

Construction et réduction de schémas cinétiques complexes

Alain Dollet, Stéphanie de Persis*, Francis Teyssandier
PROMES, UPR CNRS 8521, Perpignan (dollet@univ-perp.fr)
* LCSR, UPR CNRS 4211, Orléans

Dans de nombreux procédés de traitement à partir d'une phase gazeuse, assistés ou non par plasma, la chimie des neutres s'avère généralement déterminante (synthèse de dépôts ou de poudres, dépollution, ...). La modélisation de tels procédés impose la détermination des réactions chimiques mises en jeu dans l'écoulement, et de la cinétique associée.

Dans la première partie de ce cours, nous évoquerons la construction des schémas réactionnels en phase gazeuse, et rappellerons le principe des méthodes qui permettent d'évaluer les constantes de vitesse et surtout la dépendance en pression de ces constantes, qui est fonction du type de réaction considérée. Nous nous focaliserons plus particulièrement sur la version quantique de la théorie de Rice Ramsperger et Kassel (QRRK). D'un point de vue pratique, cette théorie assez simple s'avère particulièrement bien adaptée pour la construction de mécanismes réactionnels. Nous présenterons en détail ses fondements et les conséquences des approximations sur lesquelles elle s'appuie. Nous évoquerons ensuite les problèmes liés à sa mise en œuvre, et notamment le problème de l'obtention des données nécessaires. Quelques exemples de calcul seront détaillés, et plusieurs schémas réactionnels seront présentés.

La deuxième partie de ce cours traitera des méthodes de réduction de mécanismes. Nous rappellerons brièvement le principe de certaines méthodes de réduction, basées ou non sur une analyse des échelles de temps du système comme la méthode de Turanyi et la méthode ILDM. Nous présenterons alors des exemples d'applications de ces méthodes à la réduction de schémas chimiques du système Si-C-H utilisés pour le dépôt de carbure de silicium.