

RESUMEN

Las zeolitas han destacado por sus aplicaciones en procesos catalíticos y de adsorción/separación de gases de alto impacto industrial. Esto es debido a que presentan propiedades de tamiz molecular como consecuencia de sus estructuras microporosas y, además es posible ajustar sus propiedades catalíticas variando su composición química, presencia de defectos estructurales, tamaño promedio de cristal, etc. Hasta el momento se han reconocido 255 estructuras zeolíticas diferentes, pero la obtención de zeolitas con nuevas estructuras es un aspecto muy relevante dentro de la ciencia de materiales ya que permite ampliar el rango de aplicaciones de estos materiales.

Por ello, el objetivo fundamental de esta tesis doctoral es la obtención de nuevos materiales zeolíticos, empleándose para ello, cationes orgánicos que actuarán como agentes directores de estructura (ADEs) en la cristalización de zeolitas.

Así, se ha estudiado el empleo cationes derivados de biciclopirrolidina como ADEs sintetizados mediante reacciones orgánicas de cicloadición [3+2]. Estos ADEs han sido efectivos en la síntesis de zeolitas, obteniéndose diversos sólidos microporosos cuya preparación había sido descrita anteriormente con otros cationes orgánicos. Sin embargo, uno de los cationes empleados ha dado lugar a la cristalización de una nueva zeolita, denominada ITQ-69, que presenta un sistema tridireccional de canales rectos, de poro pequeño (8 x 8 x 8 R) y ausencia de cavidades. Este material ha sido efectivo en la separación selectiva de propileno de propano en su forma de germanosilicato.

La síntesis de zeolitas quirales, es sin duda el objetivo más ambicioso propuesto. En esta tesis se ha explorado el empleo de derivados de azúcares como parte fundamental en la síntesis de ADEs. En concreto, se ha explorado la isomanida como unidad sintética quiral en la preparación de dicaciones quirales. Cuando la isomanida se combina con la presencia de imidazolios (altamente selectivos hacia la estructura STW) se ha obtenido un material STW en forma de germanosilicato. Este sólido cristaliza formando cristales de tamaño

suficientemente grande como para realizar estudios de difracción de Rayos X en monocristal, y determinar el exceso enantiomérico de distintas preparaciones. En todos los casos, se obtiene cristales S-STW homquirales enantimórficamente puros, constituyendo el primer ejemplo de obtención selectiva quiral de una zeolita reportado hasta la fecha.

En esta parte de la tesis, también se obtuvieron zeolitas con topología STW empleando ADEs no quirales. Algunos de estos sólidos, se evaluaron en la separación de hidrocarburos con diferentes grados de ramificación (zeolita STW puramente silíceo) y en la reducción selectiva de NO con propano (zeolita Al-STW intercambiadas con Cu).

Finalmente, se han estudiado diferentes cationes organofosforados como ADEs. La elevada estabilidad de estos cationes en el medio de síntesis, ha permitido la obtención de una nueva zeolita, ITQ-70, que presenta un elevado grado de defectos de conectividad y una muy baja densidad de red. La estructura de la zeolita ITQ-70 presenta un sistema de supercavidades con ventanas interconectadas de acceso a las mismas (20 x 20 x 18 R) y cristaliza con un grupo de simetría proquiral.