

Resumen

El óxido de propileno (PO), uno de los intermedios de reacción más importantes desde el punto de vista industrial, ha sido históricamente obtenido mediante procesos poco respetuosos con nuestro entorno. Afortunadamente, durante las últimas décadas se ha adquirido una mayor conciencia social de la importancia del medio ambiente, por lo que estos procesos de síntesis están tratando de ser sustituidos por otros más respetuosos con nuestro entorno.

Entre todos los procesos alternativos que podrían ser interesantes para sustituir los métodos tradicionales, destaca la epoxidación del propileno mediante el empleo de la zeolita titanio silicalita – 1 (TS-1), sintetizada por primera vez a principios de los años 80. Este catalizador heterogéneo, por tanto reutilizable, permite llevar a cabo la epoxidación de propileno con H_2O_2 , dando lugar a elevados rendimientos y selectividades, siendo el agua el único subproducto del oxidante. A su vez, el descubrimiento por parte de Haruta y col. de la capacidad de catalizadores de Au/TiO_2 de llevar a cabo la epoxidación de propileno con H_2O_2 generada *in-situ*, colaboró en reforzar los esfuerzos de distintos autores en esta dirección. Sin embargo, problemas asociados al proceso, especialmente el amplio rango de inflamabilidad de las mezclas O_2/H_2 así como la baja reusabilidad de los catalizadores de Au/TiO_2 , que se desactivan con facilidad, han impedido una posible aplicación industrial.

Durante la presente tesis se han estudiado dos procedimientos distintos que podrían servir como alternativa para la producción de PO. Estos dos procedimientos basan su éxito en el empleo de catalizadores bifuncionales, capaces tanto de generar H_2O_2 a partir de H_2 y O_2 como de llevar a cabo reacciones de epoxidación empleando H_2O_2 , permitiendo llevar a cabo la reacción como un proceso de tipo *one-pot*.

En primer lugar, estudiamos la deposición de distintas nanopartículas metálicas sobre cristales de TS-1. Estos catalizadores han sido caracterizados en detalle, siendo probados en distintas condiciones de reacción con el objetivo de optimizar los resultados catalíticos, siempre en presencia de CO_2 como disolvente de reacción. Este disolvente fue seleccionado ya que permite no solo solubilizar mayores cantidades de reactivos gaseosos, sino que también reduce el rango de inflamabilidad, aumentando la seguridad del proceso.

Por otro lado, se han sintetizado membranas de paladio, las cuales no sólo son activas en la síntesis de H_2O_2 a partir de H_2 y O_2 , sino que únicamente son permeables al H_2 , por lo que resultan un excelente medio para mantener separados estos dos gases, de forma que el H_2 difunde y reacciona lentamente con el O_2 , aumentando la seguridad del proceso. Adicionalmente, teniendo en cuenta el elevado precio del paladio, estos films metálicos han sido depositados sobre soportes cerámicos porosos, obteniendo membranas de tipo

composite, que proporcionan estabilidad a los films metálicos, permitiendo reducir su espesor y aumentando el flujo que permea a través de las membranas.

Por último, se ha desarrollado un procedimiento de síntesis que permite la deposición de membranas de TS-1 sobre films metálicos, obteniendo membranas bifuncionales que han sido caracterizadas en detalle, estudiando también sus propiedades catalíticas en la reacción de epoxidación de propileno con H_2O_2 generada *in-situ*, tanto en fase gas-gas como en fase gas-líquido.