



Université Claude Bernard



Lyon 1

DIPLÔME NATIONAL DE DOCTORAT

(Arrêté du 25 mai 2016)

Date de la soutenance : **7 novembre 2019**

Nom de famille et prénom de l'auteur : **PETAUD Guillaume**

Titre de la thèse : « *Réduction catalytique sélective des oxydes d'azotes par l'ammoniac : cinétique, mécanisme et modélisation du système cuivre chabazite* ».



Résumé

Les oxydes d'azotes (NO_x) sont un des groupes majeurs de polluants primaires émis dans l'atmosphère, principalement par les transports et l'industries, dont leur réduction constitue un enjeu sociétal crucial. Afin de répondre à l'évolution de normes environnementales plus exigeantes, la diminution des NO_x est notablement explorée via la réaction clef de Réduction Catalytique Sélective par l'ammoniac (NH₃-RCS) en employant des catalyseurs à base de cuivre et de fer. Le développement maîtrisé et perfectionné de cette solution requiert une profonde compréhension du système catalytique et ce à différentes échelles. Cette étude vise ainsi à développer un modèle cinétique multi-sites pour la représentation des performances NH₃-RCS, par l'exploration des propriétés physico-chimiques, de surface et catalytiques d'une série de catalyseurs zéolitiques microporeux (Chabazite) supportant le cuivre. Cette série de catalyseurs imprégnés, échangés et « One-pot » permet la profonde caractérisation de différentes configurations de sites actifs dont les impacts sur les comportements catalytiques furent étudiés et identifiés selon différentes conditions opératoires. Ainsi, le modèle permet de prendre en considération, via la distinction selon leur nature, de 5 sites majeurs : la compétition d'adsorption, l'impact de l'eau, la formation et décomposition d'intermédiaires clefs et un schéma réactionnel précis, de représenter les activités des différents catalyseurs. De plus, l'étude In-situ de la surface de ces catalyseurs via spectrométrie infra-rouge à réflexion diffuse (DRIFT) fut complémentaire à la compréhension des dynamiques de surface et l'identification des mécanismes du procédé catalytique.

Mots clefs : Réduction catalytique sélective, dépollution atmosphérique, modélisation cinétique, In-situ DRIFT, sites actifs