

Discipline : Sciences Physiques

NOM/PRENOM DU CANDIDAT : TOMAS Alexandre

N° d'ordre : 40751

JURY :

Garant de l'habilitation : Prof. P. Coddeville (EMD)

Rapporteurs : Dr. C. Fittschen (PC2A, Univ. Lille I), Dr. W. Mellouki (CNRS Orléans), Prof. E. Villenave (EPOC, Univ. Bordeaux I)

Membres : Dr. A. Chakir (GSMA, Univ. Reims)

TITRE :

**Contribution à l'étude des mécanismes d'oxydation atmosphérique de COV oxygénés.
Développement de nouveaux outils.**

RESUME :

Mes travaux de recherche s'inscrivent dans le cadre général de la compréhension des phénomènes de pollution atmosphérique au travers d'expériences réalisées en laboratoire. Ils comportent deux volets : le premier porte sur l'étude de la réactivité en phase gazeuse de composés organiques volatils oxygénés ; le second porte sur l'étude de la formation d'aérosols organiques secondaires (AOS) à partir de l'ozonolyse de composés aromatiques oxygénés. Au cours de ces travaux, de nouveaux outils expérimentaux originaux ont été développés afin d'étudier ces phénomènes sous des angles différents et novateurs, notamment (i) une chambre de simulation atmosphérique rigide couplée à un spectromètre de type cw-CRDS (Cavity Ring-Down Spectroscopy) pour la détection au sein du réacteur même d'espèces atmosphériques clés (HO_2) et (ii) un réacteur à écoulement laminaire avec injecteur mobile pour l'étude des premières étapes de formation des AOS, couplé, entre autres, à un spectromètre de masse à aérosol haute résolution.

Les études cinétiques et mécanistiques en phase gazeuse ont contribué à expliciter le mécanisme réactionnel d'oxydation par OH de deux espèces oxygénées majeures de l'atmosphère : l'acétone et l'acide acétique, en particulier en déterminant les sites d'attaque du radical OH sur la molécule oxygénée. Au travers d'études cinétiques de dégradation de composés aromatiques, nous avons ensuite montré que, contrairement à ce qui était habituellement observé, l'ozonolyse des composés aromatiques oxygénés de type catéchols était importante d'un point de vue atmosphérique. La formation d'aérosols organiques secondaires dans ces réactions a été mise en évidence et quantifiée dans une série d'expériences réalisées dans des laboratoires français et européens.

Les derniers travaux sont liés au développement des dispositifs expérimentaux déjà mentionnés. La nouvelle chambre de simulation atmosphérique a permis l'étude du mécanisme de la réaction d'oxydation par OH du méthyle nitrite, ce dernier étant couramment utilisé comme précurseur de radicaux OH dans les chambres de simulation. La formation d'acide nitreux a ainsi été mise en évidence pour la première fois. Dans une deuxième étude, les cinétiques de disparition du radical HO_2 ont été observées pour la première fois, à notre connaissance, dans un réacteur de ce type et nous avons montré que la diffusion aux parois pouvait être significative dans des expériences en chambre de simulation à basse pression et ainsi modifier les mécanismes réactionnels étudiés. Enfin, le développement du réacteur à écoulement laminaire a été validé par l'étude des cinétiques et des produits d'ozonolyse de pentènes, étude dans laquelle un produit de réaction non oxydé a été observé pour la première fois. Cette validation permet d'envisager l'étude de réactions plus complexes produisant des AOS.

Soutenance le 6 décembre 2011 à 14 Heures

Lieu : Cerla, Univ. Lille I