

Avis de Soutenance

Guillaume SALQUE-MORETON

Soutiendra publiquement ses travaux de thèse intitulés

Etude d'aérosol atmosphérique par spectrométrie de masse à très haute résolution.

Soutenance prévue le **mardi 11 mars 2014** à 10h00

Salle Lliboutry, Laboratoire de Glaciologie et Géophysique de l'environnement (LGGE°, 54 rue Molière, 38402 Saint-Martin d'Hères salle Lliboutry

Composition du jury proposé

M. Didier VOISIN	Université Joseph Fourier	Directeur de thèse
M. Philippe SCHMIDT-KOPPLIN	Université de Munich	Rapporteur
M. Abdelwahid MELLOUKI	CNRS	Rapporteur
M. Julian GARCIA	Université Joseph Fourier	Examineur
M. Roland THISSEN	CNRS	Examineur
Mme Marie CAMREDON	Université Paris-Est Créteil	Examineur
M. Jean-luc JAFFREZO	CNRS	Invité
Mme Anne MONOD	Université de Provence	Invité

Mots-clés : spectrométrie de masse à très haute résolution, Orbitrap, Aerosol Organique Secondaire, HULIS, Composition chimique de l'aérosol urbain, Photochimie en phase aqueuse

Résumé :

L'aérosol atmosphérique a des effets sur le changement climatique global et un impact sanitaire non-négligeables. Dans l'aérosol atmosphérique terrestre, les composés organiques représentent une fraction importante. Du fait de l'extrême complexité de cette fraction organique et des processus dynamiques qui l'animent, une fraction non négligeable de celle-ci n'est pas clairement identifiée à ce jour malgré des techniques d'analyses toujours plus nombreuses. Dans cette thèse, nous avons voulu explorer la richesse d'information fournie par une technique innovante : la spectrométrie de masse à haute résolution (HRMS). La haute résolution du LTQ-Orbitrap fournit une extrême précision sur la masse des molécules analysées et permet d'en identifier les formules brutes. Tout d'abord, nous avons utilisé cette nouvelle méthode de caractérisation afin d'élucider en laboratoire des mécanismes de production de l'aérosol se déroulant en phase aqueuse. Associée à une caractérisation par RMN, la HRMS nous permet d'identifier des voies de fabrication de composés de faible poids moléculaires (acides carboxyliques, aldéhydes, cétone) ainsi que des composés à haut poids moléculaire : les oligomères formés se transforment en HULIS au cours de leur vieillissement. Le fait que la méthacroléine (MACR) et la méthyl-vinyl-cétone (MVK), les deux principaux produits d'oxydation de l'isoprène, forment des AOS en phase aqueuse avait été précédemment montré. Ce travail montre que les précurseurs des AOS sont différents selon l'isomère et que les séries d'oligomères formées atteignent 1400 Da.. L'étude HRMS des produits

permet de proposer un mécanisme radicalaire d'oligomérisation de la MVK. L'analyse HRMS des produits de la MACR montre qu'en plus du mécanisme valable pour la MVK, la réactivité de la MACR engendre co-polymérisation et production d'Hulis. Une signature HRMS des Hulis a été mise en évidence. Ensuite, nous avons utilisé les méthodes de traitement de données HRMS pour tenter de les appliquer à l'identification d'aérosol ambiant. Les composés organiques représentent la fraction majeure des particules de l'aérosol atmosphérique ; une grande partie reste mal identifiée. Une compréhension détaillée des sources et des procédés de transformations est nécessaire. L'investigation de la composition chimique des particules de matière fine et ultrafine peut être apportée par HRMS. L'ESI-Orbitrap apporte une description moléculaire qui détermine les propriétés chimiques et physiques de l'aérosol organique. Les particules ont été échantillonnées selon leur taille respective. Les prélèvements ont été faits à Grenoble en été et en hiver. Une comparaison saisonnière permet d'identifier des signatures chimiques différentes. Enfin, une intercomparaison est établie avec des échantillons d'une troisième campagne prélevés en proximité routière: MOCOPO. Mots clés : Aérosol Organique, Spectrométrie de masse à haute-résolution, Phase aqueuse.