



Université Claude Bernard



DIPLÔME NATIONAL DE DOCTORAT

(Arrêté du 25 mai 2016)

Date de la soutenance : **25 mars 2019**

Nom de famille et prénom de l'auteur : **BOUHATMI Marième**

Titre de la thèse : «*Dépollution de l'habitacle automobile par photocatalyse et catalyse d'oxydation à froid*».



Résumé

L'automobile étant le premier moyen de déplacement en France, la présence de Composés Organiques Volatils (COVs) et de monoxyde de carbone à l'intérieur de l'habitacle, constitue un problème de santé publique. Plusieurs systèmes de dépollution, basés sur des méthodes d'adsorption, existent sur le marché, mais ne permettent qu'une simple rétention des COVs en surface. Parallèlement, des méthodes moins conventionnelles telle que la photocatalyse utilisant le dioxyde de titane, permettent d'oxyder les COVs sous irradiation, en présence d'humidité et à température ambiante. Cependant, la photocatalyse ne permet pas l'oxydation de certains polluants comme le monoxyde de carbone sans ajout de co-catalyseur. Pour éliminer le CO, la catalyse d'oxydation à froid sur dioxyde de manganèse a été étudiée.

L'objectif de cette thèse est de développer une solution économique permettant la dépollution de l'habitacle automobile. Ce projet vise à allier à terme l'oxydation photocatalytique d'un COV modèle le *n*-pentane sur TiO₂ P25 et l'oxydation catalytique du monoxyde de carbone à température ambiante sur des MnO₂ synthétisés.

En photocatalyse, les résultats mettent en évidence que la vitesse de dégradation diminue avec le taux d'humidité relative et augmente avec la puissance lumineuse et la concentration en *n*-pentane. Les concentrations des intermédiaires réactionnels sont de l'ordre du ppbv pour des ppmv de *n*-pentane injectés. L'*operando* DRIFT a mis en évidence la présence de carbonates à la surface du photocatalyseur. Parallèlement, les expériences de PTR-MS-TOF et GC-MS ont permis d'identifier la présence de composés carbonylés parmi lesquels du formaldéhyde et la pentan-2-one. Ces intermédiaires ont permis de proposer un mécanisme de la dégradation du *n*-pentane sur TiO₂ P25. Il a également été démontré que l'oxydation photocatalytique du *n*-pentane par TiO₂ P25 permet une minéralisation pratiquement complète quelles que soient les conditions de travail.

Pour le système catalytique, des oxydes de manganèse ont été synthétisés par co-précipitation puis calcinés sous oxygène à trois différentes températures : 100°C, 200°C et 300°C. Les performances catalytiques pour l'oxydation du CO ont été évaluées à température ambiante en l'absence d'humidité relative. Des méthodes en température programmée (TPD, TPO, TPR) ont permis de caractériser l'impact de la température de calcination sur la surface du dioxyde de manganèse. Les caractérisations DRX et BET ont mis en évidence la formation de la phase ϵ -MnO₂ stable de 100°C à 300°C et de grande surface spécifique (178-197 m²/g). Les résultats montrent que les catalyseurs permettent une oxydation du monoxyde de carbone à température ambiante. Le catalyseur calciné à 100°C (MnO₂-100) présente les meilleures performances avec un taux de conversion initiale de 60% à température ambiante pour 500 ppmv de CO à 10 L/h, 20%O₂, (VVH = 25 000 h⁻¹). Les catalyseurs, notamment MnO₂-100, se désactive au cours du temps à température ambiante. Cette désactivation pourrait être due à la capacité du catalyseur à renouveler ses oxygènes du réseau, impliquer dans le processus catalytique.

Mots clés : *n*-pentane, photocatalyse, air intérieur, automobile, monoxyde de carbone, dioxyde de manganèse, catalyse, température ambiante.