

**CONTRACTS DOCTORAUX 2021**

Titre du projet de thèse : Modélisation à l'échelle moléculaire de la réactivité hétérogène à la surface de particules d'intérêt atmosphérique

Directeur de thèse : Céline Toubin (celine.toubin@univ-lille.fr)

Co-directeur et co-encadrants (le cas échéant) : Denis Duflot (denis.duflot@univ-lille.fr)

Laboratoire(s) d'accueil : PhLAM/ Equipe PCMT

Programme(s) éventuels de rattachement (CPER, Labex/Equipex, ANR, Europe, LAI, ...) : Labex CAPPA, CPER Climense

Cotutelle (O/N) : N

Tout autre information utile :

---

**Résumé du projet de thèse :**

Les aérosols jouent un rôle fondamental dans la chimie atmosphérique, régulant le climat tel que l'ont montré les rapports successifs de l'IPCC. Toutefois, leur impact sur le climat et la santé reste encore entaché de grandes incertitudes. Pour lever ces incertitudes, la modélisation moléculaire permet notamment d'apporter des éléments de compréhension sur les processus fondamentaux mis en jeu, inaccessible par les techniques expérimentales. Parmi ces processus figurent la capture et la réactivité hétérogène d'espèces gazeuses par ces particules. La description précise des mécanismes réactionnels représente un défi majeur pour la modélisation à l'échelle moléculaire car il faut prendre en compte différents facteurs tels que l'humidité, les effets de température et la nature de la particule (composition chimique, mélange, viscosité). Une seconde difficulté est de parvenir à établir une comparaison directe avec les expériences compte tenu des écarts d'échelle en termes de temps et de taille.

Cette thèse vise à mettre au point et établir une méthodologie mélangeant approches classique et quantique (QM/MM statique et dynamique moléculaire *ab Initio*) pour traiter les processus réactifs en prenant en compte explicitement les particules, qui seront générées par dynamique moléculaire classique. Plusieurs systèmes et réactions seront envisagés afin de compléter les études expérimentales menées dans le cadre de collaborations.

**Mots-clés : physico-chimie, aérosols, modélisation moléculaire, réactivité hétérogène**

### PhD GRANTS 2021

PhD project title: Toward a molecular level understanding of heterogeneous processes at atmospheric aerosol surfaces

PhD Supervisor: Céline Toubin (celine.toubin@univ-lille.fr)

Co-supervisor(s) (if any): Denis Duflot (denis.duflot@univ-lille.fr)

Laboratory/ies: PhLAM/ PCMT group

Research program(s) concerned (CPER, Labex/Equipex, ANR, Europe, LAI ...):

Labex CAPPa, CPER Climense

Cotutelle (Y/N): N

Any other relevant information:

---

#### PhD project summary:

Atmospheric aerosol and ice particles are strongly implicated in atmospheric chemistry, in climate and human health according to the IPCC report. Due to their variety and complexity, there still remains large uncertainties in assessments of the human impact on changes to environment. One of the major challenges for modelling uptake and heterogeneous reactions at the molecular level is being able to describe precisely both the reaction mechanism if any and the explicit influence of the environment taking into account temperature, coverage and humidity effects. A second difficulty is to establish a direct comparison with experimental data in particular due to time and size scale discrepancies.

This thesis aims at testing and establishing a methodology based on a mixed quantum and classical approach (static QM/MM and ab Initio Molecular Dynamics) to treat explicit heterogeneous reactions at aerosol surfaces, that will be generated through classical molecular dynamics simulations. Several systems will be modelled in complement to experimental studies carried out by collaborating teams.

**Keywords : physical chemistry, aerosols, molecular modelling, heterogenous reactivity**