

RESUMEN

Debido a las necesidades actuales de la sociedad, existe un gran interés en el desarrollo de nuevos materiales con propiedades físico-químicas específicas. Entre estos nuevos materiales, los sólidos híbridos ocupan una de las temáticas más atractivas y emergentes en nanociencia, ya que han mostrado una gran variedad de aplicaciones en múltiples ámbitos, abarcando desde los más convencionales a otros más específicos en el campo de la nanotecnología.

La presente Tesis Doctoral se ha centrado en la síntesis, caracterización y evaluación catalítica de materiales híbridos laminares obtenidos a partir de precursores organosilíceos, tales como monosilanos y disilanos, los cuales permiten la preparación de materiales híbridos estables, homogéneos, irreversibles y con diferentes grupos funcionales formando parte de su entramado estructural.

En primer lugar, a partir del empleo de disilanos como precursores organosilíceos, se obtuvieron materiales híbridos laminares, en un solo paso de síntesis hidrotermal y en ausencia de agentes directores de estructura, formados por láminas aluminosilíceas y fragmentos orgánicos funcionales localizados en el espacio interlaminar a modo de pilares (LHM). Tras un tratamiento ácido de intercambio catiónico, entre especies de sodio intracrystalinas de compensación de carga y protones ácidos, se obtuvo un material híbrido laminar bifuncional con centros ácidos Brønsted presentes en las láminas inorgánicas, asociados al aluminio tetraédrico, y centros básicos a modo de pilares orgánicos en el espacio interlaminar. Además, mediante la combinación de disilanos y monosilanos como precursores organosilíceos, en el gel de síntesis, se optimizaron las variables de síntesis para reducir la concentración de fragmentos orgánicos en el espacio interlaminar y aumentar la accesibilidad hacia los centros activos. Finalmente, se verificó la actividad y reciclabilidad de los sólidos híbridos laminares obtenidos como catalizadores básicos en reacciones de gran interés en la industria farmacéutica, perfumes o alimentación.

Posteriormente, siguiendo una metodología similar al caso anterior, síntesis hidrotermal directa y ausencia de agentes directores de estructura, y empleando la combinación de diferentes monosilanos como precursores organosilíceos, se obtuvo una nueva familia de materiales híbridos laminares basados en láminas aluminosilíceas individuales, no conectadas entre sí, que contienen fragmentos orgánicos terminales en su superficie localizados hacia el espacio interlaminar (MLHM). Así, se obtuvieron materiales híbridos laminares con diferentes concentraciones de grupos funcionales en su superficie externa, procedentes de la combinación de varios monosilanos en el gel de síntesis, tales como grupos amino o sulfónicos, así como la combinación de ambos centros activos en un

mismo sólido. No obstante, la presencia de centros ácido-base en un único sólido permitió la obtención de catalizadores híbridos laminares bifuncionales, activos y reutilizables en reacciones tándem o cascada en un solo paso, lo que favorece el desarrollo de procesos más sostenibles, disminuyendo el coste energético y aumentando la eficiencia global de reacciones con interés industrial.

Los resultados obtenidos a lo largo de esta Tesis suponen un importante avance en el desarrollo de materiales híbridos orgánicos-inorgánicos laminares, abriendo la posibilidad de generar más sólidos multifuncionales a partir del uso de precursores organosilíceos adecuados mediante la síntesis directa hidrotermal en una sola etapa.