

---

## ÍNDICE

<b>Resumen</b>	<b>11</b>
<b>Resum</b>	<b>13</b>
<b>Abstract</b>	<b>15</b>
<b>Capítulo 1    Introducción</b>	<b>17</b>
<b>1.1 Zeolitas</b>	<b>20</b>
1.1.1 Composición química	21
1.1.2 Estructura de las zeolitas	22
1.1.3 Empleo de las zeolitas como catalizadores	23
<b>1.2 Materias primas de la industria petroquímica</b>	<b>25</b>
1.2.1 Aprovechamiento del gas natural	27
<b>1.3 Procesos de revalorización y transformación de la fracción BTX</b>	<b>31</b>
<b>1.4 Materiales zeolíticos alternativos a los comerciales con interés industrial para la obtención y transformación de la fracción BTX</b>	<b>36</b>
<b>1.5 Referencias bibliográficas</b>	<b>46</b>
<b>Capítulo 2    Objetivos</b>	<b>55</b>
<b>Capítulo 3    Procedimiento Experimental</b>	<b>61</b>

---

<b>3.1. Reactivos</b>	<b>63</b>
<b>3.2. Catalizadores</b>	<b>64</b>
3.2.1. Procedimientos de síntesis de los materiales zeolíticos	64
3.2.1.1. Zeolita MCM-22	64
3.2.1.2. Zeolita IM-5	65
3.2.1.3. Zeolita TNU-9	65
3.2.1.4. Zeolita SUZ-4	66
3.2.1.5. Zeolita ITQ-13	67
3.2.1.6. Zeolita ITQ-22	67
3.2.1.7. Zeolita ITQ-39	67
3.2.1.8. Zeolita ITQ-47	68
3.2.1.9. Zeolita SSZ-33	69
3.2.2. Procedimientos de incorporación del componente metálico	70
3.2.2.1. Impregnación a volumen de poro	70
6.2.2.2. Reacción en estado sólido	70
<b>3.3. Técnicas experimentales de caracterización físico-química</b>	<b>71</b>
3.3.1. Difracción de rayos X en polvo (DRX)	71
3.3.2. Análisis químico por plasma de acoplamiento inductivo acoplado a espectroscopia de emisión (ICP-OES)	71
3.3.3. Determinación de propiedades texturales: adsorción-desorción de nitrógeno y argón	72
3.3.4. Espectroscopia de resonancia magnética nuclear (RMN)	72
3.3.5. Espectroscopia de infrarrojo de transmisión empleando piridina como molécula sonda (Py-FTR)	73
3.3.6. Técnicas de temperatura programada	74
3.3.6.1. Reducción con hidrógeno a temperatura programada (H <sub>2</sub> -TPR)	74
3.3.6.2. Oxidación a temperatura programada monitorizada por espectroscopia de masas (TPO-MS)	75

---

3.3.6.3. Desorción de amoníaco a temperatura programada (NH <sub>3</sub> -TPD)	75
3.3.7. Microscopía electrónica de barrido (SEM)	76
3.3.8. Análisis termogravimétrico y térmico diferencial (TG-DTA)	77
3.3.9. Análisis elemental (EA)	77
<b>3.4. Sistemas de reacción y análisis de productos</b>	<b>77</b>
3.4.1. Aromatización de metano	77
3.4.2. Desproporcionación de tolueno en condiciones industriales	81
3.4.3. Reacciones relacionadas con la fracción BTX a presión atmosférica	83
<b>3.4. Referencias bibliográficas</b>	<b>87</b>
<b>Capítulo 4 Revalorización de gas natural. Aromatización de metano como alternativa para producir aromáticos</b>	<b>89</b>
<b>4.1 Introducción a la aromatización de metano</b>	<b>91</b>
4.1.1 Formación de las especies activas de molibdeno	92
<b>4.2 Estudio de las características físico-químicas del catalizador Mo/ZSM-5</b>	<b>93</b>
4.2.1 Efecto de las propiedades físico-químicas de la zeolita ZSM-5 de partida	94
4.2.1.1 Influencia de la densidad de centros ácidos Brønsted	95
4.2.1.2 Influencia de la difusión intracristalina	103
4.2.2 Efecto del contenido de molibdeno	111
4.2.3 Correlación de los dos tipos de centros del catalizador bifuncional Mo/ZSM-5 con el comportamiento catalítico	114
4.2.4 Conclusiones	118
<b>4.3 Efecto de las etapas de preparación del catalizador Mo/ZSM-5</b>	<b>118</b>
4.3.1 Influencia del método de incorporación del molibdeno y el modo de calcinación	120

