



Université Claude Bernard



## DIPLÔME NATIONAL DE DOCTORAT

(Arrêté du 25 mai 2016)

Date de la soutenance : **10 juillet 2017**

Nom de famille et prénom de l'auteur : **Emmanuel GUILLAUD**

Titre de la thèse : « Etude multiéchelles expérimentale et numérique de la structure et de la dynamique de l'eau confinée dans les argiles »



### RÉSUMÉ DE THÈSE :

Les argiles sont des minéraux complexes présentant une porosité multi-échelles et une remarquable capacité à gonfler sous atmosphère humide. Ces matériaux ont de nombreuses applications dans des domaines variés tels que la catalyse, la gestion des déchets ou l'industrie du bâtiment. Néanmoins, bien qu'étudiées depuis des décennies, les propriétés de l'eau confinée et des interactions particulières entre les molécules d'eau et le minéral ne sont toujours pas totalement comprises. Cela est dû notamment à la complexité de l'eau elle-même, souvent considérée comme un liquide anormal. Le but de ce travail est, en utilisant principalement des simulations moléculaires et la spectroscopie vibrationnelle, de comprendre la structure et la dynamique de l'eau confinée dans les argiles, et plus précisément les points communs et les différences par rapport à l'eau non confinée. Cela inclut des mesures à température ambiante et à basse température, puisque la plupart des propriétés anormales de l'eau sont plus marquées à basse température, c'est-à-dire dans le régime surfondu.

Afin d'évaluer précisément les points forts et les points faibles des modèles numériques utilisés pour décrire l'eau confinée dans les argiles et de comprendre l'origine des propriétés structurales et dynamiques de cette dernière, une large part du travail a été consacrée à l'analyse de systèmes plus simples que l'on peut considérer comme les briques constitutives d'une argile : l'eau pure non confinée, l'eau à la surface d'un solide, et l'eau salée. A ce titre, on a étudié les propriétés viscoélastiques de l'eau du régime surfondu jusqu'à des

températures proches du point d'ébullition par dynamique moléculaire à l'aide de champs de force empiriques. On a également analysé l'évolution des propriétés de frottement de l'eau sur une surface solide prototypique sur la même gamme de températures, et on a étudié la précision des approches ab initio (en utilisant la théorie de la fonctionnelle de la densité) ainsi que des modèles empiriques de sels.

Dans une seconde partie du travail, ces résultats ont été confrontés aux propriétés de l'eau confinée dans les argiles à basse température et à température ambiante. Ces propriétés ont été étudiées expérimentalement et numériquement. Le travail expérimental a principalement consisté en une étude approfondie de mesures d'absorption dans l'infrarouge moyen et lointain à différentes températures et taux d'humidité, tandis que le travail numérique a principalement consisté en l'utilisation de simulations de dynamiques moléculaires en champ de force. En particulier, on s'est intéressé à l'existence de transitions de phase de l'eau confinée sous l'effet de la température ou du confinement. SR jonctionnelle et le SR longitudinale et ouvrent de nouvelles perspectives thérapeutiques.