

Avis de Soutenance

Monsieur Pengcheng WANG

Sciences de l'Univers

Soutiendra publiquement ses travaux de thèse intitulés

Caractérisation de la réactivité des polluants atmosphériques multigénérationnels en phase gazeuse

dirigés par Monsieur Max MCGILLEN et Monsieur Abdelwahid MELLOUKI

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

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

Soutenance prévue le **vendredi 28 novembre 2025** à 14h00

Lieu : Avenue de la Recherche Scientifique CS 50060, 45071 Orléans Cedex 2

Salle : de Conférences

Composition du jury proposé

M. Max MCGILLEN	Université d'Orléans	Directeur de thèse
M. Abdelwahid MELLOUKI	University Mohammed VI Polytechnic	Co-directeur de thèse
M. Alexandre KUKUI	Laboratoire de Physique et de Chimie de l'Environnement et de l'Espace	Examineur
Mme Bénédicte PICQUET-VARRAULT	Université Paris-Est Créteil	Rapporteuse
M. Alexandre TOMAS	Institut Mines-Télécom Nord Europe	Rapporteur
Mme Barbara ERVENS	Université Clermont Auvergne	Examinatrice
Mme Cécile COEUR	Université du Littoral Côte d'Opale	Examinatrice
M. Lin DU	Shandong University	Examineur

Mots-clés : cinétique, chambre de simulation, chimie, atmosphère, réactivité,

Résumé :

La chimie atmosphérique cherche à comprendre comment ces espèces traces réactives se forment, se transforment et disparaissent, et comment elles influencent la qualité de l'air, le climat et la santé humaine. Au cœur de cette chimie se trouvent les oxydants atmosphériques tels que les radicaux hydroxyle (OH) et nitrate (NO₃), l'ozone (O₃) et les atomes de chlore (Cl), qui réagissent avec les composés organiques volatils (COV). Au fil du temps, un composé émis peut subir des dizaines de réactions, produisant une cascade de nouvelles molécules aux propriétés différentes. En caractérisant la vitesse de ces réactions, les produits formés et leur comportement physico-chimique, on comprend mieux leur impact sur la pollution de l'air et le climat. Un exemple emblématique de ces processus d'oxydation multigénérationnelle concerne les gaz fluorés. Parmi eux, les hydrofluorooléfines (HFO) et les hydrochlorofluorooléfines (HCFO) sont apparues comme des alternatives de synthèse de nouvelle génération. Les HFO et HCFO se décomposent facilement dans l'atmosphère pour former des composés carbonylés fluorés, tels que le trifluoroacétaldéhyde (CF₃CHO), très photolabile, avec des rendements pouvant atteindre ~100 %. Une question cruciale, pour garantir la sûreté des gaz industriels de substitution, est de savoir si la décomposition atmosphérique du CF₃CHO produit du CHF₃ (fluoroforme, HFC-23), une substance interdite et l'un des gaz à effet de serre les plus puissants. Dans mes travaux, j'ai étudié ce processus en combinant des expériences de laboratoire précises avec une analyse spectroscopique avancée. J'ai synthétisé le CF₃CHO, puis l'ai exposé à un rayonnement ultraviolet (UV) dans des conditions simulant le rayonnement solaire troposphérique et stratosphérique. Grâce à un système de détection infrarouge sensible, j'ai suivi en temps réel la formation de CHF₃ et quantifié son rendement photolytique à des longueurs d'onde pertinentes pour l'atmosphère. Sous un autre angle, une classe importante de composés naturellement émis dans l'atmosphère est constituée des alcènes. Ceux-ci réagissent rapidement avec l'ozone, formant une classe puissante d'oxydants appelés intermédiaires de Criegee (CI). Bien que transitoires, les CI jouent un rôle crucial dans la chimie atmosphérique, car ils réagissent avec de nombreux composés traces coexistants, tels que les acides organiques, les alcools, les aldéhydes, le dioxyde de soufre et la vapeur d'eau. Ces réactions bimoléculaires peuvent conduire à la formation de produits peu volatils contribuant à la formation d'aérosols

organiques secondaires et influençant la capacité oxydante de l'atmosphère. Cependant, ils sont difficiles à étudier en raison de leur durée de vie très courte et de la difficulté à les générer sélectivement. Pour surmonter cet obstacle, j'ai développé une technique en chambre, utilisant des alcènes simples comme l'éthylène afin de produire un seul type de CI. En appliquant une méthode de cinétique relative, j'ai mesuré la réactivité de ce CI avec différentes cibles moléculaires. Cela m'a permis d'élargir la base de données cinétiques des réactions des CI dans des conditions réalistes. Les réactions des CI génèrent également des produits chimiquement riches. Ces composés ne sont pas commercialement disponibles en raison de leur instabilité et de leur caractère potentiellement explosif. J'ai synthétisé ces esters hydroperoxydes directement en phase gazeuse via l'ozonolyse contrôlée de précurseurs alcéniques en présence de molécules piégeuses (des acides carboxyliques). J'ai ensuite étudié leur transformation en phase gazeuse, en me concentrant sur leur réactivité avec les radicaux hydroxyles (OH) et les CI. En résumé, mes travaux contribuent à une meilleure compréhension de la façon dont des espèces intermédiaires de courte durée de vie et des composés fonctionnalisés peuvent influencer l'évolution à long terme de la pollution atmosphérique et des espèces actives sur le climat.