

# Avis de Soutenance

Madame Qian ZHANG

Chimie

Soutiendra publiquement ses travaux de thèse intitulés

*La réaction multiphasique du SO<sub>2</sub> à l'interface air-eau*

dirigés par Monsieur Christian GEORGE

Soutenance prévue le **vendredi 21 novembre 2025** à 10h00

Lieu : Université Lyon 1, Bâtiment Charles Darwin D - salle Fontannes au 43 bd du 11 novembre à Villeurbanne

## Composition du jury proposé

M. Christian GEORGE	CNRS Lyon	Directeur de thèse
M. Marcello BRIGANTE	Université Clermont Auvergne	Rapporteur
Mme Coralie SCHOEMAECKER	CNRS Lille	Rapporteuse
M. Alain MIFFRE	Université Lyon 1	Examineur
Mme Liselotte TINEL	IMT Nord Europe Douai	Examinatrice

**Mots-clés :** Réaction photosensibilisée, chimie multiphasique, SO<sub>2</sub>,

## Résumé :

Dans l'atmosphère, les aérosols et les particules catalysent des réactions multiphasiques. Le processus d'interaction de ces réactions implique des régions interfaciales, où se produisent des réactions distinctes de celles observées en phase gazeuse ou en vrac. Étant donné que l'interface de la microlouche de surface océanique contient des composés tensioactifs, et que les aérosols émis par la combustion de biomasse servent de précurseurs aux réactions interfaciales, ces espèces contribuent à la formation des aérosols organiques secondaires (SOA). Par ailleurs, un nombre croissant d'études suggère que la réaction multiphasique du SO<sub>2</sub> joue un rôle dans la voie de conversion du soufre inorganique, bien que certaines formations demeurent encore mal comprises. Cette thèse présente des résultats issus d'études en laboratoire portant sur la réaction multiphasique du SO<sub>2</sub> à l'interface air-eau, via des processus photosensibilisés et des réactions spontanées, en explorant la cinétique d'absorption, les mécanismes chimiques et la caractérisation des produits formés. Nous présentons d'abord la chimie photosensibilisée liée à l'absorption du SO<sub>2</sub> et à la formation des produits. Des analyses cinétiques basées sur un tube à flux vertical à paroi mouillée (WWFT) ont été utilisées pour étudier les réactions multiphasiques du SO<sub>2</sub> sur des films photosensibilisants, à la fois dans l'obscurité et sous irradiation. Sous irradiation, une augmentation significative de l'absorption du SO<sub>2</sub> a été observée sur les films organiques, cette absorption s'intensifiant avec l'augmentation de l'intensité lumineuse, probablement en raison de l'implication d'états triplets excités. La comparaison entre les conditions d'obscurité et d'irradiation pour la formation des produits actiniques peut également s'expliquer par une chimie de photosensibilisation induite par les états triplets excités, entraînant une conversion du soufre inorganique en soufre

organique. Nous avons exploré une voie potentielle de formation d'organosulfates via la recombinaison radicalaire. Outre la chimie de photosensibilisation directe du  $\text{SO}_2$ , nous avons examiné l'influence des surfactants à travers des réactions photochimiques entre le  $\text{SO}_2$  et des photosensibilisateurs tels que la vanilline (VL), l'acide 4-benzoylbenzoïque (4-BBA) et l'acide humique (HA). Nous avons choisi le 1-octanol comme surfactant, qui a induit une absorption du  $\text{SO}_2$  2 à 3 ordres de grandeur plus élevée comparée aux films organiques seuls, ainsi qu'une formation abondante de composés organosulfurés. L'effet surfactant inclut à la fois un effet de concentration des photosensibilisateurs et un effet de solubilité du  $\text{SO}_2$ . Cet effet de solubilité est lié au transfert de masse, bien qu'il soit rarement pris en compte dans d'autres études ; il est attribué aux propriétés spécifiques de la molécule de  $\text{SO}_2$ , notamment à l'interaction donneur-accepteur entre le  $\text{SO}_2$  et le solvant organique. L'analyse de la composition des produits révèle que l'introduction du 1-octanol peut réagir avec les radicaux pour former des produits à chaîne courte, plutôt que de participer directement à la formation des composés organosulfurés. Nos résultats indiquent que l'effet de concentration est un facteur clé dans la chimie interfaciale photosensibilisée des aérosols, entre la phase gazeuse et l'eau liquide en vrac. Nous avons également étudié la formation spontanée d' $\text{I}_2$  interfacial sur des films de NaI à pH acide (pH = 2), en utilisant des expériences d'absorption de  $\text{SO}_2$  pour caractériser la production d' $\text{I}_2$ , basée sur la réaction de Bunsen entre le  $\text{SO}_2$  et l' $\text{I}_2$  en présence ou en absence d'oxygène ( $\text{O}_2$ ). La réactivité du  $\text{SO}_2$  avec l' $\text{I}_2$  interfacial a été quantifiée à environ  $10^{-6}$ . L'iodure présente une adsorption de surface marquée, et l' $\text{O}_2$  joue un rôle essentiel dans la génération d' $\text{I}_2$ . De plus, la formation spontanée d' $\text{I}_2$  interfacial sur les films de NaI en conditions acides ne montre aucune sensibilité au pH.