

Université de Paris
Laboratoire d'Electrochimie Moléculaire
Unité Mixte de Recherche Université/CNRS 7591

Soutenance de thèse d'Etienne Boutin
pour le titre de docteur de l'Université de Paris

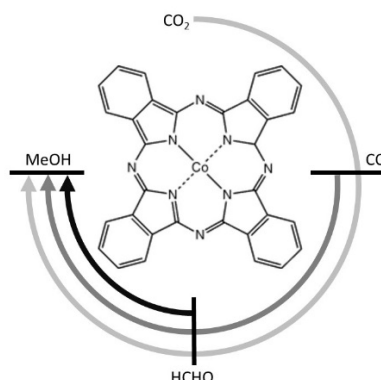
Thèse de doctorat préparée à l'Université de Paris
Présentée et soutenue publiquement le mercredi 30 octobre 2019 à 14h00
En salle 774 du bâtiment Lavoisier, 15 rue Jean-Antoine de Baïf, Paris 13

« Réduction électrochimique séquentielle du dioxyde de carbone en méthanol en milieu aqueux par la phtalocyanine de cobalt »

Résumé :

Le principe des carburants renouvelables repose sur la possibilité de transformer des énergies issues de sources renouvelables en énergie chimique pour un stockage pratique et durable. Dans ce travail de thèse, l'énergie renouvelable est de l'électricité et le dioxyde de carbone est utilisé en tant que vecteur énergétique pour être réduit par voie électrochimique en monoxyde de carbone ou en méthanol. Bien que la réduction électrochimique du dioxyde de carbone en monoxyde de carbone soit de mieux en mieux maîtrisée, la réduction en carburants liquides plus aisément manipulables comme par exemple le méthanol n'a été que très rarement décrite jusqu'à présent.

Nous avons montré qu'une molécule simple et commerciale, la phtalocyanine de cobalt, peut catalyser la réduction du CO₂ jusqu'au méthanol, en solvant aqueux, dans des conditions appropriées de pH, de potentiel et d'immobilisation à l'électrode. Le monoxyde de carbone et le formaldéhyde ont été identifiés comme intermédiaires du processus. Ils peuvent également être utilisés en tant que substrat de départ dans l'optique d'optimiser un procédé en cascade. Cette approche séquentielle permet également une meilleure compréhension des étapes limitantes ainsi que des réactions de désactivation. Ce travail constitue une première étape sur la voie d'une catalyse moléculaire de la réduction électrochimique du dioxyde de carbone en méthanol et ouvre des pistes nouvelles pour son optimisation.



PhD defense: Etienne Boutin

October 30th 2019

« Sequential electrochemical reduction of carbon dioxide into methanol in aqueous media with cobalt phthalocyanine »

Abstract:

The concept of renewable fuels lies on the possibility to store abundant renewable energies into chemical bonds for convenient and long lasting storage. In the present manuscript, renewable energy is approached under the form of electricity and carbon dioxide act as the energy vector when electrochemically reduced into fuels like carbon monoxide or methanol. Although carbon dioxide electrochemical reduction into carbon monoxide is getting better and better understood and controlled, further reduction into handy liquid fuels such as methanol has been barely reported. The present work shows that a simple and commercial molecule, cobalt phthalocyanine, is able to catalyze CO₂ reduction up to methanol, in water, under proper conditions of pH, potential and immobilization at a conductive electrode. Carbon monoxide and formaldehyde have been identified as key intermediates and can be used as starting material in order to optimize a cascade process. This sequential approach provides further information on the limiting steps and deactivation processes. This work constitutes a first step on the way to molecular catalysis for carbon dioxide electrochemical reduction to methanol and opens new paths for its optimization.

Composition of the jury:

Reviewers	Sylvie Chardon-Noblat Thibault Cantat	DR, Université Grenoble-Alpes Researcher, CEA Saclay
Examiners	Marc Fontecave Julio Lloret-Fillol	PR. Collège de France PR. ICIQ Tarragona
Supervisor	Marc Robert	PR, Université de Paris