99m  
.....  
Nombre y firma  
Jefe del Dpto. de Control de Calidad

.....  
Nombre y firma  
Persona que recibe el informe

## Figura B.6

### Informe de análisis del $\text{Na } ^{99\text{m}}\text{TcO}_4$ con mayor radiactividad

#### 6. RESULTADOS:

##### 1. Muestra E3-TC-99m

##### a. Fisicoquímicos:

| FECHA    | ENSAYO                  | ESPECIFICACIÓN                     | RESULTADO          | CONDICIÓN   |
|----------|-------------------------|------------------------------------|--------------------|-------------|
| 10-04-24 | Aspecto                 | Solución acuosa límpida e incolora | -                  | Conforme    |
| 10-04-24 | pH                      | 4,5 a 7,5                          | 6,5                | Conforme    |
| 10-04-24 | Determinación de Al(+3) | $\leq 10$ ppm                      | $\gg 20$ ppm       | No conforme |
| 10-04-24 | Pureza radioquímica     | $\geq 95$ %                        | $83,21 \pm 2.45\%$ | No conforme |

##### b. Nucleares:

| FECHA    | ENSAYO                             | ESPECIFICACIÓN                                   | RESULTADO                                   | CONDICIÓN   |
|----------|------------------------------------|--------------------------------------------------|---------------------------------------------|-------------|
| 10-04-24 | Identificación radionucleídica     | $0,140 \pm 0.0025$ MeV                           | 0,14046 MeV                                 | Conforme    |
| 10-04-24 | Pureza radionucleídica             | $\geq 99,996$ % Tc99m                            | 69,34 %                                     | No conforme |
| 10-04-24 | Determinación de Mo99              | $\leq 0,043$ $\mu\text{Ci}$ de Mo99/mCi de Tc99m | 442,18 $\mu\text{Ci}$ de Mo99/mCi de Tc99m  | No Conforme |
| 10-04-24 | Relación radioactiva Mo99/Tc99m    | -----                                            | 0,80                                        | -----       |
| 10-04-24 | Otros radionúclidos emisores gamma | $\leq 0,02$ $\mu\text{Ci}/\text{mCi}$ de Tc99m   | 0,004 $\mu\text{Ci}$ de Nb92m /mCi de Tc99m | Conforme    |

#### 7. OBSERVACIONES:

Con respecto a la muestra E3-Tc-99m:

- La radiactividad de la muestra recibida fue de 2,43 mCi/mL de Tc99m Hora: 11:00 h



## Figura B.7

Artículo publicado en la revista *Results in Chemistry*

Results in Chemistry 12 (2024) 101858



Contents lists available at ScienceDirect

# Results in Chemistry

journal homepage: [www.sciencedirect.com/journal/results-in-chemistry](http://www.sciencedirect.com/journal/results-in-chemistry)





## Chitosan extracted from the feather of *Dosidicus gigas* crosslinked with glutaraldehyde for use as a $^{99}\text{Mo}$ adsorbent

Erika Bardales-Abanto<sup>a</sup>, Erick Zevallos-Mendoza<sup>a</sup>, Victor Poma Llantoy<sup>b</sup>, Anais Adaauto<sup>b</sup>, Ana Cecilia Valderrama Negrón<sup>a,\*</sup>, Pablo Mendoza<sup>b</sup>, Joshelyn Paredes-Zavala<sup>c</sup>

<sup>a</sup> Faculty of Sciences, National University of Engineering, Av. Tupac Amaru 210, Rimac, Lima, Peru  
<sup>b</sup> Laboratory of Analytical Techniques, Peruvian Institute of Nuclear Energy, Oscar Miró Quesada de la Guerra Nuclear Center, Av. José Saco Km. 13, Carabayillo, Lima, Peru  
<sup>c</sup> Faculty of Pharmaceutical, Biochemical and Biotechnological Sciences, Catholic University of Santa María, Urb. San José, San José s/n, Yanahuara, Arequipa, Peru

---

### ARTICLE INFO

**Keywords:**  
 Biopolymer  
 Adsorption  
 $^{99}\text{MoO}_4^{2-}$  ion  
 Chitosan  
 Squid feather

### ABSTRACT

The production of Technetium-99 m ( $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ) is important for cancer diagnosis. The solvent extraction is the most widely used method to obtain  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ ; however, due to the evaporation of the polluting solvent into the environment, a radiochemical separation using a chromatographic column system based on adsorbent materials would be cleaner and more efficient.

