



Université Claude Bernard



DIPLÔME NATIONAL DE DOCTORAT

(Arrêté du 25 mai 2016)

Date de la soutenance : **08 novembre 2022**

Nom de famille et prénom de l'auteur : **Madame SIMAO MARTA Catarina**

Titre de la thèse : « *Identification des descripteurs impactant la sélectivité en NH₃-SCR dans les zéolithes à petits pores* »

Résumé

L'objectif principal de cette thèse est de trouver des descripteurs capables de traduire la relation entre les performances catalytiques et les propriétés physico-chimiques des zéolithes à petits pores utilisées comme catalyseurs pour la réduction sélective des oxydes d'azote par l'ammoniac (NH₃-SCR, une stratégie de réduction des émissions de NO_x employée dans les moteurs à combustion interne en mélange pauvre).

Une revue approfondie de la littérature a permis de conclure que les zéolithes à petits pores échangées au cuivre avec des porosités tridimensionnelles, de petits canaux reliés par des cages plus grandes et des unités de construction de type *d6r* étaient très performantes. Quatre structures zéolitiques ont été sélectionnées : AEI, CHA et AFX avec une connectivité 3D, et la PTT – une nouvelle structure 2D présentant les caractéristiques susmentionnées.

Différents paramètres ont été étudiés et des corrélations ont été identifiées entre les performances catalytiques et les propriétés physico-chimiques des zéolithes. Plusieurs techniques de caractérisation ont été utilisées, fournissant des informations sur la composition chimique (AAS, ICP-OES, XRF, XPS), la morphologie et le réseau poreux (MEB, Physisorption d'azote), les propriétés structurales (²⁷Al et ²⁹Si MAS RMN, DRX) et la distribution des espèces actives de Cu (H₂-RTP et NO-IR).

Cinq axes de recherche ont été suivis : l'effet du rapport Si/Al sur les performances des zéolithes CHA ; l'effet de la teneur en cuivre sur les performances NH₃-SCR des catalyseurs AEI, AFX et CHA ; l'effet du vieillissement hydrothermal sur les zéolithes AEI et CHA ; l'effet de la procédure de synthèse sur les performances des catalyseurs AFX et, enfin, l'effet de la dimensionnalité de la porosité (nature du réseau) sur les performances catalytiques.

Plusieurs conclusions ont été obtenues : les zéolithes CHA avec des teneurs en cuivre similaires forment moins de N₂O lorsque le rapport Si/Al diminue. De même, l'augmentation de la teneur en Cu sur une zéolithe AEI, AFX ou CHA conduit à une formation accrue de N₂O. Également, il est montré que le vieillissement hydrothermal est propice à une diminution de la sélectivité en N₂ dans les zéolithes AEI et CHA. Il apparaît également que la procédure de synthèse des zéolithes AFX a une influence sur les caractéristiques résultantes du matériau et, donc, sur la sélectivité en N₂. Enfin, et conformément aux résultats présents dans la bibliographie, pour des zéolithes ayant des rapports Si/Al et des teneurs en Cu similaires, une diminution de la

dimensionnalité de la porosité de la charpente entraîne une perte d'activité, et une augmentation de la formation de N_2O . Les deux phénomènes résultent de la plus faible stabilité de la structure PTT.