

Offre de thèse au LRGP

Application de techniques de spectroscopie d'absorption de haute précision pour la quantification d'intermédiaires et de radicaux dans la chimie de la combustion de biocarburants

Contexte général

Face à l'urgence d'une réduction drastique des émissions de gaz à effet de serre, la compréhension de la chimie de l'auto-inflammation des hydrocarbures et des biocarburants est d'une importance capitale. Les innovations technologiques pour des moteurs à combustion interne (ICEs) plus économiques et écologiques, exigent une connaissance des réactions élémentaires régissant les processus d'oxydation de composés organiques, notamment à basse température (< 1000 K). La chimie de la combustion dans ce régime est contrôlée par la formation d'intermédiaires partiellement oxydés et de radicaux à l'origine de l'auto-inflammation dans les ICEs (1). Le dosage de ces espèces à l'état de traces est alors indispensable pour contraindre le développement de modèles cinétiques chimiques prédictifs et comprendre les mécanismes qui gouvernent le rendement et les émissions de polluants au sein des moteurs.

Pour y parvenir, le LRGP reproduit la combustion de bio(carburants) dans des conditions d'applications industrielles, au sein d'un réacteur parfaitement agité (RPA). Ce réacteur est actuellement couplé à une cavité optique de grande réflectivité via un capillaire pour des mesures de spectroscopie d'absorption par mesure du temps de déclin d'impulsion laser (CRDS) (2). Ce diagnostic optique permet ainsi d'analyser le gaz présent dans le RPA et d'identifier et quantifier plusieurs espèces réactives simultanément, même à l'état de traces. Des intermédiaires et des radicaux, marqueurs de la chimie de la combustion à basse température, telles que H_2O_2 , HONO ou encore HOO ont ainsi pu déjà être quantifiés lors de l'oxydation d'hydrocarbures (3-5). Cependant, ces analyses sont rendues difficiles par la complexité de la chimie de la combustion, avec l'absorption de nombreuses espèces et de la haute température.

Objectifs de la Thèse

Ce projet doctoral a pour objectif principal de réaliser un nouveau couplage entre le RPA et la cavité optique pour réaliser des mesures de CRDS hors équilibre thermodynamique, via une détente adiabatique du gaz au sein de la cavité (6). Ce dispositif permettra de s'affranchir des effets de paroi et de simplifier l'analyse spectrale pour doser pour la première fois des produits réactifs formés lors de la combustion de molécules oxygénées dérivées de la biomasse. Ce développement expérimental se fera en collaboration avec le prof. R. Georges et le Dr. L. Rutkowski du département de physique moléculaire de l'institut de physique de Rennes (IPR).

Des mesures de spectroscopie par peigne de fréquences optiques sont également envisagées à l'IPR dans le cadre de ce projet doctoral, afin d'utiliser un spectromètre, unique en France et qui est en train de voir le jour à l'IPR. La CRDS offre une haute sensibilité mais une couverture spectrale limitée tandis que les peignes de fréquence optiques peuvent être vus comme des milliers de lasers continus oscillant simultanément à une fréquence fixe. Leur application à sonder des environnements de combustion est récente et permettra dans le cadre de ce projet doctoral d'apporter des résultats complémentaires et cohérents à ceux obtenus par CRDS.

Profil

Nous recherchons un candidat qui est, bien entendu, très motivé qui sera impliqué dans un projet multidisciplinaire impliquant la cinétique chimique, la spectroscopie optique, la chimie de la combustion et de l'oxydation. Le candidat doit être titulaire d'un master ou d'un diplôme équivalent en physique moléculaire ou en chimie physique. Des connaissances en spectroscopie optique et/ou en chimie de la combustion seraient appréciées. Une expérience en recherche expérimentale, notamment l'utilisation de lasers et de techniques du vide, serait un avantage, mais une formation sur le tas sera fournie. Une bonne maîtrise de l'anglais est indispensable.

Références indicatives

- (1) Wang, Z., et al. (2019). Progress in Energy and Combustion Science, 73, 132-181.
- (2) Bahrini, C., et al. (2012). Journal of the American Chemical Society, 134(29), 11944-11947.
- (3) Rodriguez, A., et al. (2015). The Journal of Physical Chemistry A, 119(28), 7905-7923.
- (4) Rodriguez, A., et al. (2017). Proceedings of the Combustion Institute, 36(1), 333-342.
- (5) Marrodán, L., et al. (2019). Chemical Physics Letters, 719, 22-26.
- (6) Louviot, M., et al. (2015). Journal of Chemical Physics, 142(21), 214305.

Responsables scientifiques : Dr. Frédérique Battin-Leclerc, frederique.battin-leclerc@univ-lorraine.fr

Dr. Jérémy Bourgalais, jeremy.bourgalais@univ-lorraine.fr

Date de début de la thèse : 01 octobre 2021

Rémunération : 2 135,00 € brut mensuel