Prix de thèse CODEGEPRA 2021

Modélisation et étude expérimentale de la production d'hydrogène solaire en photoréacteur

SUPPLIS Caroline

Docteur de l'Université Clermont Auvergne

Dans le cadre de la transition énergétique, la conversion de l'énergie solaire en carburants adaptés à la mobilité, semble être une solution prometteuse. L'un des premiers accessibles est sans nul doute l'hydrogène qui peut être obtenu par photodissociation de la molécule d'eau sous l'effet d'un rayonnement absorbé par un système photocatalytique. Ce mécanisme est connu sous le nom de photosynthèse artificielle. Le défi à relever est de taille car il faut trouver des systèmes chimiques efficaces et peu coûteux mais aussi concevoir, développer puis optimiser les procédés photoréactifs mettant en œuvre ces réactions, à terme à grande échelle. Ce dernier objectif ne peut être atteint dans un temps raisonnable que si l'on dispose de modèles prédictifs et génériques qui intègrent les phénomènes physiques décrivant les échelles sous-jacentes ayant un impact sur les observables du procédé.

Ce travail s'intéresse à la modélisation d'un photoréacteur limité et contrôlé par le transfert de rayonnement mettant en œuvre des systèmes photocatalytiques pour la production d'hydrogène solaire ainsi qu'à sa validation expérimentale. Le modèle commence par la détermination des propriétés optiques et radiatives du système photocatalytique étudié ce qui relève de l'électromagnétisme. Puis, la résolution de l'Équation du Transfert Radiatif, avec diffusion élastique ou inélastique selon le cas pratique, permet d'accéder à la vitesse volumétrique locale d'absorption du rayonnement au sein du photoréacteur. Enfin, la formulation d'une loi de couplage thermocinétique et une moyenne à l'échelle du réacteur permettent de déterminer les observables qui sont la vitesse volumétrique moyenne de production d'hydrogène et l'efficacité énergétique. Un banc optique de précision muni d'une sphère d'intégration permet de valider expérimentalement les propriétés radiatives. Un banc d'étude composé principalement de sources lumineuses LED et d'un photoréacteur plan étanche rempli d'un milieu photoréactif permet d'accéder aux observables expérimentales via une mesure de la pression dans le ciel gazeux du réacteur pour plusieurs valeurs de densité de flux incidente de photons et de concentrations en photocatalyseur. Le modèle est ensuite utilisé pour identifier sur les expériences un seul paramètre agrégeant les constantes cinétiques de la réaction. Deux systèmes photocatalytiques représentatifs de la diversité des systèmes étudiés dans la littérature ont été mis en œuvre : 1) un système moléculaire avec catalyseur de réduction des protons bio-inspiré en phase homogène et 2) un système à base de particules micrométriques de CdS (semiconducteurs) avec ou sans cocatalyseur MoS₂ en phase hétérogène.

Le modèle permet in fine d'étudier et d'optimiser différents paramètres d'ingénierie déterminant les performances cinétiques et énergétiques du procédé photoréactif, en fonction de sa géométrie et des conditions solaires de fonctionnement. La possibilité d'atteindre des gains d'efficacité énergétique très importants en développant des photoréacteurs à dilution interne du rayonnement est mise en évidence.