

Interactions plasma-paroi dans les tokamaks

Un domaine à l'interface de la physique et de la chimie

Christophe Brosset et Alain Allouche

Résumé

Les recherches sur la fusion thermonucléaire contrôlée ont fait de remarquables progrès depuis les premières expériences de confinement magnétique de plasmas dans des tokamaks vers la fin des années 1960. L'enjeu actuel concerne la démonstration de la maîtrise de la combustion d'un plasma de fusion deutérium-tritium sur des temps longs. Le réacteur expérimental ITER (« International Thermonuclear Experimental Reactor ») sera construit pour atteindre cet objectif. En raison des progrès accomplis, plusieurs questions dont l'interaction du plasma avec la paroi sont apparues. Elles nécessitent une nouvelle étape des recherches et du développement. A travers cet article, nous exposons la nature interdisciplinaire de la problématique des interactions plasma-paroi dans un tokamak où cohabitent le carbone et les isotopes de l'hydrogène. En particulier, les processus chimiques jouent un rôle fondamental dans les mécanismes qui gouvernent le comportement de l'hydrogène au contact des matériaux à base de carbone. La modélisation quantique appliquée à la détermination de la réactivité chimique des espèces impliquées apporte une compréhension de ces processus à l'échelle atomique. Cette approche renseigne, sans hypothèse *a priori*, sur les mécanismes élémentaires les plus probables et les énergies mises en jeu. Les résultats ne sont pas applicables directement à l'échelle d'un tokamak, mais fournissent des données pour les codes de simulation des processus observés *in situ*.

Mots-clés

Graphite, adsorption, calcul de chimie physique, dynamique moléculaire, fusion thermonucléaire contrôlée, interactions plasma-paroi, tokamak, ITER.

Abstract

Plasma-wall interactions in tokamaks, a scope between physics and chemistry

Remarkable results have been obtained in thermonuclear fusion researches since the first experiments performed in tokamaks, about 40 years ago. The next step is now to succeed in controlling deuterium-tritium long discharges in order to demonstrate the feasibility of fusion energy for peaceful purposes. This is the aim of ITER (International Thermonuclear Experimental Reactor), the next magnetic fusion device. While great progresses have been made, new questions emerged and the plasma-wall interactions are one of them. In this paper, we show that this domain is interdisciplinary, particularly because of the presence of carbon and hydrogen. Indeed, we highlight the fundamental role played by chemical processes in the interactions between hydrogen and carbon-based materials and the beneficial contribution of quantum-modelling works in the understanding of them. *Ab initio* calculations, using the density functional theory, allow studying chemical reactivity of the concerned species. Elementary processes and associated energies can be investigated without any empirical assumptions. The understanding of the elementary reactions, the calculation of the energy transfer and barriers of reaction, together with the modelling of reactions through quantum molecular dynamics provide helpful and more realistic input data to plasma-wall interaction simulation codes.

Keywords

Graphite, adsorption, computational chemistry, molecular dynamics, controlled thermonuclear fusion, plasma-surface interactions, tokamak, ITER.

La fusion thermonucléaire contrôlée

La fusion thermonucléaire la plus facile à réaliser dans un dispositif expérimental est celle qui implique les isotopes de l'hydrogène, le deutérium et le tritium, *via* la réaction :



Cette réaction n'a une section efficace élevée que si les noyaux de deutérium et de tritium ont des énergies de quelques dizaines de keV. Les températures requises pour la fusion thermonucléaire dépassent donc la centaine de millions de degrés (rappelons que 1 eV correspond à environ 11 600 K). A de telles températures, les atomes sont ionisés

et la matière se trouve à l'état de plasma composé d'ions et d'électrons.

La production d'énergie électrique motive les recherches sur la fusion thermonucléaire contrôlée [1]. La maîtrise de l'énergie de fusion constitue un défi scientifique et technologique et des collaborations se sont organisées à l'échelle internationale pour le relever. Elles ont permis des progrès considérables, en particulier depuis la découverte de la configuration tokamak (voir *encadré 1*). Ces dispositifs ont donné les performances les plus prometteuses : ils permettent de confiner un plasma porté à très haute température dans une chambre à vide de forme torique, à l'aide d'un champ magnétique intense. Les conditions autorisant la production d'énergie à partir d'un plasma de fusion sont fixées

Encadré 1

La configuration tokamak

Tokamak désigne la configuration magnétique développée pour contrôler un plasma nécessaire à la production d'énergie par fusion nucléaire contrôlée. En pratique, ce terme désigne le dispositif expérimental produisant cette configuration magnétique particulière. Tokamak est un acronyme provenant du russe « *toroidalnaja kamera magnetnaja katuska* » qui signifie en français : chambre toroïdale à confinement magnétique. Les configurations Tokamak ont été développées pendant les années 60 en Union Soviétique par une équipe de chercheurs de l'Institut Kurchatov sous la direction de l'académicien L. Artsimovitch.

Pour confiner un plasma dans un tokamak (voir figure), on utilise la conjugaison d'un champ magnétique toroïdal, produit par les bobines d'induction toroïdales qui entourent la chambre à vide, et d'un champ magnétique poloïdal, produit par le courant qui circule dans le plasma lui-même. Ce dernier est induit par un bobinage extérieur (bobine magnétique centrale) par un effet comparable à celui utilisé pour générer un courant dans le bobinage secondaire d'un transformateur, le plasma étant considéré ici comme le secondaire du dit transformateur. Enfin, l'équilibre du plasma, sa position et sa forme sont assurés par un ensemble d'aimants horizontaux appelés bobines poloïdales. Les lignes de flux résultantes sont hélicoïdales ; elles décrivent des surfaces

magnétiques en forme de tores emboîtés les uns dans les autres, chaque ligne de flux tournant indéfiniment à la fois dans la direction toroïdale et poloïdale. La densité et la température sont constantes sur chaque surface magnétique, décroissant depuis la plus petite surface magnétique, constituant l'axe magnétique, jusqu'à la plus grande qui touche l'environnement matériel. La dernière surface magnétique fermée (DSMF) est l'ultime surface composée de lignes de flux continues. Au-delà de cette limite, appelée séparatrice, les lignes de flux sont discontinues car connectées à des éléments de la paroi. Nous trouvons alors une couche de plasma

appelée « *scrape off layer* » (SOL), parfois francisé sous le terme « section dans l'ombre du limiteur ». Dans la SOL, les particules qui suivent les lignes de flux, alors discontinues, entrent en contact avec la surface des composants face au plasma (voir encadré 2), produisant les interactions plasma-paroi.

Pour atteindre les températures nécessaires à la fusion nucléaire, des techniques de couplage de puissances additionnelles sont mises en œuvre, comme l'absorption d'ondes électromagnétiques radiofréquences (les fréquences sont adaptées pour être résonantes avec une classe choisie de particules du plasma) et l'injection de particules neutres rapides (le transfert d'énergie aux particules du plasma se fait par collisions). Le courant induit circulant dans le plasma chauffe celui-ci par effet Joule ; mais la résistivité du plasma chute lorsque sa température s'élève, ce processus seul est insuffisant pour atteindre des régimes de fusion.

