

ÍNDICE

1. Introducción.....	1
1.1 Química Sostenible	1
1.2 Química fina y catálisis heterogénea.....	6
1.3 Catalizadores heterogéneos.....	8
1.3.1 Zeolitas.....	8
1.3.2 Materiales mesoporosos.....	17
1.3.3 Hidrotalcitas.....	19
1.3.4 Materiales metalorgánicos (MOFs)	20
1.3.5 Óxidos metálicos.....	30
2. Objetivos.....	39
3. Síntesis de nitrilos mediante deshidratación de aldoximas empleando catalizadores heterogéneos	41
3.1 Introducción	41
3.2 MOFs como catalizadores heterogéneos en la reacción de deshidratación de aldoximas para obtener nitrilos	48
3.2.1 Estudio de la actividad catalítica de diferentes catalizadores heterogéneos con centros ácidos de Brønsted o Lewis	49
3.2.2 Estudio de la actividad catalítica de catalizadores básicos en la reacción de deshidratación de aldoximas.....	57
3.2.3 Deshidratación de aldoximas con MOFs	58
3.2.4 Caracterización de los centros de Fe de los MOFs	64
3.2.5 Espectroscopia IR de adsorción <i>in situ</i> de la aldoxima sobre los MOFs.	67
3.2.6 Estudio de estabilidad y reúso de los MOFs de Fe	70
3.2.7 Deshidratación de diferentes aldoximas con MIL-100(Fe)-NH ₄ F	79
3.2.8 Conclusiones.....	81

3.3	Óxidos metálicos como catalizadores heterogéneos para la deshidratación de aldoximas y síntesis de ésteres y amidas a partir de aldoximas mediante un proceso multietapa.....	83
3.3.1	Síntesis de nitrilos utilizando óxidos metálicos	83
3.3.2	Naturaleza de los centros activos de los óxidos metálicos en la reacción de deshidratación de aldoximas.....	87
3.3.3	Estudio del mecanismo de deshidratación de aldoximas mediante Espectroscopia IR <i>in situ</i>	92
3.3.4	Estudio del reuso del material nCeO ₂	101
3.3.5	Síntesis de diferentes nitrilos en presencia de nCeO ₂	102
3.3.6	Síntesis de 2-picolinamida a partir de 2-piridinaldoxima a través de un proceso multietapa	104
3.3.7	Síntesis de alquil ésteres del ácido picolínico a partir de 2-piridinaldoxima mediante un proceso multietapa	108
3.3.8	Conclusiones.....	111
3.4	Sección experimental	112
3.4.1	Reactivos.....	112
3.4.2	Síntesis de zeolitas	112
3.4.3	Síntesis de MOFs.....	113
3.4.4	Síntesis de óxidos mixtos derivados de hidrotalcitas.....	114
3.4.5	Óxidos metálicos.....	115
3.4.6	Procedimiento general de la síntesis de aldoximas.....	115
3.4.7	Procedimiento general de la reacción de deshidratación de aldoximas.....	117
3.4.8	Procedimiento de la síntesis de 2-picolinamida a partir de 2-piridinaldoxima a través de un proceso multietapa.....	118
3.4.9	Procedimiento de la síntesis de alquil ésteres del ácido picolínico a partir de 2-piridinaldoxima mediante un proceso multietapa.....	119

3.4.10	Regeneración y reúso de MIL-100 (Fe) y Fe(BTC)	120
3.4.11	Lavado y reúso del material CeO ₂	120
3.4.12	Identificación y cuantificación de los productos mediante cromatografía de gases (GC) y espectrometría de masas (MS)...	120
3.4.13	Técnicas de caracterización de los catalizadores empleados	122
4.	Polímeros a partir de biomasa: síntesis de 2,5-diformilfurano (DFF) mediante oxidación selectiva de 5-hidroximetilfurfural y obtención de monómeros derivados de DFF	127
4.1	Introducción	128
4.2	Oxidación selectiva de 5-HMF a DFF en presencia de MIL-100 (Fe)-NH ₄ F/TEMPO/NaNO ₂	132
4.3	Estudio comparativo de la actividad catalítica de diferentes catalizadores de hierro en la oxidación de 5-HMF a DFF	137
4.4	Estudio del reúso de la zeolita HY-Fe y MIL-100 (Fe)-NH ₄ F	139
4.5	Oxidación de diferentes alcoholes empleando el sistema catalítico MIL-100 (Fe)-NH ₄ F/TEMPO/NaNO ₂	144
4.6	Síntesis de derivados de 2,5-diformilfurano	146
4.7	Conclusiones	150
4.8	Sección experimental	151
4.8.1	Síntesis de MOFs	151
4.8.2	Síntesis de la zeolita HY-Fe	151
4.8.3	Procedimiento general de la reacción de oxidación de alcoholes	151
4.8.4	Síntesis de derivados de 2,5-diformilfurano	153
4.8.5	Regeneración y reúso del catalizador	154
4.8.6	Técnicas de caracterización	154
5.	Conclusiones	157
6.	Anexos	161
7.	Bibliografía	195

8. Resúmenes	209
9. Publicaciones	217