

Avis de Soutenance

Monsieur Fabian Esneider CANO ARDILA

Energétique

Soutiendra publiquement ses travaux de thèse intitulés

Etude expérimentale multi-échelle sur la chimie des nanoparticules par les techniques du tube à choc

dirigés par Monsieur Andrea COMANDINI

Ecole doctorale : Energie, Matériaux, Sciences de la Terre et de l'Univers - EMSTU

Unité de recherche : ICARE - Institut de Combustion, Aérothermique, Réactivité, Environnement

Soutenance prévue le **jeudi 22 juin 2023** à 15h00

Lieu : ICARE - CNRS 1C Avenue de la Recherche Scientifique 45071, Orléans

Salle : de conférence principale

Composition du jury proposé

M. Andrea COMANDINI	Université d'Orléans	Directeur de thèse
M. Brandon ROTAVERA	University of Georgia	Rapporteur
Mme Silvana DE IULIIS	National Research Council of Italy	Rapporteuse
Mme Nabihah CHAUMEIX	Université d'Orléans	Examinatrice
M. Robert Simon TRANTER	Argonne National Laboratory	Examineur
M. Laurent CATOIRE	ENSTA ParisTech	Examineur

Mots-clés : cinétique chimique, chimie des nanoparticules, tube à choc, diagnostic du synchrotron, extinction laser, chromatographie en phase gazeuse

Résumé :

Afin de développer des modèles cinétiques chimiques prédictifs pour la formation et la croissance de la suie qui peuvent être utilisés dans le cadre d'outils théoriques pour la conception de dispositifs de combustion de la prochaine génération, notre compréhension fondamentale des différents processus chimiques et physiques doit être affinée. Des efforts récents pour améliorer les techniques expérimentales conventionnelles ont permis de mesurer des hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP) relativement grands, précurseurs des particules de suie, et d'évaluer avec précision la chimie en phase solide. D'un autre côté, ces techniques présentent des limites qui ne peuvent être surmontées que par des solutions innovantes basées sur des diagnostics modernes. Le présent travail de thèse utilise trois tubes à chocs de différentes échelles couplés à des techniques de laboratoire et de synchrotron pour étudier expérimentalement la chimie des HAP et des particules de suie à partir de composants de combustibles et d'intermédiaires. En particulier, un nouveau tube à choc miniature à taux de répétition élevé (HRRST) est présenté pour la première fois. Les détails de la conception mécanique et du fonctionnement sont discutés, ainsi que la caractérisation de ses performances. En outre, le couplage entre le HRRST et les détecteurs de spectroscopie de coïncidence photoélectron/photoion à double imagerie (i2PEPICO) situés dans différentes installations synchrotron européennes (SOLEIL et SLS) est décrit. Les premiers résultats de la combinaison HRRST/i2PEPICO ont été obtenus à SOLEIL sur la pyrolyse de l'éthanol, le principal biocarburant actuel. Des expériences ont été réalisées pour tester la fonctionnalité de la technique, à différentes énergies de photons, dilutions de carburant et températures. Pour chaque ensemble de données expérimentales, des spectres de masse, des profils cinétiques temporels et, en outre, des spectres photoélectroniques en fonction de la masse (PESS), ont pu être obtenues, une caractéristique unique à i2PEPICO pour l'identification des espèces isomériques. Lors de la campagne suivante, la chimie des HAP issus de la pyrolyse du toluène, de l'éthylbenzène et du styrène a été étudiée avec plus de 300 000 expériences. Les résultats à partir de la décomposition thermique du toluène ont été analysés pour obtenir des informations détaillées grâce à l'identification des isomères des principales espèces de HAP, y compris le développement d'une nouvelle méthodologie analytique avec calculs de chimie quantique ab-initio. En outre, la détection de grands produits PAH jusqu'à m/z 426 a été possible, fournissant des informations qualitatives sur la croissance des grands précurseurs de suie. La comparaison entre les résultats expérimentaux pour les différents carburants a également été effectuée pour mettre en évidence l'influence de la structure du carburant sur la croissance des HAP. Dans le cadre du développement de la technique expérimentale, une nouvelle méthode d'étalonnage externe pour les études cinétiques quantitatives a également été formulée et mise au point. Les expériences synchrotron ont été complétées par des expériences conventionnelles à tube à choc pour mesurer

les produits stables jusqu'à quatre anneaux issus de la pyrolyse du styrène (profils d'espèces). Ces nouvelles données, ainsi que les résultats sur le toluène et l'éthylbenzène de la littérature, constituent le point de référence pour la validation du modèle, ainsi qu'une référence pour la comparaison avec les résultats du HRRST. Enfin, les données sur le temps d'extinction du tube à choc/laser de la pyrolyse de l'éthylbenzène et du styrène sont comparées aux données précédentes sur le toluène, et servent, avec les données sur les HAP, à clarifier les principaux mécanismes liés à la formation de suie à partir de ces combustibles, en vue de futurs développements de modèles cinétiques chimiques.