Pour citer cet article : Auteurs (2018), Titre, Congrès Français sur les Aérosols 2018, Paris

ETUDE À L'ÉCHELLE MOLÉCULAIRE DU RÔLE DES NOYAUX DE CONDENSATION SUR LA FORMATION DES NUAGES

D. Vardanega, B. Radola et S. Picaud

Institut UTINAM, Univ. Bourgogne Franche-Comté, 25000 Besançon, France

TITLE

Molecular study of the role of condensation nuclei on the formation of clouds

ABSTRACT

Organic material is ubiquitous in the Earth's atmosphere, coming from both natural sources and anthropogenic activities. The interactions between water and organic molecules are thus currently investigated in the context of atmospheric chemistry because liquid droplets and ice particles may scavenge some of these organic molecules from the atmosphere, thus modifying the atmospheric composition and chemistry. Organic matter represents an important fraction of the fine aerosol mass which comes also from sea salt, mineral dust, black carbon, sulfates, and nitrate ammonium whose relative abundance depends on, e.g., location, time, and meteorological conditions. Atmospheric aerosols play a central role on current atmospheric research, because aerosol particles have a direct effect on climate not only by scattering and absorbing solar radiation but also by scattering, absorbing, and emitting thermal radiation.

For all these reasons, a better understanding of the interactions between water and aerosols is urgent, in order to describe in detail the capacity of aerosols to serve as condensation nuclei for water, either in a liquid or a solid state. Given the complexity of aerosol chemistry, the modeling of systems by numerical simulations is an interesting way to describe the interactions between water molecules and aerosols at the molecular level.

RESUME

Les interactions entre l'eau et les molécules organiques sont à l'origine de nombreuses recherches en raison de leur importance particulière en biologie et en technologie. Plus récemment, ces interactions ont été étudiées dans le cadre de la chimie de l'atmosphère, car il a été reconnu que des particules de glace peuvent piéger certaines molécules organiques dans l'atmosphère, ce qui modifie à la fois la composition et la chimie de l'atmosphère.

Un autre domaine d'intérêt porte sur l'interaction des molécules d'eau avec des aérosols organiques. En effet, une grande quantité de composés organiques volatils (COV) sont émis dans l'atmosphère chaque jour, à partir de sources naturelles et anthropiques, qui sont ensuite impliqués dans la formation d'aérosols.

Ces aérosols jouent un rôle central non seulement sur la pollution de l'air, mais aussi sur l'évolution du climat. En effet, ils ont un effet direct sur le climat par diffusion de la lumière, ce qui conduit à un forçage radiatif négatif (refroidissement), et un effet indirect en agissant sur la condensation de nuages ou de noyaux de glace, modifiant ainsi les propriétés des nuages.

Pour toutes ces raisons, une meilleure compréhension des interactions entre l'eau et les aérosols est urgente, visant à décrire en détail la capacité des aérosols à servir de noyaux de condensation pour l'eau, que ce soit dans un état liquide ou solide. Devant la complexité de la chimie des aérosols, la modélisation des systèmes par des simulations numériques est un moyen intéressant pour décrire les interactions entre les molécules d'eau et les aérosols à l'échelle moléculaire.

KEYWORDS: organic aerosol, adsorption, water, molecular simulations/ **MOTS-CLÉS :** aérosol organique, adsorption, eau, simulation moléculaire.

1. INTRODUCTION

L'atmosphère terrestre est un réacteur photo-chimique complexe dont les modes de fonctionnement sont loin d'être tous connus. Ainsi, aux nombreuses incertitudes qui demeurent sur la chimie de la phase gazeuse dans l'atmosphère, les études les plus récentes montrent qu'il faut ajouter l'impact de la phase particulaire qui semble jouer un rôle important dans la physico-chimie de l'atmosphère et dans l'évolution du climat terrestre.

Cette phase particulaire est composée de différents aérosols minéraux (poussières volcaniques, poussières désertiques par exemple), de particules carbonées issues des phénomènes de combustion (suies), et d'aérosols organiques constitués par des molécules organiques complexes ayant une grande facilité à condenser.

Ces aérosols sont la plupart du temps des aérosols organiques secondaires (AOS) car ils sont formés dans l'atmosphère par la conversion gaz/particule de composés organiques semi-volatils résultant eux-mêmes de la réaction de composés organiques volatils avec les différents oxydants de l'atmosphère.

