Influence des effets électrostatiques liés à la radioactivité sur les forces d'adhésion et sur la mise en suspension de particules métalliques

Samuel Peillon

▶ **To cite this version:**

Samuel Peillon. Influence des effets électrostatiques liés à la radioactivité sur les forces d'adhésion et sur la mise en suspension de particules métalliques. Physique [physics]. Sorbonne Université, 2020. Français. NNT : 2020SORUS400 . tel-03575598v2

HAL Id: tel-03575598

https://theses.hal.science/tel-03575598v2

Submitted on 15 Feb 2022

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

SCIENCES SORBONNE UNIVERSITÉ

Influence des effets électrostatiques liés à la radioactivité sur les forces d'adhésion et sur la mise en suspension de particules métalliques

Thèse de doctorat de Sorbonne Université

Ecole doctorale n° 397, Physique et Chimie des Matériaux
Spécialité : Physique
Unités d'accueil : Institut des Nanosciences de Paris, UMR 7588
Laboratoire de Physique et Métrologie des Aérosols, IRSN

Thèse présentée et soutenue publiquement à Paris, le 26 octobre 2020, par

Samuel Peillon

pour obtenir le grade de Docteur de Sorbonne Université

Devant le jury composé de :

Mme Emmanuelle Lacaze Directrice de recherche, CNRS - Sorbonne Université	Présidente
M. Alfred Weber Professeur, Université de Clausthal	Rapporteur
M. Khaled Hassouni Professeur, Université Paris 13 - CNRS	Rapporteur
Mme Rosine Coq Germanicus Maître de conférences, Normandie Université UNICAEN - CRISMAT	Examinatrice
M. Olivier Pluchery Professeur, Sorbonne Université	Directeur
M. Christian Grisolia Directeur de recherche, CEA	Co-directeur
M. François Gensdarmes Ingénieur chercheur, IRSN	Invité

Thèse de doctorat

Seul dans la nuit, dans une vaste et sombre forêt,
Je ne dispose que d'une petite bougie pour m'éclairer.
Survient un inconnu qui me dit : "Souffle ta bougie, tu y verras bien mieux."
Georges Charpak.

L'Univers – gravure sur bois anonyme.
C. Flammarion, Paris 1888.

Remerciements

J'ai commencé ce projet de thèse 6 ans après mon arrivé à l'IRSN en tant qu'ingénieur. J'ai donc été un « vieux » thésard mais je suis maintenant un jeune docteur et je ne regrette absolument pas ce retour tardif à la fac ! Les remerciements que j'adresse ici dépassent donc un peu le cadre de mon travail de thèse.

Mes premiers remerciements vont à mes deux directeurs de thèse MM. Olivier Pluchery et Christian Grisolia. Merci Olivier pour ton encadrement de très haut niveau et pour la confiance que tu m'as accordé. Avec mes grosses particules de tungstène radioactives on est loin de l'orfèvrerie dont tu as l'habitude avec tes nanoparticules d'or. Que viendrai faire un spécialiste comme toi dans la sûreté des tokamaks ? Le sujet était pour toi exotique mais a sûrement piqué ta curiosité et je te remercie de m'avoir accompagné dans cette aventure. J'ai découvert (une petite partie) des nanosciences grâce à toi et à ta grande pédagogie. J'ai hâte de revoir, en haute définition et en couleur, ces constellations de nanoparticules d'or qui te passionnent tant.
Christian, tu m'as fait découvrir ces drôles de machines que sont les tokamaks. Bientôt 10 ans que l'on travaille ensemble et c'est toujours aussi enrichissant et excitant. Un grand merci pour ton excellence scientifique, ton aisance face aux difficultés et ton encadrement. Tu as su piloter mon travail à distance avec brio et me rassurer en quelques secondes lorsque j'avais des doutes. Une grande partie du travail présenté dans ce manuscrit n'aurait pas vu le jour sans toi. Tu y crois et ça fait du bien !

J'adresse toute ma reconnaissance à mon chef de laboratoire et encadrant de thèse, M. François Gensdarmes, pour m'avoir permis de réaliser ce doctorat dans des conditions plus qu'idéales. Merci François pour ta confiance et ton soutien dans mes choix au cours de ces dernières années.

Je souhaite remercier sincèrement mes deux rapporteurs, MM. Khaled Hassouni et Alfred Weber qui ont lu, analysé et commenté avec attention et rigueur mon travail. Qu'ils soient ici remerciés pour la pertinence de leurs remarques et la qualité de nos échanges, j'espère que nous aurons de nouvelles occasions de discuter ensemble. Alfred, merci pour ton enthousiasme et ton œil expert, cela sera un plaisir de te revoir aux prochaines conférences sur les aérosols ou au laboratoire.