In this study, squid feather (*Dosidicus gigas*) chitosan (SFC) polymers have been synthesized and crosslinked with glutaraldehyde solutions at concentrations of 50, 40 and 25 % to study the adsorption of  $^{99}\text{Mo}$  with the aim of test a promising material to produce  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  in the chromatographic column of the  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  generator. Likewise, the same methodology of synthesis was performed using a commercial chitosan (CC) as a control. Deacetylation degree was measured obtaining 74.15 % and 77.65 % for the SFC and CC polymers, respectively. The molecular weight obtained was 990.72 kDa for SFC and 722.72 kDa for CC and the characterization of the biopolymers was performed with FTIR, SEM, XRD, TGA y FT Raman techniques. Equilibrium time, adsorbent mass and pH effect were evaluated as factors that influence the adsorption process of  $^{99}\text{MoO}_4^{2-}$ . The zero load point ( $\text{pH}_{\text{PZC}}$ ) analysis confirmed the positive charge of the crosslinked polymers, improving the adsorption capacity of  $^{99}\text{MoO}_4^{2-}$  at low pH values between 2 and 4, following a pseudo-first order model. With respect to the adsorption isotherms, they exhibit maximum values of  $^{99}\text{MoO}_4^{2-}$  of 482  $\text{mg g}^{-1}$  SFOG40 and 502  $\text{mg g}^{-1}$  CCG25 with a better fit to the Langmuir theoretical model.

### Introduction

$^{99\text{m}}\text{Tc}$  is the most used radioisotope in nuclear medicine for diagnostic purposes due to its nuclear and chemical characteristics which allow the synthesis of a variety of radiopharmaceuticals for application in clinical imaging procedures in various organs and tissues of interest [1,2].

$^{99\text{m}}\text{Tc}$  is produced in nuclear research reactors, such as the RACSO nuclear center at the Peruvian Institute of Nuclear Energy (IPEN), where through neutron activation reaction  $^{98}\text{Mo} (n, \gamma) ^{99\text{m}}\text{Mo}$ ,  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  is generated by negative beta decay. Although the specific activity of  $^{99}\text{Mo}$  achieved is relatively low, the  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  activity obtained partially covers the demand

of the medical centers in the city of Lima, while at the regional level, the demand of  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  is covered by imported  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  generators. To improve the availability of  $^{99\text{m}}\text{Tc}$ , an automatic prototype for  $^{99\text{m}}\text{Tc}$  production was developed using liquid-liquid extraction as a separation method of  $^{99}\text{Mo}/^{99\text{m}}\text{Tc}$  using methyl ethyl ketone (MEK) as a solvent. However, as part of the process, the evaporation of MEK is required, generating volatile chemical residues. Therefore, an alternative solution to these limitations is to change the separation method to column chromatography using a matrix with higher adsorption capacity [3]. There is a wide range of adsorbents, from the use of mesoporous alumina [4] to zirconium MOFs (metal-organic framework) compounds, known as UTO-66 [3,5].

\* Corresponding author.  
 E-mail addresses: [erika.bardales.a@uni.pe](mailto:erika.bardales.a@uni.pe) (E. Bardales-Abanto), [erick.zevallos.m@uni.pe](mailto:erick.zevallos.m@uni.pe) (E. Zevallos-Mendoza), [vpoma@ipen.gob.pe](mailto:vpoma@ipen.gob.pe) (V.P. Llantoy), [aadauto@ipen.gob.pe](mailto:aadauto@ipen.gob.pe) (A. Adaauto), [ana.valderrama.n@uni.edu.pe](mailto:ana.valderrama.n@uni.edu.pe) (A.C. Valderrama Negrón), [pmendoza@ipen.gob.pe](mailto:pmendoza@ipen.gob.pe) (P. Mendoza), [jparedesz@ucsm.edu.pe](mailto:jparedesz@ucsm.edu.pe) (J. Paredes-Zavala).

<https://doi.org/10.1016/j.rechem.2024.101858>  
 Received 15 August 2024; Accepted 10 October 2024  
 Available online 22 October 2024  
 2211-7156/© 2024 The Author(s). Published by Elsevier B.V. This is an open access article under the CC BY-NC license (<http://creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0/>).



