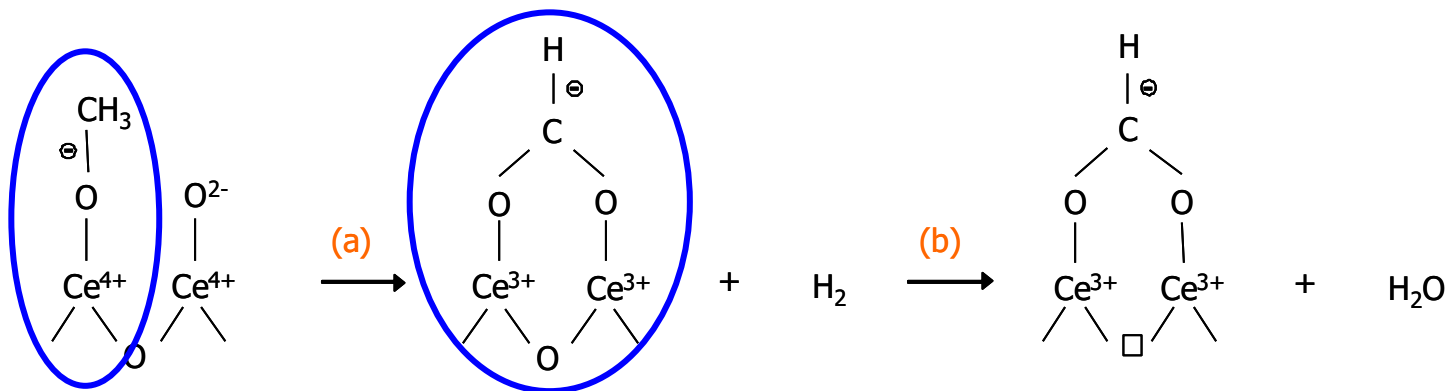


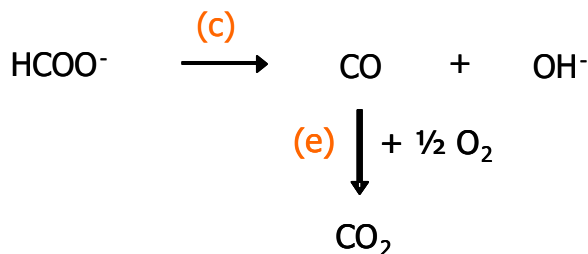
II. Approche mécanistique

Methanol oxidation to CO₂ : a deduced mechanism :

💡 Methoxy oxidation into formates (a) and surface reduction (b)



💡 Formate decomposition (c) and CO oxidation (e)



AND/OR ?

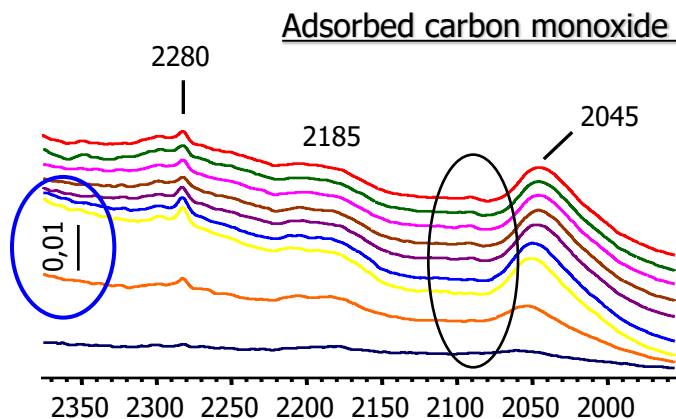
💡 Alternative formate oxidation (f)



