



Université Claude Bernard



# DIPLÔME NATIONAL DE DOCTORAT

(Arrêté du 25 mai 2016)

Date de la soutenance : **28 février 2019**

Nom de famille et prénom de l'auteur : **MEDEIROS COSTA Izabel**

Titre de la thèse : « *Couplage entre adsorption et diffusion dans les zéolithes à porosité hiérarchisée : effet de la surface externe et de la porosité supplémentaire* ».



## Résumé

La performance des procédés de séparation des xylènes utilisant des adsorbants nanoporeux est liée aux propriétés de transport et de sélectivité des zéolithes faujasite du type BaX. Les zéolithes conventionnelles présentent un grand volume de micropores et une bonne sélectivité vis-à-vis du paraxylène. Cependant, la diffusion intracristalline est un processus lent qui limite l'efficacité des zéolithes. Par conséquent, l'utilisation de zéolithes hiérarchiques a été proposée comme alternative pour améliorer les propriétés de transport par l'introduction d'un réseau poreux supplémentaire. Dans cette thèse, deux types de zéolithes hiérarchiques BaX sont considérés: les agrégats de nanoparticules (NA - des agrégats de petites particules avec des mésopores entre eux) et les zéolithes *Layer-Like* (LL), formées par un réseau de couches zéolitiques (présentant des mésopores entre les couches et au sein des couches). Afin de mieux comprendre le rôle joué par la surface externe et par la porosité supplémentaire dans les zéolithes hiérarchiques (NA et LL), ces zéolithes ont été caractérisées en termes de quantité et de qualité de la surface externe par différentes techniques de caractérisation (diffraction des rayons X, adsorption de N<sub>2</sub>, porosimétrie, microscopie, infrarouge et résonance magnétique nucléaire). L'adsorption et la diffusion des xylènes ont été évaluées par thermogravimétrie et par batch, en phase gazeuse et liquide, respectivement. Les expériences réalisées en phase liquide permettent d'observer une amélioration importante de la diffusion des xylènes dans les zéolithes hiérarchiques. Néanmoins, une perte significative de la para-sélectivité dans les zéolites BaX hiérarchiques est observée par rapport aux zéolites BaX conventionnelles. L'étude de la diffusion en phase gazeuse a permis d'identifier des barrières de surface, qui sont absentes en phase liquide. Cela peut indiquer qu'à forte concentration, le passage des molécules à travers la surface est moins perturbé. Ceci renforce l'intérêt d'utiliser les zéolithes hiérarchiques pour la séparation des xylènes qui est opérée en phase liquide.