

Ecole doctorale I-MEP2 - Ingénierie –
Matériaux, Mécanique, Environnement,
Énergétique, Procédés, Production (N° 510)

PROPOSITION D'UN SUJET

CONTRAT DOCTORAL 2024/2025

(à retourner avec l'argumentaire du directeur de laboratoire)

Demi-contrat doctoral : NON

1 - Rattachement administratif

SPECIALITE * : MEP - Mécanique des fluides, Énergétique, Procédés

Unité de recherche * : UMR 5821 - LPSC

Etablissement de préparation de la thèse * : UGA

Année universitaire de 1ère inscription en doctorat * : 2024/2025

Date de début de la thèse * : 1/10/2024

Date limite de candidature * : 23/05/2024

Co-tutelle* : NON

Université :

2 - Projet Doctoral

Directeur de thèse * : Stéphane Béchu (DR2 – CNRS)

Taux d'encadrement % : 70

Co-directeur (externe UGA et externe I-MEP²) :

Taux d'encadrement % :


Co-encadrant : Armelle Michau (IR1 – CNRS / LSPM - Villetaneuse)

Taux d'encadrement % : 30

Modalités d'encadrement, de suivi de la formation et d'avancement des recherches du doctorant * :


La thèse se déroulera au LPSC où se trouve le dispositif expérimental, l'encadrement de la partie expérimentale (70%) sera assuré par S. Béchu. Le co-encadrement assuré par K. Hassouni – A. Michau permettra de développer le volet numérique (30%) en vue l'adaptation d'un code de calcul collisionnel-radiatif OD à la problématique de cette thèse. Cette adaptation pourra débiter à Grenoble et des missions seront organisées pour finaliser et assurer le bon déroulement de ces calculs.

Des CSI seront organisés à intervalles réguliers (années 1, 2 et 3) pour s'assurer du bon déroulement de la thèse. Le doctorant(e) sera inscrit à des conférences au cours de son parcours de formation pour permettre de nouer des contacts pour sa période postdoctorale.

 **Titre en français * : Études fondamentales des molécules ro-vibrationnellement excitées pour la description des mécanismes MAR (recombinaison moléculaire activée)**

Mots clés * :

- | | |
|-------------------------|--------------------------------------------|
| 1* - Spectroscopie VUV | 2* - Photodétachement laser |
| 3 - Modélisation plasma | 4 – Plasma pulsé |
| 5 - Sonde de Langmuir | 6 – Plasmas H ₂ /D ₂ |

 **English title * : Fundamental studies of ro-vibrationally excited molecules for MAR (Molecular Activated Recombination) mechanisms investigations**

Keys words * :

- | | |
|-----------------------|--------------------------------------------|
| 1* - VUV spectroscopy | 2* - Laser photodetachment |
| 3 - Plasma modeling | 4 - Pulsed plasma |
| 5 - Langmuir probes | 6 - H ₂ /D ₂ Plasmas |

 **Résumé du projet de thèse * :**

L'atténuation de la charge thermique sur les cibles du divertor est obligatoire pour éviter d'endommager leurs surfaces. En régime de fonctionnement «détaché», les processus de recombinaison moléculaire activée (MAR) seraient responsables d'une part importante des réactions d'échange de charges entre ions positifs et molécules ro-vibrationnellement excitées. La conversion des ions positifs énergétiques provenant du plasma de fusion en neutres énergétiques leur permettraient d'atteindre de plus larges surfaces du divertor. Les taux de réaction de ces processus varient de plusieurs ordres de grandeur en fonction du niveau d'excitation rovibrationnelle des molécules (v'' , J'') peu connu et fortement influencé par les surfaces de tungstène et les mélanges de gaz ($H_2/D_2/N_2$).