Je remercie chaleureusement Mme Rosine Coq Germanicus d'avoir examiné consciencieusement, et semble-t-il avec plaisir, mes écris. Que ce soit sous le soleil de Carry-le-Rouet ou à Jussieu, j'ai beaucoup apprécié nos discussions et j'espère que nous aurons d'autres occasions de parler de KPFM. Toute ma gratitude à la présidente de ce jury, Mme Emmanuelle Lacaze, que j'étais venu embêter il y a 4 ans avec mes histoires de poussières dans les tokamaks. Ma pugnacité a été de très courte durée puisque tu as tout de suite pris le temps de m'écouter et proposer de collaborer. Encore merci pour ton accueil à l'INSP et ton dynamisme contagieux.

Durant ces trois années de thèse, une partie de mes travaux ont eu lieu à l'Institut des Nanosciences de Paris sur le campus de Jussieu. J'adresse donc un grand merci aux membres de l'équipe Physurf pour leur accueil chaleureux et leur intérêt dans mes travaux. Je tiens à remercier particulièrement Hervé pour m'avoir initié à l'AFM et pour les discussions toujours sympathiques en salle de manip ou au bar. Merci également à Emmanuel pour ton dynamisme très communicatif et pour les bières partagées ensemble. Merci aux anciens doctorants, Léo, l'artiste à la force tranquille, Alberto, le montagnard italien (Albi chi vediamo presto !), Clément, le sorcier infrarouge (alors tu l'as attrapé ce roadrunner ?), Bertille, ma coach particulière pour ma thèse en 180s ! Merci à Angeline, Kelly, Tomas et Hélène pour la bonne ambiance dans notre grand bureau, à Charlie et Audrey pour les repas et les bières partagées au Baker. Violette et Ronan, merci pour vos précieux conseils et pour l'organisation des bonnes raclettes ! Enfin, je transmets toute ma sympathie aux (nombreux) doctorants de l'INSP que j'ai pu croiser durant ces trois années.

Retour à Saclay où j'aimerai d'abord remercier Bernard, Sophie, Greg, Mickaël et Seb du laboratoire tritium de l'institut Joliot qui m'ont si bien accueilli. Merci Mickaël pour ton aide précieuse sur ces manips tritium si délicates. Tu étais toujours partant et prêt à m'aider et c'était un plaisir de faire ce travail avec toi ! Seb, tu es le pro incontesté de la boîte gants, merci pour ton sens pratique et ta dextérité avec mes plaquettes en verre.

Je tiens ensuite à remercier mon chef de service, M. Laurent Bouilloux, pour sa bienveillance et sa disponibilité ainsi que l'équipe des RapTouts (Éric et Jean-Claude) toujours enthousiastes et présents quand il faut. Tous les documents que j'ai écrits seraient bourrés de fautes sans les relectures assidues de Laurent Ricciardi. Promis Laurent, je vais essayer de me réconcilié avec la conjugaison. Merci beaucoup à Céline pour les dossiers de transport de sources radioactives (franchement je ne les aurais pas fait sans toi) et pour les pronostics footballistiques toujours gagnants ! Grégoire, doudou, merci pour ces beaux calculs MC et pour le rock dans EPICEA. Compter des particules en écoutant Led Zep c'est quand même bien mieux !

Merci aux nouvelles fées du MEB Cécile et Bernadette, capable de trouver une particule dans une botte de filtres. Promis ça n'arrivera plus ! Audrey, tu es la première avec qui j'ai

travaillé en arrivant à Saclay. Dès 2011 ont étaient ensemble à Tore-Supra pour « faire la poussière ». Merci également pour ton aide sur les vents capricieux de BISE. Bondix, merci pour ta présence joyeuse (en combi tyvek ou en combi Adidas) toutes ces années. Au plaisir de te revoir sur Saclay. Benoît, on a commencé ensemble et ma foi on n'a pas trop changé hein ! Merci pour tes impressions 3D toujours nickel, pour tes dépannages au garage Volvo des Ulis et pour ta sympathie constante. Merci également aux normands, Sylvain et Laure pour vos conseils brico et pour votre bon cidre. Stéphane, c'est l'heure de manger ! Merci de ne pas nous avoir déjà tous irradié. Je ne sais pas comment tu arrives à faire toutes ces décorations d'halloween mais je sais qu'avec toi, madame IRMA restera bien sage dans son château. Hortense, merci pour nos moments Tea time, pour me mettre enfin à la page, et pour ton amitié toutes ces années (Romi-blochon et Iris-boulba sont trop choux). FX, en plus d'être un cheval de course tu es un aérosoliste professionnel qui m'as aidé à faire mes gammes plus d'une fois ! Merci pour tous ces bons moments, que ce soit dans les suies d'un turboréacteur, au concert de notre Pink Floyd préféré ou dans les bars suédois ! Pascal, merci pour tes conseils toujours affutés et pour ta bienveillance toutes ces années. Thomas, tu simules mieux que personne ! Je crois que je te dois toujours un paquet de tagada mais si tu veux bien on remplacera ça par du champagne. Mamadou, merci pour nos discussions électrostatique toujours intéressantes. Mister Mouheb, t'es le nouveau papa de Persée ! C'est un plaisir de te revoir parmi nous et on se retrouve bientôt pour un sushi sur Paris !

