

DOCTORAT DE L'UNIVERSITE DE LILLE 1 SCIENCES ET TECHNOLOGIES

N° d'ordre : 42112

NOM/PRENOM DU CANDIDAT : MAKHOUL Mireille

Ecole doctorale SMRE
Laboratoire : UCCS- Unité de Catalyse et de Chimie du Solide
Discipline : MMC- Molécules et matière condensée
Si cotutelle, établissement partenaire :

JURY :

- Directeur(s) de thèse : Sylvain CRISTOL
- Co-directrice : Co-Directrice : Juliette BLANCHARD
- Rapporteurs : CALATAYUD Monica MAUGÉ Françoise
- Examineurs : TRCERA Nicolas IDRISSE Abdenacer
- Membre invité : TOUGERTI Asma

SOUTENANCE : 23/01/2017, 10:00, Amphi CERLA

TITRE DE LA THESE :

Identification des sites acides de Lewis des zéolithes Beta et Mordenite par modélisation et spectroscopie d'absorption des rayons X et infrarouge

RESUME :

Le but de ce travail de thèse est d'identifier les sites acides de Lewis se formant lors de la déshydratation des zéolithes. Pour cela nous avons appliqué une approche combinant la spectroscopie d'absorption de rayons X et infrarouge et la modélisation moléculaire. Le calcul utilisant la théorie de la fonctionnelle de la densité a montré que trois types de sites aluminium sont générés lors du processus de déshydroxylation : les aluminiums tri-coordinés, les aluminiums tétraédriques distordus et les aluminiums tri-coordinés masqués. L'interprétation des spectres d'absorption de rayons X au seuil K de l'aluminium s'est faite via le calcul des densités d'états électroniques vides des sites générés. Nous avons montré que le pic apparaissant avant le seuil principal d'absorption est dû principalement aux sites tétraédriques distordus et aux sites tri-coordinés masqués alors que les sites tri-coordinés sont à l'origine d'un léger décrochement avant le seuil d'absorption. Les spectres infrarouge du monoxyde de carbone adsorbé sur les zéolithes déshydratées à différentes températures ont montré la présence de deux acidités de Lewis. La modélisation des spectres infrarouge montre que l'acidité de Lewis modérée peut être attribuée aux aluminiums tri-coordinés et tri-coordinés masqués. L'acidité de Lewis plus forte pourrait provenir de sites silicium sous coordonnés se formant lors de la déshydroxylation

DOCTORAT DE L'UNIVERSITE DE LILLE 1 SCIENCES ET TECHNOLOGIES

N° order: 42112

NAME/SURNAME OF THE CANDIDATE: MAKHOUL Mireille

Doctoral School : SMRE

Laboratory :UCCS

Discipline : Molecules and Condensed Matter

In case of co-tutorial thesis, provide the partner institution :

THESIS COMMITTEE :

- Thesis supervisor(s) : CRISTOL Sylvain
- Co-supervised by: BLANCHARD Juliette
- Referees: CALATAYUD Monica MAUGÉ Françoise
- Examiners : TRCERA Nicolas IDRISSE Abdenacer
- Invited member : TOUGERTI Asma

DEFENSE : 23/01/2017, 10:00, Amphi CERLA

TITLE OF THE THESIS :

Indetification of Lewis acid sites in zeolites Beta and Mordenite by a combined experimental/theoretical approach using X-ray absorption spectroscopy and infrared

ABSTRACT :

The aim of this thesis is to identify the Lewis acid sites formed during the dehydration of zeolites. For this we applied an approach combining X-ray absorption spectroscopy, infrared spectroscopy and molecular modeling. The calculation using density functional theory showed that three types of aluminum sites are generated during the dehydroxylation process: aluminum tri-coordinated, pseudo tri-coordinated aluminum and aluminum in a distorted tetrahedral environment. The interpretation of X-ray absorption spectra at the aluminum-K edge is done via the calculation of the empty density of states of the generated sites. We showed that the peak appearing before the main absorption edge is mainly due to distorted tetrahedral sites and pseudo tri-coordinated sites while the tri-coordinated sites are causing a slight feature before the above-mentioned pre-edge peak. The infrared spectra of carbon monoxide adsorbed on the zeolite treated at different temperatures showed the presence of two Lewis acidities. Modeling Infrared spectra shows that the moderate Lewis acidity can be attributed to tri-coordinated aluminum and pseudo tri-coordinated aluminum. The stronger Lewis acidity may come from silicon sites under-coordinated formed during the dehydroxylation.