Ce projet est pionnier dans l'utilisation de diagnostics plasma de pointe en plasmas micro-ondes (2,45 GHz) simulant le régime détaché. La ligne de faisceau DESIRS du synchrotron SOLEIL déjà utilisée en mode continu pour scruter directement les molécules excitées ro-vibrationnelles sera mise en œuvre en mode pulsé. De même, des diagnostics plasma complémentaires comme le photodétachement laser, la spectroscopie d'émission optique (gammes visible et VUV), les sondes de Langmuir utilisés de façon routinière au LPSC seront synchronisés avec le générateur plasma pulsé pour les mesures temporelles. Un modèle collisionnel radiatif unidimensionnel traitera du volume plasma. Ce modèle aura comme données d'entrée les résultats expérimentaux obtenus grâce aux nombreux diagnostics complémentaires mis en œuvre. Ainsi, une meilleure compréhension des facteurs clés des réactions MAR pourra être obtenue. L'efficacité théorique de ces réactions sera confrontée expérimentalement avec l'atténuation d'un faisceau d'ions positifs contrôlé en énergie et en intensité traversant ces plasmas.

 **Summary of the thesis project * :**

The heat load mitigation on the divertor's targets is mandatory to prevent severe damage of their surfaces. In "detached regime" functioning **molecular-activated recombination** (MAR) processes could be responsible for a significant proportion of charge exchange reactions between positive ions and ro-vibrationally excited molecules. Consequently, a large conversion of energetic positive ions coming from the fusion plasma into energetic neutrals could be obtained. Subsequently, these neutrals will impinge more widely on divertor's surfaces. Reaction rates of those processes can vary in orders of magnitude depending on the **rovibrational excitation level of the molecules (v'' , J'')** which is largely unknown and is strongly influenced by the presence of tungsten surfaces and gas mixtures ($H_2/D_2/N_2$).

This project pioneers in the use of cutting-edge plasma diagnostics for a microwave (2.45 GHz) plasma which mimics the detached regime. The DESIRS beam line of synchrotron SOLEIL, already employed in continuous mode to scrutinize directly the ro-vibrational excited molecules, will be implemented with time resolution acquisition employed in pulsed mode. Similarly, complementary plasma diagnostics such as laser photodetachment, optical emission spectroscopy (visible and VUV ranges) and Langmuir probes performed routinely at LPSC will be synchronized with the pulsed plasma generator for time resolution measurements. A 1-D collisional-radiative model will be developed at LSPM to deal with the plasma volume reactions. This model will be populated with experimental data, firstly for commissioning purpose, secondly when validated, to follow the main reaction routes of MAR mechanisms aiming at an improvement. Theoretical efficiency of these reactions will be experimentally challenged and compared to interactions between cold plasmas and a positive ion beam controlled for both energy and intensity.

Thématique

Fusion par confinement magnétique - ITER

Domaine

Physique des interactions plasmas/surfaces – Diagnostics plasma - Modélisation

Objectifs :

Le projet FIBONACCI vise à évaluer l'efficacité ABSOLUE des mécanismes MAR-r et -N. Pour atteindre cet objectif, nous mènerons des recherches pionnières pour : i) promouvoir la production de molécules excitées rovibrationnellement - $H_2/D_2 X^1\Sigma_g^+(v'', J'')$ - afin de renforcer les mécanismes MAR-r dans un environnement « semblable au divertor ; ii) quantifier l'efficacité des mécanismes MAR-N et -r pour convertir les ions positifs énergétiques (H^+, H_2^+, H_3^+ et leurs isotopes) en particules neutres énergétiques en utilisant un faisceau ionique calibré.

