



DIPLÔME NATIONAL DE DOCTORAT

(Arrêté du 25 mai 2016)

Date de la soutenance : **20 Mars 2017**

Nom de famille et prénom de l'auteur : **Joffrey HUVE**

Titre de la thèse : « Catalyseur de Fischer-Tropsch hautement sélectif, actif et stable utilisant des nanoparticules de fer encapsulées dans une zéolithe de type silicalite-1. »



RÉSUMÉ DE THÈSE :

L'intérêt pour la synthèse de Fischer-Tropsch (FTS) est d'actualité. Elle permet la conversion de matière première (biomasse) en combustible liquide. Comparés aux catalyseurs à base de cobalt, ceux à base de fer présentent une désactivation rapide, une activité et une sélectivité faibles en produisant une quantité non désirable de CO₂. Après plusieurs décennies d'études, l'origine de ces défauts reste méconnue. Les catalyseurs classiques sont généralement fortement chargés en fer (>70 wt.%) et composés de nombreuses phases empêchant l'établissement d'une relation structure-activité. Il est nécessaire de développer des catalyseurs contenant du fer plus actifs, plus sélectifs et plus stables par une approche rationnelle.

La synthèse de nanoparticules de taille contrôlée (3.5 nm) encapsulées dans les murs d'une silicalite-1 creuse (Fe@hollow-silicalite-1) est présentée. L'encapsulation empêche le frittage pendant la synthèse de Fischer-Tropsch, permettant de garder une bonne dispersion du fer. Contrairement aux autres catalyseurs, le catalyseur Fe@hollow-silicalite-1 actif ne produit pas de CO₂. L'hydrophobicité de la silicalite-1 est très certainement à l'origine de la non-production de CO₂ par inhibition de la réaction directe du gaz à l'eau. On démontre que le catalyseur Fe@hollow-silicalite-1 convertit le CO₂ en CO par réaction du gaz à l'eau inversée (R-WGS). Afin d'établir une relation structure-activité, des catalyseurs à base de fer de taille bien contrôlée sont synthétisés et caractérisés (MET, in-situ XANES, in-situ Mössbauer). Deux catégories de TOF suivant la taille des particules, $\sim 10^{-2} \text{ s}^{-1}$ pour les plus larges (>20 nm) et $\sim 10^{-3} \text{ s}^{-1}$ pour les plus petites, sont observées.