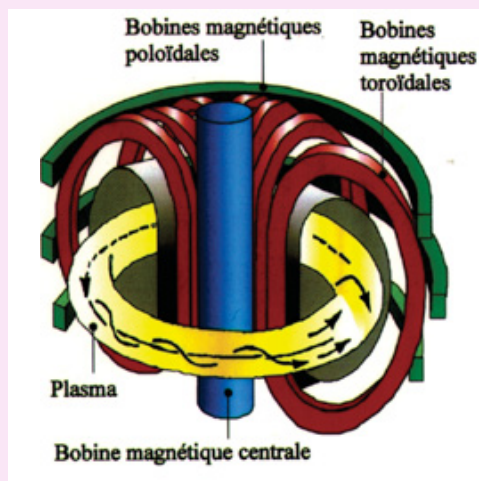


Schéma de principe d'un tokamak.

Les particules chargées du plasma suivent les lignes de flux hélicoïdales produites par la combinaison des champs poloïdal et toroïdal. Dans le cas du tokamak Tore Supra, les bobines magnétiques toroïdales sont constituées de bobinages supraconducteurs refroidis dans un bain d'hélium superfluide à 1,8 K. Le champ toroïdal peut ainsi être permanent, ce qui permet de réaliser des décharges de longue durée.

par le produit $nT\tau_E$ de trois facteurs : la densité des ions n , la température des ions T et le temps de confinement de l'énergie τ_E . Ce produit doit être supérieur à une valeur limite qui correspond à la compensation des pertes d'énergie du plasma par l'énergie produite par les réactions de fusion. Le plasma subit des pertes thermiques par rayonnement, conduction et convection. Le temps de confinement de l'énergie est le temps caractéristique de décroissance de l'énergie interne du plasma si l'on coupe les sources d'énergie qui l'alimentent. Dans un tokamak, τ_E doit être de l'ordre de quelques secondes pour une densité d'ions de l'ordre de 10^{20} m^{-3} afin de réunir les conditions nécessaires à la fusion.

Du début de l'ère des tokamaks jusqu'à nos jours, le produit $nT\tau_E$ a été multiplié par un facteur 1 000. Parallèlement à cette progression dans la performance, la durée des décharges plasma dans les grands tokamaks a été étendue jusqu'à plusieurs minutes, ouvrant ainsi la voie vers le fonctionnement continu d'un futur réacteur. Une décharge record de 6 min 18 s, soutenue par une puissance injectée de 3 MW, a été réalisée dans le tokamak Tore Supra (Cadarache, France), conduisant à extraire plus d'un gigajoule d'énergie thermique au cours de l'expérience [2]. Un autre résultat majeur est la production concrète de 17 MW de puissance fusion obtenue dans le tokamak JET (« Joint European Torus », Culham, Angleterre) en 1997, à partir d'un plasma de mélange D-T [3]. La mise en œuvre de

la fusion thermonucléaire contrôlée pour la production d'énergie nécessite d'accroître encore les performances atteintes par les tokamaks actuels : un facteur de l'ordre de 10 doit être encore gagné sur le triple produit $nT\tau_E$ et la durée des décharges doit être allongée afin de démontrer la possibilité d'un fonctionnement continu de l'installation. Ces objectifs sont assignés au réacteur expérimental ITER dont l'implantation sur le site de Cadarache, qui était le site proposé par l'Union européenne, a été décidée le 28 juin 2005. Si les performances remarquables obtenues ces dernières années permettent d'envisager la maîtrise de la combustion entretenue d'un plasma D-T sur des temps longs, des questions nouvelles sont apparues. En particulier, le contrôle de l'interaction du plasma avec la paroi demande un nouvel effort de recherches et de développement. Ce domaine est par essence interdisciplinaire, puisque la physique des plasmas rencontre celle des matériaux et des surfaces, et que les mécanismes mis en jeu relèvent en grande partie du domaine de la chimie.

Les interactions plasma-paroi dans les tokamaks et leurs conséquences

L'efficacité du confinement magnétique dans un tokamak permet de maintenir le plasma, dont le cœur est à la température de fusion entre 100 et 200 millions de degrés,

à faible distance d'une paroi matérielle. Pour des raisons technologiques évidentes, la température de cette paroi est limitée au millier de degrés. Ces conditions extrêmes soumettent les éléments de la paroi interne d'un tokamak à des processus d'interaction avec le plasma. Ces processus affectent à la fois les matériaux constituant ces éléments et le plasma lui-même.

À l'intersection des surfaces magnétiques les plus extérieures et de la paroi, un flux de particules et de chaleur est déposé. Une fraction de l'énergie parvient sous forme de photons avec une répartition homogène. En revanche, une partie importante de l'énergie provient de particules chargées, majoritairement concentrées dans une couche radiale de plasma d'épaisseur de l'ordre du centimètre appelée « scrape off layer » ou SOL (voir encadré 1). Bien que les paramètres caractéristiques du plasma dans la SOL (densité, température, flux de chaleur) décroissent exponentiellement avec le rayon, des densités de puissance de l'ordre de 10 MW/m^2 en régime stationnaire sont déposées à la surface des composants face au plasma. Des valeurs transitoires plus grandes sont attendues au cours d'événements pendant lesquels une partie du contenu énergétique du plasma ($\sim 10\%$) peut être perdue en l'espace de quelques microsecondes. Ces phénomènes présentent des analogies avec les éruptions solaires et relèvent de la physique de la turbulence ; ils sont liés à des relaxations brutales des profils de température et de densité au bord du plasma. Ils font l'objet de travaux intenses pour en améliorer la compréhension expérimentale et théorique afin de les supprimer ou d'en diminuer les effets dans ITER [4].

Les flux de particules tombant sur les composants internes ont pour conséquence l'érosion de ces derniers. Des atomes sont arrachés au matériau de surface et leur pénétration dans le plasma constitue une source d'impuretés pour celui-ci. Les impuretés, par leur rayonnement, sont des sources de pertes. Or, l'énergie contenue dans le plasma doit servir de manière efficace à son chauffage pour entretenir les réactions de fusion. Se posent donc les questions de la durée de vie des éléments de première paroi et de la minimisation des pertes d'énergie dans le plasma liées à la présence d'impuretés. Plus les atomes constituant les

impuretés possèdent des numéros atomiques Z élevés, plus les impuretés rayonnent au centre du plasma, produisant un effet d'autant plus désastreux sur le taux de réactions. Les impuretés de numéro atomique faible ($Z < 20$ typiquement) ne causent pas de pertes par rayonnement au cœur du plasma car les atomes sont dépouillés de leurs électrons plus au bord. Les impuretés, dites légères, contribuent cependant à la dilution du combustible qui conduit aussi à une diminution du nombre d'événements de fusion.

Les moyens de contrôle des interactions plasma-paroi

Des recherches intenses ont été engagées et se poursuivent pour parvenir à un contrôle des interactions plasma-paroi en vue d'un fonctionnement continu. Plusieurs solutions ont été mises en œuvre et étudiées pour progresser dans la définition des machines futures : des solutions *actives* visant à forcer la localisation des zones d'interactions sur des éléments dédiés en intervenant sur le plasma de bord, et des solutions *passives* visant à améliorer la paroi. Dans la première catégorie de solutions se trouvent deux dispositifs (figure 1), le limiteur et le *divertor*, dont l'objectif commun est à la base d'empêcher le contact entre le bord du plasma et la surface de la chambre à vide. Quant à l'amélioration de la paroi, elle a été rendue possible par la mise au point de nouveaux matériaux à base de carbone (les composites) et de nouvelles technologies d'assemblage des composants face au plasma. Ces dernières améliorent les capacités d'évacuation de la chaleur vers un circuit d'eau sous pression refroidissant l'ensemble du composant.

