

## RESUM

La biomassa particularment del tipus ligno-cel·lulòsica provinent de residus agrícoles i forestals, que no competeix amb l'ús de la terra per a altres cultius o per la producció d'aliments, es presenta com una alternativa a la producció de combustibles i/o de productes químics; per tant, es redueix així la nostra dependència dels combustibles fòssils.

Actualment els processos de transformació de matèries primes renovables (i.e. biomassa vegetal) per a l'obtenció d'hidrocarburs i altres productes químics resulten, en general, més costosos que els processos convencionals, de manera que fan que els processos de valoració de la biomassa i els bio-productes obtinguts no siguin competitius enfront dels seus anàlegs derivats del petroli. Per això pensem que un important desafiament per als químics és intentar desenvolupar noves rutes catalítiques per a convertir la biomassa i els seus derivats en combustibles i productes químics a través de processos sostenibles i econòmicament viables.

En aquesta tesi doctoral es van desenvolupar catalitzadors sòlids i processos catalítics per a dur a terme diferents transformacions de derivats de biomassa per mitjà de reaccions consecutives o en cascada (processos en "one pot"), obtenint productes químics d'alt valor afegit. Les valoracions de derivats de biomassa estudiades van comprendre tant compostos plataforma derivats de fraccions riques en cel·lulosa i hemi-cel·lulosa (i.e. furfural i 2-metifurano) com d'aquells derivats de fraccions riques en lignina.

Un dels derivats de la biomassa estudiat és el furfural, per a la transformació del qual als alcohols furfúric i tetrahidro-furfúric, es van desenvolupar catalitzadors d'hidrogenació selectiva basats en metalls suportats sobre diferents òxids metàl·lics. En particular, es van obtenir elevades selectivitats a l'alcohol furfúric en la hidrogenació selectiva de furfural treballant amb catalitzadors basats en Pt suportat, mentre que es van aconseguir excel·lents rendiments a l'alcohol tetrahidro-furfúric al utilitzar catalitzadors del tipus Ru/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> i Ru/ZrO<sub>2</sub>. Amb el catalitzador Ru/ZrO<sub>2</sub> es van aconseguir els millors resultats, mostrant a més una gran estabilitat durant diversos re-uses, inclús en mitjans de reacció aquosos. A més, s'ha demostrat que els diferents polimorfs presentats pel ZrO<sub>2</sub> influeixen en l'activitat catalítica d'aquests materials.

També investiguem l'obtenció directa de furfural èters a partir de furfural per mitjà d'un procés reactiu en cascada que involucra etapes

d'eterificació i reducció (eterificació-reductiva), per al qual desenvolupem catalitzadors basats en pal·ladi suportat sobre diferents òxids metàl·lics. Els millors resultats es van obtenir amb els catalitzadors Pd/ ZrO<sub>2</sub> i Pd/TiO<sub>2</sub> que, en combinació amb alcohols (i.e. butanol, pentanol, hexanol, etc.), van resultar actius per a la síntesi d'èters furfurílics i èters tetrahidro-furfurílics, de manera que aquests últims compostos s'apliquen com a additius de combustibles.

La transformació catalítica del 2-metilfurano (derivat del furfural) per mitjà d'un procés de hidròlisi/condensació per a generar productes intermedis que després de la hidrogenació donen lloc a compostos amb aplicació industrial també va ser abordada. D'aquesta forma, es va desenvolupar un procés que emprava un catalitzador sòlid àcid tipus resina polimèrica d'intercanvi iònic en combinació amb un sistema reactiu/dissolvent benigne (2-MF/aigua/etanol), el qual resulta avantatjós respecte als processos coneguts que utilitzen àcids minerals o orgànics.

A més, l'estudi inclou la proposta d'un possible mecanisme de reacció per al procés (model cinètic de primer ordre), que confirma que la hidròlisi de 2-MF és l'etapa limitant de la velocitat de reacció.

Finalment, es va estudiar la transformació catalítica de compostos fenòlics derivats de la lignina en una mescla aquosa mitjançant la reacció d' hidrogenació/hidrodesoxigenació catalitzada per materials basats en Pd, Pt i Ru suportats sobre diferents òxids metàl·lics, de manera que es demostra que la capacitat de hidrodesoxigenació va resultar ser dependent del tipus de metall i del tipus de suport utilitzat. Amb catalitzadors de Ru i Pd es van aconseguir els millors rendiments a productes de hidrodesoxigenació (HDO), resultant a més actius per a la millora d'una fracció d'oligómers derivats de la despolimerització de lignina, amb bons rendiments a monòmers fenòlics i C6-C8 alcohols.

En definitiva, el treball desenvolupat en aquesta tesi mostra com a través de l'estudi de diferents catalitzadors sòlids multifuncionals, amb propietats específiques i controlades, i baix condicions de reacció adequades, es poden desenvolupar processos catalítics per a transformar compostos plataforma derivats de la biomassa en una sèrie de productes químics amb diverses i interessants aplicacions.