Cependant, si les processus de formation de ces AOS sont connus dans leurs grandes lignes, la communauté scientifique manque toutefois de données pour décrire en détails les phénomènes physico-chimiques multiphasiques qui leur sont associés et prévoir avec plus de précision leurs impacts climatiques et sanitaires.

DOI : 10.25576/ASFERA-CFA2018-12586

En effet, les aérosols impactent fortement notre climat, soit directement par leurs propriétés radiatives intrinsèques, soit indirectement parce qu'ils jouent le rôle de noyaux de condensation pour la formation des gouttelettes d'eau ou des particules de glace dans les nuages de la haute troposphère.
Les caractéristiques physico-chimiques de ces noyaux de condensation constituent un des paramètres clés gouvernant l'impact de ces nuages sur le climat.

Dans ce contexte, l'étude détaillée des voies de formation et du devenir atmosphérique de ces aérosols organiques est un enjeu majeur, tout comme la connaissance de leur interaction avec les molécules d'eau environnantes, dans la mesure où celle-ci peut conduire à la formation de cristaux de glace qui modifient considérablement la chimie de l'atmosphère.

L'objectif de cet article est donc d'aider à la compréhension du rôle des AOS dans la troposphère, en particulier en caractérisant de manière plus précise l'interaction d'AOS avec des molécules d'eau environnantes.

2. METHODES

Des simulations de dynamique moléculaire ont été menées afin d'étudier les interactions entre des aérosols organiques et des molécules d'eau. Les aérosols organiques ont été modélisé par de petits agrégats d'acide carboxylique tel que l'acide formique, l'acide acétique, l'acide propionique ou l'acide butyrique (Vardanega, 2014; Radola, 2015).

L'énergie potentielle d'interaction a été calculée comme étant la somme d'un potentiel de dispersion-répulsion et d'une contribution électrostatique. Le potentiel de dispersion-répulsion utilisé est celui de Lennard-Jones. Les interactions de Coulomb et de dispersion-répulsion sont tronquées à un rayon de coupure de 1,4 nm. Les interactions électrostatiques de longue portée sont traitées par la méthode Particle Mesh Ewald (PME). Les simulations ont été menées pour des températures comprises entre 150 et 275K.

3. CONCLUSIONS

Les résultats ont mis en évidence, dans la plage de températures étudiées, deux situations pour les agrégats d'acide-eau, correspondant soit à l'adsorption d'eau sur de grands grains d'acides à très basses températures, soit à la formation de gouttelettes démixées constituées de molécules acides adsorbées à la surface des gouttelettes d'eau à des températures plus élevées et des concentrations en eau élevées. À faible teneur en eau et à haute température, seul un mélange partiel entre l'eau et les molécules d'acide est observé, en particulier à la surface de l'agrégat. À des températures modérées, on obtient une situation intermédiaire qui se caractérise par une déliquescence partielle de l'agrégat acide.

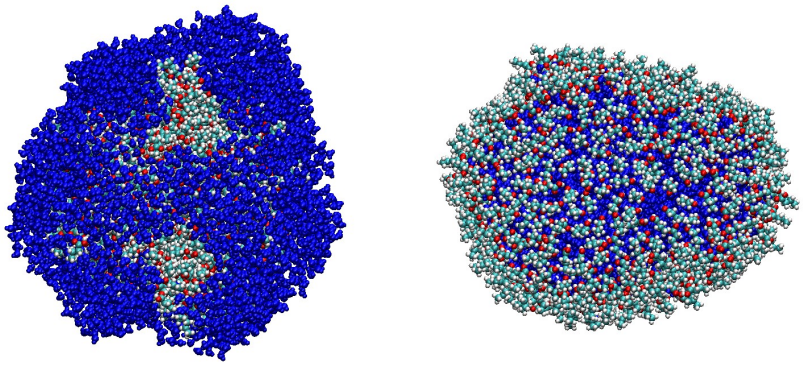

Figure 1. Configurations d'équilibre d'un agrégat composé d'acide butyrique et d'eau à 150K (gauche) et 250K (droite), pour un ratio eau:acide de 6 :1. Les atomes O, C et H de l'acide butyrique sont représentés en rouge, bleu clair et blanc alors que les molécules d'eau sont en bleu pour plus de clarté.

Les calculs ont été effectués sur le calculateur du Mésocentre de calcul de Franche-Comté.

Radola, B., Vardanega, D., Jedlovszky, P. and Picaud, S. (2015) J. Phys. Chem. B, 119, 15662.
Vardanega, D. and Picaud, S. (2014) J. Chem. Phys., 141, 104701.

DOI : 10.25576/ASFERA-CFA2018-12586