Limiteur et divertor

Comme le montre la figure 1, le limiteur et le *divertor* sont deux dispositifs qui éloignent le plasma central de la surface de la chambre à vide. Dans les deux cas, une séparatrice (DSMF), qui enveloppe le plasma confiné, est créée (voir encadré 1) et c'est la SOL (appelée zone de bord sur la figure 1) qui parvient à s'étendre jusqu'à la paroi. Or, les grandeurs caractéristiques de la SOL décroissent

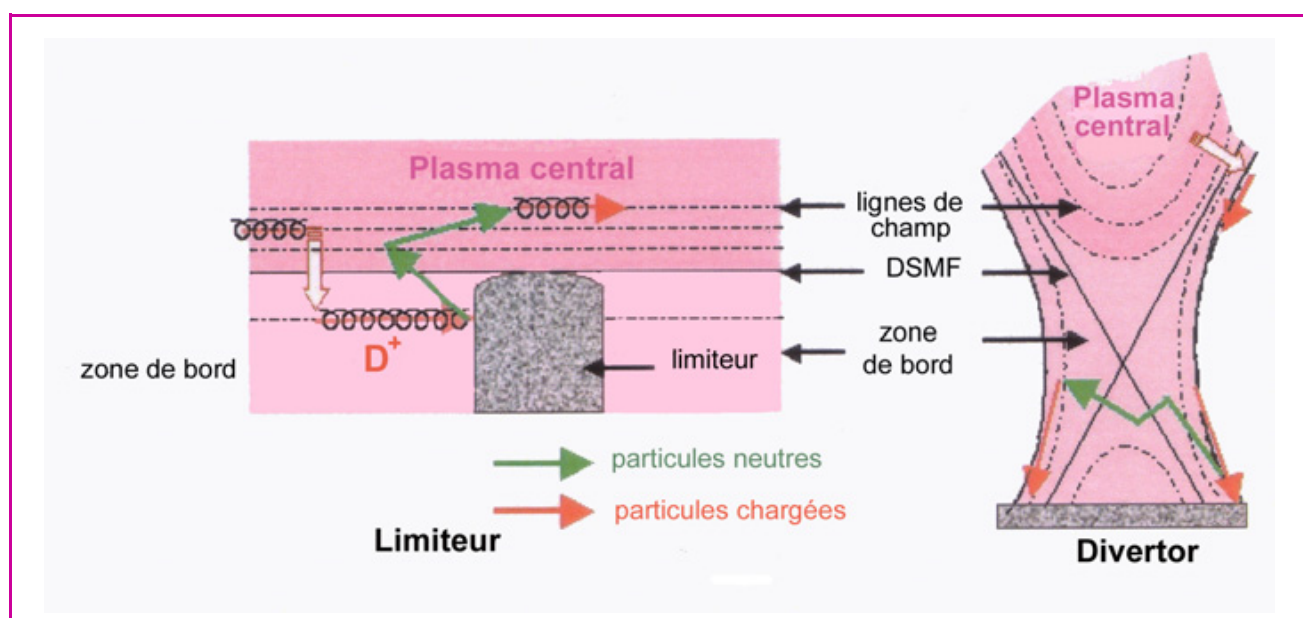


Figure 1 - Schéma de la configuration magnétique au voisinage d'un limiteur et d'un *divertor*.

rapidement dans la direction radiale et quelques centimètres suffisent pour amener les flux de particules et de chaleur à des valeurs plus acceptables pour les matériaux en contact.

La *figure 1* montre également que pour parvenir à ce résultat, le limiteur est lui-même au contact de la dernière surface magnétique fermée et qu'il a donc à supporter une charge thermique intense. Un soin tout particulier est donc apporté à la réalisation des composants protégeant ce dispositif et à la géométrie des surfaces exposées. Un exemple de limiteur est donné par l'illustration de l'*encadré 2*

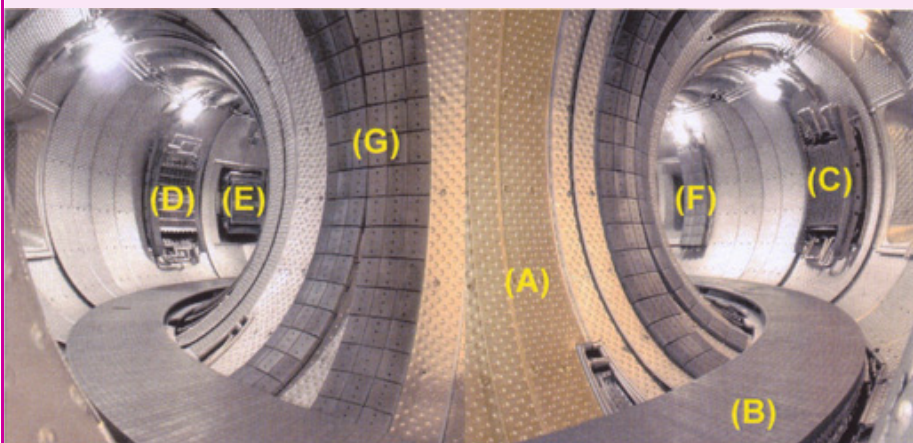
qui montre les composants internes du tokamak Tore Supra dont le limiteur pompé toroïdal (LPT) placé en partie basse de la machine.

Dans le cas du *divertor*, c'est la modification locale de la structure du champ magnétique de la périphérie du plasma qui permet d'éloigner le plasma central de la zone du *divertor*. Cette perturbation du champ magnétique est réalisée par un dispositif de bobinages installé dans le *divertor*. Elle permet d'amener les lignes de flux vers des plaques de neutralisation des ions (*figure 2*). Le *divertor*

Encadré 2

Le tokamak, ses parois en carbone et les principaux mécanismes d'érosion

Dans les tokamaks, les éléments de paroi au contact du plasma sont protégés par des composants dont la surface est pavée de matériaux à base de carbone. Dans le tokamak Tore Supra (voir *figure*), ces composants sont couverts de tuiles de CFC (« carbon



Vue de l'enceinte interne du tokamak Tore Supra.

Des panneaux alvéolés (A) en acier inoxydable protègent la paroi de l'enceinte interne du flux de puissance rayonnée et du flux de neutres issus de l'échange de charge. L'élément principal du dispositif de composants face au plasma est le limiteur pompé toroïdal (B). Il est composé de 576 aiguilles. Chaque aiguille est constituée de 21 tuiles de CFC assemblées à une structure de cuivre durci (CuCrZr). Le limiteur est conçu pour supporter des flux thermiques de 10 MW/m^2 en continu. On distingue sur la figure trois antennes de couplage de puissance radiofréquence au plasma (C, D, E). Ces éléments possèdent leur propre armature de composants face au plasma que l'on peut observer de part et d'autre des antennes. (F) est un limiteur de protection d'antenne, utilisé uniquement pendant les phases de démarrage de la décharge. L'ensemble des éléments est refroidi à l'aide d'une circulation d'eau sous pression.

reinforced fiber composite»). Les principaux processus d'interaction entre les flux d'hydrogène provenant du plasma et les atomes de carbone de ces tuiles sont les suivants :

• La pulvérisation physique

C'est un mécanisme d'éjection d'atomes de la surface d'un solide soumis à l'impact de particules énergétiques. Il est induit par les cascades de collisions qui se développent dans le solide tant que l'énergie des particules incidentes et des atomes du réseau mis en mouvement, par les transferts d'énergie successifs, est supérieure à l'énergie de déplacement des atomes du réseau. L'énergie de déplacement est l'énergie minimale nécessaire pour qu'un atome cible se déplace de son site. Il s'agit donc d'un mécanisme à seuil, celui-ci dépendant de l'énergie de liaison des atomes du solide et de la masse des particules impliquées. Le taux de pulvérisation physique est donné par le nombre d'atomes éjectés par particule incidente. La température de la surface du solide ne joue aucun rôle dans ce mécanisme.

