

RESUME

Les nuages sont des éléments essentiels de notre atmosphère qui agissent à la fois sur le bilan radiatif terrestre et sur sa capacité oxydante en transformant chimiquement une grande variété d'espèces solubles. Ces nuages se forment par la condensation de vapeur d'eau sur des particules d'aérosols, appelés noyaux de condensation. La fraction soluble de ces particules conditionne l'hygroscopie des particules et détermine ainsi la taille des gouttes du nuage. Ce paramètre est déterminant pour définir les propriétés optiques des nuages. De plus, la dissolution des particules est la source primaire en phase aqueuse de différentes espèces dont les métaux de transition. Ces éléments sont impliqués dans divers processus d'oxydoréduction et en particuliers dans les processus responsables de la formation des pluies acides. Il est par conséquent très important de connaître, de manière fiable, les processus aboutissant à la solubilisation de l'aérosol dans les gouttes d'eau nuageuses. Le principal objectif de ce travail a donc été de développer un outil expérimental puis une approche de modélisation afin de comprendre et de simuler la dissolution des particules piégées dans une phase nuageuse liquide.

Dans un premier temps, ce travail a consisté à mettre en oeuvre un dispositif expérimental, comportant un réacteur de dissolution en circuit ouvert, qui permet de suivre la cinétique de dissolution dans des conditions proches des conditions nuageuses.

Cet outil expérimental a ensuite été utilisé pour une caractérisation systématique des différents facteurs d'influence recensés jusqu'alors sur la dissolution, c'est à dire le pH, la nature des aérosols, leur degré d'altération... mais également sur des facteurs jusqu'alors non expérimentés que sont la force ionique, la nature des acides et les cycles d'évapocondensation nuageuse. Les expériences de dissolution menées sous ces différentes conditions nuageuses ont permis de mettre en avant et de quantifier l'effet important des ions H^+ et OH^- sur la dissolution, ainsi que du degré de solubilisation de la particule.

Ces observations ont ensuite été utilisées pour l'élaboration d'un mécanisme de dissolution des particules en phase aqueuse. Une quantification de ce mécanisme a enfin été réalisée en paramétrisant les principaux facteurs impliqués dans la dissolution. La comparaison des résultats calculés et expérimentaux montre une assez bonne adéquation, validant la paramétrisation effectuée.

Finalement ce travail permet d'apporter des informations qualitatives et surtout quantitatives des interactions entre l'eau et les particules d'aérosols qui étaient encore manquantes et montrent notamment l'importance du processus de dissolution pour comprendre le rôle des aérosols dans l'implication climatique et chimique des nuages.

Mots-clés: Nuage, Equilibre Dissolution/Précipitation, Solubilité, Loess du Cap Vert, Cendres Volantes, Cinétique, ICP-AES, pH, Carbonates, Eléments Minéraux.

ABSTRACT

Clouds affect both climate via the role they play in the Earth's radiation balance and tropospheric chemistry since they are efficient reaction media for chemical transformation of soluble species. Cloud droplets are formed in the atmosphere by condensation of water vapour onto aerosol particles, the cloud condensation nuclei (CCN). The water soluble fraction of these CCN governs the cloud microphysics, which is the paramount factor playing on the radiative properties of clouds. Moreover, this soluble fraction is the source of species involved in the oxidation/reduction reactions in the aqueous phase. Thus, it is of particular importance to understand the process controlling the solubilisation of aerosols in the cloud droplets. The main purpose of this work is to investigate experimentally and theoretically the dissolution of particles incorporated in the aqueous phase.

From the studies conducted up to now, we have identified several factors playing on the dissolution reaction of aerosols. However, the quantification of the effects of these factors is difficult since the current means of study are not adapted to the complexity of cloud systems. First, this work consisted to perform an experimental system, composed by an open flow reactor, enabling to follow the kinetic of dissolution in conditions representative of cloud.

This experimental device is used to a systematic characterisation of the known factors playing on the dissolution, i.e. pH, aerosol nature, aerosol weathering... and also for the identification and the quantification of the effects of other factors: ionic strength, acid nature, clouds processes. The dissolution experiments conducted with these different conditions emphasise the particular importance of H^+ and OH^- ions on the dissolution, as well as the aerosol weathering.

These experiments gave quantitative results, which are used to elaborate a mechanism of aerosol dissolution in the aqueous phase. The parameterisation of this mechanism considered the main factors playing on the dissolution. The results of experiment and the one of the parameterisation are in agreement.

Finally, this work may be useful for understanding how the aerosol particles react in the aqueous phase and show the importance of the dissolution process to interpret the aerosol effect on climate and the atmospheric chemistry.

Keywords: Cloud, Dissolution/Precipitation Equilibrium, Solubility, Cape Verde Loess, Fly-ashes, Kinetic, ICP-AES, pH, Carbonates, Mineral elements.