Évidemment, un grand merci à mes compagnons de galère, Gwenaël et Amel. On a franchi toutes les étapes ensemble, et c'était super de vous avoir ! Gwen, t'es le best coloc des journées des thèses et tu as tout déchiré, encore bravo ! Je te souhaite le meilleur pour ta nouvelle vie en Rhône-Alpes. Amel, merci pour ta bonne humeur, pour les gâteaux et les viennoiseries du matin et pour ta gentillesse. C'est super que tu restes avec nous au LPMA. Je salue aussi chaleureusement mes camarades doctorants de l'IRSN, Jonathan (almost done !) Léo, Lina, Hantao, Marie, Moudou, Delphine, Zeinab, sans oublier la team du sud, Elsa, Elizabeth, Noémie et Loïc. Bon courage à vous tous !

Je souhaite remercier très affectueusement Jean-Christophe. La retraite ne t'a pas éloigné et j'étais très heureux de te voir parmi nous à la soutenance. Chaque fois que je venais discuter dans ton bureau, je regardai cette gravure qui est en première page et qui te représente si bien. La curiosité ne t'a jamais quitté et je te dois en grande partie le plaisir de faire des sciences. Depuis notre première rencontre au Christ de Saclay juste après Fukushima, aux nombreux co-voiturages ensemble, tu m'as toujours encouragé à faire une thèse. C'est chose faite et j'espère te revoir bientôt sur notre butte pour parler des volcans, des voyages, de la vie et surtout de sciences !

Merci à mes amis de toujours, Lucas, Nathan, Camille, Mario et Rébia qui sont venus braver le couvre-feu (aux abris !) et la tempête virale. J'ai finalement « payé » ma thèse comme

dirait l'autre ! C'était un bonheur de vous avoir avec moi le jour de la soutenance. J'essaie de vous faire un cours « le tokamak pour les nuls » dès qu'on se voit. Merci également à ceux qui n'ont pas pu se déplacer mais qui ont suivi la soutenance en visio, les cousines, la famille de Washington, les amis d'Italie, de suisse et d'Allemagne. On trinque ensemble bientôt !

Un merci ému à mes parents, deux littéraires qui se demandent ce que je fabrique, à ma belle-mère, toujours présente quand il faut, à mes sœurs qui m'ont toujours encouragé, et à mon petit frère qui est prêt à prendre la relève scientifique de la famille. Infine, grazie mille Giulia per il tuo immancabile supporto in tutti questi anni e per la strada che abbiamo fatto insieme, oltre i confini, e che continua a farmi crescere.

Table des matières

Remerciements i

Introduction xi

1 Enjeux énergétiques et sûreté des tokamaks 1
1.1 Fonctionnement des réacteurs de fusion 4
1.1.1 La fusion thermonucléaire 4
1.1.2 Le projet ITER 6
1.1.2.1 Présentation générale 6
1.1.2.2 Les principaux éléments d'un tokamak 6
1.2 Le tritium : gestion et toxicité 9
1.2.1 Origines du tritium 10
1.2.1.1 Origines naturelles 10
1.2.1.2 Origines anthropiques 11
1.2.2 Dosimétrie et contamination 12
1.2.2.1 Effets des rayonnements ionisants 13
1.2.2.2 Le concept de dose en radioprotection 13
1.2.2.3 Voies de contamination par le tritium 14
1.2.3 Effets biologiques et toxicité 15
1.3 Les poussières dans les tokamaks 16
1.3.1 Mécanismes de production 18
1.3.1.1 La pulvérisation ou *sputtering* 19
1.3.1.2 La fusion et la vaporisation 20
1.3.1.3 Le cloquage ou *blistering* 20
1.3.1.4 La fissuration et l'érosion 21
1.3.2 Exemples de particules produites dans les tokamaks métalliques . . . 22
1.3.3 Particules formées dans le tokamak JET 23
1.3.4 Explosion de poussières et dispersion dans l'environnement 27
1.4 Auto-chargement électrostatique des poussières dû au tritium 28
1.4.1 Principe de l'auto-chargement pour un émetteur béta 28
1.4.2 Lévitation de particules radioactives dans les tokamaks 29
1.5 Conclusion du chapitre 32