II. Approche mécanistique

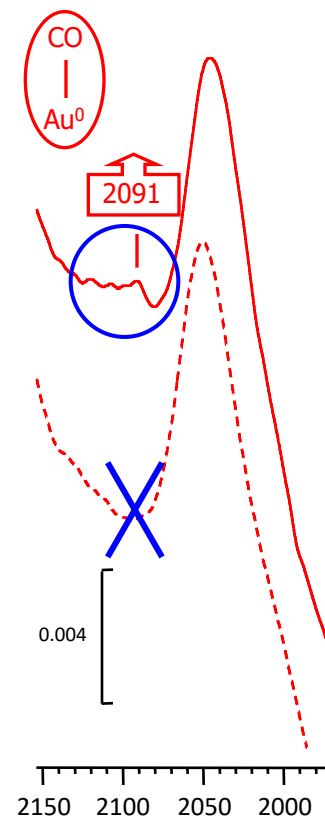
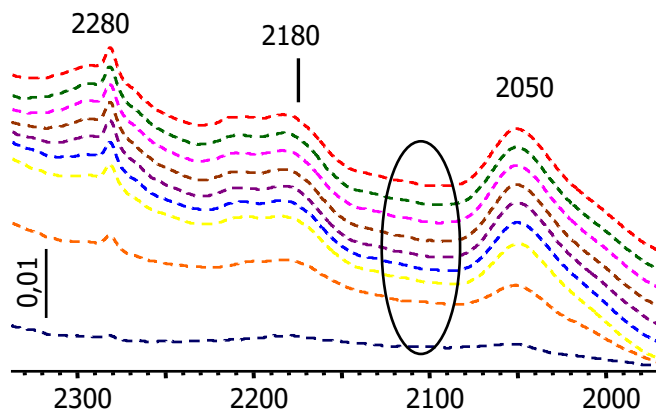
Methanol oxidation to CO₂ : mechanism refinement