Pour le carbone bombardé par du deutérium, le seuil est de 30 eV ; le taux de pulvérisation à l'incidence normale est maximum (~ 2 %) pour des énergies comprises entre 200 et 500 eV. Par comparaison, le seuil pour le tungstène est de 230 eV pour un taux de pulvérisation maximum du même ordre (~ 1), mais obtenu pour des ions de deutérium animés d'une énergie supérieure à 3 000 eV.

• L'érosion chimique

C'est un mécanisme spécifique à l'interaction entre le carbone et les isotopes de l'hydrogène qui conduit à l'émission de molécules et de radicaux hydrocarbonés. L'oxygène provoque également des réactions chimiques avec le carbone et produit, lorsqu'il le bombarde, de l'oxyde et du dioxyde de carbone. La présence de nombreux défauts dans les CFC, renforcés par les dommages créés par le bombardement ionique, rend les atomes de carbone particulièrement réactifs vis-à-vis de l'hydrogène. L'hydrogène peut alors s'adsorber, en volume ou à la surface du composant, par formation de liaisons de type chimique avec les atomes de carbone. Sous l'effet du bombardement ionique, des liaisons carbone-carbone peuvent être rompues et une éventuelle extraction d'une molécule ou d'un radical de type C_nH_m peut se produire. Une augmentation de température, provoquée volontairement ou induite par l'exposition au plasma, peut également conduire à la désorption de ces espèces.

L'érosion chimique est un mécanisme complexe pas encore élucidé. Il dépend à la fois de la température de la surface du matériau, de l'énergie et du flux des ions incidents.

Le taux d'érosion chimique, évalué par le nombre de molécules de méthane produites par ion incident, donne une courbe ne présentant qu'un pic dont l'intensité est maximum (~ 0,1) entre 700 et 900 K. Dans cette gamme de température, ce taux est maximum à 300 eV. Quand l'énergie d'impact diminue, le pic se déplace vers les faibles températures et s'aplatit. Mais à faible énergie d'impact (< 50 eV), la contribution des hydrocarbures contenant plusieurs atomes de carbone devient comparable pour devenir majoritaire aux énergies thermiques. A fort flux ($> 10^{22} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$), le taux d'érosion chimique semble amorcer une décroissance.

L'environnement chimique des atomes de carbone joue aussi un rôle important ; en effet, très peu de bore dans le graphite par exemple (< 3 %) suffit à réduire sensiblement l'érosion chimique par l'hydrogène.

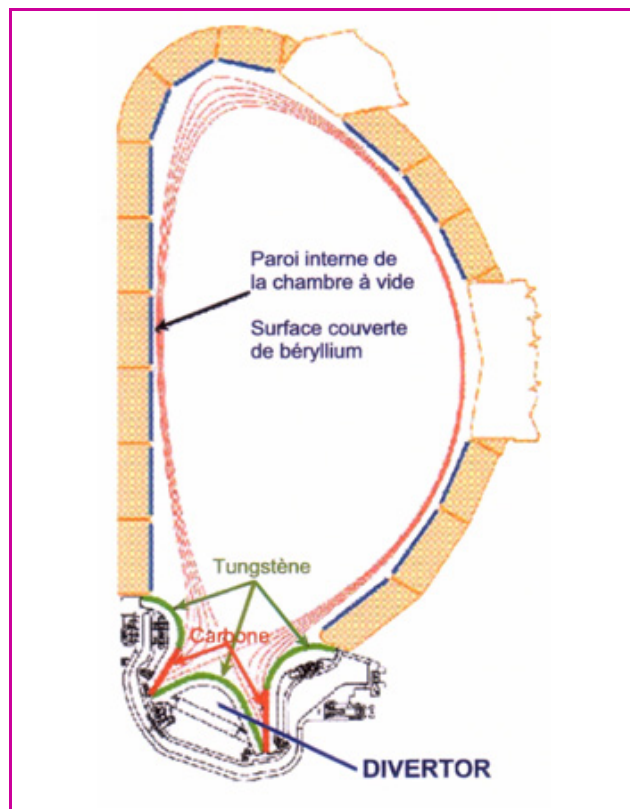


Figure 2 - Coupe poloïdale de l'enceinte interne d'ITER. On distingue la chambre principale avec en bas de celle-ci le volume du *divertor*. Les lignes rouges représentent la dernière surface magnétique fermée et des lignes de flux circulant dans la SOL.

comme le limiteur est équipé d'un dispositif de pompage qui permet d'évacuer la pression de neutres ainsi formée. Ces deux dispositifs sont destinés à extraire en continu l'hélium produit au cœur du plasma.

Pour ITER, c'est la solution *divertor* qui a été retenue car elle permet d'accéder à des modes de confinement amélioré que l'on n'arrive pas à produire en configuration limiteur. Par ailleurs, les impuretés générées par les interactions plasma-paroi dans le *divertor* s'échappent peu de ce volume et le *divertor* concentre leur rayonnement. Les flux d'énergie au bord de la décharge sont ainsi mieux répartis et la température électronique du plasma dans le *divertor* ($< 10 \text{ eV}$) est sensiblement plus faible que dans une configuration limiteur.

Les raisons du choix du carbone

L'augmentation du niveau de puissance injectée durant les expériences combinée à l'allongement de leur durée a fait ressortir des contraintes fortes sur le choix des matériaux en surface des composants face au plasma. Les matériaux à base de carbone sont devenus la référence. D'abord utilisé, le graphite a été supplanté par les matériaux composites carbone-carbone (ou CFC pour « carbon reinforced fiber composite »). Grâce à son faible numéro atomique ($Z = 6$), le carbone répond bien aux questions soulevées par la présence d'impuretés dans le plasma. Il serait même de ce point de vue un atout car le rayonnement qu'il produit est localisé à la périphérie du plasma, ce qui aide à l'étalement de la charge thermique tombant sur la paroi et diminue ainsi la part qui est transmise par les particules. Les composites

C-C présentent des conductivités thermiques élevées et un seuil de sublimation bien supérieur aux températures observées dans un tokamak. Enfin, leurs propriétés mécaniques sont compatibles avec les technologies d'assemblage les plus avancées, permettant la réalisation de composants face au plasma capables de supporter les flux thermiques intenses évoqués précédemment.