---

---

4.3.2 Tratamiento con nitrógeno de los catalizadores frescos	131
4.2.4.1 Preparados mediante impregnación a volumen de poro	132
4.2.4.2 Preparados mediante reacción en estado sólido	136
4.3.3 Conclusiones	142
<b>4.4 Limitaciones del catalizador Mo/ZSM-5</b>	<b>144</b>
<b>4.5 Extensión de la vida del catalizador Mo/ZSM-5</b>	<b>145</b>
4.5.1 Posibilidades de regeneración	147
4.5.1.1 Diseño de un protocolo óptimo de reacción-regeneración cíclico	150
4.5.1.2 Caracterización del catalizador usado Mo/ZSM-5	159
4.5.2 Conclusiones	163
<b>4.6 Posibles alternativas al catalizador Mo/ZSM-5</b>	<b>163</b>
4.6.1 Caracterización de los catalizadores Mo/zeolita	164
4.6.2 Comportamiento catalítico de los catalizadores Mo/zeolita	175
4.6.3 Aplicación del protocolo optimizado de reacción-regeneración	180
4.6.3.1 Resultados catalíticos	181
4.6.3.2 Caracterización de los catalizadores usados Mo/zeolita	185
4.6.4 Conclusiones	186
<b>4.7 Referencias bibliográficas</b>	<b>188</b>
<b>Capítulo 5 Obtención y redistribución catalítica de alquilaromáticos a partir de la fracción BTX. Influencia de la topología de la zeolita</b>	<b>195</b>
<b>5.1 Introducción</b>	<b>197</b>
<b>5.2 Caracterización de zeolitas estudiadas</b>	<b>197</b>
<b>5.3 Procesos para la obtención de xilenos</b>	<b>202</b>

---

---

5.3.1 Desproporción de tolueno	202
5.3.1.1 Actividad del proceso	207
5.3.1.2 Selectividad y distribución de productos	212
5.3.1.3 Efecto de la desactivación	218
5.3.1.4 Conclusiones	223
5.3.2 Alquilación de tolueno con metanol	224
5.3.2.1 Actividad del proceso	226
5.3.2.2 Selectividad y distribución de productos	229
5.3.2.3 Efecto de la desactivación	233
5.3.2.4 Conclusiones	235
5.3.3 Isomerización de m-xileno	235
5.3.3.1 Actividad de los procesos de isomerización y desproporción (relación i/d)	237
5.3.3.2 Relación p/o-xileno y distribución de trimetilbencenos	243
5.3.3.3 Efecto de la desactivación	250
5.3.3.4 Conclusiones	252
<b>5.4 Procesos de alquilación de benceno o tolueno de interés para la industria petroquímica</b>	<b>253</b>
5.4.1 Síntesis de etilbenceno	254
5.4.1.1 Actividad del proceso	256
5.4.1.2 Selectividad y distribución de productos	260
5.4.1.3 Efecto de la desactivación	265
5.4.1.4 Conclusiones	266
5.4.2 Síntesis de cumeno	267
5.4.2.1 Actividad del proceso	269
5.4.2.2 Selectividad y distribución de productos	271
5.4.2.3 Efecto de la desactivación	275
5.4.2.4 Conclusiones	276
5.4.3 Síntesis de etiltoluenos	276

---

---

5.4.3.1	Actividad del proceso	277
5.4.3.2	Selectividad y distribución de productos	283
5.4.3.3	Efecto de la desactivación	289
5.4.3.4	Conclusiones	290
5.4.4	Síntesis de cimenos	290
5.4.4.1	Actividad del proceso	292
5.4.4.2	Selectividad y distribución de productos	295
5.4.4.3	Efecto de la desactivación	299
5.4.4.4	Conclusiones	300
5.4.5	Reseña final	301
<b>5.5</b>	<b>Aplicación de las reacciones relacionadas con la fracción BTX como herramienta para predecir nuevas estructuras (ITQ-39)</b>	<b>301</b>
<b>5.6</b>	<b>Referencias bibliográficas</b>	<b>304</b>
<b>Capítulo 6</b>	<b>Conclusiones Generales</b>	<b>311</b>
<b>Anexo I</b>	<b>Índice de Tablas</b>	<b>319</b>
<b>Anexo II</b>	<b>Índice de Figuras</b>	<b>325</b>