2 Les interactions particule/surface **33**
2.1 Une compétition sur plusieurs échelles . . . 36
2.2 Les forces de van der Waals . . . 36
2.2.1 Théorie de Hamaker . . . 38
2.2.2 L'énergie surfacique d'adhésion . . . 40
2.2.3 Mécanique du contact . . . 41
2.2.3.1 Le modèle JKR . . . 42
2.2.3.2 Le modèle DMT . . . 43
2.2.4 Prise en compte de la rugosité . . . 45
2.2.5 Le modèle de Rumpf . . . 45
2.2.6 Le modèle de Rabinovich . . . 48
2.3 Les forces capillaires . . . 51
2.3.1 Approximation pour une particule micrométrique . . . 53
2.3.2 Effet(s) de la nature des surfaces sur les forces capillaires . . . 54
2.3.3 Effet du potentiel électrique sur les forces capillaires . . . 56
2.4 Les forces électrostatiques . . . 58
2.4.1 Cas d'une particule conductrice . . . 59
2.4.2 Cas d'une particule diélectrique . . . 60
2.4.3 Cas d'une particule conductrice recouverte d'une couche diélectrique 62
2.4.4 Effet(s) de la radioactivité sur l'adhésion . . . 65
2.5 Résumé et conclusion du chapitre . . . 68
2.5.1 Bilan des forces . . . 68
2.5.2 Conclusion du chapitre . . . 69

3 Caractérisation des poussières et des surfaces **71**
3.1 Méthode de collecte . . . 72
3.1.1 Conception et fabrication de la Duster Box . . . 73
3.1.2 Qualification aéraulique . . . 75
3.1.2.1 Simulation numériques avec CFX . . . 75
3.1.2.2 Mesure des vitesses de frottement locales par anémométrie haute fréquence . . . 76
3.2 Campagnes de prélèvements dans le tokamak WEST . . . 81
3.2.1 Utilisation de la Duster Box . . . 83
3.2.1.1 Remise à l'air de la machine . . . 84
3.2.1.2 Stratégie de prélèvements . . . 84
3.2.2 Analyses physico-chimiques des échantillons . . . 86
3.3 Poudres analogues pour le travail en laboratoire . . . 90
3.3.1 Fabrication et conditionnement des poudres . . . 90
3.3.2 Analyses physico-chimiques . . . 91
3.3.2.1 Granulométries . . . 91
3.3.2.2 Mesures de la surface spécifique . . . 92

3.3.2.3 Analyse XPS des particules de tungstène . . . 93
3.3.2.4 Mesure de la densité des poudres de tungstène . . . 94
3.4 Les substrats en tungstène . . . 94
3.5 Conclusion du chapitre . . . 96

4 La mesure des forces d'adhésion 97
4.1 Mesures indirectes sur un ensemble de particules . . . 100
4.1.1 Détachement centrifuge . . . 100
4.1.2 Détachement électrostatique . . . 102
4.2 La microscopie à force atomique (AFM) . . . 103
4.2.1 Mesures de topographies et de rugosités . . . 103
4.2.1.1 Rugosités Ra et Rq . . . 104
4.2.1.2 Topographies des surfaces . . . 105
4.2.1.3 Paramètres de rugosité des surfaces . . . 107
4.2.2 Principe du mode PF-QNM . . . 109
4.2.3 Fonctionalisation des leviers AFM . . . 110
4.2.4 Calibration des leviers AFM . . . 112
4.2.4.1 La sensibilité de la déformation verticale ou *deflection sensitivity* . . . 112
4.2.4.2 La constante de raideur . . . 113
4.3 Considérations pratiques pour la mesure en mode PF-QNM . . . 114
4.3.1 Distributions des forces d'adhésion . . . 114
4.3.2 Présence d'impuretés lors des mesures . . . 116
4.3.3 Influence de l'humidité . . . 117
4.4 Estimation de la constante de Hamaker . . . 122
4.4.1 Méthode du "saut au contact" . . . 122
4.4.2 Courbe de phase/distance . . . 124
4.4.3 Force de détachement avec prise en compte de la rugosité . . . 126
4.5 Comparaison avec le modèle de Rabinovich . . . 129
4.5.1 Surface en verre . . . 129
4.5.2 Surface en tungstène poli miroir . . . 131
4.5.3 Surface en tungstène de rugosité intermédiaire . . . 134
4.5.4 Surface en tungstène rugueuse . . . 135
4.6 Conclusion du chapitre . . . 135

5 Mesure de l'état de charge de particules radioactives par KPFM 137
5.1 Tritiation des poudres . . . 140
5.1.1 Procédure de chargement . . . 140
5.1.2 Absorption/désorption du tritium . . . 141
5.1.2.1 Poudres de tungstène sphériques . . . 141
5.1.2.2 Poudres de tungstène variées . . . 142
5.1.2.3 Poudre d'acier . . . 144