Le carbone et son interaction avec l'hydrogène

Mécanismes d'érosion du carbone : croissance de couches de carbone co-déposées

Dans les formes utilisées pour la fusion, le carbone présente une réactivité forte avec l'hydrogène (et ses isotopes) et est le siège de nombreuses réactions chimiques conduisant à la désorption de molécules d'hydrocarbures. Dans un tokamak, l'ensemble des mécanismes produisant ces molécules volatiles est identifié sous le nom d'érosion chimique [5]. Selon les conditions de température des surfaces et d'énergie des particules incidentes, l'érosion chimique peut être environ dix fois plus efficace que la pulvérisation physique, qui provoque l'ablation d'atomes de carbone par collisions entre atomes de carbone et ions incidents (voir encadré 2). Par la suite, le transport des particules émises (atomes et molécules) est variable selon qu'elles pénètrent dans le plasma et s'y transforment par des processus de type excitation, dissociation, ionisation, ou qu'elles s'échappent rapidement des lignes de flux du plasma. On observe qu'une grande partie d'entre elles se dépose en des zones très proches ($\sim \text{cm}$) du point d'émission. Le bilan entre érosion/pulvérisation et déposition établira si, globalement, le composant s'érode au cours du temps ou bien s'il voit croître à sa surface une couche de carbone. Cet équilibre entre les mécanismes est fondamental pour le fonctionnement d'un réacteur puisqu'il gouverne la durée de vie de ses composants. Quant aux espèces migrant sur de plus longues distances, elles sont candidates à la croissance de couches de carbone en des zones abritées du plasma. A l'écart du bombardement par les ions et du flux de chaleur qu'ils transportent, dans des zones dites ombrées, où la température de surface est voisine de celle de l'enceinte à vide, les couches de carbone peuvent contenir des quantités importantes d'hydrogène, de l'ordre de un atome d'hydrogène par atome de carbone : on parle alors de co-déposition [6]. Par comparaison, le taux d'occupation maximum de l'hydrogène implanté à saturation dans du graphite est de 0,4 H/C.

Rôle du carbone dans la rétention de l'hydrogène

Les dépôts de carbone sont observés dans tous les tokamaks utilisant des matériaux à base de carbone. L'épaisseur de ces dépôts dépend des conditions particulières d'interaction avec la paroi. Celles-ci modifient à la fois les sources et les conditions de dépôt. Dans le tokamak Tore Supra, des échantillons de ces dépôts sont prélevés au terme de la campagne expérimentale et analysés pour en déterminer la concentration en deutérium. Les résultats se classent en deux catégories : les dépôts de carbone dont la concentration en deutérium est de l'ordre du pour cent et ceux dont cette même concentration est dix fois supérieure [7]. Le paramètre déterminant est la température atteinte par les

dépôts au cours de la campagne expérimentale. Une surveillance par caméra infrarouge montre que la surface des composants émet un fort rayonnement à partir des zones couvertes de dépôts, ces derniers atteignant des températures de plusieurs centaines de degrés. Des mécanismes de désorption peuvent alors être activés thermiquement et limiter la concentration de deutérium mesurée. Le tokamak JET utilise une configuration *divertor*. Les mécanismes d'érosion chimique dominant. Des dépôts de carbone contenant des concentrations élevées de combustible ont été observés dans des zones retirées du plasma comme les conduites de pompage du *divertor*. La température de ces zones est faible car elles sont abritées du plasma. Les analyses ont révélé des concentrations en combustible voisines de un.

Dans Tore Supra, on réalise à la fin de la campagne une estimation de la quantité totale de deutérium contenu dans les dépôts. La valeur obtenue est comparée à l'estimation de la quantité totale retenue par la paroi déduite des bilans de particules. Un tel bilan est établi par différence entre la quantité de gaz injecté dans la décharge et la quantité de particules extraites par pompage durant cette décharge. Les expériences de plasma de longue durée (plusieurs minutes) montrent que la contribution des dépôts de carbone ne semble pas suffisante pour compenser ce qui est retenu par la paroi pendant une campagne complète. Il semble donc que d'autres mécanismes de piégeage que les phénomènes de co-déposition soient à l'œuvre. Ainsi, les recherches sur les capacités de stockage de l'hydrogène dans les porosités des composites C-C et sur les phénomènes de diffusion en profondeur dans ces matériaux se sont intensifiées.

La connaissance des mécanismes de rétention de l'hydrogène liés à l'utilisation du carbone est importante pour ITER. D'une part parce que l'inventaire en tritium y sera limité, pour des raisons de sûreté nucléaire, et d'autre part parce que le tritium n'étant pas injecté dans la décharge mais régénéré *in situ* à partir de réactions nucléaires initiées par les neutrons produits par les réactions de fusion, les pertes dans le cycle du tritium conduisent à un arrêt des réactions. Les expériences actuelles, notamment dans Tore Supra, contribuent à évaluer les scénarios permettant une exploitation du réacteur expérimental dans les meilleures conditions. Les travaux de conception du projet ITER ont tenu compte de l'affinité entre carbone et hydrogène en limitant la surface de carbone aux seules zones du *divertor* qui concentrent les flux intenses de particules et de chaleur. Pour le reste de l'enceinte interne, le béryllium et le tungstène, matériaux métalliques réfractaires, seront utilisés. Néanmoins, les études théoriques et expérimentales sur les matériaux à base de carbone au contact de l'hydrogène se poursuivent. La compréhension des mécanismes d'adsorption, de diffusion en surface et en volume, de production des hydrocarbures, est à améliorer pour des conditions réalistes. Des modèles empiriques, établis à partir de données expérimentales de simulation en laboratoire, sont régulièrement améliorés mais ne parviennent pas encore à représenter fidèlement les résultats obtenus à l'échelle du tokamak.

Pour acquérir des données de base à caractère *ab initio*, un effort particulier a été entrepris dans le domaine de la modélisation quantique des interactions plasma-surface au sein d'une collaboration CEA/université/CNRS. L'approche naturelle, développée depuis le commencement des études sur l'interaction plasma-paroi, a été de nature physique alors que la chimie joue un rôle important. C'est pourquoi le travail a été développé autour de méthodes propres à la chimie quantique : calculs de surfaces d'énergie potentielle, études

des chemins réactionnels, étapes de transition, en partant de petits systèmes pour aller vers des systèmes plus proches des surfaces réelles.

Ces études couvrent le système hydrogène-carbone, s'étendent aux réactions induites par la présence d'oxygène dans le système et également aux effets de l'inclusion d'atomes de bore dans le graphite. Les raisons qui motivent l'inclusion de ces éléments dans le système sont d'une part la présence de l'oxygène en tant qu'impureté dans les plasmas de bord des tokamaks, et d'autre part, l'utilisation du bore par des techniques dites de conditionnement des parois qui visent à limiter précisément la présence d'oxygène dans le plasma. Le bore joue, en effet, un rôle de « guetteur » des atomes d'oxygène qui sont alors fixés à la surface des parois.

Modélisation quantique

La modélisation quantique est réalisée au niveau *ab initio* par des méthodes de type DFT (« density functional theory ») ne faisant appel à aucun élément empirique, toutes les grandeurs sont calculées [8]. Cette option nous affranchit de tout acquis préalable, mais elle implique cependant des calculs très complexes et très longs. Il est donc nécessaire de choisir des modèles qui sont très simples au départ mais qui vont être ensuite étendus et rendus plus complexes. Un cheminement parallèle est adopté par les physiciens du solide qui tentent de modéliser expérimentalement, en laboratoire, des phénomènes physiques ne pouvant être aisément maîtrisés dans les enceintes des tokamaks pour des raisons évidentes. On peut donc schématiser la démarche en trois étapes étroitement imbriquées : observation en tokamak, modélisation en laboratoire dans des conditions expérimentales parfaitement contrôlées, modélisation quantique.

Le revêtement carboné des parois des tokamaks est représenté par du graphite pur, et plus précisément la face (0001) du graphite parfait composée de couches de cycles aromatiques contigus. Les couches composant le matériau étant éloignées les unes des autres, en première approximation, nous ne représentons la surface que par une seule couche de graphite.