Contexte * :

La fusion nucléaire contrôlée pourrait fournir aux générations futures une source d'énergie illimitée sans événements incontrôlables, déchets nucléaires ou sous-produits à prendre en compte. Extraire l'énergie du plasma de fusion afin de produire de l'électricité est l'un des "sujets chauds" à aborder. Un dispositif complexe appelé "divertor" équipé de cibles en tungstène (W) refroidies activement devrait remplir cette fonction. Ces cibles ou composants en contact avec le plasma (PFC) doivent rester intacts malgré le fort flux d'ions positifs canalisé par les surfaces de champ magnétique ouvertes. Cependant, la charge thermique dans les futurs réacteurs à fusion - ITER et DEMO - devrait dépasser significativement la limite matérielle de 10-20 MW/m² (pour la surface de tungstène la plus activement refroidie)[1,2]. Une solution pour atténuer cette charge thermique est la création d'une zone tampon de particules neutres entre les surfaces magnétiques fermées et ouvertes - la couche de détachement (SOL) - et les PFC afin de "détacher" le plasma des cibles. Cela peut être obtenu soit par l'injection d'un gaz neutre (N_2), adjonction de gaz[3], ou avec la neutralisation des particules de plasma heurtant les surfaces du divertor et libérées dans cette région, le processus de recyclage[4]. Dans le régime détaché, le plasma dans la SOL montre une haute densité ($n_e \approx 5 \times 10^{19} \text{ m}^{-3}$) et une basse température ($T_e < 2 \text{ eV}$), reflétant une fonction de distribution d'énergie des électrons bi-Maxwellienne[5,6]. Parmi les innombrables réactions chimiques et physiques qui se produisent dans la SOL, les mécanismes de recombinaison activés par les molécules (MAR) qui convertissent les ions moléculaires positifs énergétiques en particules neutres énergétiques, non piégées dans les surfaces magnétiques, sont les plus prometteurs pour surmonter l'obstacle scientifique de l'évacuation de chaleur[7,8].

La recombinaison dissociative du NH^+ obtenue avec adjonction d'azote, les réactions N-MAR, pourrait représenter les deux tiers de la neutralisation totale des ions positifs. Cependant, cela crée - via une réaction de surface - de l'ammoniac et de l'ammoniac tritié. Le premier est nocif pour la fabrication de tritium ITER (toléré à 1-10 ppm) et le second pourrait être absorbé par les cryopompes du tokamak et affecter son entretien[9]. Pour le processus de recyclage, r-MAR, la première réaction possible est un échange de charge entre un ion positif (H^+, H_2^+, H_3^+) et une molécule excitée ro-vibrationnellement $H_2/D_2 X^1\Sigma_g^+(v'', J'')$, suivi d'une recombinaison dissociative de H_2^+ . La deuxième réaction possible est la neutralisation mutuelle entre les ions positifs et négatifs. Les taux de réaction des processus r-MAR peuvent varier de plusieurs ordres de grandeur[10] selon le niveau de ro-vibration des molécules. Ces niveaux (v'', J'') sont largement inconnus dans les plasmas, et sont produits à la fois dans le volume du plasma (réaction E-V), et sur les surfaces des parois du réacteur, via la désorption recombinative[11,12]. La réaction E-V implique des molécules dans leur état fondamental et des électrons chauds ($T_e > 10 \text{ eV}$) pour produire les états singulets B et C qui donnent des états $X^1\Sigma_g^+(v'', J'')$ via une désintégration radiative. La désorption recombinative implique que les atomes provenant du plasma heurtent les surfaces, déjà couvertes d'atomes adsorbés, et sont convertis en molécules excitées ro-vibrationnellement via des mécanismes Eley-Rideal, Langmuir-Hinshelwood[13] dans des états $X^1\Sigma_g^+(v'', J'')$

Méthode :

