

DOCTORAT DE L'UNIVERSITE DE LILLE 1 SCIENCES ET TECHNOLOGIES

N° d'ordre :41904

NOM/PRENOM DU CANDIDAT : BLOCQUET MARION

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

Laboratoire : PC2A

Discipline : Optique, Laser, Physico-Chimie, Atmosphère

Si cotutelle, établissement partenaire :

JURY :

- Directeur(s) de thèse : Christa Fittschen
- Rapporteurs : Véronique Daële, Jean-François Doussin
- Examineurs : Coralie Schoemaeker, Frédérique Battin-Leclerc, Sébastien Dusanter

SOUTENANCE : (DATE, HEURE ET LIEU) 26/11/2015, 14h Bâtiment CERLA

TITRE DE LA THESE :

ETUDE RADICALAIRE DE LA CHIMIE DE L'ATMOSPHERE, DE L'AIR INTERIEUR ET DE LA COMBUSTION « BASSE TEMPÉRATURE » PAR DÉTECTION DE OH ET HO₂ PAR TECHNIQUE OPTIQUE DE FLUORESCENCE INDUITE PAR LASER - FAGE (FLUORESCENCE ASSAY BY GAS EXPANSION)

RESUME :

Les radicaux OH et HO₂ sont des espèces réactives majeures dans de nombreux environnements et les processus chimiques dans lesquels ils sont impliqués sont multiples et complexes. Dans l'atmosphère, OH est le principal oxydant le jour et HO₂ lui est fortement lié. OH a également été mesuré récemment en air intérieur, ce qui met en évidence la présence d'une réactivité rapide, potentielle source de polluants secondaires, dans les bâtiments. En combustion, OH et HO₂ sont également au cœur de la réactivité. Afin de mieux comprendre les processus chimiques impliquant ces radicaux et par conséquent la formation des polluants dans ces domaines d'application, le dispositif mobile FAGE (Fluorescence Assay by Gas Expansion) a été utilisé lors de cette thèse. Cette technique permet de caractériser OH et HO₂ en combinant des mesures de concentration et de temps de vie (réactivité de OH) avec une haute sensibilité et sélectivité ainsi qu'une grande résolution temporelle. Elle est basée sur la détection des radicaux OH et HO₂ (après conversion en OH par ajout de NO) par Fluorescence Induite par Laser (LIF) haute cadence après expansion gazeuse et adaptée pour des mesures de réactivité de OH par couplage avec une cellule de photolyse (pump-probe FAGE). Une campagne de mesure, réalisée sur le campus de Lille 1 a permis d'étudier la variation de la réactivité en milieu urbain. Deux campagnes de mesure ont été réalisées en air intérieur pour la mesure de la réactivité de OH et la quantification de OH et HO₂. Le dispositif FAGE a également été utilisé pour la première fois pour l'étude de la chimie de la combustion dans un réacteur parfaitement agité (Jet-Stirred Reactor : JSR).

DOCTORAT DE L'UNIVERSITE DE LILLE 1 SCIENCES ET TECHNOLOGIES

N° order :41904

NAME/SURNAME OF THE CANDIDATE : BLOCQUET MARION

Doctoral School : Sciences de la Matière, du Rayonnement et de l'Environnement

Laboratory : PC2A

Discipline : Optique, Laser, Physico-Chimie, Atmosphère

In case of co-tutorial thesis, provide the partner institution :

THESIS COMMITTEE :

- Thesis supervisor(s) : Christa Fittschen
- Referees : Véronique Daële, Jean-François Doussin
- Examiners : Coralie Schoemaeker, Frédérique Battin-Leclerc, Sébastien Dusanter

DEFENSE : (DATE, TIME AND PLACE) : 26/11/2015, 14h Bâtiment CERLA

TITLE OF THE THESIS :

RADICAL STUDY OF ATMOSPHERIC CHEMISTRY, INDOOR AIR AND "LOW TEMPERATURE" COMBUSTION, BY OH AND HO₂ DETECTION BY OPTICAL TECHNIQUE OF LASER INDUCED FLUORESCENCE - FAGE (FLUORESCENCE ASSAY BY GAS EXPANSION)

ABSTRACT :

OH and HO₂ radicals are major reactive species in many environments and the chemical processes in which they are involved are numerous and complex. In the atmosphere, OH is the main oxidant during the day and HO₂ is strongly linked to it. OH has also been measured recently in indoor air; highlighting the presence of a rapid reactivity and therefore a potential source of secondary pollutants in buildings. In combustion, OH and HO₂ are also important for the reactivity. To better understand chemical processes involving these radicals and consequently the formation of pollutants in these fields of application, the mobile device FAGE (Fluorescence Assay by Gas Expansion) has been used in this thesis. This technique allows characterizing OH and HO₂ by combining concentration and lifetime (OH reactivity) measurements with a high sensitivity, selectivity and temporal resolution. It is based on the detection of OH and HO₂ radicals by Laser Induced Fluorescence (LIF) at a high repetition after gas expansion. It is adapted for OH reactivity measurements by the coupling of a photolysis cell (pump-probe FAGE). A field campaign, performed on the Lille 1 campus, allowed the study of the variation of the reactivity in an urban environment. Two field campaigns were performed in indoor air to both measure OH reactivity and quantify OH and HO₂. The FAGE device was also used for the first time in the field of combustion chemistry, by coupling it to a Jet-Stirred Reactor (JSR).