## Figura B.8

*Presentación de poster en el Congreso SILAE realizado en Octubre del 2023*



XXX Peruvian Congress of Chemistry  
XXX Italian-Latin American Congress of Ethnomedicine  
October 16th-20th, 2023, Lima, Peru  
"Breaking Barriers in Sciences"

07, September, 2023

### ACCEPTANCE LETTER

Dears Erika Julisa Bardales Abanto, Ana Cecilia Valderrama Negrón, Víctor Raúl Poma Llantoy

Your abstract entitled: Separación selectiva de  $^{99}\text{Mo}$  utilizando una matriz de quitosano modificado con glutaraldehído en columna cromatográfica

### WAS ACCEPTED

as a presentation at the XXX Peruvian Congress of Chemistry and XXX Italian-Latin American Congress of Ethnomedicine that will be held in Lima (Peru) on October 16th-20th, 2023

Prof. Luca Rastrelli  
SILAE General Secretary  
and Scientific International Committee

A handwritten signature in black ink, appearing to read 'Luca Rastrelli'.

## Figura B.9

Presentación oral en el Congreso Internacional de Energía Nuclear (CIEN) realizado en Enero del 2025.



"Decenio de la Igualdad de Oportunidades para  
Mujeres y Hombres"  
"Año del Bicentenario, de la consolidación de nuestra  
Independencia y de la conmemoración de las  
heroicas batallas de Junín y Ayacucho"



Con fecha 26 de diciembre 2024, el Comité Editor del Congreso Internacional de Energía Nuclear da la conformidad para su presentación oral del trabajo adjunto luego de concluir con la revisión por pares respectiva. Se agradece a los autores.

### Aplicación de polímeros de quitosano (extraído de pluma de *Dosidicus gigas*) entrecruzado con glutaraldehído como potencial adsorbente de $^{99}\text{Mo}$ : Aprovechamiento en economía circular

Bardales-Abanto, E.<sup>1</sup>, Poma, V.<sup>2</sup>

<sup>1</sup> Laboratorio de Investigación de Biopolímeros y Metalofármacos, Escuela Profesional de Química, Universidad Nacional de Ingeniería.

<sup>2</sup> Laboratorio de Técnicas Analíticas de la Dirección de Investigación y Desarrollo, Centro Nuclear Óscar Miró Quesada – Racso (IPEN).

[erika.bardales.a@uni.pe](mailto:erika.bardales.a@uni.pe)

Código ORCID: <https://orcid.org/0000-0001-7541-5225>.

#### Resumen

**Introducción:** El tecnecio 99 metaestable ( $^{99m}\text{Tc}$ ), el radioisótopo descendiente del Molibdeno 99 ( $^{99}\text{Mo}$ ), es el radioisótopo más utilizado en el diagnóstico de cáncer mediante imágenes de Tomografía Computarizada por Emisión de Fotón Único (SPECT). Usualmente, la separación radioquímica de  $^{99m}\text{Tc}$  se realiza utilizando MEK como solvente; el cual genera residuos químicos volátiles que perjudica el ambiente, sin embargo, un método alternativo para producción de  $^{99m}\text{Tc}$  es la columna cromatográfica basada en materiales con alta capacidad de adsorción. El quitosano es conocido por su buena capacidad de adsorción y que se puede obtener de fuentes naturales como la pluma de *Dosidicus gigas*, con la finalidad de aprovechar y otorgar un valor agregado un residuo marino aportando a la economía circular. **Objetivo:** Evaluar la capacidad de adsorción de  $^{99}\text{MoO}_4^{2-}$  de los polímeros de quitosano de pluma de *Dosidicus gigas* entrecruzado con glutaraldehído para su aplicación en columna cromatográfica. **Metodología:** El quitosano se obtuvo de la pluma de *Dosidicus gigas* (QPC) proveniente del puerto de Pucusana de Lima-Perú, ha sido modificado químicamente con glutaraldehído para emplearlo como material adsorbente de  $^{99}\text{MoO}_4^{2-}$ . Para ello, se pretende entrecruzar los grupos  $-\text{NH}_2$  del quitosano con los grupos  $-\text{CHO}$  del glutaraldehído mediante reacciones de Schiff. **Resultados:** El QPC fue entrecruzado con glutaraldehído empleando concentraciones de 50 % (QPCG-1), 40 % (QPCG-2), y 25 % (QPCG-3) con sus análogos de quitosano comercial (QC). Las técnicas de caracterización mediante FT-IR, SEM, DRX, TGA, RMN y FT-Raman confirmaron el entrecruzamiento de los polímeros mediante la formación de las bases de Schiff con grados de entrecruzamiento cercanos al 85 %. Durante el proceso de adsorción del  $^{99}\text{MoO}_4^{2-}$  se analizó la influencia de tiempo de contacto y el pH; obteniéndose un porcentaje de remoción de 97 % y 99,8% con los materiales QPCG-2 y QCG-3, respectivamente, evaluado a los 5 min de agitación y a un pH=2. Se observó que la isoterma de Langmuir se ajustó mejor a los datos de adsorción y los procesos de adsorción siguieron la cinética de pseudo-segundo orden. **Discusión y conclusiones:** El modelo de pseudo segundo orden y Langmuir indican que la etapa que controla la reacción global es la adsorción por quimisorción, interpretándose como los iones  $^{99}\text{MoO}_4^{2-}$  interactúan fuertemente en la superficie del polímero con los grupos  $-\text{NH}_2$  del quitosano en un medio ácido formando una monocapa. Los ensayos empleando columna cromatográfica han evidenciado una adsorción de  $^{99}\text{MoO}_4^{2-}$  del 73,04 % para QPCG-2 y 80,58 % para QCG-3 a pH 2, con rendimientos de elución superiores al 80 % en 5 días consecutivos. Adicionalmente, a medida que se incrementa la concentración de actividad del  $^{99}\text{MoO}_4^{2-}$  inicial, el polímero se vuelve más sensible

