

DIPLÔME NATIONAL DE DOCTORAT

(Arrêté du 25 mai 2016)

Date de la soutenance : **15 novembre 2024**

Nom de famille et prénom de l'auteur : **Madame Emma Amalie PETERSEN-SONN**

Titre de la thèse : Chimie de l'état triplet troposphérique dans les aérosols aqueux

Résumé



Récemment, les états triplets des espèces organiques ont attiré l'attention en tant qu'oxydants potentiellement importants dans les environnements aqueux, en concurrence avec l'oxygène singulet et les radicaux OH. Tout d'abord, la thèse étudie des extraits d'échantillons d'aérosols, en hiver et en été, pour leurs concentrations à l'état d'équilibre et les rendements quantiques des trois principaux oxydants : les états triplets, l'oxygène singulet et les radicaux OH. Nos résultats montrent que si l'on considère à la fois les concentrations à l'état d'équilibre et les constantes de vitesse du second ordre pour les oxydants avec différentes classes d'espèces organiques, les états triplets seront dans la plupart des cas l'oxydant dominant. La thèse présente également les résultats préliminaires d'une étude en collaboration qui examine les méthodes de normalisation des mesures du rendement quantique de l'oxygène singulet. L'étude suivante de cette thèse a porté sur l'examen de la composition massique de l'un des échantillons d'aérosol. Cet échantillon a été analysé par spectrométrie de masse à haute résolution avant et après son irradiation. Les principaux résultats montrent qu'au cours du vieillissement, des espèces plus importantes se sont formées. Un substitut, la vanilline, a été choisi pour étudier les voies de dégradation des espèces d'aérosols et a montré un grand nombre de produits après l'irradiation. L'effet de l'irradiation de la vanilline à 6 degré C a montré une augmentation de la quantité d'espèces avec des nombres de carbone plus importants, tels que les espèces C23. Les espèces C23 ont été attribuées à des trimères de vanilline. Enfin, la production de radicaux OH à partir d'espèces à l'état triplet a été étudiée en phase aqueuse. La formation d'OH à partir de sources connues de radicaux OH, NO₃- et H₂O₂, a été comparée à celle de la vanilline et du 4-hydroxybenzaldéhyde, qui ont été utilisés comme indicateurs des espèces organiques présentes dans les aérosols aqueux (et les nuages/brouillards). Une étude

bibliographique des concentrations des sources d'OH dans les aérosols et les nuages/brouillards a été compilée et utilisée en combinaison avec les taux de formation d'OH. A partir de ces estimations, il est clair que les états triplets pourraient potentiellement avoir des taux de formation d'OH qui sont de 1 à 2 ordres de grandeur plus élevés que NO₃- et H₂O₂. Dans l'ensemble, cette thèse fournit des résultats qui illustrent l'importance des états triplets dans les aérosols aqueux, et le fait qu'ils peuvent être sous-estimés en tant qu'oxydants pour les espèces organiques et en tant que sources de radicaux OH.

Mots-clés : chimie,atmosphere,OH,triplets,