
Adsorption des dioxines dans les zéolithes : simulations moléculaires DFT et classique

DIRECTEUR DE THESE : REGIS STEPHAN CO-ENCADRANT: IRENA DEROCHE
IS2M UMR 7361 – CNRS/UHA, 15 RUE JEAN STARCKY 68057 MULHOUSE
TEL : 03 89 33 66 10 ; E-MAILS : REGIS.STEPHAN@UHA.FR IRENA.DEROCHE@UHA.FR

L'augmentation de la concentration atmosphérique des dioxines est un problème environnemental majeur. La toxicité de ces espèces est en effet bien connue^[1,2]. L'efficacité limitée et le coût élevé des solutions actuelles rendent nécessaire la recherche de nouvelles technologies. L'adsorption sélective des dioxines par des matériaux poreux, et plus particulièrement les zéolithes^[3], apparaît comme une solution intéressante. Cependant, les études expérimentales de ces composés hautement toxiques s'avèrent délicates. La simulation moléculaire constitue donc une technique de choix dans ce type d'étude. La combinaison de deux méthodes, théorie de la fonctionnelle de la densité (DFT) et Monte Carlo dans l'ensemble de Gibbs, permet d'aboutir à une description détaillée complète du phénomène d'adsorption, et de définir la zéolithe « idéale » pour l'application recherchée.

L'objectif de ce travail sera d'étudier, par simulation numérique classique et quantique, les propriétés d'adsorption de la 2,3,7,8-tétrachlorodibenzo-p-dioxine dans les zéolithes à « large porosité » de type Faujasite. La localisation et le choix de la nature des cations compensateurs de charge (alcalins, alcalino-terreux, métaux de transition) seront des paramètres importants^[4] influençant les interactions adsorbat/adsorbant, comme nous avons pu le montrer récemment dans le cas des aromatiques polychlorés imitant les dioxines^[5].

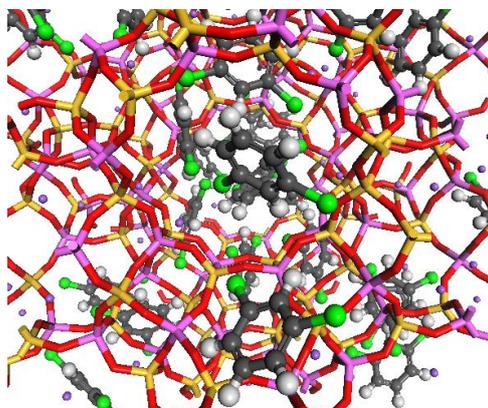


Figure 1 : Exemple de confinement de molécules aromatiques polychlorées dans une zéolithe de type FAU (NaX), extrait d'une simulation de type Monte Carlo.

Ce travail de thèse s'articulera principalement autour des tâches suivantes:

- étude de la distribution cationique sur les différents sites cristallographiques en collaboration avec une étude expérimentale en diffraction de rayons X (J.-L. Paillaud, IS2M).
- étude DFT de la localisation de l'adsorbat, la géométrie de l'adsorption et les interactions majeures adsorbat/adsorbant. Proposition de nouveaux paramètres de champ de force pour l'interaction molécule-zéolithe.
- simulation dans l'ensemble de Gibbs des isothermes d'adsorption pour différents mélanges gazeux. Prédiction de la meilleure structure pour capter les dioxines.

[1] Y. He *et al.* J. Chromatogr. A 874 (2000) 149–154

[2] G. Rioland *et al.* RSC Adv. 6 (2016) 2470–2478

[3] D. P. Serrano *et al.* Chem. Soc. Rev. 42 (2013) 4004–4035.

[4] H. Guesmi *et al.* Microp. Mesop. Mater. 159 (2012) 87-95.

[5] J.Randrianandraina *et al.* Microp. Mesop. Mater., submitted

Co-encadrants : M.-C. Hanf ,Ph. Sonnet, Collaborations: J.-L. Paillaud, A. Simon-Masseron