

## RESUMEN

La Reducción Catalítica Selectiva de óxidos de nitrógeno, SCR-NO<sub>x</sub> (acrónimo del inglés *Selective Catalytic Reduction of NO<sub>x</sub>*) es un proceso muy importante actualmente para la reducción de las emisiones de NO<sub>x</sub> en vehículos diésel, que deben ajustarse a nuevas normativas europeas más restrictivas. En la presente tesis doctoral se ha investigado el mecanismo de reacción y los centros activos en catalizadores de Cu en zeolitas (Cu-zeolitas) con distintas estructuras. Para ello se han utilizado fundamentalmente dos técnicas espectroscópicas *in situ*, la resonancia magnética nuclear RMN y la resonancia paramagnética electrónica EPR, que han permitido la detección de intermedios de reacción y la identificación de especies de Cu activas.

En concreto se ha estudiado la reacción SCR-NO<sub>x</sub> utilizando NH<sub>3</sub> como reductor y catalizadores Cu-zeolitas con estructura chabazita. Los resultados obtenidos en el estudio preliminar de la interacción del catalizador con el NH<sub>3</sub> muestran la formación de distintos complejos de Cu-NH<sub>3</sub> con diferente estabilidad. A la temperatura de reacción (~250 °C), el amoníaco forma iones NH<sub>4</sub><sup>+</sup> en centros ácidos Brønsted de la zeolita y complejos Cu<sup>+</sup>(NH<sub>3</sub>) estables, y el Cu<sup>2+</sup> permanece aislado en el plano de los anillos 6R, que es precisamente el centro activo. Sin embargo, cuando se estudian las especies formadas con la mezcla de reacción NH<sub>3</sub>/NO/O<sub>2</sub> en las Cu-zeolitas, se observa que los iones NH<sub>4</sub><sup>+</sup> se consumen en el transcurso de la reacción y la formación de varios intermedios incluyendo nitritos/nitratos que descomponen a T ≥ 250 °C a los productos de reacción (N<sub>2</sub> y H<sub>2</sub>O).

También se ha investigado el mecanismo de la reacción SCR-NO<sub>x</sub> utilizando C<sub>3</sub>H<sub>8</sub> como reductor y Cu-zeolitas de distinta topología con tamaños de poros medio y grande. Los resultados obtenidos evidencian la formación de una especie activada del hidrocarburo en el Cu<sup>2+</sup> que está relacionada con la actividad catalítica. Además el Cu<sup>2+</sup> aislado es un centro activo que se reduce a Cu<sup>+</sup> en el transcurso de la reacción, y se re-oxida posteriormente a Cu<sup>2+</sup> en presencia de O<sub>2</sub>.

Finalmente, se ha estudiado la estabilidad hidrotermal de las zeolitas con cobre, puesto que es una condición indispensable para su aplicación como catalizadores SCR, comparando la zeolita Cu-SSZ-13 muy estable hidrotermalmente, y la Cu-ZSM-5 que se desactiva por completo tras el tratamiento hidrotermal. Los resultados obtenidos apuntan que el origen de la desactivación es el cambio en la coordinación del Cu<sup>2+</sup> en la Cu-ZSM-5 para formar especies tipo CuAlO<sub>x</sub> inactivas en la reacción.