

DOCTORAT DE L'UNIVERSITE DE LILLE 1 SCIENCES ET TECHNOLOGIES

N° d'ordre : 41827

NOM/PRENOM DU CANDIDAT : CAI Mengdie

Ecole doctorale : Université Lille1, Sciences et Technologies
Laboratoire : Unité de catalyse et de chimie du solide (UFR Chimie)
Discipline : Molécules et Matière Condensée
Si cotutelle, établissement partenaire :

JURY :

- Directeur(s) de thèse : Khodakov Andrei, Ordonsky Vitaly
- Rapporteurs : PHAM-HUU Cuong, VALTCHEV Valentin
- Examineurs: Schwab Ekkehard, Marin Guy, ERSEN Ovidiu

SOUTENANCE :

09th Oct 2015, 14:15 pm, Grand Amphi, Ecole Central de Lille

TITRE DE LA THESE :

Conception de nouveaux catalyseurs hybrides pour la synthèse directe du diméthyle éther à partir du gaz de synthèse

RESUME :

Des nouveaux catalyseurs bi-fonctionnels Cu-ZnO-Al₂O₃/ZSM-5 pour la synthèse directe du diméthyle éther (DME) à partir du gaz de synthèse ont été préparés par mélange physique, et ensuite caractérisés et évalués dans un réacteur à lit fixe. L'activité catalytique dans la synthèse de DME a été attribuée à des sites métalliques de cuivre et à l'acidité de la zéolite. Les cristaux de zéolite de petite taille favorisent une activité plus importante. La désactivation du catalyseur est fortement influencée par les sites acides localisés à la surface externe de la zéolite. Une acidité importante de la surface externe de ZSM-5 conduit à une désactivation rapide du catalyseur. Le frittage et la migration du cuivre font partie des mécanismes prédominants de la désactivation. Les sites acides à la surface de la zéolite ont été sélectivement neutralisés par silylation avec le tétraéthyle orthosilicate. Par conséquent, la stabilité du catalyseur et la productivité en DME ont été significativement améliorées. Le dioxyde de carbone est un produit indésirable de la synthèse directe du DME. Il est formé par la réaction Water-Gas-Shift. La promotion des catalyseurs Cu-ZnO-Al₂O₃ /HZSM-5 avec de l'étain permet de modérer la réaction Water-Gas-Shift et d'augmenter la sélectivité en DME.