

Influence de la présence du praséodyme dans une matrice cérine-zircone sur la réaction de standard SCR : étude de l'interaction Pr/Nb et Pr/W

Rémy Pointecouteau,^{1,2} Charlotte Croisé¹, Joudia Akil¹, Fabien Can¹, Xavier Courtois¹, Alain Demourgues² et Nicolas Bion¹

¹ Institut de Chimie des Milieux et Matériaux de Poitiers (IC2MP), Université de Poitiers, CNRS, UMR 7285, 4 Rue Michel Brunet, TSA 51106, F-86073 Poitiers 9, France.

² Institut de Chimie de la Matière Condensée de Bordeaux (ICMCB), Université de Bordeaux, Bordeaux INP, CNRS, UMR 5026, 87 Avenue du Dr Albert Schweitzer, 33600 Pessac, France.

Depuis 2001, une limitation spécifique pour les NOx est entrée en vigueur au sein de l'Union européenne. Au fil des années, ces restrictions deviennent plus sévères nécessitant le développement de nouveaux catalyseurs et la compréhension des mécanismes mis en jeu. Dans cette optique, plusieurs oxydes à base de cérine-zirconium contenant ou non du praséodyme ($Ce_{0,2}Zr_{0,8}O_{2-\delta}$ (CZ) et $Ce_{0,2}Zr_{0,6}Pr_{0,2}O_{2-\delta}$ (CZP)) ont été préparés par co-précipitation à partir de précurseurs nitrates [1] et calcinés à 600°C sous air. L'ajout de praséodyme permet d'améliorer la réductibilité dans une matrice cérine-zircone, notamment à basse température, grâce à la double valence Pr^{4+}/Pr^{3+} . Ces oxydes complexes ont été caractérisés par DRX, physisorption de N_2 à 77K, mesure de capacité de stockage d'oxygène (OSC), réduction en température programmée (H_2 -TPR) ainsi que par échange isotopique $^{18}O/^{16}O$. Sur chacun de ces oxydes complexes, 8 % massique de niobium ou tungstène ont été imprégnés par voie humide afin d'apporter un caractère acide aux matériaux, propriété nécessaire pour la réaction de NH_3 -SCR et évaluée par adsorption-désorption d'ammoniac suivi par infra-rouge. Les tests NH_3 -SCR ont été effectués sur les quatre échantillons (Nb ou W)/CZ et (Nb ou W)/CZP et le but de l'étude est de comprendre l'influence de l'ajout de praséodyme dans une matrice cérine-zircone et d'interpréter les interactions Pr-Nb ou Pr-W.

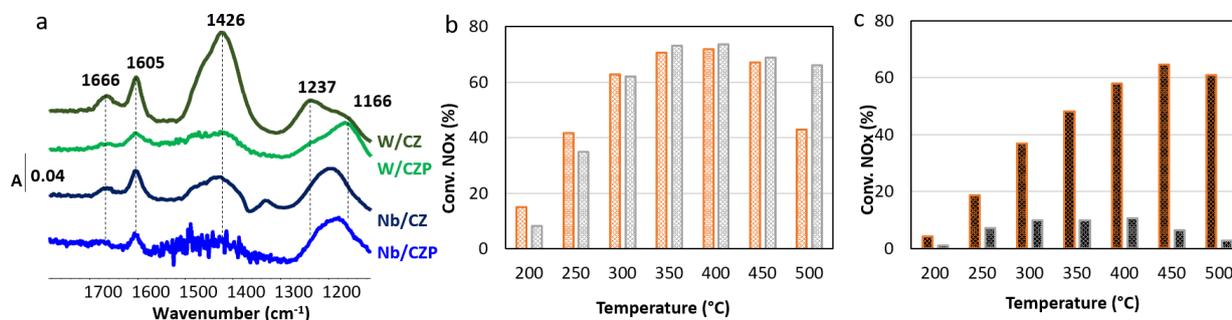


Figure 1 : (a) spectres IR de NH_3 évacué à 50°C. NH_3 -SCR: effet comparatif sur la conversion des NOx de Nb (■) et W (■) supportés sur CZ (b) ou CZP (c).

Les caractérisations ont montré que les propriétés acides ont effectivement été améliorées par l'ajout de WO_3 ou Nb_2O_5 . Et que les catalyseurs contenant du tungstène contiennent une quantité plus élevée de sites acides de Brønsted [2]. Une quantité plus faible de sites acides est observée pour le support CZP comparée au support CZ (figure 1a). Les catalyseurs à base de Nb montrent une efficacité de NOx supérieure lorsque le niobium est déposé à la surface du support CZ (figure 1b). La diminution de l'efficacité de NOx en présence de praséodyme est plus marquée pour les catalyseurs à base de W. L'interaction W-Pr est donc très préjudiciable pour la réduction des NOx, avec une conversion maximale pour W/CZP n'excédant pas 10 % entre 300-400 °C (figure 1c). Les caractérisations de ce catalyseur ont montré que W/CZP présentait à la fois les propriétés redox les plus faibles et une acidité inférieure (force et nombre des sites acides) comparées aux autres catalyseurs. Le Pr étant très basique, bien plus que le cérine, celui-ci apparaît neutraliser l'acidité apportée par le niobium ou le tungstène et donc nuit à l'activité en SCR.

[1] V. Frizon et al., J. Phys. Chem. C, 2019, 123, 6351–6362.

[2] Z. Ma et al., J. Mol. Catal. A Chem., 2016, 423, 172-180.