

Capítulo 5

RESUMEN Y CONCLUSIONES GENERALES

V.1. RESUMEN

En el presente trabajo se han preparado y caracterizado catalizadores Rh-soportado (*sólo o promovido con Sn*), utilizando diferentes tipos de soportes, previamente sintetizados en el laboratorio. Los mencionados catalizadores han sido aplicados en la hidrogenación de crotonaldehído, en fase gaseosa y condiciones suaves.

Como soportes de catalizadores se utilizaron:

- *materiales microporosos*, silicatos laminares (bentonitas) de distinta procedencia, y silicatos modificados mediante la introducción de pilares (PILC's) y productos zeolíticos obtenidos a partir de una bentonita.
- *materiales mesoporosos* como los materiales MCM-41, con una o dos fuentes de Silicio.

Se ha complementado la caracterización de los soportes y se ha caracterizado los catalizadores mediante diferentes técnicas instrumentales: UV-Vis, espectroscopia IR, ATG/DTG, DRX, isothermas de adsorción-desorción de N₂, quimisorción de O₂/H₂, quimisorción de NH₃, adsorción-desorción de piridina mediante espectroscopía IR-TF, XPS y se utilizó la Cromatografía de

gases para la hidrogenación de crotonaldehído.

Los catalizadores fueron preparados incorporando siempre 1% de Rh y diferentes porcentajes de Sn en los diferentes soportes.

El comportamiento catalítico de los catalizadores se estudió a partir de la reacción de hidrogenación de crotonaldehído, en un micro-reactor de lecho fijo a presión atmosférica y a diferentes temperaturas de reacción y se analizaron por cromatografía de gases los productos de la reacción. Se analizó la actividad/selectividad en relación con las diferentes características de los soportes y las distintas condiciones de trabajo como: temperatura de reducción del Rh, temperaturas de reacción, y presencia de estaño como promotor.

En resumen, a lo largo de este trabajo se han logrado preparar catalizadores que muestran, generalmente, alta selectividad hacia alcohol crotilico en la hidrogenación de crotonaldehído, en condiciones suaves y a presión atmosférica.

Del trabajo realizado se han obtenido las conclusiones generales que se recogen a continuación.

V.2. CONCLUSIONES GENERALES

1. Tanto la arcilla de partida como las modificadas (con pilares o bien transformada en zeolitas) y materiales MCM-41, han resultado soportes idóneos para la formación de catalizadores heterogéneos de Rh y de Rh promovido con Sn, habiéndose generado, por tanto, nuevos materiales de alto valor añadido para el caso de las arcillas modificadas y nuevos retos de aplicación para los nuevos materiales MCM-41.

2. Las características de los materiales, empleados como soportes, de catalizadores de Rh, determinan la dispersión y la capacidad de carga metálica que se incorpora en el mismo. Todos los soportes empleados muestran un alto porcentaje de incorporación de la fase metálica a excepción del soporte de sílice que sólo alcanza valores de ~ 40% del teórico.
3. Tanto las bentonitas de partida como los productos de síntesis a partir de las mismas (zeolitas y PILC's) presentan acidez Brønsted y Lewis. Por otra parte los materiales MCM-41 poseen escasa acidez, habiéndose comprobado que la presencia de la fase metálica, incrementa la acidez de los catalizadores preparados, independientemente del material utilizado como soporte.
4. Todos los catalizadores preparados muestran alta actividad catalítica, con valores de conversión y selectividad variable según las características del material utilizado como soporte.
5. La adición de Sn como promotor, modifica la conversión a todas las temperaturas de reacción, obteniéndose para todos los catalizadores, mayor selectividad hacia alcohol crofílico que en ausencia de Sn.
Los resultados obtenidos por XPS demuestran efectos electrónicos entre el Rh y el Sn, con capacidad de inducir la selectividad hacia alcohol crofílico.
6. Los catalizadores ensayados presentan una actividad y selectividad prácticamente constante, en el intervalo de temperaturas ensayado (de 180 a 280°C) y la actividad residual de los mismos, estudiada en periodos de tiempo de 400-440 minutos, es elevada en todos los casos (alrededor del 80-90%).