Ce projet est organisé en trois sections interconnectées. **S1** est dédiée aux mesures de pointe des densités absolues des états $H_2/D_2 X^1\Sigma_g^+(v'', J'')$ et des atomes H/D au synchrotron SOLEIL[14,15]. Ces mesures complémentaires fourniront les conditions expérimentales les plus favorables (puissance, pression, quartz, échantillons orientés de W(110), W(100) et films minces de W de type amorphe) pour produire la plus haute densité des niveaux moléculaires v'' et J'' élevés à la fois via la réaction E-V dans le volume ET via la désorption recombinative sur les surfaces, et augmenter ensuite la densité globale des états $X^1\Sigma_g^+(v'', J'')$. Pour la section **S2.1**, les mêmes conditions expérimentales seront étudiées pour obtenir des caractéristiques plasma complémentaires - densités d'électrons et d'ions négatifs, EEDF, température du gaz, densités d'atomes H/D - avec les diagnostics plasma disponibles au LPSC. Dans **S1** et **S2.1**, les diagnostics mentionnés ci-dessus seront effectués d'abord en mode continu et ensuite en mode pulsé pour étudier la dynamique des espèces de plasma (coefficients d'adhérence et durées de vie) impliquées dans le mécanisme r-MAR. Dans **S1** et **S2.1**, l'adjonction de N_2 ne sera pas pris en compte. La section **S2.2** permettra de déduire au LPSC l'efficacité des mécanismes N-MAR et r-MAR - dans les mêmes conditions expérimentales - avec un faisceau ionique positif calibré. La section **S3** est consacrée au développement, au LSPM, d'un modèle collisionnel radiatif (CR) [16,17] peuplé avec les résultats expérimentaux fournis par **S1** et **S2**. Ce travail numérique est essentiel pour obtenir une image réaliste des schémas de réaction conduisant à la production de molécules $H_2/D_2 X^1\Sigma_g^+(v'', J'')$ via des mécanismes de volume et de surface, qui conduisent ensuite à améliorer les mécanismes r-MAR. Pour le projet FIBONACCI, le dispositif SCHEME-III a été entièrement conçu au LPSC sur la base du dispositif SCHEME-II+, mais est capable d'atteindre un rapport plus élevé de puissance déposée dans le plasma par rapport aux matériaux en contact avec le plasma ; 1,3 MW/m² au lieu de 0,008 MW/m² précédemment.

Résultats attendus :

Au-delà de la possibilité d'examiner la plupart des espèces de plasma dans l'environnement d'un dispositif de type divertor, ce qui permet d'identifier les principales réactions MAR, ces résultats pourraient servir : i) de références pour la modélisation du divertor dans le régime détaché pour les applications de fusion ; ii) d'offrir à la communauté scientifique de nouvelles possibilités de mesures car, dans le cadre du projet FIBONACCI, des mesures résolues dans le temps seront mises en œuvre sur la ligne de faisceau DESIRS VUV-FTS pour d'autres expériences.

Références bibliographiques * :

- 1 Pitts, R. A., *et al.* (2019) *Nucl. Mater. Energy*, **20**, 100696.
- 2 Asakura, N., *et al.* (2022). *Processes*, **10**(5), 872.
- 3 Perillo, R., *et al.* (2019) *Nucl. Mater. Energy*, **19**, 87–93.
- 4 Matthews, G. F. (1995) *J. Nuc. Mat.*, vol. **220-222**, 104–116
- 5 Popov, T. S. V. K., *et al.* (2015) *Plasma Phys. Cont. Fus.*, **57**(11), 115011.
- 6 Costea, S., *et al.* (2021) *Plasma Phys. Cont. Fus.*, **63**(5), 055016.
- 7 Verhaegh, K., *et al.* (2021) *Nuc. Mat. and Energy*, **26**, 100922.
- 8 Verhaegh, K., *et al.* (2021) *Nuc. Fus.*, **61**(10), 106014.
- 9 Laguardia, L. *et al.* (2017) *Nucl. Mater. Energy*, **12**, 261.
- 10 Janev R.K., *et al.* (2003) *Report Forschungszentrum Jülich JUEL 4105*
- 11 Béchu, S., *et al.* (2020) *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transf.*, **257** 107325.
- 12 Rutigliano, M., *et al.* (2011) *Phys. Chem. Chem. Phys.*, **13**(16), 7475.
- 13 Jackson, B., *et al.* (2001) *J. Chem. Phys.*, **114**(1), 474.
- 14 de Oliveira, N. *et al.* (2011) *Nat. Photonics*, **5**, 149–53.
- 15 Béchu, S., *et al.* (2017) *App. Phys. Lett.*, **111**(7), 074103.
- 16 Hassouni, K. *et al.* (1998) *Plasma Chem. and Plasma Proc.*, **18**, 325.
- 17 Bénédic, F., *et al.* (2018) *Eur. Phys. J. Appl. Phys.*, **81**, 10804.

