

Ecole doctorale : SMRE

Laboratoire : UCCS

Discipline : MMC

NOM/PRENOM DU CANDIDAT : SKARLIS STAVROS

N° d'ordre : 41183

JURY :

Directeur de Thèse : PASCAL GRANGER

Rapporteurs : MARCO DATURI, LOUISE OLSSON

Membres : SEVERINE ROUSSEAU, GERARD DELAHAY, PASCAL GRANGER, CHRISTOPHE DUJARDIN, DAVID BERTHOUT, NICOLLE ANDRE

TITRE DE LA THESE :

IR spectroscopy based kinetic modeling of NH₃-SCR on Fe-zeolites: Application for diesel engines aftertreatment system simulation

RESUME :

La réduction catalytique sélective des oxydes d'azote au moyen de l'urée ou de l'ammoniac est une technique bien connue, pour une conversion efficace des NO_x, qui existent dans le gaz d'échappement des moteurs Diesel mobiles. Parmi les formulations catalytiques proposés, les zéolithes échangées au fer sont considérés comme des catalyseurs SCR prometteuse, grâce à leur performance de NO_x élevée, sur une large gamme des températures de fonctionnement du moteur, ainsi qu'une résistance importante au vieillissement hydrothermique. Dans le cadre de cette thèse, une étude expérimentale détaillée des voies réactionnelles de la SCR sur les zéolithes au fer a été réalisée de façon à développer un modèle phénoménologique et macro-cinétique, appliqué pour la simulation des systèmes de post-traitement des moteurs Diesel. Des expériences dédiées qui comprenaient des mesures de spectroscopie IR ont initialement été réalisées sur les catalyseurs H- et Fe-BEA, synthétisés en laboratoire pour élucider les aspects mécanistiques liées à la formation et aux interactions de l'ammoniac et d'oxydes d'azote (notamment des espèces nitrates et nitrites) sur des sites catalytiques acides et redox. En se focalisant sur la SCR à basse température, la formation et la décomposition de NH₄NO₃ ont été particulièrement préoccupantes. Basé sur des résultats expérimentaux un modèle cinétique multi-site a été développé. Le modèle a été capable de prendre en compte la variation de l'acidité de surface, les interactions des espèces gazeux du NH₃ et des NO_x avec des sites métalliques, ainsi que des phénomènes de physisorption à basse température. Un soin particulier a été pris pour la calibration des paramètres cinétiques, où les propriétés structurales des échantillons étudiés et notamment les ratios Si/Al et Fe/Al ont été prises en considération. Le modèle a été validé avec succès par la simulation des expériences réalisées sur les échantillons synthèse en laboratoire, ainsi que des échantillons de zéolithe au fer commerciales, en appliquant une large variété de conditions de fonctionnement. Donc l'intérêt de l'approche suivie a été souligné.

Soutenance le 20/9/2013 à 14:00 Heures
Lieu IFP EN Rueil-Malmaison