

Ecole doctorale : *Sciences de la Matière, du Rayonnement et de l'Environnement*

Laboratoire : *Unité de Catalyse et Chimie du Solide - UMR8181*

Discipline : *Molécules et Matières Condensée*

NOM/PRENOM DU CANDIDAT : Wenhao FANG

N° d'ordre : 41111

JURY :

Directeur de Thèse : Louise Jalowiecki-Duhamel

Co-Directeur de Thèse : Sébastien Paul

Rapporteurs : Pedro L. Arias, Florence Epron-Cognet

Membres : Patricia De Rango, Franck Dumeignil

TITRE DE LA THESE :

Production d'hydrogène par transformation du bioéthanol sur catalyseurs à base de nickel

RESUME :

Produire l'hydrogène, énergie propre, à partir de ressources renouvelables (biomasse) est un enjeu international d'actualité. Deux types de catalyseurs à base de Ni, CeNi_xO_y et $\text{Ni}_x\text{Mg}_2\text{AlO}_y$, sont étudiés pour la production de H_2 à partir de l'éthanol selon deux voies, le reformage vapeur et le reformage oxydant ($\text{H}_2\text{O}/\text{EtOH} = 3$). De nombreuses caractérisations physico-chimiques des catalyseurs permettent de proposer des sites actifs et un mécanisme réactionnel. Les nano-composés CeNi_xO_y et $\text{Ni}_x\text{Mg}_2\text{AlO}_y$ sont capables de stocker différentes espèces hydrogène, en particulier des espèces hydrures. Une fois traités *in situ* sous H_2 à température adéquate, ces oxydes mixtes deviennent des nano-oxyhydrures avec la présence d'espèces O^{2-} , de cations en interaction forte et de lacunes anioniques. Ces solides sont des catalyseurs très actifs et efficaces pour la transformation de l'éthanol. Le catalyseur $\text{Ni}_{12}\text{Mg}_2\text{AlO}_y$ permet d'obtenir un haut rendement en H_2 à basse température avec une production de $3 \text{ mol mol}_{\text{EtOH}}^{-1}$ à 300 °C sans formation de CO. Les catalyseurs $\text{Ni}_3\text{Mg}_2\text{AlO}_y$ et CeNi_1O_y permettent une forte production de H_2 avec $5 \text{ mol mol}_{\text{EtOH}}^{-1}$ à 650 °C . En présence de O_2 , les oxyhydrures $\text{CeNi}_x\text{H}_z\text{O}_y$ et $\text{Ni}_x\text{Mg}_2\text{AlH}_z\text{O}_y$ (30 mg) sont capables de convertir totalement l'éthanol en produisant 45 mol% de H_2 avec une température de four de seulement 60 °C , avec une remarquable stabilité pendant au moins 75 h. Cette réaction auto-entretenu à température ambiante est principalement due à l'énergie dégagée par la réaction exothermique entre les espèces hydrures stockées dans les catalyseurs avec O_2 ; les espèces hydrures sont continuellement formées à partir de l'éthanol permettant une réaction soutenue.

Soutenance le 28/06/2013 à 9h30 Heures

Lieu : Amphi CERLA