



Université Claude Bernard



DIPLÔME NATIONAL DE DOCTORAT

(Arrêté du 25 mai 2016)

Date de la soutenance : **21 juillet 2022**

Nom de famille et prénom de l'auteur : **Monsieur GRIMALDOS OSORIO Nicolas**

Titre de la thèse : *« Vers un traitement et une valorisation efficace des déchets plastiques : production d'hydrogène par électrolyse »*

Résumé



L'hydrogène est appelé à jouer un rôle important dans la transition énergétique en raison de sa capacité à agir comme vecteur énergétique sans émission de dioxyde de carbone. La production d'hydrogène décarboné est une préoccupation majeure afin de faire de son utilisation une solution durable. L'électrolyse de l'eau permet de générer de l'hydrogène pur et décarboné à partir des différentes sources intermittentes d'énergie renouvelable. Néanmoins, la demande d'énergie pour ce processus est élevée (> 1.23 V à température ambiante). L'électro-oxydation de molécules organiques pourrait pallier ce problème car leur potentiel thermodynamique d'oxydation est plus faible que celui de la réaction d'évolution de l'oxygène qui se déroule à l'anode des électrolyseurs. Les déchets organiques pourraient être une source durable de combustibles organiques si leur cinétique d'électro-oxydation est suffisamment performante.

Actuellement, plusieurs problèmes menacent la stabilité de la vie sur la planète et la survie de l'humanité est remise en question. Nous en sommes arrivés à devoir reconsidérer nos modèles de consommation et de production d'énergie et de biens. Pour cette raison, non seulement les sources durables d'énergie doivent être évaluées, mais aussi le devenir des déchets que nous produisons au quotidien. L'un des déchets les plus importants et nuisibles pour l'environnement est le plastique, qui peut également être considéré comme une source importante d'hydrogène en raison de sa nature organique. Tirer parti de ce type de déchets pour la production d' H_2 semble être une option intéressante, à condition de pouvoir surmonter les multiples limitations que représente cette application. L'objectif de ce travail est d'explorer en profondeur, pour la première fois, l'électrolyse de polymères à basse température pour la production d'hydrogène.

Ce travail de thèse propose une nouvelle approche pour comprendre l'électrolyse de déchets plastiques en utilisant deux polymères modèles : le polyméthacrylate de méthyle (PMMA) et le polyéthylène glycol (PEG). La composition différente de ces polymères, ainsi que l'utilisation de différentes stratégies expérimentales, nous ont permis d'établir une série de découvertes significatives sur la faisabilité de ce type de procédé ainsi que sur les verrous restant à lever. L'électro-oxydation des groupements esters latéraux du PMMA a été abordée selon trois stratégies différentes : (i) traitement de molécules modèles, (ii) solubilisation dans un solvant binaire, et (iii) attaque directe par des méthodes électrochimiques. D'autre part, l'électro-oxydation de solutions aqueuses de PEG nous a permis d'approfondir notre compréhension des phénomènes impliqués dans la rupture des liaisons C-O caractéristiques d'une large gamme de matériaux polymères.

Pour le traitement électrochimique du PMMA et du PEG, le transport des macromolécules dans la porosité des électrodes limite fortement les cinétiques d'électro-oxydation. Une série de techniques de caractérisation ont été utilisées pour déterminer la porosité et la nanostructure des différentes couches catalytiques mise en œuvre. Une morphologie plus poreuse du catalyseur Pt/Carbone associée à une meilleure dispersion des nanoparticules de Pt permet d'augmenter considérablement les performances de conversion électrochimique du PEG. Enfin, il

est proposé que la technologie à mettre en œuvre pour valoriser un déchet plastique dépende de la nature des liaisons chimiques les plus facilement électro-oxydables dans la chaîne principale des polymères.

Mots clés : Électro-oxydation des plastiques, polyméthacrylate de méthyle (PMMA), polyéthylène glycol (PEG), électrolyse, pile à membrane échangeuse de protons (PEM), électro-reformage de polymères, production d'hydrogène décarboné.