

## Conclusion

Mes recherches ont porté sur la dégradation de molécules organiques en solution aqueuse, exclusivement par le dioxyde de titane ( $\text{TiO}_2$ ), sous irradiation artificielle et solaire. Nous avons cherché à comprendre les mécanismes fondamentaux de la dégradation photocatalytique en étudiant, par exemple, l'influence de l'adsorption des molécules sur le solide ou encore les effets du pH ou de l'addition de sels. Le problème de la séparation du  $\text{TiO}_2$  en suspension est crucial pour les applications de la méthode. C'est pourquoi, nous avons préparé du  $\text{TiO}_2$  supporté et testé les solides obtenus.

Dans un premier temps, nous avons comparé l'activité photocatalytique de différents catalyseurs ( $\text{TiO}_2$ ) commerciaux. On a pu montrer que le  $\text{TiO}_2$  Degussa P25 possède la meilleure activité photocatalytique pour la dégradation de l'acide para-hydroxybenzoïque (4-HBz) et la benzamide (Bz). Nous avons choisi ce catalyseur comme référence.

L'étude de l'adsorption de l'acide 4-HBz sur le  $\text{TiO}_2$  P25 a été réalisée. La cinétique d'adsorption est très rapide et il est possible d'adsorber un maximum de 45 mg d'acide 4-HBz par gramme de catalyseur. On a pu voir que le pH a une influence sur l'adsorption de l'acide 4-HBz : plus le pH augmente, moins l'acide est adsorbé à la surface du catalyseur.

Le pH joue un rôle important sur la cinétique de dégradation photocatalytique de l'acide 4-HBz. En effet, suivant le pH la charge de surface du  $\text{TiO}_2$  varie. On observe la même influence entre l'adsorption et la cinétique de dégradation pour le pH (plus le pH augmente, moins la cinétique de dégradation est rapide). A l'inverse, la benzamide est peu influencée par le pH.

Nous avons également caractérisé l'influence des ions chlorures sur la cinétique de dégradation de ces deux polluants. La présence d'ions  $\text{Cl}^-$  diminue considérablement les cinétiques d'élimination de l'acide 4-HBz et de la Bz. On en a déduit que les ions chlorures s'adsorbent à la surface du  $\text{TiO}_2$  et diminuent les interactions catalyseur/polluant.

La synthèse de  $\text{TiO}_2$  par voie sol-gel a été réalisée pour obtenir un catalyseur ayant des propriétés physico-chimiques déterminés. Le catalyseur formé doit subir un traitement thermique pour cristalliser dans la forme anatase. On a trouvé que les conditions optimales sont : 20 heures de traitement thermique à  $500^\circ\text{C}$ .

Nous nous sommes également intéressés à la fixation du  $\text{TiO}_2$  sur de la fibre de verre. Le catalyseur supporté permet d'éliminer l'étape de filtration des particules de  $\text{TiO}_2$  en vue d'une utilisation industrielle du procédé. Deux modes de fixation ont été réalisés : La fixation de  $\text{TiO}_2$  P25 sur de la fibre de verre (méthode Saint-Gobain) et la fixation de  $\text{TiO}_2$  sol-gel sur la fibre de verre (procédé du laboratoire). Dans les deux cas, le catalyseur est relativement bien fixé sur la fibre de verre.

L'activité du  $\text{TiO}_2$  supporté est suffisante pour dégrader les solutions de benzamide et d'acide 4-HBz. Nous avons pu tester la fibre de verre avec du  $\text{TiO}_2$  sol-gel supporté pour la dégradation de la benzamide dans une installation semi-industrielle à la Plate-forme Solaire d'Almería en Espagne. Ainsi, la fibre peut être réutilisée plusieurs fois sans perte d'activité photocatalytique.

Dans le dernier chapitre, nous nous sommes intéressés à la dégradation de mélanges de polluants. Nous avons pu mettre en évidence une sélectivité dans le processus de dégradation. Pour le mélange «équimolaire d'acide 4-HBz et de Bz, on observe dans un premier temps la dégradation essentielle de l'acide 4-HBz. Puis, lorsqu'environ 80% de l'acide initial a été éliminé, la benzamide est dégradée.

Pour essayer de comprendre ce phénomène, nous avons étudié l'influence de la concentration en  $\text{TiO}_2$ . On a pu voir que plus la concentration en  $\text{TiO}_2$  est importante, plus la sélectivité (rapport des pourcentages de dégradation à un temps donné d'irradiation) est importante. Le pH influence aussi la sélectivité de la dégradation. Ainsi, il est nécessaire d'être en milieu acide pour observer la meilleure sélectivité. En milieu basique, la sélectivité est inversée c'est-à-dire qu'on dégrade préférentiellement la benzamide par rapport à l'acide 4-HBz. Les ions chlorures ne permettent pas d'obtenir un gain de sélectivité important mais permettent de fortement ralentir les cinétiques de dégradation des deux composés.

Nous nous sommes également penché sur la dégradation d'autres mélanges. On retrouve une dégradation sélective pour le mélange d'acide 4-HBz et de la vanilline. La vanilline a le même comportement que la benzamide (pas d'adsorption et peu d'influence du pH sur la cinétique de dégradation).

Enfin, nous avons testé la dégradation d'un mélange d'isomères (acide 2-HBz et 4-HBz). On observe une dégradation simultanée des deux composés. Toutefois, le rapport entre les pourcentages dégradés après 30 minutes d'irradiation montre que l'acide 2-HBz est dégradé 4 fois plus rapidement que l'acide 4-HBz.

Pour résumé, il est possible d'obtenir une dégradation sélective lorsque seulement un des polluants s'adsorbe à la surface du  $\text{TiO}_2$ . Le deuxième polluant ne doit pas subir de photolyse directe, être peu influencé par le pH. Il est également nécessaire de travailler avec une grande concentration en  $\text{TiO}_2$ .