Les calculs quantiques portant sur la réactivité chimique sont basés sur des calculs des variations d'énergie au cours de la réaction considérée, en partant de l'état initial pour aboutir aux produits de la réaction en suivant un chemin réactionnel. Les courbes associées à ce chemin sont connues sous le nom de surfaces d'énergie potentielle. Outre les énergies des points de départ et d'arrivée, elles comportent les énergies des états de transition associés aux barrières à franchir pour que la réaction puisse se produire.

Le calcul des surfaces d'énergie potentielle s'effectue le plus souvent à température nulle, et aucune hypothèse n'est faite sur la manière dont cet apport d'énergie est fourni au système pour franchir les barrières. Dans le cas qui nous préoccupe ici, l'apport d'énergie est de deux types : soit thermique, la température de la paroi est généralement maintenue entre 300 et 500 K (mais la surface des composants peut atteindre 1 500 K durant les décharges plasma), soit amené par l'énergie cinétique des espèces percutant la surface (atomes, molécules, radicaux). Cette énergie cinétique peut être très élevée et est fournie par l'énergie du plasma. Cette donnée supplémentaire par rapport au calcul des surfaces de potentiel ne peut être prise en compte que par des calculs de dynamique moléculaire. Le but de la dynamique moléculaire est de simuler (ici quantiquement) l'évolution dans le temps

d'un ensemble de particules soumises à des conditions initiales déterminées, en particulier en température et énergie cinétique. Cette simulation indiquera si, pour ces conditions initiales, le système sera à même ou non de surmonter les barrières d'énergie potentielle calculées dans la première étape.

Une bonne coordination entre ces deux étapes de l'analyse quantique est fondamentale pour appréhender valablement les problèmes de réactivité qui nous sont posés par l'érosion des surfaces carbonées des tokamaks.

Adsorption d'atomes d'hydrogène sur le graphite pur [9-11]

Lorsqu'un atome d'hydrogène isolé s'approche de la surface plane du graphite, la variation de l'énergie totale du système suit la surface de potentiel représentée sur la *figure 3* (première courbe en partant du haut) : si l'atome parvient à 1,09 Å de la surface après avoir surmonté une très faible barrière, le gain d'énergie est de l'ordre de 60 kJ.mol⁻¹. Cet état plus stable que l'état initial correspond à une déformation caractéristique de la surface : le carbone adsorbant passe d'une structure plane (hybridation sp²) à la structure pyramidale (hybridation sp³) représentée sur la *figure 4*. La faible valeur de l'énergie d'adsorption est en bon accord avec les résultats expérimentaux. L'évolution de l'hybridation du carbone est également observée expérimentalement, notamment par les spectroscopies de vibration. D'un point de vue dynamique, les simulations réalisées suivant l'algorithme de Verlet montrent que l'atome d'hydrogène ne s'adsorbera que s'il arrive sur le substrat avec une énergie très faible, inférieure à 200 kJ.mol⁻¹ (~ 2 eV) et en incidence rasante. Ceci est confirmé par les expériences de laboratoire qui indiquent que l'hydrogène atomique ne s'adsorbe sur le graphite (0001) que dans le domaine des énergies thermiques.

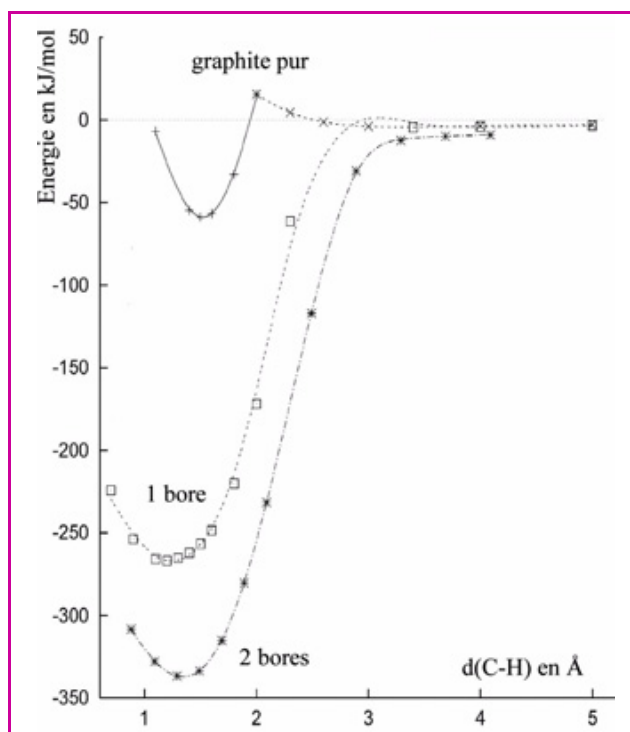


Figure 3 - Adsorption de l'hydrogène sur du graphite : courbes d'énergies potentielles comparées d'adsorption sur du graphite pur, au voisinage d'un atome de bore et au voisinage de deux bores.

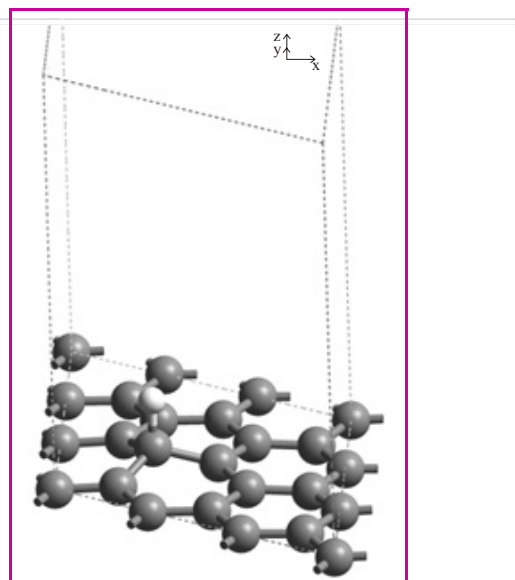


Figure 4 - Maillage de travail du graphite et position d'équilibre de l'hydrogène adsorbé.

La rupture de la planéité de la surface rend cette dernière plus réactive du fait de la destruction locale du système électronique π , rendant de ce fait plus facile l'adsorption des atomes suivants jusqu'à saturation. A saturation, le taux de recouvrement calculé est de 44 % d'hydrogènes par rapport au nombre de carbones superficiels. La simulation en température s'effectue donc sur ce modèle. La dynamique moléculaire montre que la désorption débute entre 300 et 400 K, s'achève à 600 K, et que l'hydrogène adsorbé est très peu mobile autour de son site d'adsorption, ce qui explique les problèmes de rétention.

Influence du dopage au bore sur la réactivité de l'hydrogène [12]

Des composés borés sont régulièrement introduits dans les enceintes des tokamaks, notamment Tore Supra, afin de modifier le contenu en oxygène du plasma. L'élément bore a montré également un effet bénéfique sur la production des hydrocarbures en modifiant notamment la réactivité de l'hydrogène. En effet, la pulvérisation chimique est diminuée significativement alors que la production d'hydrogène moléculaire par désorption thermique est augmentée. Cette observation fut purement empirique à l'origine car l'action chimique du bore n'était pas élucidée.

