

**DISCIPLINE DE DOCTORAT : Chimie**

---

**NOM DU CANDIDAT : Joudia AKIL**  
**LABORATOIRE D'ACCUEIL : UCEiV**  
**ECOLE DOCTORALE : SMRE**

---

**JURY :**

RAPPORTEURS	Mme S. IVANOVA, Université de Séville - Espagne Mme D. THOMAS, Université de Mons - Belgique
MEMBRES	M S. ROYER, Université de Lille - France Mme L. PIRAULT-ROY, Université de Poitiers - France
MEMBRE INVITE	M S. RINGOT, Dunkerque LNG - France
DIRECTEURS DE THESE	M S. SIFFERT M C. POUPIN

---

**TITRE DE LA THESE : Purification catalytique du CO<sub>2</sub> issu de l'oxycombustion**

---

**RESUME :**

Le réchauffement climatique principalement dû aux émissions importantes du dioxyde de carbone (Gaz à Effet de Serre, GES, de référence) dans l'atmosphère, motive les chercheurs à trouver des solutions pour lutter contre ce phénomène. Les techniques consistant à capter et stocker le CO<sub>2</sub> ou encore de le valoriser (méthane, méthanol...) sont les solutions les plus pertinentes, mais qui nécessitent du CO<sub>2</sub> le plus pur possible. Parmi les techniques de captation, l'oxycombustion paraît assez prometteuse pour produire du CO<sub>2</sub> à très forte concentration. Toutefois, selon la nature du combustible et la pureté de l'oxygène, certains polluants peuvent apparaître tels que le monoxyde de carbone et les oxydes d'azotes. Pour réaliser cette purification des gaz contenant des NO<sub>x</sub> et du CO, la catalyse est un moyen efficace. Elle permet de transformer simultanément le NO et le CO respectivement en N<sub>2</sub> et CO<sub>2</sub>. L'objectif de cette étude est donc, de mettre au point des catalyseurs actifs et sélectifs pour la réduction des NO<sub>x</sub> en diazote par le CO, dans un milieu riche en oxygène et en présence d'eau pour la purification du CO<sub>2</sub> issu de l'oxycombustion. Deux types de catalyseurs ont été choisis : les métaux nobles (Pd, Pt, Rh) supportés et les oxydes de métaux de transition (Co, Cu, Al).

Les premiers résultats obtenus sur les supports (Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> et CeO<sub>2</sub>) montrent que les métaux nobles supportés sur CeO<sub>2</sub> sont généralement plus performants que leurs homologues supportés sur Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Toutefois, en présence de 8,2% d'eau, les catalyseurs à base de Pd perdent une grande partie de leurs activités, alors que ceux à base de Pt et Rh se sont montrés encore plus performants grâce à la réaction de gaz à l'eau (WGS) entre CO et H<sub>2</sub>O permettant la production d'H<sub>2</sub>, un réducteur plus puissant que le CO.

Les résultats obtenus lors de cette première étude nous ont permis d'apprécier l'effet du support. De ce fait, nous avons décidé d'étudier l'influence d'autres supports sur les catalyseurs à base de Pt et Rh. Les résultats obtenus montrent que les catalyseurs à base de Pt sont plus performants et que leur activité catalytique

augmente pour les échantillons supportés sur un support neutre ( $\text{SiO}_2$ ) ou réductible ( $\text{TiO}_2$ ) que ce soit en présence ou en absence d'eau.

Les oxydes mixtes de métaux de transition, obtenus par voie hydrotalcite, montrent que la nature du cation bivalent joue un rôle important dans les réactions étudiées. Ainsi, nous avons pu établir le classement suivant par ordre d'activité croissante :  $\text{Cu}_6\text{Al}_2 < \text{Co}_6\text{Al}_2 < \text{Co}_2\text{Cu}_4\text{Al}_2 < \text{Co}_4\text{Cu}_2\text{Al}_2$ . La meilleure activité des oxydes mixtes Co-Cu peut s'expliquer par un effet de synergie entre le Co et le Cu et par une surface spécifique plus importante que les matériaux composés d'un seul de ces deux éléments. Cependant, l'ajout d'eau dans le flux réactionnel a montré que les catalyseurs contenant du Cu subissent une diminution de la réduction du NO, attribuée principalement à une adsorption compétitive entre NO et  $\text{H}_2\text{O}$  sur les sites actifs du cuivre.

---

**DATE DE SOUTENANCE** : 24/11/2017 / 10h00

**LIEU** : Amphithéâtre de la MREI 1, 145 Avenue Maurice Schumann, 59140 Dunkerque

---