

Resumen

El trabajo de investigación descrito en la presente Tesis Doctoral ha sido desarrollado en el marco del proyecto europeo MULTI2HYCAT (grant agreement N. 720783) y se ha centrado en la síntesis y caracterización de materiales mono- y multi-funcionales que presentan sitios catalíticos ácidos, básicos o redox. Diferentes líneas de investigación han sido desarrolladas en paralelo para obtener distintos materiales híbridos que serán empleados en diferentes procesos catalíticos, en línea con las necesidades de los socios industriales del proyecto.

Debido a la naturaleza colaborativa del proyecto, cada miembro académico se ha centrado en un aspecto del desarrollo de los materiales. Es por ello que el *Instituto de Tecnología Química* (ITQ-CSIC), donde se ha llevado a cabo esta Tesis Doctoral, se ha centrado en la síntesis de los catalizadores híbridos. Por ello, parte de la caracterización descrita en el Capítulo 3 se ha llevado a cabo en la *Università del Piemonte Orientale* (IT), durante una estancia de un mes. Además, algunos resultados catalíticos descritos en los Capítulos 3 y 5 han sido obtenidos por la *University of Southampton* (UK).

En el **Capítulo 3**, se ha descrito la síntesis de dos catalizadores heterogéneos híbridos que presentan moléculas de ácido aril-sulfónico en su composición. En uno de ellos, el anillo aromático presentará átomos de flúor en posición 2, 3, 5, 6. Se han llevado a cabo dos estrategias de síntesis multi-etapas, a través de la síntesis de los precursores alcoxil-silanos, a través de procesos de condensación junto a un precursor de sílice (en ausencia de agentes directores de estructura, a pH neutro y temperaturas bajas) y de una reacción de tethering. Los materiales híbridos han sido caracterizados a través de diferentes técnicas. Las propiedades texturales, la estabilidad térmica y la composición química de los catalizadores ha sido estudiada. Además, moléculas sondas han sido adsorbidas en los materiales híbridos y las interacciones entre ellos han sido estudiadas a través de espectroscopias FTIR y RMN multi-nuclear. El catalizador híbrido en que el anillo aromático estaba fluorado resultó ser el más activo catalíticamente en la reacción de formación de acetal entre benzaldehído y etilenglicol. Una versión de los híbridos en que la superficie había sido pasivada con grupos metilos también fue obtenida. Las propiedades de los materiales híbridos pasivados fueron comparadas, para poder estudiar el efecto de la polaridad de la superficie del soporte sobre la actividad catalítica.

En el **Capítulo 4** se describe la síntesis de órgano-catalizadores híbridos obtenidos por anclaje de precursores de silicio funcionalizados con grupos básicos sobre un soporte del tipo MCM-41. Los catalizadores han sido caracterizados y empleados en diferentes reacciones de formación de enlaces C-C, como la condensación de Knoevenagel y la adición de Michael. Finalmente, los catalizadores híbridos han sido empleados en la condensación entre furfural y metil isobutil cetona. El catalizador más activo ha sido seleccionado para ser funcionalizado posteriormente con nanopartículas de paladio y empleado en un proceso catalítico en cascada. Mecanismos de reacción han sido propuestos para cada proceso catalítico. El efecto beneficioso debido a la presencia de los grupos silanoles en la superficie del soporte también fue analizado.

En el **Capítulo 5**, la síntesis de catalizadores híbridos multi-funcionales fue descrita. Basándose en los resultados obtenidos en el Capítulo 4, se ha preparado un catalizador que presente grupos aminopropil- y nanopartículas de paladio. Las propiedades estructurales y texturales han sido estudiadas. Además, a través de la microscopía electrónica de transmisión, la distribución dimensional de las nanopartículas ha sido estimada, resultando en un tamaño medio equivalente a la dimensión de los canales mesoporosos del soporte, MCM-41. El material ha sido empleado como catalizador multi-funcional en un proceso tándem basados en la condensación entre furfural y metil isobutil cetona y la hidrogenación consecutiva del producto formado. La influencia de distintas variables sobre la actividad catalítica ha sido estudiada. Los resultados de estas pruebas preliminares permitirán planear en el futuro un estudio más amplio sobre el potencial de este catalizador en un reactor de lecho fijo, en continuo. Además, se han descrito resultados preliminares sobre la síntesis de catalizadores multi-funcionales que presentan centros catalíticos básicos y complejos organometálicos soportados.