

DOCTORAT DE L'UNIVERSITE DE LILLE 1 SCIENCES ET TECHNOLOGIES

N° d'ordre : 41907

NOM/PRENOM DU CANDIDAT : FARAGO / Eszter

Ecole doctorale : Sciences de la Matière, du Rayonnement et de l'Environnement

Laboratoire : PC2A

Discipline : Optique, Laser, Physico-Chimie, Atmosphère

Si cotutelle, établissement partenaire : Université Szeged

JURY :

- Directeur(s) de thèse : Christa FITTSCHEN, Béla VISKOLCZ
- Rapporteurs : Jean-Christophe LOISON, György LENDVAY
- Examineurs : Zoltan KONYA

SOUTENANCE : 10 Décembre 2015 - 11h, Université SZEGED

TITRE DE LA THESE :

Etude expérimentale et théorique de la réactivité des radicaux CH_3O_2 et $\text{C}_2\text{H}_5\text{O}_2$

RESUME :

Les radicaux peroxy sont des intermédiaires clés dans la chimie atmosphérique. Leurs schémas de réaction sont différentes selon si elles sont formées dans un environnement pollué (concentration de NO_x élevé) ou dans un environnement propre (concentration de NO_x faible). Dans le cadre de cette thèse la réaction entre les radicaux peroxy et les radicaux OH a été étudié afin de mieux comprendre le schéma de réaction dans des environnements propres (au-dessus des océans ou la forêt tropicale). Des études cinétiques ont été effectuées à l'aide de photolyse laser couplée à la détection d'espèces radicalaires par fluorescence induite par laser (LIF, pour OH), et cavity ring down spectroscopy (cw-CRDS, pour radicaux peroxy). Les mécanismes de réaction de ces réactions ont été déterminés par des méthodes de chimie quantique, comme Gaussian-4 (G4), modèle complet de consigne de base (CBS) et CHEAT1.

Deux systèmes ont été étudiés avec les techniques mentionnées ci-dessus: $\text{CH}_3\text{O}_2 + \text{OH}$ et $\text{C}_2\text{H}_5\text{O}_2 + \text{OH}$. Les constantes de vitesse et mécanismes de réaction pour les deux réactions ont été déterminées pour la première fois. En outre, la technique cw-CRDS a été appliquée pour mesurer le spectre d'absorption de CH_3O_2 et du précurseur CH_3I dans la gamme de proche infrarouge. Les sections efficaces d'absorption ont été également déterminées à quelques longueurs d'onde sélectionnées pour le radical CH_3O_2 . En outre, un test a été effectué pour assurer que la méthode de chimie quantum choisi est appropriée pour ce type de réactions radical-radical.