

# Avis de Soutenance

Monsieur Enrico ANTONUCCIO

Chimie

Soutiendra publiquement ses travaux de thèse intitulés

*Développement d'un procédé catalytique innovant couplant réaction- sorption pour la synthèse directe du méthanol à partir de CO<sub>2</sub> et H<sub>2</sub>*

dirigés par Monsieur Pascal FONGARLAND et Monsieur David EDOUARD

Soutenance prévue le **mardi 03 février 2026** à 9h00

Lieu : CPE Lyon, petit amphithéâtre au 3 rue Victor Grignard à Villeurbanne

## Composition du jury proposé

M. Pascal FONGARLAND	Université Lyon 1	Directeur de thèse
M. David EDOUARD	Université Lyon 1	Co-directeur de thèse
M. José Antonio DELGADO DOBLADEZ	Université Complutense de Madrid (Espagne)	Rapporteur
M. Andrei KHODAKOV	CNRS Lille	Rapporteur
Mme Grazia LEONZIO	Université de Cagliari (Italie)	Examinatrice
Mme Georgeta POSTOLE	Université Lyon 1	Examinatrice
Mme Anne-Cécile ROGER	Université de Strasbourg	Examinatrice
M. Alban CHAPPAZ	CEA Grenoble	Invité

**Mots-clés :** Catalyse, SERP, intensification de procédé, adsorption, méthanol, gaz de synthèse

## Résumé :

La transition énergétique mondiale appelle à repenser profondément la manière dont nous produisons et consommons l'énergie. Dans ce contexte, la récupération du dioxyde de carbone (CO<sub>2</sub>), considéré à la fois comme un déchet et une ressource, représente un levier stratégique pour la décarbonisation des carburants et des produits chimiques. Parmi les voies émergentes, les procédés dits "Power-to-Fuels" (P2F), qui convertissent le CO<sub>2</sub> en carburants liquides en utilisant de l'hydrogène dérivé de l'électrolyse de l'eau alimentée par des énergies renouvelables, apparaissent comme une alternative prometteuse. En particulier, la synthèse du méthanol (CH<sub>3</sub>OH), une molécule plateforme pour l'industrie chimique et un carburant liquide polyvalent, représente un domaine de recherche prioritaire. La réaction de synthèse du méthanol à partir du CO<sub>2</sub> et du H<sub>2</sub> ( $\text{CO}_2 + 3\text{H}_2 \rightleftharpoons \text{CH}_3\text{OH} + \text{H}_2\text{O}$ ,  $\Delta H^\circ = -49,8 \text{ kJ/mol}$ ) est exothermique et réversible. Elle est thermodynamiquement limitée, en particulier à basse pression, avec une conversion maximale d'environ 28% à 250°C et 50 bar dans des conditions stœchiométriques. En outre, elle entre en compétition avec la réaction endothermique RWGS (Reverse Water Gas Shift), qui conduit à la formation de CO au détriment de CH<sub>3</sub>OH. Les catalyseurs conventionnels (Cu/ZnO/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>), historiquement optimisés pour les

mélanges CO/H<sub>2</sub>, souffrent d'une stabilité limitée en présence d'eau et présentent une sélectivité modérée pour le méthanol, ainsi qu'une faible conversion par passage, nécessitant des taux de recyclage élevés. Ces limitations entravent l'industrialisation du processus basé sur le CO<sub>2</sub> renouvelable. Pour surmonter ces obstacles, plusieurs stratégies ont été envisagées. L'une des plus prometteuses consiste à déplacer l'équilibre de la réaction en éliminant sélectivement l'eau produite, conformément au principe de Le Chatelier. Des membranes perméables à l'eau ont été envisagées, mais elles présentent de nombreuses limitations : faible perméabilité en présence de H<sub>2</sub>, contraintes de fonctionnement sous haute pression et difficultés de mise en œuvre industrielle. Une autre voie, plus pragmatique, est basée sur l'utilisation de solides adsorbants d'eau intégrés au réacteur, dans ce que l'on appelle un procédé de réaction amélioré par sorption (SERP). Dans cette configuration, la capture cyclique de l'eau par un adsorbant (de type tamis moléculaire) améliore la conversion du CO<sub>2</sub> en méthanol. Bien que la faisabilité du concept SERP ait été démontrée par la modélisation de diverses réactions, son application expérimentale à la synthèse du méthanol est encore limitée. Une étude récente a démontré une augmentation significative du rendement en méthanol grâce à l'intégration d'un double lit adsorbant/catalyseur, mais au prix d'une baisse de sélectivité causée par la réaction RWGS. Ces résultats préliminaires soulignent la nécessité d'une analyse plus approfondie du couplage catalyse/adsorption dans des conditions transitoires et cycliques, représentatives d'un fonctionnement réel. Cette thèse s'inscrit dans cette dynamique, avec pour objectif l'étude et l'optimisation d'un procédé SERP pour la synthèse de méthanol à partir de CO<sub>2</sub> et H<sub>2</sub> renouvelables. Elle vise à explorer des paramètres clés (nature et stabilité de l'adsorbant, conditions opératoires, effets cycliques), à identifier les limitations cinétiques et thermodynamiques du procédé, et à proposer des stratégies innovantes pour améliorer les performances globales du système (conversion, sélectivité, stabilité). Ce travail contribue ainsi au développement des technologies Power-to-Fuels dans un contexte de transition énergétique durable. Ce travail comprend une étude expérimentale du processus dans un réacteur à l'échelle du laboratoire et une modélisation mathématique.