5.1.3 Préparation des échantillons . . . 145
5.2 Mesure du potentiel de surface par KPFM . . . 148
5.2.1 Principe du Mode KPFM (Klevin Probe Force Microscopy) . . . 149
5.2.2 Les deux modes de mesures AM et FM . . . 150
5.2.3 Comparaison des deux modes AM et FM . . . 152
5.2.4 Travaux de sortie . . . 153
5.2.4.1 Travail de sortie de la pointe AFM . . . 153
5.2.4.2 Travaux de sortie des échantillons . . . 154
5.3 Mesures de la différence de potentiel de contact (CPD) . . . 155
5.3.1 Mesure de la CPD relative sur des particules d'acier . . . 156
5.3.2 Mesure de la CPD relative sur des particules de tungstène . . . 159
5.3.3 Interprétation des résultats . . . 160
5.3.3.1 Cas des particules neutres . . . 160
5.3.3.2 Cas des particules radioactives . . . 162
5.3.3.3 Commentaires et perspectives . . . 163
5.4 Évaluation du taux d'auto-chargement par simulations Monte Carlo . . . 165
5.4.1 Probabilité d'échappement des électrons . . . 165
5.4.2 Taux d'auto-chargement des particules . . . 166
5.4.3 Auto-chargement sous vide . . . 167
5.4.4 Auto-chargement à l'air ambiant . . . 167
5.5 Conclusion du chapitre . . . 169

6 Mesure de l'adhésion de particules radioactives via des écoulements d'air 171
6.1 Étude de l'adhésion par des écoulements d'air . . . 173
6.1.1 Les forces aérodynamiques . . . 173
6.1.1.1 La force de portance . . . 174
6.1.1.2 La force de traînée . . . 174
6.1.2 Modélisation de la mise en suspension . . . 175
6.1.2.1 Le modèle de balance de forces . . . 176
6.1.2.2 Le modèle Rock'n roll . . . 177
6.2 Mise en place des expériences . . . 179
6.2.1 Réalisation des dépôts monocouches . . . 179
6.2.2 Procédure expérimentale . . . 181
6.3 Détermination de la fraction mise en suspension . . . 182
6.3.1 Procédure de comptage . . . 182
6.3.2 Fraction mise en suspension en fonction de la vitesse de frottement . 183
6.4 Résultats des expériences de mise en suspension . . . 184
6.4.1 Comparaison avec la littérature . . . 184
6.4.2 Comparaison avec le modèle Rock'n roll . . . 185
6.4.3 Influence de la radioactivité . . . 186
6.4.4 Mesures des forces d'adhésion . . . 187

6.5 Conclusion du chapitre 190

7 Conclusions générales et perspectives **193**

Annexe A **199**

1 La microscopie à force atomique (AFM) 199

1.1 Mode contact 200

1.2 Modes dynamiques 200

1.3 Tapping mode 201

Annexe B : Techniques et appareils de mesure **205**

1 Le granulomètre Aerosizer PSD 3603 205

2 Mesure de la surface spécifique selon la méthode BET 206

3 Mesure de la composition chimique des poudres par XPS 208

4 Mesure de la densité des poudres par pycnométrie hélium 209

Liste des figures **211**

Liste des tableaux **217**

Liste des publications et communications **219**

Bibliographie **223**

Introduction

L'évolution et la croissance de nos sociétés modernes sont intimement liées aux sources d'énergies à notre disposition et à notre capacité à les exploiter. Depuis presque un siècle, la consommation de ressources fossiles (charbon, gaz, pétrole) pour la production d'énergie est en constante augmentation et atteignait, en 2017, 81 % du mix énergétique global soit environ 11 500 millions de tonnes équivalent pétrole. Cette addiction au carbone s'est accompagnée d'une très forte augmentation des émissions anthropiques de gaz à effet de serre (GES), ces émissions passant de 10 milliards de tonnes (Gt) de CO_2 par an en 1950 à 33 $GtCO_2$/an en 2017. Dans son 5^{e} rapport d'évaluation, le Groupe d'experts intergouvernemental sur l'évolution du climat (GIEC) conclu ainsi : "Le réchauffement du système climatique est sans équivoque et, depuis les années 1950, beaucoup de changements observés sont sans précédent depuis des décennies voire des millénaires. L'atmosphère et l'océan se sont réchauffés, la couverture de neige et de glace a diminuée, et le niveau des mers s'est élevé".

Face à ce constat, le développement de solutions renouvelables comme les énergies hydraulique, solaire et éolienne est en augmentation constante et offre une alternative écologique aux combustibles fossiles. Cependant, ces énergies renouvelables souffrent de leur dépendance aux conditions météorologiques et leur utilisation des sols reste élevée en raison de leur faible densité énergétique. En conséquence, leur part dans le mix énergétique global reste faible et est évaluée par l'Agence International de l'Énergie à environ 4 % en 2017 (sans compter la biomasse traditionnelle : bois de chauffage, déchets, etc.).

