

THÈSE DE DOCTORAT

Préparée à l'Université de Lille par

Nour EL BABA

En vue de l'obtention du grade de Docteur en Énergétique, Thermique et Combustion

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

Chemical Flame Structure Analysis of Laminar Premixed Ammonia and Ammonia/Hydrogen Flames

Analyse de la Structure Chimique des Flamme d'Ammoniac et d'Ammoniac/Hydrogène Prémélangés Laminaires

Soutenance prévue le 5 décembre, 2025 devant la Commission d'Examen

Mara DE JOANNON	Directrice de Recherche, IRC-CNR Naples/Italy	Rapportrice
Olivier HERBINET	Maître de Conférences, HDR, LRGP, Université de Lorraine	Rapporteur
Corine LACOUR	Maîtresse de Conférences, CORIA, INSA Rouen	Examinatrice
Fabien HALTER	Professeur, ICARE, Université de Orléans	Examineur
Nathalie LAMOUREUX	Ingénieure de Recherche, HDR, PC2A, Université de Lille	Directrice de thèse
Pascale DESGROUX	Directrice de Recherche CNRS, PC2A, Université de Lille	Co-directrice de thèse
Philippe CAUNEAU	Coordinateur Scientifique, Ingénieur ADEME	Membre invité
Bernard LABEGORRE	Ingénieur de Recherche, Centre de Recherche Air Liquide	Membre invité

Résumé

Avec l'augmentation continue des émissions globales de carbone et le réchauffement climatique, plusieurs réglementations (ex. l'Accord de Paris) ont été adoptées à l'échelle mondiale afin d'atteindre la neutralité carbone d'ici 2030/2050. Pour atteindre ces objectifs, des réductions significatives des émissions de gaz à effet de serre sont nécessaires dans tous les secteurs, comme le transport, la production d'énergie et l'industrie. Parmi ces secteurs, le transport maritime est reconnu comme l'un des principaux contributeurs aux émissions mondiales de CO₂, représentant près de 3% du total des émissions anthropiques. En réponse, l'Organisation maritime internationale a mis en œuvre des réglementations visant à réduire l'intensité carbone du transport maritime. Pour atteindre ces objectifs, il est nécessaire d'adopter des carburants alternatifs à faible/zéro émission de carbone, pour remplacer les carburants marins fossiles conventionnels.

L'ammoniac (NH₃) est un candidat prometteur en raison de sa composition sans carbone, sa teneur élevée en hydrogène et ses technologies de production et de stockage relativement avancées. Bien que la combustion de NH₃ ne produise pas de CO₂, elle présente d'autres défis, notamment la formation d'oxydes d'azote (NO_x), qui sont de puissants polluants atmosphériques. Pour minimiser les émissions de NO_x, il est essentiel de bien comprendre la chimie de la combustion de l'ammoniac. Cela peut être réalisé à partir de modèles cinétiques chimiques validés par un large éventail de données expérimentales, comprenant à la fois des paramètres de combustion globaux (vitesse de combustion laminaire et temps de retard à l'allumage) et des mesures de spéciation obtenues dans des réacteurs, tels que des réacteurs à agitation par jet, des réacteurs à écoulement et des flammes stabilisées par brûleur (BSF).

Bien qu'il existe des ensembles de données détaillés pour plusieurs de ces configurations, il y a toujours un manque important de données BSF pour les mélanges NH₃ et NH₃/H₂ dans la littérature. Ces données sont cruciales, comme les BSF fournissent des informations précieuses sur les structures chimiques des flammes dans diverses conditions. La présente thèse vise à fournir un nouvel ensemble de données fiables sur les mesures de spéciation dans des flammes plates laminaires prémélangées NH₃/O₂/N₂ et NH₃/H₂/O₂/N₂ à basse pression (10 kPa). Dans le cadre de cette étude, les profils de température et d'espèces (NO, OH, NH et H₂O) ont été mesurés à l'aide de techniques de diagnostic laser in-situ (fluorescence induite par laser calibrée) et ex-situ (spectroscopie infrarouge à transformée de Fourier). Cinq flammes ont été étudiées, couvrant une gamme de rapports d'équivalence (0.87, 1.1, 1.3) et de mélanges NH₃/H₂ (0-10 %) afin d'explorer leur effet sur l'oxydation du NH₃ et la formation de NO_x.

Les profils expérimentaux ont été comparés à des simulations de modèles cinétiques disponibles dans la littérature. Une concordance satisfaisante entre les profils expérimentaux et simulés a été observée. À l'aide du modèle le plus performant (Mei_2021), une analyse détaillée des voies chimiques a été menée afin d'élucider les principales réactions contrôlant l'oxydation de l'ammoniac et la formation de NO, en plus de l'effet de l'ajout d'hydrogène. Les résultats présentés dans cette étude fournissent un ensemble de données qui peut être utilisé pour valider et affiner les mécanismes cinétiques chimiques de l'oxydation de l'ammoniac décrits dans la littérature. Ces modèles validés sont indispensables pour la conception et l'optimisation des systèmes de combustion d'ammoniac, permettant une utilisation sûre et efficace de l'ammoniac comme carburant marin et soutenant la transition vers un transport maritime neutre en carbone. Ce travail est une contribution au projet ANR-SIAC (ANR-22-CE50-0022), et est financé par le LabEx CaPPA (ANR-11-LABX-0005-01) et l'ADEME (Agence de la transition écologique).

Mots clés : Ammoniac, combustion, flammes laminaires prémélangées, diagnostic laser, fluorescence induite par laser, émissions de NO_x, modélisation cinétique