

Ecole doctorale : SMRE
Laboratoire : UCCS
Discipline : Molécules et
Matière Condensée

NOM/PRENOM DU CANDIDAT : NGUYEN Duy Luan N° d'ordre : 41056

JURY :

Directeur de Thèse : Pascal Granger

Rapporteurs : Daniel Duprez, Anne Giroir-Fendler

Membres : Laurent Delannoy, Olivier Poizat, Jean-Sébastien Girardon, Christophe Dujardin, Christine Lancelot

TITRE DE LA THESE :

Catalyseurs à base d'or pour la réduction catalytique sélective des oxydes d'azote par les hydrocarbures provenant de sources mobiles.

RESUME :

Les émissions de gaz toxiques provenant de sources mobiles, tels que les oxydes d'azote (NO_x) sont aujourd'hui soumises à réglementation celles-ci devenant de plus en plus strictes notamment dans le cadre de la norme Euro 6 qui sera en vigueur à l'échelle européenne à partir de 2014. Dans le cas de véhicules Diesel, de nombreux verrous scientifiques subsistent notamment pour éliminer simultanément les suies et les NO_x en milieu globalement oxydant. Ce travail est consacré à la conversion sélective des NO_x en N_2 dans des compositions de mélanges gazeux représentatives des effluents gazeux en sortie de moteurs Diesel. Parmi les technologies envisagées, la réduction sélective des NO_x en N_2 par les hydrocarbures se singularise par sa simplicité à mettre en œuvre. De nouvelles familles de catalyseurs à base d'or dispersé sur l'alumine ont été mises en œuvre en remplacement du platine et palladium. L'étude de leur stabilité en milieu réactionnel à 500°C a permis de sélectionner différentes méthodes de préparation par dépôt-précipitation (DP) et par échange ionique (AE). Typiquement, cette dernière méthode de préparation conduit à un domaine de conversion beaucoup plus étendu notamment après vieillissement à 500°C . Par ailleurs, la réduction des NO_x est sensible à la taille des particules les plus grosses semblant plus actives que les plus petites thermodynamiquement plus instables. Dans le contexte du post-traitement, où une recristallisation est souvent observée à haute température, ce dernier paramètre confère aux catalyseurs $\text{Au}/\text{Al}_2\text{O}_3$ un certain attrait pour un développement ultérieur.

La seconde partie est consacrée à la modification des catalyseurs $\text{Au}/\text{Al}_2\text{O}_3$ par ajout d'argent. Différentes méthodes ont été confrontées notamment par co-précipitation et greffage montrant que les particules bimétalliques obtenues par ces méthodes après activation thermique sous hydrogène sont peu actives. L'or et l'argent métalliques en interaction voient leurs propriétés électroniques perturbées ce qui a pour conséquence d'orienter la sélectivité en faveur des réactions d'oxydation des réducteurs par l'oxygène présent en grand excès. En revanche, l'imprégnation successive permet d'obtenir un gain substantiel en conversion des NO_x lorsque Au et Ag préservent leur propriétés intrinsèques. Différents paramètres opératoires ont été examinés montrant l'intérêt de déposer Ag avant Au de façon à maintenir en surface un rapport atomique Au/Ag optimal.

Soutenance le 19/12/2012 à 9H45 Heures
Lieu Bâtiment des Thèses