Au/CeO₂



5 min
10 min
20 min
30 min
60 min
90 min
120 min
150 min
180 min

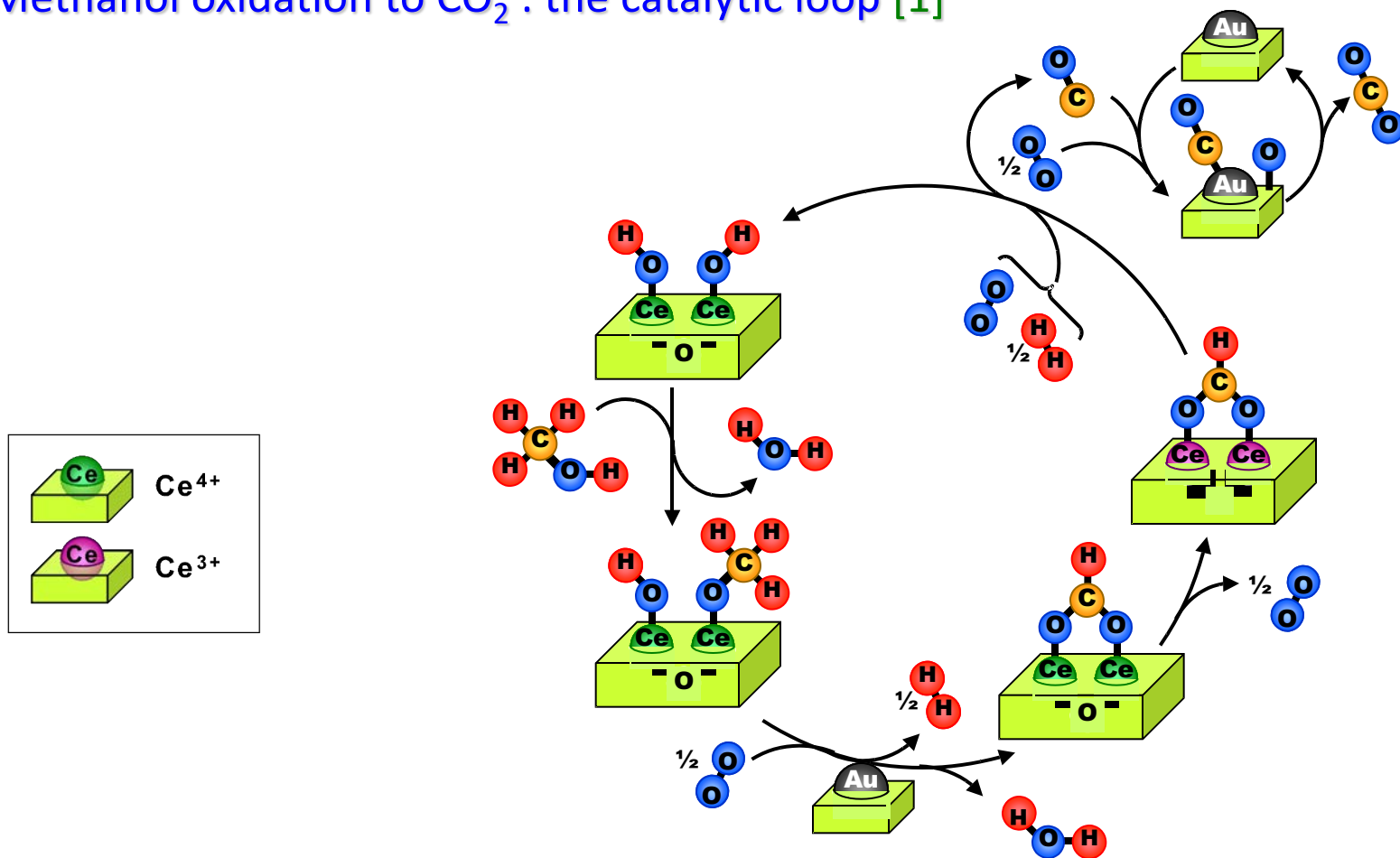
CeO₂



Adsorbed CO onto Au nanoparticles is detected as traces since its reactivity is very high

II. Approche mécanistique

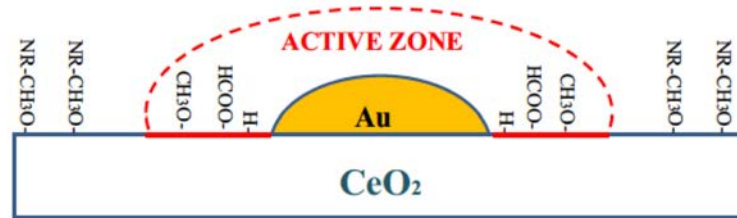
Methanol oxidation to CO_2 : the catalytic loop [1]



[1] S. Rousseau et al. JACS 132 (2010) 10832-10841.

A quoi ca sert?

Identification des différentes étapes élémentaires du mécanisme.
 Identification d'une zone-périmètre actif à l'interface Au/CeO₂



Accès à l'étape déterminante de la réaction.

Simulation du flux en sortie de réacteur possible

➔ optimisation des paramètres cinétiques par ajustement aux données expérimentales.

Table 1 Kinetic constants obtained from the MATLAB© simulation

Temperature (K)	Conversion (%)	fra (without units)	k_{adsmet} (m ³ mol ⁻¹ s ⁻¹)	k_{ads} (m ³ mol ⁻¹ s ⁻¹)	k_{for} (s ⁻¹)	k_{CO_2} (s ⁻¹)
318	12	0.35	3.8×10^{-1}	$>7.5 \times 10^{-1}$	4.3×10^{-4}	4.9×10^{-5}
343	37	0.40	5.5×10^{-1}	$>8.0 \times 10^{-1}$	4.0×10^{-2}	2.2×10^{-3}

Values reported for a 20 % O₂ gas phase molar fraction

$$TOF = \frac{F_{\text{CH}_3\text{OH}} \times Y}{m_{\text{cata}} \times \text{fra} \times N_{\text{sites}} \times S_{\text{BET}}}$$

Conclusions

Approche
cinétique



Approche
mécanisme





Laboratoire
Catalyse & Spectrochimie

Un grand **Merci**

à toutes les personnes impliquées
dans ce travail et à vous pour votre
attention matinale!

