

RESUM

La reducció catalítica selectiva d'òxids de nitrogen, SCR-NO_x (acrònim del anglès *Selective Catalytic Reduction of NO_x*) és un procés molt important actualment per a la disminució de les emissions de NO_x en vehicles dièsel, que deuen ajustar-se a les normatives europees més restrictives. En la present tesi doctoral s'ha investigat el mecanisme de reacció i els centres actius en catalitzadors de Cu en zeolites (Cu-zeolites) amb diferents estructures. Per a dur a terme aquesta tasca s'han utilitzat fonamentalment dos tècniques espectroscòpiques *in situ*, la ressonància magnètica nuclear RMN i la ressonància paramagnètica electrònica EPR, les quals han permès la detecció d'intermedis de reacció i la identificació d'espècies de Cu actives.

Concretament s'ha estudiat la reacció SCR-NO_x emprant NH₃ com a reductor i catalitzadors Cu-zeolita amb estructura chabacita. Els resultats obtinguts en l'estudi preliminar de la interacció del catalitzador amb NH₃ mostren la formació de diversos complexos de Cu-NH₃ amb diferent estabilitat. A la temperatura de reacció (~250 °C), l'amoniac forma ions NH₄⁺ en centres àcids Brønsted de la zeolita i complexos Cu⁺(NH₃) estables, a més, el Cu²⁺ roman aïllat en el plànol dels anells 6R, que és precisament el centre actiu. No obstant, quan s'estudien les espècies formades amb la mescla de reacció, NH₃/NO/O₂ en les Cu-zeolites, s'observa que els ions NH₄⁺ es consumeixen durant la reacció i la formació de diversos intermedis incloent nitrats/nitrats que descomponen, a T ≥ 250 °C, als productes de la reacció (N₂ y H₂O).

També s'ha estudiat el mecanisme de la reacció SCR-NO_x utilitzant C₃H₈ com a reductor i Cu-zeolites amb diferent topologia amb mides de porus mitges i grans. Els resultats obtinguts evidencien la formació d'una espècie en forma activa del hidrocarbur al Cu²⁺ que està relacionada amb l'activitat catalítica. A més a més, el Cu²⁺ aïllat és un centre actiu que és reduït amb el transcurs de la reacció, i es re-oxida posteriorment a Cu²⁺ en presència de O₂.

Finalment, s'estudia l'estabilitat hidrotermal de les zeolites amb coure, puix que és una condició indispensable per a la seua aplicació com a catalitzadors SCR, comparant la zeolita Cu-SSZ-13 que és molt estable hidrotermalment, i Cu-ZSM-5 que es desactiva completament després del tractament hidrotermal. Els resultats obtinguts indiquen que la causa de la desactivació és el canvi en la coordinació del Cu²⁺ en Cu-ZSM-5 per a formar espècies tipus CuAlO_x que són inactives a la reacció.