

Proposition de thèse au PC2A

Etude de la formation des oxydes d'azote lors de la combustion de l'ammoniac

Pour atteindre l'objectif de **neutralité carbone** en 2030/2050, comme annoncé par la France dans son plan d'investissement « France 2030 » et par l'Europe dans son "Green Deal", la demande en électricité va fortement augmenter. Les ressources énergétiques renouvelables comme l'éolien et le solaire sont considérées comme les principales ressources énergétiques d'avenir. Toutefois, en raison de leur intermittence et de la nécessité de garantir la sécurité de l'approvisionnement en électricité, le stockage de l'énergie fera partie intégrante du réseau électrique intelligent moderne. Une solution pour stocker l'excédent d'électricité est ce que l'on appelle communément les **électro-carburants** (e-carburants). Par exemple, l'e-carburant hydrogène (H_2) peut être produit par électrolyse de l'eau, puis stocker sous forme d'**ammoniac** (NH_3) par un procédé Haber-Bosch ou des méthodes électrochimiques. Contrairement à l'hydrogène, le transport et le stockage de l'ammoniac (qui est déjà utilisé dans le monde entier à des fins agricoles) est plus facile que celui de l'hydrogène. Le NH_3 peut être réduit en H_2 et N_2 (craquage). Il peut aussi être utilisé directement dans les dispositifs de combustion. Ainsi, l'utilisation de l'ammoniac est d'ores et déjà effective dans le **transport maritime** (DNV-GL, C-JOB, MAN, ...) qui doit répondre à l'obligation de l'organisation maritime internationale (OMI) de réduire les émissions de CO_2 de la marine marchande de 40% d'ici 2030 et 70% d'ici à 2050, comparé à 2008. Cependant, l'ammoniac a un très faible dégagement de chaleur par rapport aux combustibles fossiles, et sa combustion peut être affectée par l'apparition d'instabilités. Ces difficultés sont atténuées lorsque l'ammoniac est utilisé avec un co-combustible, de préférence de l'hydrogène afin d'atteindre l'objectif de zéro émission de carbone.

Si l'ammoniac a l'avantage d'offrir une combustion zero carbone, les **émissions attendues en NO_x , N_2O et NH_3 imbrûlés** doivent être maîtrisées. Le développement de nouveaux brûleurs, moteurs à combustion interne s'appuie sur des codes de simulation de combustion turbulente pour lesquelles il est important d'avoir une **bonne connaissance de la cinétique chimique de l'oxydation de l'ammoniac**. Il existe aujourd'hui plusieurs mécanismes cinétiques détaillés représentatifs de la combustion de l'ammoniac. La plupart a été validé par des mesures de paramètres globaux tels que les vitesses fondamentales de flamme et les délais d'allumage. Ces mécanismes doivent être consolidés à partir de données détaillées telles que l'évolution des espèces chimiques en fonction des conditions de combustion. Celles-ci peuvent être obtenues dans des **flammes de prémélange stabilisées à basse pression** qui présentent l'avantage d'un front de flamme bien décollé de la surface du brûleur.

Le travail de la thèse s'articulera autour de deux axes :

Construction d'une base de données expérimentales en flammes laminaires.

Différentes flammes de prémélange seront stabilisées à basse pression ; $NH_3/O_2/N_2$ avec différents rapport d'équivalence (NH_3/O_2), ainsi que des flammes où une faible fraction de NH_3 sera substituée par de l'hydrogène. Les techniques de spectroscopie laser (Laser Induced Fluorescence, LIF et absorption par Cavity RingDown Spectroscopy, CRDS) seront mises en place afin de mesurer dans ces flammes les variations des profils de concentration des espèces telles que : **OH, NH, NO, O et H**, ainsi que les profils de **température**. Ces techniques sont d'ores et déjà bien maîtrisées au laboratoire PC2A (<https://pro.univ-lille.fr/nathalie-lamoureux/publications/#descr>). Afin de compléter l'inventaire des espèces mesurables, la technique FTIR sera implantée afin d'obtenir les profils de concentration de NH_3 , H_2O , NO_2 et N_2O .

Développement d'un modèle cinétique détaillé.

Le travail de simulation cinétique sera effectué avec des codes de calculs (Chemkin-Pro, LogeSoft, Cantera) en utilisant dans un premier temps des modèles cinétiques de la littérature. Sur la base de la comparaison entre les prédictions et les expériences, le travail d'analyse cinétique permettra d'identifier les voies de formation des émissions polluantes NO_x et N_2O , ainsi que les conditions où les émissions de NH_3 imbrûlé sont critiques. A l'issue du travail, un modèle cinétique détaillé et validé pour la prédiction des émissions sera proposé.

Mots-clés : Combustion, Cinétique chimique, émissions NO_x , diagnostics de spectroscopie laser

Prérequis : Diplôme de Master ou Ecole d'ingénieur dans le domaine de la chimie, chimie-physique, et une forte aspiration à réaliser un travail expérimental sont nécessaires. Des connaissances dans le domaine de la combustion, des techniques laser seraient appréciées.

Ecole Doctorale : Sciences de la Matière, du Rayonnement et de l'Environnement (<https://edsmre.univ-lille.fr>)

Financement envisagé : demande en cours auprès du Labex CaPPA (WP1, <https://www.labex-cappa.fr/>), l'ADEME, l'école doctorale

Laboratoire d'accueil : PC2A <https://pc2a.univ-lille.fr/>

Direction de la thèse : Nathalie Lamoureux, Pascale Desgroux

Durée : 36 mois à partir d'Octobre 2022

Contact e-mail : Nathalie.lamoureux@univ-lille.fr, Pascale.desgroux@univ-lille.fr