

Discipline : OPTICS AND LASERS,
PHYSICAL CHEMISTRY,
ATMOSPHERE

NOM/PRENOM DU CANDIDAT : SZABÓ EMESE

N° d'ordre : 40655

JURY :

Directeurs de Thèse : Dr. Christa Fittschen, Prof. Sándor Dóbe

Rapporteurs : Prof. Jean-François Doussin, Prof. Vilmos Gáspár

Membres : Prof. Patrice Coddeville, Dr. Alexandre Tomas, Prof. Tamás Kiss, Dr. Ákos Kukovecz

TITRE DE LA THESE :

CINETIQUE ET PHOTOCHEMIE ATMOSPHERIQUES DES COMPOSES ORGANIQUES
VOLATILS OXYGENES

RESUME :

Les composés organiques volatils oxygénés (COVOs) sont des espèces chimiques importantes de l'atmosphère. Ils incluent, par exemple, les alcools aliphatiques, les aldéhydes, les cétones et les acides organiques. Dans la troposphère libre, l'abondance des COVOs est plus importante que celle des hydrocarbures non méthaniques et leur réactivité globale avec OH est comparable avec celle du méthane. En revanche le méthane est présent à une concentration plus élevée. La dégradation des COVOs dans l'atmosphère s'effectue soit par la réaction avec le radical OH, soit par photolyse. La dégradation des COVOs produit des radicaux libres qui vont influencer la capacité oxydante de l'atmosphère, les concentrations en oxydes d'azote, en radical OH et en ozone troposphérique. L'ozone est le troisième plus important gaz à effet de serre dans l'atmosphère et est l'un des composants toxiques principaux des pollutions urbaines. Il intervient donc dans des problèmes environnementaux graves comme le réchauffement climatique et la dégradation de la qualité de l'air.

L'objectif de ce travail est de contribuer à la compréhension du comportement atmosphérique de quelques COVOs en mesurant leurs paramètres cinétiques et photochimiques afin de permettre la réalisation de modélisations informatiques et l'amélioration de la connaissance des mécanismes chimiques ayant lieu dans l'atmosphère. Les composés suivants ont été étudiés : l'acide acétique (d_0 -AA) et ses isotopes deutérés (($\text{CH}_3\text{C}(\text{O})\text{OD}$ (d_1 -AA), $\text{CD}_3\text{C}(\text{O})\text{OH}$ (d_3 -AA), $\text{CD}_3\text{C}(\text{O})\text{OD}$ (d_4 -AA)), la méthyl-éthyl-cétone (MEK), la 2,3-pentanedione (2,3PD), et le glycolaldéhyde (GA). Des études cinétiques et photochimiques ont été menées en utilisant des techniques expérimentales complémentaires.

Les constantes de vitesse de réaction avec les radicaux OH, les rendements quantiques et les constantes de vitesse de photolyse ont été déterminés. Les sections efficaces d'absorption de la 2,3 PD, en fonction de la longueur d'onde (λ) ont également été mesurées. La méthode des vitesses relatives (RR) a été utilisée pour déterminer les rapports entre les constantes de vitesse (d_0 -AA, d_1 -AA, d_3 -AA, d_4 -AA, et 2,3 PD) et la méthode "discharge flow" (DF) a été appliquée pour déterminer les constantes de vitesse absolue (MEK, 2,3 PD). Les constantes de vitesse de photolyse de la 2,3 PD ont été déterminées dans l'air, à 254 et 312 nm dans un réacteur en téflon à l'aide de lampes UV. Les rendements quantiques de photolyse de la 2,3 PD ont été mesurés (par la méthode de la photolyse laser pulsé (PLP)) en effectuant une photolyse laser (XeF exciplex ($\lambda = 351$ nm)/air) dans une cellule cylindrique en quartz. La constante de vitesse de photolyse du GA a été déterminée dans l'air à 312 nm.

Soutenance le 21 Novembre 2011 à 10 Heures
Lieu : Budapest, Hongrie