Choisie comme troisième alternative à partir du début des années 1970, la production d'électricité basée sur la fission nucléaire n'a cessé de se développer pour atteindre environ 11 % dans le mix énergétique global. Cette industrie, déjà quinquagénaire, exploite la fission de l'uranium et du plutonium se produisant dans environ 450 réacteurs à travers le monde. La grande quantité de minerai d'uranium dans la croute terrestre, la densité énergétique très importante du combustible nucléaire (1 g d'uranium 235 contient autant d'énergie que 2 tonnes équivalent pétrole) ainsi que l'absence de rejets de GES de ses centrales ont favorisé son essor jusqu'à aujourd'hui. Cependant, cette industrie génère des déchets radioactifs à vie longue et haute activité pour lesquels aucune solution, mis à part le stockage, n'est à ce jour proposée.

Dans ce contexte, l'idée d'utiliser la fusion nucléaire pour produire de l'électricité s'est peu à peu concrétisée pour aboutir, au début des années 2000, au projet ITER et à la construction du plus grand réacteur de fusion au monde non loin du site du CEA de Cadarache. Suivant un processus semblable à celui ayant lieu à l'intérieur des étoiles, la fusion d'isotopes de l'hydrogène libère une très grande quantité d'énergie qui pourrait être utilisée par des réacteurs appelés tokamak pour produire de l'électricité. Sur terre, la réaction de fusion la plus avantageuse est celle qui implique des atomes de deutérium et de tritium qui, en fusionnant, produiront de la chaleur, un neutron et un atome d'hélium. Le deutérium est naturellement présent en abondance dans l'eau des océans (300 litres d'eau de mer contiennent 1 g de deutérium). En revanche, le tritium n'est pas présent à l'état naturel car cet élément radioactif à une faible demi-vie (environ 12 ans). Il peut cependant être généré à partir du lithium qui est très abondant dans la croute terrestre. Le produit de la réaction, l'hélium, est inoffensif pour l'homme et seuls les composants structurels de la machine, activés par les neutrons ou piégeant du tritium, formeraient les déchets radioactifs de la filière. Les promesses de cette technologie naissante (disposer d'une source d'énergie propre et illimitée) sont donc à la hauteur des enjeux énergétiques auxquels nos sociétés feront face dans les décennies à venir mais sa faisabilité doit encore être démontrée. C'est là tout l'enjeu du projet ITER.

Dans le cadre de la construction de ce futur réacteur de fusion, il est important pour l'Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN) de développer les connaissances permettant de mener à bien l'expertise de sûreté de cette installation nucléaire de base (INB). Pour évaluer la sûreté des installations nucléaires et la pertinence des mesures de radioprotection associées, une étape importante consiste à déterminer les termes sources de contamination en fonctionnement normal et pour différents scénarios d'accidents. Dans l'hypothèse d'une contamination sous forme de poussières ou d'aérosols, ces termes sources sont calculés en utilisant des coefficients de mise en suspension qui relient la quantité de particules émises à la quantité initiale mise en jeu, en fonction du scénario accidentel considéré. En conditions de fonctionnement normal du réacteur ITER, il est attendu quelques centaines de kilogrammes de poussières contenant du béryllium (Be) et du tungstène (W) qui seront produites suite à l'érosion des parois de la chambre à vide par le plasma. Ces poussières seront soumises aux conditions présentes dans le réacteur et peuvent donc être radioactives (tritium et produits d'activation) ou présenter une toxicité chimique aiguë (béryllium), ou encore constituer, avec l'air ou la vapeur d'eau, un mélange potentiellement explosif. La technologie des tokamaks ainsi que les problématiques liées aux poussières produites dans ces réacteurs seront développées plus en détails au **chapitre 1**.

La mobilité de ces poussières nocives et leur confinement dans le cas d'un accident sont devenus, au fil des années, un sujet majeur pour l'évaluation de sûreté de l'installation ITER. Cependant, le comportement de ces particules reste difficile à évaluer en particulier dû à un manque de connaissance sur l'évolution des forces d'adhésion entre les dépôts

de particules et les surfaces sur lesquelles elles sont déposées. De plus, les poussières radioactives peuvent s'auto-charger électriquement sous l'effet du rayonnement ionisant des radionucléides qu'elles incorporent. Les particules ainsi chargées peuvent être soumises à des forces électrostatiques pouvant affecter leur adhésion et modifier leur comportement une fois en phase aérosol. Les différentes forces qui interviennent dans l'adhésion de particules sur des surfaces seront abordées au **chapitre 2**. En particulier, nous verrons comment l'intégration d'un élément radioactif tel que le tritium peut modifier l'équilibre de ces forces en favorisant les interactions électrostatiques.

L'étude des forces d'adhésion et de la mise en suspension de particules métalliques incorporant du tritium déposées sur des surfaces représentative d'un environnement tokamak sont les objectifs principaux de mon travail de thèse. Ce travail a essentiellement été effectué au Laboratoire de Physique et Métrologie des Aérosols (LPMA) de l'IRSN et à l'Institut des Nanosciences de Paris. Il s'est inscrit, pour moitié, dans le cadre du projet STANDS dont j'avais la charge.

