Rôle des états électroniques et vibrationnels excités dans la cinétique des plasmas de CO₂

O. Guaitella¹, S. Bravo¹, D. Sadi¹, C.A. Garcia-Soto¹, E. Baratte¹, T. Silva², V. Guerra²

L'étude des plasmas de CO₂ pur ou en mélange, a bénéficié d'un regain d'intérêt depuis une dizaine d'année en lien avec les problématiques environnementales. Différentes stratégies de valorisation du CO₂ sont explorées, qu'il s'agisse de procédés de méthanation, de reformage à sec du méthane ou de méthanolisation par exemple. La plupart de ces procédés de synthèse de molécules reposent sur l'association d'un plasma avec un catalyseur, ajoutant ainsi à la complexité des systèmes étudiés. A l'origine, l'utilisation de plasmas froids pour ces applications a été motivée par la possibilité de bénéficier du pompage vibrationel du mode asymétrique de la molécule de CO2 comme décrit notamment dans le livre sur la chimie des plasmas de Fridman [1]. S'il est assez clair aujourd'hui que la dissociation du CO2 purement par pompage vibrationnel n'est pas viable en terme de cout énergétique, le rôle de l'excitation vibrationelle du CO₂ mais aussi du CO et des autres réactants (H₂, CH₄, etc...) n'en est pas moins très importante. En effet, que ce soit de par leur impact sur l'énergie moyenne des électrons, sur l'efficacité de certaines réactions chimiques, ou simplement sur les vitesses de chauffage du gaz, les vibrations de ces molécules restent au centre de la dynamique des plasmas contenant du CO2. Pourtant, il y a encore relativement peu de données expérimentales décrivant l'évolution des températures vibrationnelles en plasmas de CO₂ [2]. Au-delà des vibrations, des résultats récents suggèrent l'importance de certains états électroniques excités, ce qui n'est pas si surprenant si l'on prend en compte le fait que la dissociation par impact électronique du CO2 produit soit l'état $O(^1D)$ soit l'état $CO(a^3\Pi)$ [3]. Comme souvent, le manque de données de base limite grandement le caractère prédictif des modèles qui peuvent être développés pour ces plasmas. En complément des approches visant à optimiser les performances de conversion du CO₂ avec des sources plasma DBD, micro-ondes, nanosecondes pulsée, ou encore radiofréquence, il est donc indispensable de développer aussi des mesures dans des décharges plus simples permettant de véritablement contraindre les modèles avec des jeux de données les plus complets possibles. Cette présentation aura donc deux objectifs:

- Dans un premier temps une vue d'ensemble des dernières avancées de la communauté sur les performances et la compréhension de diverses sources plasma utilisées pour la conversion du CO₂ sera présentée.
- Dans un deuxième temps la méthode de validation systématique de modèle cinétique réalisée en collaboration avec l'IST Lisbonne sera décrite. En particulier l'intérêt de mesures infrarouge in situ résolue en temps effectuée dans des décharges luminescente et radiofréquence pulsées à des pressions de quelques mbar sera discutée.

Références

[1] F., Alexander. Plasma chemistry. Cambridge university press, (2008).

L.D. Pietanza, et al. "Advances in non-equilibrium CO 2 plasma kinetics: A theoretical and experimental review." The European Physical Journal D 75, no. 9 (2021): 237.

[2] Morillo-Candas, Ana Sofia, Vasco Guerra, and Olivier Guaitella. The Journal of Physical Chemistry C 124, no. 32 (2020): 17459-17475

Statut:

¹Laboratoire de Physique des Plasmas (LPP), CNRS, Sorbonne Université, Université Paris Saclay, École Polytechnique, Institut Polytechnique de Paris, 91128 Palaiseau, France

² Instituto de Plasmas e Fusão Nuclear, Instituto Superior Técnico, Universidade de Lisboa, Portugal mél: olivier.guaitella@lpp.polytechnique.fr mailto:mon-email@moi.fr