Conditions scientifiques matérielles (conditions de sécurité spécifiques) et financières du projet de recherche * :

Le dispositif SCHEME-III est en cours d'assemblage et sera donc opérationnel à la rentrée de Septembre 2024. Les diagnostics plasma du LPSC évoqués dans cette proposition (sonde de Langmuir, photodétachement laser, spectroscopie optique visible et VUV) sont tous opérationnels en mode continu et pulsé (résolution temporelle effective). L'utilisation d'un laser sera précédée d'une formation spécifique aux risques d'utilisation d'un laser classe-4.

L'accès à la ligne de lumière DESIRS du synchrotron SOLEIL sera assujettie à la réussite de demande de temps de faisceau (2 calls/year) ; entre 2016 et 2023 sept « beam time allocation » ont été obtenues pour des projets similaires ce qui laisse entrevoir au moins deux campagnes expérimentales au synchrotron.

Cette thématique est co-financée, chaque année, depuis 2008 par EUROfusion et la fédération de recherche Fusion par Confinement Magnétique (FCM/ITER - FR 3029).

Ouverture Internationale :

Une collaboration de longue date (2014) est en place avec la Grèce (Université de Patras) sur cette thématique et des échanges pourraient être envisager pour confronter et/ ou compléter les mesures expérimentales effectuées à Grenoble au LPSC.

Collaborations envisagées :

Laboratoire des Sciences des Procédés et des Matériaux (LSPM – UPR3407) – Villetaneuse (co-encadrement)
Université de Patras - High Voltage Laboratory (Plasma Technology Room), Electrical and Computer Engineering
Department, 26 504 Rion-Patras, Greece

Objectifs de valorisation des travaux de recherche du doctorant : diffusion, publication et confidentialité, droit à la propriété intellectuelle,... * :

Le doctorant sera inscrit à des conférences internationales lors de cette formation IEEE International Conference on Plasma Science (**ICOPS 2025**), International Conference on ion sources (**ICIS2025**),...

La rédaction au moins d'une publication sera engagée(s) entre la deuxième et troisième année de thèse sur les résultats obtenus.

Caractère confidentiel des travaux * : non

3 - Financement du projet doctoral

Type de Financement du projet doctoral* : Concours pour un contrat doctoral

4 - Candidature

 **Profil et compétences recherchées* :**

Ce travail nécessite des compétences en physique, spectroscopie idéalement en physique des plasmas et un fort intérêt pour le travail expérimental. Un intérêt non négligeable pour la modélisation est aussi requis. Des qualités de rigueur et d'autonomie seront fortement appréciées.

 **Profile and skills required* :**

This work requires skills in physics, spectroscopy ideally in plasma physics and a strong interest in experimental work. A significant interest in modeling is also required. Qualities of rigor and autonomy will be highly appreciated.

Niveau de français requis (aucun ou niveau de A1 à C2) : C2

Niveau d'anglais requis (aucun ou niveau de A1 à C2) : C2

Candidature en ligne du sujet sur le site ADUM* : OUI

Avez-vous un candidat et souhaitez-vous lui réserver ce projet ? NON

Tous les champs ayant un * doivent être obligatoirement complétés pour l'insertion de la demande sur ADUM. Attention : ne pas insérer de figures !!!