Le projet STANDS

Porté par l'IRSN et le CEA, nous avons construit au cours de l'année 2016 un projet de recherche sur l'adhésion et la mise en suspension des poussières tritiées produites en tokamak. Ce projet nommé STANDS [1] rassemble une quinzaine de personnes issues de plusieurs laboratoires français (CNRS, CEA, IRSN) et d'un laboratoire roumain (INFLPR). J'ai été chargé de rédiger et organiser ce projet en réponse à l'appel à projet *Enabling Research* (ER) du consortium européen EUROfusion. Ce consortium est missionné par EURATOM pour rassembler et développer la recherche européenne sur la fusion dans le cadre du plan "Horizon 2020".

Figure 1 – Logo du projet STANDS.

Constitué des différents instituts de recherche sur la fusion des pays de l'Union Européenne et de la Suisse, le consortium finance des projets de recherche en lien avec la fusion et

1. Study of Tritiated and non tritiated dust Adhesion/re-suspensioN on Dedicated Surfaces.

répartis dans plusieurs *work packages*. Les deux *work packages* concernés par nos travaux sont :

- WP PFC (*Preparation of efficient use of PFCs for ITER and DEMO*) qui couvre le cycle complet de l'érosion, du transport et du dépôt des matériaux qui font face au plasma et qui se transforment en poussières.
- WP SAE (*Safety and Environment*) dont le but est d'estimer l'inventaire tritium présent dans les poussières de la chambre à vide et de développer des stratégies pour minimiser cet inventaire.

Le projet STANDS a été accueilli favorablement par EUROfusion et a officiellement commencé le 1er janvier 2017 pour une durée de 2 ans.

Organisation de la thèse

La première moitié de ma thèse a suivi le programme de STANDS me permettant de profiter des collaborations et des résultats issus du projet pour mes travaux. Le projet STANDS était divisé en quatre tâches :

- La première tâche était de construire et caractériser un appareil aéraulique pour faire des prélèvements de poussières dans un tokamak puis analyser ces poussières. J'ai entièrement pris en charge la réalisation de cette tâche en partenariat avec les équipes du CEA pour les prélèvements dans le tokamak WEST. La majeure partie des résultats acquis durant cette tâche sera présentée dans le **chapitre 3**.
- Sur la base des résultats obtenus dans la première phase, la seconde tâche avait pour objectif de produire, à l'aide de différentes techniques, des particules de tungstène en quantités suffisantes pour réaliser des expériences en laboratoire. Ces tâches comprenait également la fabrication de substrats en tungstène de différentes rugosités. Ces travaux ont été effectué par les équipes des deux laboratoires du CNRS (LSPM et LP3) et du laboratoire roumain (INFLPR). J'ai ensuite effectué le choix des poudres simulantes ainsi que les mesures de rugosité sur les substrats. Ces résultats seront présentés dans les **chapitres 3 et 4**.
- Une fois les poudres et surfaces adéquates fabriquées, la troisième tâche avait pour objectif d'incorporer du tritium dans ces poudres de tungstène et de réaliser des expériences de mise en suspension aéraulique en boite à gants. J'ai effectué ces actions en partenariat avec l'équipe du laboratoire tritium de l'Institut Joliot du CEA/Saclay. Je présenterai ces expériences et les analyses associées dans les **chapitres 5 et 6**.
- Les résultats de ces expériences (quantités de tritium absorbé dans les poudres et coefficients de mise en suspension pour des particules de tungstène radioactives) ont servi de données d'entrée pour un modèle de mise en suspension exploité par l'IRSN. Ce travail sera présenté au **chapitre 6**.

L'organisation et les différentes tâches du projet sont résumées dans la figure 2. Les col-

