



Etude de l'interaction entre l'hydrogène et des métaux ultra-dispersés pour la catalyse hétérogène

Contexte de la thèse:

Afin de réduire les dépenses énergétiques et les émissions nocives pour l'environnement, la catalyse hétérogène, qui intervient dans environ 80% des procédés industriels actuels, a un rôle prépondérant à jouer. Un enjeu majeur est de développer des « catalyseurs éco-efficaces », i.e. à la fois performants (actifs, sélectifs et stables) et faisant appel à un minimum de matière rare et coûteuse (notamment les métaux nobles, qui sont utilisés dans de nombreux procédés catalytiques et dans les catalyseurs automobiles).

Dans ce contexte, un nouveau paradigme a été récemment proposé, il s'agit de catalyseurs d'atomes isolés qui sont constitués des atomes métalliques dispersés/stabilisés sur un support. Cette approche diminue la quantité de métaux rares et chères utilisés en tant que catalyseurs. Parmi les défis à relever, il s'agit de maîtriser la synthèse de ces catalyseurs ultra-dispersés des métaux nobles, d'évoluer vers des métaux non-nobles, de contrôler la teneur métallique pour accroître les rendements catalytiques sans diminuer sensiblement la dispersion métallique, et d'adoucir les conditions de réaction (T, P).

Ce travail se déroule dans le cadre du projet ULTRACAT qui bénéficie d'un financement de l'ANR pour une durée de 4 ans (2018-2022). Le consortium est constitué par trois laboratoires français (ICMPE, IRCELYON et IPCMS) et une Université anglaise (Birmingham University).

Objectifs de la thèse:

Le but de la thèse est d'optimiser la synthèse des catalyseurs à base de métaux nobles (et non-nobles) supportés sur différents matériaux (oxydes poreux) afin d'augmenter leur dispersion sous la forme des particules sub-nanométriques jusqu'aux atomes isolés. Une fois la dispersion maîtrisée, leur réaction avec l'hydrogène gazeux sera déterminée en fonction de la température et la pression. Ces propriétés réactives sont essentielles afin de mieux comprendre la meilleure activité de ces catalyseurs dans différentes réactions: PROX (*preferential oxidation of CO in H₂*) ou l'hydrogénation du CO₂. Ce dernier volet sera réalisé

en collaboration avec nos partenaires d'IRCELYON (Lyon), spécialistes en catalyse hétérogène. Dans le but de mieux connaître les processus dynamiques d'interaction gaz-solide impliqués lors des réactions, et de guider en retour la conception, les systèmes catalytiques seront caractérisés par des techniques in situ/operando avancées telles que la microscopie électronique en transmission environnementale corrigée des aberrations, les spectroscopies vibrationnelles (infrarouge, Raman), et les spectroscopies X (XAS, XPS) en rayonnement synchrotron. Grâce à la contribution du partenaire étranger, les matériaux et les réactions étudiés seront modélisés à l'aide de méthodes de simulation numérique basées sur la DFT à des fins prédictives.

Déroulement de la thèse:

La première étape de la thèse consiste en la synthèse des matériaux par des méthodes de chimie douce. Ensuite, nous allons mener une étude systématique des propriétés fondamentales telles que, structurales (DRX), morphologiques et chimiques (MET, EDX) et texturales (adsorption de N₂) ainsi que la compréhension de leurs relations intrinsèques. Grâce à l'implication de nos partenaires de l'IPCMS (Strasbourg), ces catalyseurs seront finement caractérisés par la microscopie électronique de dernière génération (avec ultra-haute résolution à correction d'aberration) permettant de visualiser des objets sub-nanométriques. Enfin, les interactions solide-gaz (H₂) seront déterminées par différentes techniques (méthode volumétrique, spectroscopie de masse, calorimétrie...).

Profil du candidat:

Master 2 en Sciences des Matériaux, Chimie des Matériaux ou Nanomatériaux. Les qualités requises sont : connaissances en science des matériaux, investissement dans le travail de recherche expérimental, goût pour le travail en équipe.

Mots clefs: nanomatériaux, catalyse hétérogène, interaction avec l'hydrogène

Éléments à fournir lors de la candidature:

- Un CV
- Les relevés des notes de Master 1 et Master 2
- Une lettre de motivation
- 1,2 personnes de référence

Personne de contact:

Dr. Claudia Zlotea

Institut de Chimie et Matériaux de Paris Est

Tel : +33 149 78 11 29

claudia.zlotea@icmpe.cnrs.fr

Date prévue du début de la thèse: 1 Octobre 2018