ANNALES DE PHYSIQUE
Colloque C1, supplément au n°5, vol. 19, octobre 1994

Caractérisation spectroscopique d'un plasma de CH_4+CO_2 obtenu par décharge à barrière diélectrique

O. Motret, V. Massereau, M. Nikravech, C. Hibert, J.M. Pouvesle et J. Chapelle

GREMI, Université d'Orléans, BP. 6759, 45067 Orléans cedex 2, France

Abstract : Plasma processing of CH_4+CO_2 mixture can lead to the formation of synthesis gas (CO+H_2). The use of cold plasma for this type of process seems very promissing. We report here the determination of vibrational and rotational temperature in several gases (CH_4, CH_4+CO_2) at atmospheric pressure. The plasma is created by high voltage (90 kV), fast pulse (20 ns) Dielectric Barrier Discharge in tubular cell. The measured average rotational temperature is very low $T_{rot} \approx 650$ K; on the other hand the vibrational temperature is high $T_{vib} \approx 5500$ K and may explain the good chemical plasma reactivity.

Le traitement des mélanges CH_4+CO_2 par procédé plasma peut conduire à la formation du gaz de synthèse (CO+H_2). L'emploi de *plasmas froids* pour ce type de processus semble être une voie tout à fait prometteuse. La plupart des d'études antérieures par exemple[1-3] ont été consacrées à la caractérisation chimique de ce processus; par contre, l'aspect spectroscopique a été rarement abordé. Il semble cependant important de mener une étude spectroscopique conjointement à l'étude chimique, afin d'établir les paramètres caractéristiques du milieu et notamment de définir les températures d'excitation du plasma.

L'étude que nous présentons concerne des plasmas de CH_4+CO_2 produits par Décharge à Barrière Diélectrique (DBD). La cellule utilisée est cylindrique, de volume utile 20 cm^3. Le diélectrique retenu est le quartz (épaisseur 1mm). Des impulsions haute tension (90 kV) et de très courte durée (20 ns) sont appliquées entre l'électrode interne (fil de tungstène, diam. 0.15 mm) et l'électrode externe, à la fréquence ajustable de 1 à 60 Hz. Le plasma se présente sous la forme d'un grand nombre de *streamers* aléatoires entre l'électrode centrale et la paroi, uniformément répartis dans tout le volume utile. L'expérience est réalisée à pression atmosphérique, le gaz est en écoulement avec un débit ajustable du $cm^3.mn^{-1}$ à plusieurs $l.mn^{-1}$. Un chromatographe en phase gazeuse monté en

Article published by EDP Sciences and available at http://www.annphys.org
or http://dx.doi.org/10.1051/anphys/1994033

dérivation sur la sortie de la cellule dose les différents gaz. Une spectroscopie UV-Visible résolue en temps a été réalisée par l'utilisation de moyens de diagnostics performants (système d'acquisition rapide couplé à un spectromètre UV-Visible). En routine, la température des parois du réacteur ne dépasse pas 80 °C.

Les mesures spectroscopiques ont été réalisées sur la bande de Swan de la molécule C_2. La figure 1 présente un exemple de spectre obtenu dans un mélange CH_4+CO_2 (50%, 50%) à une atmosphère. La tension appliquée est de 90 kV, le débit du gaz est de 120 $cm^3.mn^{-1}$.

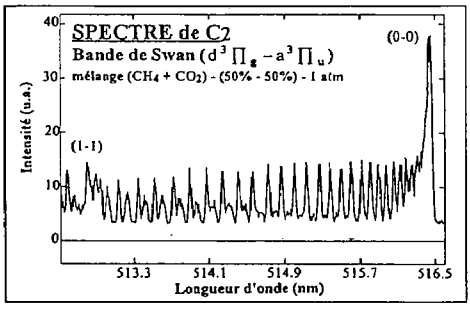

Fig. 1 : Bande de Swan

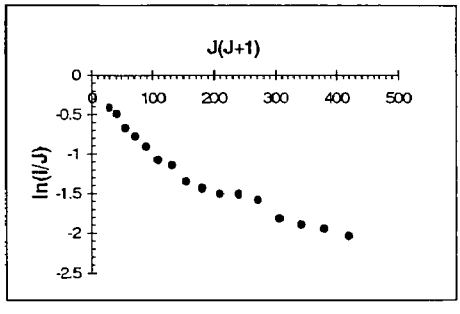

Fig. 2 : Diagramme de Boltzmann

La température rotationnelle de C_2 a été déterminée à partir de la branche R de la transition vibrationnelle (0-0). En considérant les niveaux rotationnels en équilibre thermodynamique local, nous avons tracé le diagramme de Boltzmann relatif aux niveaux de départ J = 5 à 20 (fig. 2). La courbe présente deux pentes correspondant à deux températures rotationnelles différentes. Ce phénomène pourrait traduire des processus d'excitation sélectives. La température rotationnelle moyenne estimée n'est pas très élevée

$$T_{rot} \approx 650 \text{ K}$$

La température vibrationnelle de C_2 a été estimée à partir des transitions vibrationnelles (0-0) et (1-1) de la bande de Swan (fig. 1). En supposant ces niveaux en équilibre thermodynamique local, nous obtenons

$$T_{vib} \approx 5500 \text{ K}$$

Cette température vibrationnelle élevée est certainement un facteur important permettant d'expliquer la forte réactivité chimique du milieu.

Des mesures réalisées dans le méthane pur ont donné des résultats similaires au cas du mélange.

[1] : A. Mizuno and al. Proceedings of NATO Advanced Research Control, Cambridge,England, Sep 21-25 1992.
[2] : V.A. Abolentsev and al. Proceedings of NATO Advanced Research Control, Cambridge, England, Sep 21-25 1992.
[3] : A. Oumaghar and al. Journal de Physique III 4 (1994), p.99 - 109.