

Laboratoire : Unité de Catalyse et de Chimie du Solide

Discipline : Chimie

NOM/PRENOM DU CANDIDAT : DUJARDIN Christophe

N° d'ordre : 40995

JURY :

Garant de l'habilitation : Pr Pascal GRANGER, Professeur à l'Université Lille 1

Rapporteurs : Pr Daniel BIANCHI, Professeur à l'Université Claude Bernard Lyon 1

Pr Patrick DA COSTA, Professeur à l'Université Pierre et Marie Curie, Paris

Pr Marco DATURI, Professeur à l'Université de Caen

Membres : Dr Gilbert BLANCHARD, Ingénieur de Recherche, PSA, Vélizy

Pr Alain MOISSETTE, Professeur à l'Université Lille 1

TITRE :

Apport des outils spectroscopiques à la compréhension des processus catalytiques pour la réduction des émissions d'oxydes d'azote

RESUME :

Bien que les émissions de polluants tendent à diminuer, plus de la moitié des pays européens dont la France a dépassé leur seuil d'émission des oxydes d'azote en 2010 fixé par l'Union Européenne. Le traitement des oxydes d'azote est un enjeu de société primordial pour un développement durable de nos pays. Ce mémoire de HDR résume mes activités de recherche menées au sein de l'équipe « Environnement » de l'Unité de Catalyse et de Chimie du Solide de l'Université Lille 1 depuis 2002. Mes thématiques de recherche engagées depuis plusieurs années portent sur le traitement par catalyse hétérogène des émissions d'oxydes d'azote provenant des sources industrielles (atelier de fabrication d'acide nitrique) et des sources mobiles (automobile essence, diesel, gaz naturel, camion). Deux aspects complémentaires sont mis en œuvre dans nos études : l'optimisation des formulations catalytiques vis-à-vis de leurs propriétés catalytiques et la compréhension des mécanismes réactionnels par l'utilisation de spectroscopie en condition dite *operando*.

Plusieurs solutions sont à l'étude afin de lever les verrous technologiques à venir. La première partie de ce manuscrit se concentre sur la compréhension des phénomènes de reconstruction de la structure perovskite mais également de la surface au cours des réactions catalytiques à haute température. Nous avons par exemple montré que l'excès de lanthane en surface des perovskites pouvait induire des pertes d'activité significatives. L'interaction spécifique entre les nanoparticules de métaux nobles et les plans cristallins de la perovskite permet de limiter considérablement les phénomènes de frittage par rapport à un support conventionnel. La perspective d'une diminution de la teneur en métaux nobles ouvre de nouvelles perspectives quant à la réduction du coût des catalyseurs.

Le cœur de ce manuscrit est développé dans la seconde partie et illustre l'utilisation de la spectroscopie Infrarouge en condition *Operando* pour suivre la nature des espèces adsorbées sur le catalyseur pendant la réaction. Par exemple, la réduction sélective des oxydes d'azote par les hydrocarbures (HC-SCR) est une technologie intéressante que nous étudions dans le cadre de nos collaborations avec le LIA UCCS-NCL. Les catalyseurs à base d'or supporté sur alumine sont également très prometteurs en HC-SCR et peuvent être une alternative aux catalyseurs Ag/Al₂O₃. Alternativement, le couplage plus complexe d'un piège à NO_x (cycles de stockage longs alternés avec une brève régénération) et d'un catalyseur de réduction sélective des NO_x par l'ammoniac produit *in situ* par le piège à NO_x a fait l'objet d'une thèse avec un partenaire industriel. L'utilisation de la spectroscopie Infrarouge résolue dans le temps en condition *operando* s'est avérée pertinente pour comprendre et optimiser la formation de l'ammoniac sur le piège à NO_x. La troisième solution pour le traitement des NO_x issus de véhicules Diesel est la réduction sélective des NO_x par l'ammoniac. Bien que cette technologie soit mature pour le traitement des sources fixes, leur application pour les sources mobiles reste un vrai défi. Nous développons actuellement un modèle cinétique global robuste permettant de simuler l'étape de stockage et de désorption de l'ammoniac sur un catalyseur zéolithique échangé au fer à partir d'expériences suivies par spectroscopie Infrarouge. Ce modèle cinétique robuste intègre les caractéristiques du réacteur utilisé. Le suivi en parallèle des espèces adsorbées donne une nouvelle dimension à la construction du modèle cinétique, notamment quant à la définition des sites actifs.

L'ensemble de ces études est un pré-requis pour une meilleure optimisation des propriétés catalytiques et la compréhension des mécanismes réactionnels mis en jeu lors de la réduction des oxydes d'azote. Au-delà des études en cours, la mise en perspective de ces résultats est proposée dans une troisième partie.

Soutenance le 07 décembre 2012 à 10 Heures

Lieu : Amphithéâtre CERLA, Université Lille 1