

Resum

La present tesi doctoral titulada “Materials de sílice funcionals per a l’alliberament controlat, detecció i eliminació de molècules d’interés” es centra en el disseny i desenvolupament de materials híbrids orgànico-inorgànics per aplicació dels conceptes de Química Supramolecular. Durant el desenvolupament de la present tesi doctoral es prepararen i caracteritzaren diferents materials de base de sílice per a diferents aplicacions.

La primera part de la tesi es centra en el desenvolupament de materials basats en sílice capaços de variar el seu comportament fluorescent en funció de la presència o absència d’un analit al medi. Aquests materials utilitzen com a suport nanopartícules de sílice que es funcionalitzen superficialment amb dues unitats diferents, una de coordinació i una d’indicació (un fluoròfor). La interacció de l’analit d’interés (en aquest cas, anions) amb la unitat de coordinació modificarà les propietats d’emissió del fluoròfor. Així, es prepararen dos materials als quals el grup fluorescent és rodamina mentre que el grup coordinant és un imidazolats o una sal de guanidini respectivament. Després de caracteritzar ambdós materials, es va estudiar el seu comportament davant diferents espècies aniòniques a diferents concentracions. Resultaren selectius a la presència de benzoat (el material funcionalitzat amb imidazolats), dihidrògen fosfat i hidrògen sulfat (el material funcionalitzat amb sals de guanidini).

El tercer capítol de la tesi es centra en l’aplicació de materials híbrids orgànico-inorgànics per a la detecció i eliminació d’espècies altament tòxiques com els agents neurotòxics. Aquests són compostos organofosforats capaços de causar greus lesions al sistema nerviós central. En una primera aproximació, s’utilitza el concepte de porta molecular per a la detecció d’agents neurotòxics. Així, s’utilitza com a suport inorgànic un material mesoporós de sílice (MCM-41) al qual els porus es carreguen amb un colorant que actua com a indicador mentre que la superfície externa d’aquest sòlid es funcionalitza amb una molècula capaç de reaccionar amb els agents neurotòxics. Aquesta molècula és capaç de interaccionar entre sí (mitjançant enllaços d’hidrogen) per a formar una xarxa que

Resum

bloqueja l'eixida dels porus. En presència de DCP (dietilclorofosfat, un simulant d'agent neurotòxic), i després de la reacció entre el simulant i aquesta molècula, es produeix una reorganització espacial que permet l'alliberament del colorant. Així, la presència dels agents neurotòxics està senyalitzada per un canvi de color. En una segona aproximació, s'estudia l'utilització de suports inorgànics del tipus MCM-41 com a materials per a l'eliminació d'agents neurotòxics. Per això, es van modificar químicament les superfícies d'aquests materials de sílice per tractament amb diferents bases. Com a conseqüència d'aquest tractament bàsic, els silanols de la superfície es desprotonen originant els corresponents silanolats (nucleòfils forts). Aquests silanolats són capaços de reaccionar amb els agents neurotòxics per a descompondre-los i afavorir la seua eliminació d'un medi contaminat.

Per últim, s'estudia l'aplicació dels materials híbrids orgànico-inorgànics funcionalitzats amb portes moleculars en aplicacions d'alliberament controlat, concretament, en alliberament controlat intracel·lular de fàrmacs d'interés. El material híbrid està compost per un suport de sílice mesoporosa al qual els porus es carreguen amb un compost citotòxic (camptotecina) i la seua superfície externa es funcionalitza amb una gluconamida. La presència d'una monocapa densa de gluconamides a l'exterior del material inhibeix l'alliberament del compost citotòxic. Al afegir enzims amb capacitat d'hidrolitzar els enllaços amida (amidasa i pronasa) es produeix l'alliberament de la camptotecina. El comportament adequat del material es va comprovar *in vitro* i *in vivo* (en cèl·lules HeLa).