

## ÍNDICE

CAPÍTULO 1 INTRODUCCIÓN GENERAL.....	15
1.1    QUÍMICA SOSTENIBLE .....	17
1.2    QUÍMICA SOSTENIBLE Y CATÁLISIS.....	21
1.3    CATALIZADORES DE ÓXIDO DE CERIO Y DE ORO SOBRE ÓXIDO DE CERIO – ANTECEDENTES EN EL ITQ .....	28
1.3.1    Reacciones de oxidación .....	28
1.3.2    Reacción de transalquilación de carbonato de propileno .....	33
REFERENCIAS BIBLIOGRÁFICAS .....	35
CAPÍTULO 2 OBJETIVOS .....	38
OBJETIVOS.....	40
CAPÍTULO 3 FORMACIÓN DE ENLACES C-C.....	42
3.1    INTRODUCCIÓN .....	44
3.2    IDENTIFICACIÓN DEL PROBLEMA Y DE LOS OBJETIVOS.....	49
3.3    RESULTADOS Y DISCUSIÓN .....	51
3.3.1    Estudio teórico del mecanismo de reacción .....	51
3.3.1.1    Estudio teórico del mecanismo de reacción sobre centros de oro neutros Au <sup>0</sup> .....	55
3.3.1.2    Estudio teórico del mecanismo de reacción sobre nanopartículas de oro parcialmente oxidadas Au <sub>38</sub> O <sub>2</sub> .....	59
3.3.1.3    Estudio teórico del mecanismo de reacción sobre nanopartículas de oro soportadas en CeO <sub>2</sub> .....	61
3.3.1.4    Conclusiones del estudio teórico .....	65
3.3.2    Estudio cinético de la reacción de Sonogashira .....	66
3.3.2.1    Consideraciones preliminares .....	66
3.3.2.2    Evaluación de la desactivación del catalizador.....	69
3.3.2.3    Planteamiento del modelo cinético .....	71
3.3.3    Síntesis, caracterización y evaluación de catalizadores de Au/CeO <sub>2</sub> con diferentes relaciones Au <sup>0</sup> /Au <sup>+δ</sup> en la reacción de Sonogashira.....	81
3.3.3.1    Síntesis y caracterización de los catalizadores de Au/CeO <sub>2</sub> .....	81

3.3.3.2	Evaluación de los catalizadores de Au/CeO <sub>2</sub> .....	85
3.4	CONCLUSIONES. ....	88
	REFERENCIAS BIBLIOGRÁFICAS .....	90
CAPÍTULO 4 FORMACIÓN DE ENLACES C-N .....		93
4.1	INTRODUCCIÓN .....	95
4.2	IDENTIFICACIÓN DEL PROBLEMA Y DE LOS OBJETIVOS.....	100
4.3	RESULTADOS Y DISCUSIÓN .....	103
4.3.1	Estudio teórico del mecanismo de reacción .....	103
4.3.2	Síntesis, caracterización y evaluación de los catalizadores de CeO <sub>2</sub> con planos cristalinos bien definidos.....	112
4.3.2.1	Síntesis y caracterización de los catalizadores de CeO <sub>2</sub> . ....	113
4.3.2.2	Evaluación de los catalizadores de CeO <sub>2</sub> con planos cristalinos bien definidos .....	116
4.4	CONCLUSIONES .....	120
	REFERENCIAS BIBLIOGRÁFICAS .....	121
CAPÍTULO 5 FORMACIÓN DE ENLACES N-N.....		125
5.1	INTRODUCCIÓN .....	127
5.2	IDENTIFICACIÓN DEL PROBLEMA Y DE LOS OBJETIVOS.....	131
5.3	RESULTADOS Y DISCUSIÓN .....	132
5.3.1	Síntesis y caracterización de los catalizadores de oro soportado .....	132
5.3.2	Acoplamiento reductivo de nitrocompuestos .....	132
5.3.2.1	Efecto del metal y del soporte .....	138
5.3.2.2	Estudio por espectroscopia IR "in situ" de la reacción .....	140
5.3.2.2.1	Estudio por espectroscopia IR "in situ" de la reactividad del nitrobenzono y del nitrosobenceno sobre el catalizador de Au/TiO <sub>2</sub> .....	142
5.3.2.2.2	Estudio por espectroscopia IR "in situ" de la reactividad del nitrobenzono y del nitrosobenceno sobre el catalizador de Au/CeO <sub>2</sub> . ....	146
5.3.3	Estabilidad y reusabilidad de los catalizadores de Au/CeO <sub>2</sub> .....	150
5.3.4	Actividad catalítica y selectividad de otros metales nobles.....	151

5.3.5	Alcance de la reacción y síntesis de azocompuestos asimétricos .....	153
5.3.6	Reacción de Mills catalizada por óxido de titanio.....	154
5.4	CONCLUSIONES .....	158
	REFERENCIAS BIBLIOGRÁFICAS .....	159
	CAPÍTULO 6 CONCLUSIONES FINALES.....	163
6.1	FORMACIÓN DE ENLACES C-C .....	165
6.2	FORMACIÓN DE ENLACES C-N .....	167
6.3	FORMACIÓN DE ENLACES N-N.....	168
	CAPÍTULO 7 TÉCNICAS EXPERIMENTALES.....	170
7.1	REACTIVOS EMPLEADOS.....	172
7.2	PROCEDIMIENTOS EXPERIMENTALES.....	173
7.2.1	Síntesis de catalizadores .....	173
7.2.1.1	Síntesis de catalizadores de oro soportado.....	173
7.2.1.2	Síntesis de catalizadores nanoestructurados de CeO <sub>2</sub> .....	175
7.2.2	Caracterización de los catalizadores .....	176
7.2.2.1	Espectroscopia fotoelectrónica de rayos X, <i>XPS</i> .....	176
7.2.2.2	Espectroscopia FTIR.....	177
7.2.2.3	Espectroscopia Raman .....	179
7.2.2.4	Microscopía electrónica de transmisión, <i>TEM</i> .....	179
7.2.2.5	Análisis químico por fluorescencia de rayos X por energía dispersiva, <i>EDXRF</i> .....	181
7.2.2.6	Análisis químico por espectroscopia de emisión atómica con plasma acoplado inductivamente, <i>ICP-AES</i> .....	181
7.2.2.7	Difracción de Rayos X.....	182
7.2.2.8	Determinación de la superficie específica .....	182
7.2.3	Ensayos catalíticos .....	184
7.2.3.1	Reacción de Sonogashira.....	184
7.2.3.2	Estudio cinético de la reacción de Sonogashira .....	184
7.2.3.3	Reacción de carbamoiación.....	185

7.2.3.4	Reacción de formación de azocompuestos .....	185
7.2.4	Cálculos teóricos .....	186
7.2.4.1	Reacción de Sonogashira.....	186
7.2.4.2	Reacción de Carbamoilación .....	187
	REFERENCIAS BIBLIOGRÁFICAS .....	188
	ANEXOS.....	191
	ANEXO 1 - Figuras.....	193
	ANEXO 2 - Tablas.....	204