

## Resumen

La presente tesis doctoral titulada “Materiales de sílice funcionales para la liberación controlada, detección y eliminación de moléculas de interés” se centra en el diseño y desarrollo de materiales híbridos orgánico-inorgánicos mediante la aplicación de los conceptos de Química Supramolecular. Durante el desarrollo de la presente tesis doctoral se han preparado y caracterizado diferentes materiales de base silíceos para distintas aplicaciones.

La primera parte de la tesis se centra en el desarrollo de materiales de base silíceos capaces de variar su comportamiento fluorescente en función de la presencia o ausencia de un cierto analito en el medio. Estos materiales emplean como soporte nanopartículas de sílice que se funcionalizan superficialmente con dos unidades diferentes, una coordinante y una indicadora (un fluoróforo). La interacción del analito de interés (en nuestro caso aniones) con la unidad coordinante modificará las propiedades emisivas del fluoróforo. Así, se han preparado dos materiales en los cuales el grupo fluorescente es rodamina mientras que el grupo coordinante es un imidazolato o una sal de guanidinio respectivamente. Una vez caracterizados ambos materiales se estudió su comportamiento frente a diferentes especies aniónicas a diferentes concentraciones resultando selectivos a la presencia de benzoato (el material funcionalizado con imidazolatos), dihidrógeno fosfato e hidrógeno sulfato (el material funcionalizado con sales de guanidinio).

El tercer capítulo de la tesis se centra en la aplicación de materiales híbridos orgánico-inorgánicos para la detección y eliminación de especies altamente tóxicas como son los agentes neurotóxicos. Estos son compuestos organofosforados capaces de causar graves lesiones en el sistema nervioso central. En una primera aproximación se emplea el concepto de puerta molecular para la detección de agentes neurotóxicos. Para ello, se utiliza como soporte inorgánico un material mesoporoso de sílice (MCM-41) cuyos poros se cargan con un colorante que actúa de indicador mientras que la superficie externa del mismo

## Resumen

se funcionaliza con una molécula capaz de reaccionar con dichos agentes neurotóxicos. Dicha molécula es capaz de interactuar entre sí (mediante enlaces de hidrógeno) formando una red que mantiene bloqueada la salida de los poros. En presencia de DCP (dietilclorofosfato, un simulante de agente neurotóxico), y después de que este reaccione con dicha molécula, se produce una reorganización espacial que permite la liberación del colorante. De este modo, la presencia de los agentes neurotóxicos está señalizada mediante un cambio de color. En una segunda aproximación se aborda el uso de soportes inorgánicos de tipo MCM-41 como materiales para la eliminación de agentes neurotóxicos. Para ello se modificaron químicamente las superficies de estos materiales silíceos mediante tratamiento con distintas bases. Como consecuencia de este tratamiento básico los silanoles de la superficie se desprotonan dando lugar a los correspondientes silanolatos (nucleófilos fuertes). Estos silanolatos son capaces de reaccionar con los agentes neurotóxicos descomponiéndolos y favoreciendo su eliminación de un medio contaminado.

Por último, se estudia la aplicación de materiales híbridos orgánico-inorgánicos funcionalizados con puertas moleculares en aplicaciones de liberación controlada, concretamente, en liberación controlada intracelular de fármacos de interés. El material híbrido consta de un soporte de sílice mesoporosa cuyos poros se cargan con un compuesto citotóxico (camptotecina) y su superficie externa se funcionaliza con una gluconamida. La presencia de una monocapa densa de gluconamidas por el exterior del material inhibe la liberación del compuesto citotóxico. Al añadir enzimas con capacidad para hidrolizar enlaces amida (amidasa y pronasa) se produce la liberación de la camptotecina. El correcto funcionamiento del material se comprobó *in vitro* e *in vivo* (en células HeLa).