
Modélisation de la valorisation de CO₂ par l'électrocatalyse hétérogène

Stephan Steinmann*¹, Carine Michel¹, Renate Schwiedernoch, Marc Pera-Titus, Floryan Decampo, and Philippe Sautet¹

¹Laboratoire de Chimie (LC) – CNRS : UMR5182, École Normale Supérieure (ENS) - Lyon – Ens de Lyon, Site Jacques Monod - 46 allée d'Italie - 69364 Lyon cedex 07, France

Résumé

L'augmentation de la concentration des gaz à effet de serre et la diminution des ressources fossiles incitent au développement de procédés chimiques durables. Conceptuellement, la valorisation du CO₂, c'est-à-dire la conversion du CO₂ en produits chimiques, est très attractive puisque cela pourrait permettre de rééquilibrer le cycle de carbone. Une solution élégante pour activer le CO₂ c'est l'électrocatalyse : l'électron est le réducteur le plus " propre ", dont l'énergie peut être choisie près de l'optimum thermodynamique. En pratique, il faut identifier un catalyseur pour minimiser la surtension. La modélisation du mécanisme réactionnel est la première étape vers le design rationnel de catalyseurs. Malgré le progrès récent en modélisation de réactions électrocatalytiques, la détermination du mécanisme et la rationalisation des sélectivités posent toujours de maints problèmes. Dans cette contribution, nous allons présenter des résultats prototypiques pour le couplage de CO₂ avec des alcènes en appliquant trois modèles pour tenir en compte de l'environnement électrochimique. L'électrode computationnelle (à hydrogène) de Norskov [1] est l'approche la plus simple. Dans la méthode de Filhol-Neurock[2] l'électrode est chargée explicitement et la cellule périodique neutralisée par une charge de fond uniforme. Le modèle ESM d'Otani[3] propose un traitement à priori plus réaliste : la charge de neutralisation est introduit à la surface d'une l'électrode auxiliaire implicite. Les approximations et les limitations de ces modèles vont être illustrées à l'exemple d'un réseau réactionnel complexe.

J. K. Norskov, J. Rossmeisl, A. Logadottir, L. Lindqvist, J. R. Kitchin, T. Bligaard, H. Jonsson, *J. Phys. Chem. B* 2004, 108, 17886.

M. Mamatkulov, J. S. Filhol, *Phys. Chem. Chem. Phys.* 2011, 13, 7675.

M. Otani, O. Sugino, *Phys. Rev. B* 2006, 73, 115407.

Mots-Clés: électrochimie, modélisation, catalyse hétérogène, valorisation de CO₂

*Intervenant