A concentration modérée, le bore peut s'introduire dans le réseau graphitique par substitution d'atomes de carbone dans le réseau cristallin. Ces deux éléments étant voisins par leurs tailles et leurs structures électroniques, la surface reste plane et les méthodes développées pour le graphite pur peuvent, à nouveau, s'appliquer.

Contrairement à ce qui était pressenti, le calcul des surfaces de potentiel montre que le bore n'affaiblit pas la liaison de l'hydrogène à la surface mais la renforce et cet effet s'accroît avec la concentration en bore (*figure 3*). La modélisation quantique nous apprend que l'effet du dopage au bore s'applique aux phénomènes de migration des atomes d'hydrogène sur les plans de graphite (en surface ou entre deux plans dans la masse). Si l'atome d'hydrogène est très peu mobile sur un plan graphitique, il a une très faible

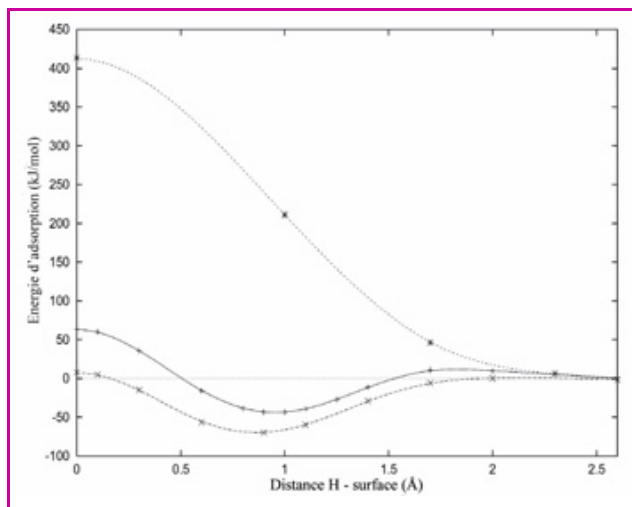


Figure 5 - Barrière d'énergie de migration d'un atome d'hydrogène d'un site d'adsorption à un site voisin.

chance de rencontrer un autre atome et de reformer une molécule H_2 . Or H_2 n'ayant qu'une très faible affinité pour le graphite, la recombinaison en surface implique la désorption. La figure 5 montre que la barrière que doit franchir un atome d'hydrogène pour sauter d'un site à l'autre est de l'ordre de $400 \text{ kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$ sur le graphite pur. Elle est réduite à $60 \text{ kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$ au voisinage d'un atome de bore et disparaît totalement au voisinage de deux atomes du même élément. Par conséquent, si le réseau de graphite est suffisamment dopé, la diffusion des atomes d'hydrogène sur chacun des plans devient pratiquement libre, et donc le taux de recombinaison est sensiblement augmenté dès que de l'énergie est communiquée au système (par augmentation de la température par exemple). L'hydrogène est par ailleurs moins disponible pour entrer dans les processus de formation des hydrocarbures, ce qui contribue à l'effet observé d'autant plus que les simulations quantiques montrent que le bore renforce également la liaison entre les radicaux CH_x et la surface.

Réactivité de l'oxygène [13]

L'oxygène est présent dans les enceintes de confinement des tokamaks comme une impureté et parfois comme un élément actif introduit intentionnellement. Il est donc logique de penser à la très grande réactivité de l'oxygène vis-à-vis de l'hydrogène pour accélérer et améliorer les processus de déshydrogénation.

L'oxygène moléculaire n'a aucune affinité pour le graphite, mais l'atome d'oxygène s'adsorbe sur le réseau en position pontée entre deux atomes de carbone (cycle époxydique); l'énergie d'adsorption est de l'ordre de $100 \text{ kJ}\cdot\text{mol}^{-1}$.

Une fois adsorbé, l'oxygène réagit avec les atomes d'hydrogène pour former des radicaux hydroxyles qui peuvent rester adsorbés sur la surface (figure 6a). En partant de cet état stationnaire, la dynamique moléculaire à différentes températures montre que deux hydroxyles voisins se recombinaient spontanément pour former une molécule d'eau qui désorbe aussitôt. Dans le système final, un atome d'oxygène reste adsorbé (figure 6b).

Inversement, les atomes d'oxygène originaires du plasma de bord peuvent aborder la surface saturée détermi-

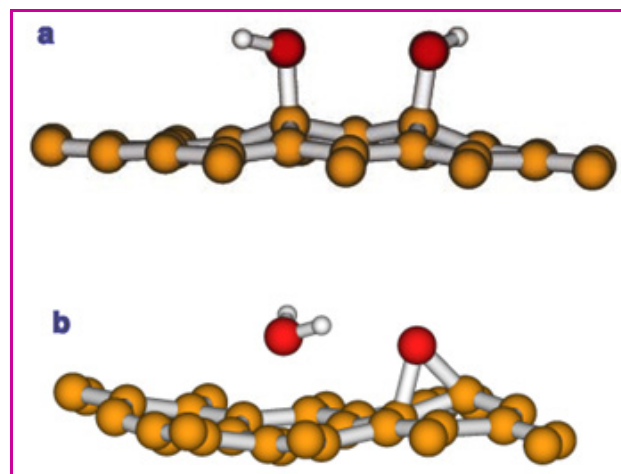


Figure 6 - (a) Adsorption de deux radicaux OH en début de la simulation; (b) Formation d'une molécule d'eau en fin de simulation.

née précédemment et entrer en réaction avec les atomes d'hydrogène (figure 7a). Ce type de processus conduit très rapidement à une déshydrogénation plus ou moins poussée de la surface (figure 7b). Suivant le rapport O/H et la température de la surface, cette réaction est plus ou moins complète.

Le rapport stœchiométrique (0,5) est assez favorable à température ambiante (300 K, figure 8), mais il perd en efficacité lorsque la température croît. Lorsque le nombre d'oxygènes injectés atteint celui des hydrogènes adsorbés, la déshydrogénation est alors pratiquement totale pour toutes les températures envisagées.

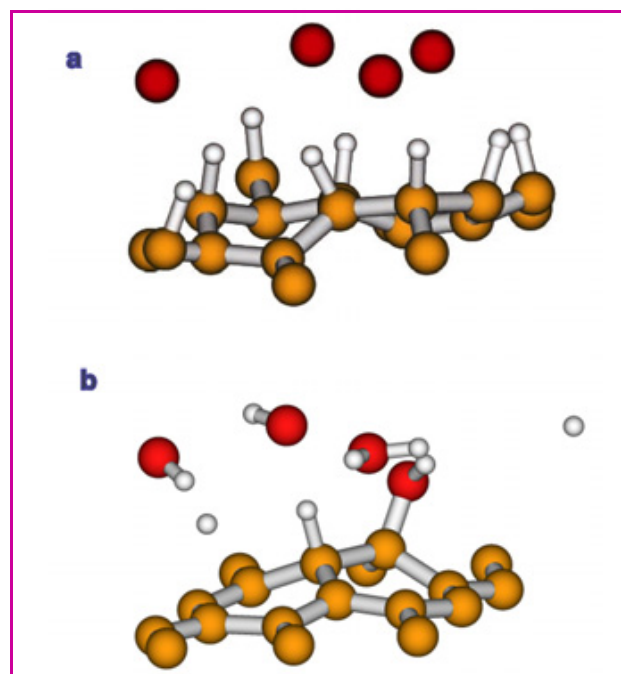


Figure 7 - (a) Approche des atomes d'oxygène sur la surface de graphite hydrogénée à saturation en début de simulation; (b) Système en fin de simulation: formation de trois molécules d'eau et d'un radical OH adsorbé, tous les hydrogènes ont été restitués sauf un.

