



energie atomique • énergies alternatives



## Soutenance de thèse

### ETUDE DE LA DYNAMIQUE D'IONS HYDROPHOBES EN SOLUTIONS AQUEUSES PAR DIFFUSION DE NEUTRONS ET PAR SIMULATION NUMÉRIQUE

**M. Debsindhu BHOWMIK**

le 30 Septembre 2011 à 14h00

Amphi Joliot, ESPCI, 10 rue Vauquelin, 75005, Paris



Les cations de tétraalkylammonium symétrique (TAA) sont des systèmes modèles pour étudier le comportement des ions hydrophobes. Dans ce travail, des solutions aqueuses concentrées de divers TAABr sont étudiées pour obtenir des informations sur la structure microscopique et la dynamique à la fois des ions et du solvant, par une combinaison de la diffusion des neutrons et de simulations par dynamique moléculaire (MD). Il est démontré que les TAA cations ne s'agrègent pas, même en concentration élevée et sont pénétrables à la fois par des anions et des molécules du solvant. L'orientation moyenne de l'eau de solvation est tangentielle autour de la surface des cations, ce qui est différent de l'orientation observée avec les cations simples, comme Na<sup>+</sup>. L'utilisation conjointe des expériences de diffusion de neutron quasi-élastique (technique de l'Echo de Spin et de Temps-de-Vol) et de la simulation MD permet de séparer la dynamique contenue dans le signal cohérent et incohérent en diffusion de neutrons. Le premier est identifié avec le mouvement du centre-de-masse (CoM) du cation TAA, le deuxième, provenant des atomes individuels d'H du cation, est une combinaison complexe de ce mouvement de CoM et les mouvements des H à l'intérieur du cation. Le MD permet également d'identifier l'échelle caractéristique de la rotation globale du cation TAA. Le ralentissement des molécules de l'eau dans ces solutions est visible, mais moins important que prévu.

Mots clés: bromure de tétraalkylammonium, diffusion des neutrons, écho de spin de neutron, temps de vol, simulation microscopique, signal cohérent et incohérent, dynamique, translation, l'eau

---

## STUDY OF THE DYNAMICS OF HYDROPHOBIC IONS IN AQUEOUS SOLUTIONS BY NEUTRON SCATTERING AND NUMERICAL SIMULATION

Symmetric tetraalkylammonium (TAA) cations are model systems to study the behaviour of hydrophobic ions. In this work, concentrated aqueous solutions of TAA bromides are investigated to obtain information on microscopic structure and dynamics of both the ions and solvent, by a combination of Neutron Scattering and Molecular Dynamics (MD) simulations. It is shown that TAA cations do not aggregate in aqueous solution even at high concentrations, they are penetrable for both the Br anions and solvent water molecules. The average water orientation is tangential around the cation surface, which contrasts with the simple alkali cations, such as Na<sup>+</sup>. Using quasi-elastic neutron scattering (Neutron Spin Echo and Time of Flight techniques) and with the aid of MD simulations, the dynamics in the coherent and incoherent neutron scattering signal is decoupled. The former is identified with the center-of-mass (CoM) motion of a single TAA cation, while the latter, based on the signal of individual H atoms of the TAA cation, is a complex combination of the CoM motion and H movements internal to the cation. MD helps to identify the timescale of the global cation rotation. The slowing down of water dynamics in these solutions relative to bulk water is also made evident, though the effect is lower than might be expected.

Key Words: tetraalkylammonium bromides, neutron scattering, Neutron Spin Echo, Time of Flight, microscopic simulation, coherent and incoherent signal, dynamics, translation, water