



ARCUS E2D2

Sujet de Thèse ARCUS E2D2 2017

sélection de la thématique : (cochez une ou plusieurs cases)

Sp1 « Ville, Aménagement et Développement Durable »:

Sp2 « Modélisation et Infrastructure pour l'Environnement »:

Sp3 « Expertise et Traitement en Environnement »:

Sp4 « Calcul Scientifique » :

Partenaire proposant le Sujet :

Laboratoire d'accueil : *Laboratoire de Physique des Lasers, Atomes et Molécules (PhLAM) - UMR CNRS 8523, Groupe «Physico-Chimie Moléculaire Théorique», Université Lille 1*
(<http://www.phlam.univ-lille1.fr/spip.php?article120>)

Responsable(s) : Céline Toubin, Florent Réal.

Coll. Michel Masella (DSV, CEA Saclay)

Université d'accueil : Université de Lille

Partenaire potentiel pour la collaboration et la co-tutelle :

- Si le partenaire n'est pas défini, veuillez sélectionner les partenaires potentiels :

FRANCE LIBAN MAROC PALESTINE

- Si un partenaire est déjà identifié, veuillez compléter les informations suivantes (si disponible) :

Laboratoire d'accueil :

Responsable(s) :

Université d'accueil :

Mots clés : Dynamique classique, glace, calculs *ab initio*, modélisation.

Points particuliers : (précisez les points particuliers que le candidat devra considérer, langue, compétences)

Développements et applications dans un environnement Linux, langages de programmation Fortran90 (éventuellement C++ et Python)).



TITRE DE LA THESE

ETUDE THEORIQUE DE LA SELECTIVITE DES IONS A LA SURFACE DE PARTICULES D'INTERET
ATMOSPHERIQUE

SUJET DE LA THESE

Dans le contexte des changements environnementaux, la compréhension des échanges air-glace (banquise, nuage...) est indispensable pour prédire l'évolution de la composition chimique de l'atmosphère, pour interpréter les mesures in situ (carottages) et pour raffiner les modèles globaux.

Malgré les nombreuses avancées, des questions restent ouvertes : Quelle est l'influence des adsorbats et des ions sur la structure de la surface ? Quelles sont les mécanismes responsables de la production de nitrate et de radicaux halogénés, très réactifs ? ^(1,2)

En complément des approches expérimentales, la modélisation à l'échelle moléculaire apporte justement des informations sur ces processus fondamentaux. En particulier, compte-tenu de la taille des systèmes, la dynamique moléculaire classique constitue une méthode de choix pour accéder à des informations structurales et dynamiques des états précurseurs à la réactivité. Toutefois, une limitation de cette approche réside dans le traitement exact des différentes interactions entre les espèces constitutives du système au-delà des termes de Coulomb, en particulier les effets de polarisation, non négligeables en présence d'espèces chargées. Il est en particulier crucial d'avoir un modèle polarisable pour l'eau qui puisse reproduire son diagramme de phase. Les modèles disponibles actuellement tendent à sous-estimer le point de fusion de la glace ce qui introduit de sérieux artefacts. L'objectif premier de cette thèse sera donc de modifier un modèle d'interaction pour l'eau, c'est-à-dire définir un champ de force (forme analytique décrivant les différentes interactions) polarisable valide pour la glace cristalline et applicable à des systèmes étendus. Cette étape de développement nécessitera d'utiliser en parallèle des méthodes de chimie quantique de haut niveau sur de petits agrégats servant de données de base à la paramétrisation. Une fois le(s) potentiel(s) polarisable(s) validé(s) pour la glace et pour les ions en interaction avec cette dernière, des simulations de dynamique moléculaire classique seront conduites de façon à décrire explicitement l'interface en prenant en compte les effets de température et de concentration en ions.

Au final, les résultats théoriques issus de cette thèse contribueront, en appui de résultats expérimentaux et de mesures, à une meilleure description de la répartition des ions dans les nuages ou le manteau neigeux et les conséquences au niveau de la réactivité.

L'étudiant sera amené à travailler avec les différents membres de l'équipe Physico Chimie Moléculaire Théorique du laboratoire PhLAM, mais aussi avec nos collaborateurs notamment du CEA.

Investie dans la modélisation théorique de processus physico-chimiques mettant en jeu des atomes, des ions ou des molécules, isolés, en présence d'un agrégat, adsorbés sur une surface ou dans un environnement solide ou en solution, l'équipe PCMT utilise et développe des méthodes de Chimie Quantique (Structure Électronique et Dynamique Directe Ab Initio) et de Dynamique Moléculaire classique et Dynamique Quantique à haute dimension. L'activité du groupe émerge à plusieurs thématiques avec, pour chacune d'elles, un volet développement méthodologique et numérique important.

Le sujet de thèse proposé s'inscrit dans la thématique : *Modélisation pour la Physico-Chimie de l'atmosphère*, soutenue par le Labex CAPPA et le CPER Climibio.

Compétences requises pour le candidat:

Connaissances en chimie physique, chimie théorique et/ou en physique fondamentale avec un intérêt pour les problématiques atmosphériques. Motivation pour un travail théorique impliquant modélisation et simulation numérique et éventuellement pour des développements méthodologiques. Compétences de bases en informatique et en programmation (Au cours de la thèse : Développements et applications dans un environnement Linux, langages de programmation Fortran90 (éventuellement C++ et Python)).

(1) Bartels-Rausch et al, Atmos. Chem. Phys. 14, 1587–1633, 2014. doi:10.5194/acp-14-1587-2014

(2) Abbatt et al, Atmos. Chem. Phys., 12, 6237–6271, 2012. doi:10.5194/acp-12-6237-2012