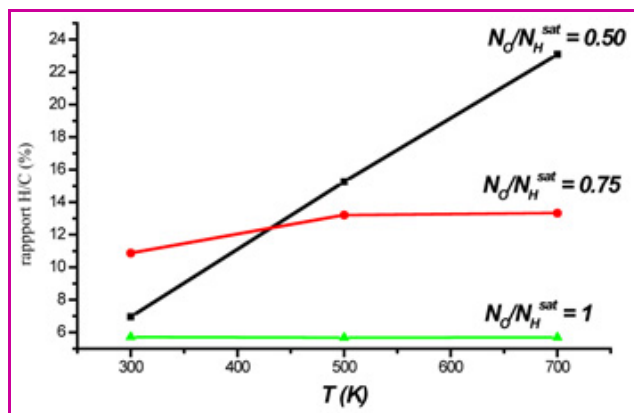


Figure 8 - Efficacité de l'oxygène dans les mécanismes de déshydrogénation.

Les hydrogènes restent adsorbés sur la surface en fin de simulation (rapport de nombre d'atomes adsorbés sur le nombre d'atomes de carbone constituant la surface). Chacune des courbes correspond à un rapport du nombre d'oxygènes par rapport au nombre total d'atomes d'hydrogène.

Conclusion

Au stade actuel des recherches, les matériaux à base de carbone offrent toujours le meilleur compromis pour répondre aux conditions extrêmes de flux de particules et de chaleur qui règneront dans le *divertor* d'ITER. Les études sur les interactions hydrogène-carbone dans les tokamaks conservent un intérêt majeur. L'introduction de tungstène et de béryllium dans l'enceinte interne d'ITER, en présence du carbone, ouvre une voie à des études sur des matériaux mixtes, obtenus par la déposition à la surface du carbone de particules provenant de l'érosion des surfaces de tungstène ou de béryllium. Les analyses quantiques présentées dans cet article s'orientent à ce jour en partie vers l'étude de tels matériaux, carbone-béryllium par exemple.

Les calculs quantiques portant sur des systèmes composés de quelques dizaines d'atomes n'ont pas l'ambition de résoudre à eux seuls les problèmes constatés dans un tokamak. Néanmoins, ce type d'études fondamentales s'est beaucoup développé ces dernières années car l'analyse des phénomènes d'interaction plasma-paroi montre qu'il s'agit d'un problème qui nécessite une approche à toutes les échelles, depuis celle de l'atome jusqu'à celle du composant face au plasma.

Remerciements

Francis Marinelli, Yves Ferro et Andrei Jelea ont réalisé nombre des calculs quantiques décrits dans cet article et fourni les illustrations correspondantes. Les calculs ont été effectués pour l'essentiel à l'IDRIS (Centre de calcul du CNRS) et au CCRT (Centre de calcul du CEA), ainsi qu'au CRCMM à Marseille. La collaboration décrite dans cet article entre dans le cadre général du Laboratoire de recherche conventionné (LRC) liant la Direction des sciences de la matière du CEA, l'université de Provence et le CNRS.

Références

- [1] Chatelier M., Magaud P., La fusion par confinement magnétique, *Clefs CEA*, **2004**, n° 49, p. 46.
- [2] Van-Houtte D., Martin G., Bécoulet A., Bucalossi J., Giruzzi G., Hoang G.T., Loarer T. and Saoutic B. on behalf of the Tore Supra team, Recent fully non-inductive operation results in Tore Supra with 6min, 1GJ plasma discharges, *Nuclear Fusion*, **2004**, 44, L11.
- [3] Keilhacker M., Watkins M.L., JET team, D-T experiments in the JET tokamak, *J. Nucl. Mater.*, 1999, 266-269, p. 1.
- [4] Sarazin Y., La physique de la turbulence, une des clés de la fusion contrôlée par confinement magnétique, *Clefs CEA*, **2004**, n° 49, p. 56.
- [5] Roth J., Chemical erosion of carbon based materials in fusion devices, *J. Nucl. Mater.*, 1999, 266-269, p. 51.
- [6] Jacob W., Redeposition of hydrocarbon layers in fusion devices, *J. Nucl. Mater.*, **2005**, 337-339, p. 839.
- [7] Brosset C., Khodja H. and Tore Supra team, Deuterium concentration in deposited carbon layers in Tore Supra, *J. Nucl. Mater.*, **2005**, 337-339, p. 664.
- [8] Poulet G., Sautet P., Tuel A., Physico-chimie des tamis moléculaires hydratés : étude combinée expérience/théorie. Compréhension et prévisions des mécanismes d'hydratation des aluminophosphates, *L'Act. Chim.*, **2005**, 282, p. 18.
- [9] Ferro Y., Marinelli F., Allouche A., Density functional theory investigation of the diffusion and recombination of H on a graphite surface, *Chem. Phys. Lett.*, **2003**, 368, p. 609.
- [10] Ferro Y., Marinelli F., Allouche A., Density functional theory investigation of H adsorption and H₂ recombination on the basal plane and in the bulk of graphite: connection between slab and cluster model, *J. Chem. Phys.*, **2002**, 116, p. 8124.
- [11] Ferro Y., Jelea A., Marinelli F., Brosset C., Allouche A., Density functional theory and molecular dynamics studies of hydrogen interaction with plasma-facing graphite surfaces and the impact of boron doping, *J. Nucl. Mater.*, **2005**, 337-339, p. 897.
- [12] Ferro Y., Marinelli F., Allouche A., Brosset C., Density functional study of chemical erosion mechanisms in carbon and boron-doped carbon as plasma facing material in tokamaks, *J. Nucl. Mater.*, **2003**, 321, p. 294.
- [13] Jelea A., Marinelli F., Ferro Y., Allouche A., Brosset C., Quantum study of hydrogen-oxygen-graphite interactions, *Carbon*, **2004**, 42, p. 3189.

Pour en savoir plus

Sur la physique de la fusion dans les tokamaks

- Wesson J., *Tokamaks*, Oxford Science Publications, **2004**.
- Stangeby Peter C., *The plasma boundary of magnetic fusion devices*, The Institute of Physics, Londres, **2000**.
- Weisse J., *La fusion nucléaire*, Collection Que Sais-je ?, Presses Universitaires de France, **2003**.

Pour élargir les connaissances sur l'état de plasma

- Lehner T., *L'Etat de plasma, le Feu de l'Univers*, Éditions Vuibert, **2005**.



C. Brosset

Christophe Brosset est ingénieur-chercheur au Département de recherches sur la fusion contrôlée au CEA Cadarache*.



A. Allouche

Alain Allouche est chargé de recherche CNRS au laboratoire Physique des interactions ioniques et moléculaires de Marseille**.

* Association Euratom-CEA, CEA/DSM/DRFC, CEA Cadarache, 13108 Saint-Paul-lez-Durance Cedex.
Tél. : 04 42 25 64 37. Fax. : 04 42 25 49 90.
Courriel : christophe.brosset@cea.fr
Site : <http://www-fusion-magnetique.cea.fr/>

** Physique des interactions ioniques et moléculaires, CNRS et université de Provence (UMR 6633), Campus universitaire de Saint-Jérôme, case 242, 13397 Marseille Cedex 20.
Courriel : Alain.Allouche@up.univ-mrs.fr