**Figura B.10**

Presentación de poster en el International Atomic Energy Agency (IAEA) realizado en Polonia en Setiembre del 2024, como parte de la difusión de investigación en el IPEN

**Impact of gamma radiation on the structure of chitosan (extracted from *Dosidicus gigas* plume) modified with glutaraldehyde.**

**Anaís Adaauto<sup>1</sup>, Erika Bardales<sup>2</sup>, Pablo Mendoza<sup>1</sup>**

<sup>1</sup>Analytical Techniques Laboratory, Peruvian Institute of Nuclear Energy, Centro Nuclear Oscar Miro Quesada de la Guerra, Av. José Saco Km. 13, Carabayllo, Lima, Peru.  
<sup>2</sup>Faculty of Sciences, National University of Engineering, Av. Tupac Amaru 210, Rimac, Lima, Peru



**INTRODUCTION**



Chitosan is a derivative of chitin and is considered the second most abundant polysaccharide and of great commercial interest due to their properties [1]. Chitosan is obtained by N-deacetylation of chitin, which is naturally found in the exoskeleton of crustaceans, insects and microorganisms [2]. Chitosan is randomly constituted by 2-acetylaminio-2-deoxy-β-D-Glucopyranose (acetylated section) and 2-amino-2-deoxy-β-D-Glucopyranose (deacetylated section) units [3]. Additionally, there are physical, chemical and biological methods to modify the polymer structure and thus its physical and chemical properties, however, these traditional processes require chemical agents and have low efficiency [4]. Therefore, introducing irradiation technology for these modifications compensates the mentioned disadvantages, although ionizing and non-ionizing radiation can be used, in this work we will evaluate the influence of ionizing radiation (gamma rays) on the chitosan obtained from dosidicus gigas plume crosslinked with glutaraldehyde.



## Certificate of attendance

granted to

**Anaís Elena Adaauto Ureta**

for the participation in

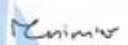
**International Atomic Energy Agency**

**Technical Meeting**

**on Basic Radiation Chemistry in Polymer Modification**

9-13 September 2024, Łódź, Poland

The purpose of the meeting was to provide students, scientists, and engineers with comprehensive information related to polymer engineering in order to supplement, upgrade, or refresh their existing knowledge and skills in the fields of radiation chemistry and radiation processing of polymers. The event consisted of lectures and exercises to foster the development of planning, calculation, and data assessment skills; as well as laboratory exercises providing hands-on training on selected aspects of radiation equipment, dosimetry in the radiation processing of polymers, and studying the basic properties of polymers.



Maria Helena Freitas Casimiro  
IAEA Scientific Secretary for the Course  
Division of Physical and Chemical Sciences  
Department of Nuclear Sciences and Applications  
International Atomic Energy Agency



Piotr Ulański  
Course Organizer  
Institute of Applied Radiation Chemistry  
Faculty of Chemistry Lodz University of Technology



