

- "Réactivité des particules de suie émises par les avions", Equipe SPACE, UTINAM, UMR 6213.

Cette thématique de recherche recoupe deux axes principaux :

- le premier axe concerne l'étude de l'oxydation de petites particules carbonées et son influence sur leur comportement hydrophile/hydrophobe. Les particules carbonées sont modélisées par de petits clusters de quelques dizaines d'atomes de carbone, dont nous étudions la réactivité vis-à-vis des oxydants principaux de l'atmosphère à l'aide de calculs de chimie quantique. Puis, nous caractérisons l'adsorption de petits agrégats d'eau sur ces structures oxydées, par des méthodes de type ONIOM, afin de comprendre les mécanismes qui peuvent conduire à une forte affinité entre les suies émises par les avions et les molécules d'eau environnantes. Ces calculs nous servent également à ajuster les paramètres de modèles classiques pour représenter les interactions eau/suie, afin de les utiliser par la suite dans des calculs de dynamique moléculaire permettant d'aborder des systèmes de plus grande taille.

- Le second axe est dédié à la caractérisation, à l'échelle moléculaire, de l'interaction entre les suies et les molécules d'hydrocarbures aromatiques polycycliques (HAP). Une approche tout quantique d'un système tel que HAP + particule de suie s'avérant trop lourde numériquement, nous avons mis au point une méthode simplifiée (*la méthode SE-D*), reposant sur une contribution semi-empirique (AM1 ou PM3) pour représenter la partie électrostatique des interactions, à laquelle nous avons adjoint une partie dispersion indispensable pour obtenir une description réaliste des interactions HAP/suie. Cette méthode est utilisée pour étudier de manière comparative la réactivité de quelques HAP vis-à-vis du radical OH, en phase adsorbée et en phase gaz.

L'ensemble de ce travail est réalisé en collaboration avec M.T. et J.C. Rayez (ISM - Bordeaux). Il a donné lieu à la soutenance de deux thèses (G. Hantal, thèse soutenue en décembre 2010, et M. Oubal, thèse soutenue en décembre 2011). Il sert actuellement de cadre au travail de C. Garcia Fernandez, étudiant cubain en co-tutelle internationale (thèse démarrée en septembre 2012).

Voici la liste des publications réalisées sur ce sujet depuis 2008 :

1. A Grand Canonical Monte Carlo simulation of the aggregation of water molecules on chemically modified soot particles..

F. Moulin, S. Picaud, P.N.M. Hoang, L.B. Partay, P. Jedlovszky, *Comp. Lett.* **4**, 105-116 (2008).

2. Adsorption of water molecules on oxidized graphite surfaces: A molecular dynamics study of the competition between OH and COOH sites.

S. Picaud, B. Collignon, P.N.M. Hoang, and J.C. Rayez, *Phys. Chem. Chem. Phys.* **10**, 6998-7009 (2008).

3. A new semi-empirical model for the oxidation of PAHs physisorbed on soot. I. Application to the reaction $C_6H_6 + OH$.

G. Hantal, S. Picaud, B. Collignon, P.N.M. Hoang, M.T. Rayez, and J.C. Rayez, *Mol. Sim.* **35**, 1130-1135 (2009).

4. A theoretical characterization of the interaction of water with oxidized carbonaceous clusters.

M. Oubal, S. Picaud, M.T. Rayez, and J.C. Rayez, *Carbon* **48**, 1570-1579 (2010).

5. Water adsorption isotherms on porous onion-like carbonaceous particles. Simulations with the Grand Canonical Monte Carlo method.

G. Hantal, S. Picaud, P.N.M. Hoang, V.P. Voloshin, N.N. Medvedev, and P. Jedlovszky, *J. Chem. Phys.* **133**, 144702:1-12 (2010).

6. Interaction of water molecules with defective carbonaceous clusters : an ab initio study.

M. Oubal, S. Picaud, M.T. Rayez, and J.C. Rayez, *Surf. Sci.* **604**, 1666-1673 (2010).

7. Water adsorption on oxidized single atomic vacancies present at the surface of small carbonaceous nanoparticles modeling soot.

M. Oubal, S. Picaud, M.T. Rayez, and J.C. Rayez, *Chem. Phys. Chem.* **11**, 4088-4096 (2010).

8. A new semi-empirical model for the oxidation of polycyclic aromatic hydrocarbon (PAH) molecules physisorbed on soot. II. Application to the reaction PAH+OH for a series of large PAH molecules.

M. Oubal, G. Hantal, S. Picaud, P.N.M. Hoang, D. Liotard, M.T. Rayez, J.C. Rayez, and E. Villenave, *Comput. Theor. Chem.* **965**, 259-267 (2011).

9. Structure and reactivity of carbon multivacancies in graphene

M. Oubal, S. Picaud, M.T. Rayez and J.C. Rayez, *Comput. Theor. Chem.* **990**, 159-166 (2012).