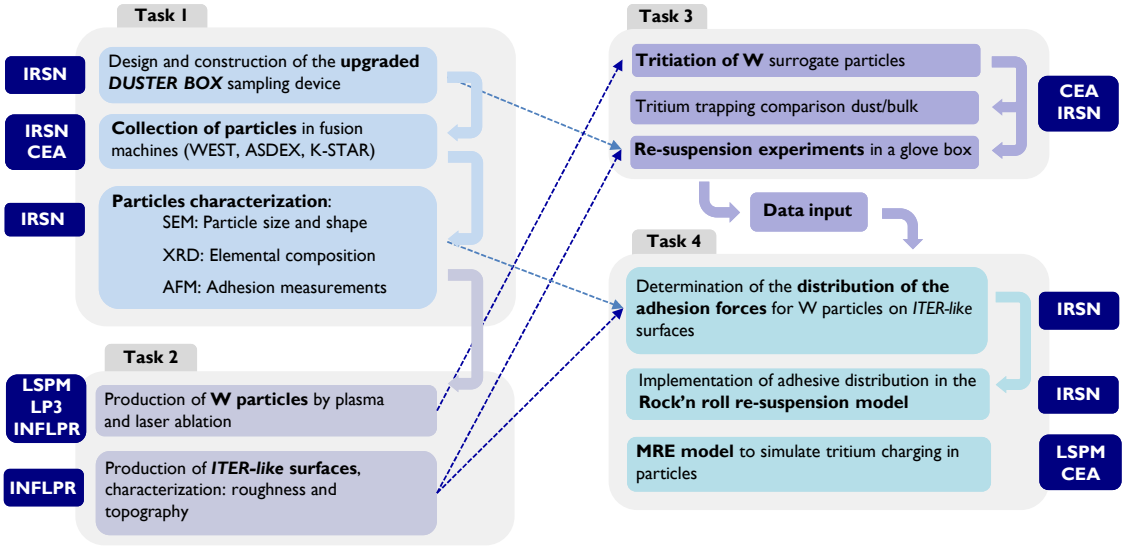

Figure 2 – Organisation du projet STANDS

laborations scientifiques et les travaux entrepris durant le projet STANDS m'ont permis de disposer d'échantillons de particules et de surfaces en tungstène pour la deuxième partie de mon travail de thèse. Cette partie concerne l'étude de l'adhésion de ces particules de tungstène pour plusieurs configurations :

— lorsqu'elles sont en contact avec des surfaces en tungstène dont la rugosité est maîtrisée. La technique de mesure employée (microscopie à force atomique) et les résultats obtenus seront abordés en détails au **chapitre 4** ;

— lorsque les particules sont radioactives suite à leur chargement en tritium. J'ai étudié cette configuration à l'aide d'une technique de microscopie à sonde de Kelvin (KPFM) qui fera l'objet du **chapitre 5**.

Les travaux que je présente dans ce manuscrit ont pour objectif de montrer l'importance de la mesure des forces d'adhésion dans l'évaluation des quantités de poussières pouvant être mise en suspension pour un scénario d'accident tel que la perte de confinement dans un tokamak. Pour cela, je vais utiliser différentes techniques expérimentales telles que la microscopie à force atomique et à sonde de Kelvin, la microscopie optique, des caractérisations physico-chimiques par XPS et EDS où encore des comptages par scintillation liquide. La diversité des études expérimentales réalisées au cours du projet STANDS et durant mon travail de thèse nécessitent de décrire ces sujets dans différentes parties indépendantes. J'ai donc choisi d'organiser ce manuscrit par chapitre avec, au début de chacun, des rappels sur les techniques et méthodes expérimentales utilisées.

Combiné à ces techniques expérimentales, j'ai cherché à modéliser les principaux phénomènes (adhésion, auto-chargement et mise en suspension) à l'aide de modèles analytiques ou numériques. Je souhaite ainsi montré comment mesurer ces forces et quels sont les paramètres (forme des particules, nature et rugosité des matériaux, charge électrique) à maîtriser pour mener à bien des études de sûreté et modéliser les phénomènes de mise

en suspension de poussières. Car la maîtrise des poussières dans une installation comme ITER, en particulier lorsque ces poussières sont chargées en tritium, est une étape indispensable pour le bon fonctionnement et le développement de cette nouvelle technologie. Les quantités de tritium devant être utilisées dans ces futures machines seront importantes et nous allons voir qu'une partie de cet inventaire en tritium se retrouve dans les poussières produites au cœur du tokamak. Il est bien sûr difficile d'anticiper les propriétés physico-chimiques des poussières qui seront produites dans ITER avant sa mise en service prévue pour 2024. Mais les résultats expérimentaux que j'ai obtenus et les méthodes d'analyses utilisées au cours de ce travail de thèse apporterons certains éléments de réponse sur la nature et le comportement de ces poussières.

Chapitre 1

Enjeux énergétiques et sûreté des tokamaks

Sommaire du chapitre

1.1 Fonctionnement des réacteurs de fusion 4
1.1.1 La fusion thermonucléaire 4
1.1.2 Le projet ITER 6
1.2 Le tritium : gestion et toxicité 9
1.2.1 Origines du tritium 10
1.2.2 Dosimétrie et contamination 12
1.2.3 Effets biologiques et toxicité 15
1.3 Les poussières dans les tokamaks 16
1.3.1 Mécanismes de production 18
1.3.2 Exemples de particules produites dans les tokamaks métalliques . 22
1.3.3 Particules formées dans le tokamak JET 23
1.3.4 Explosion de poussières et dispersion dans l'environnement . . . 27
1.4 Auto-chargement électrostatique des poussières dû au tritium 28
1.4.1 Principe de l'auto-chargement pour un émetteur béta 28
1.4.2 Lévitation de particules radioactives dans les tokamaks 29
1.5 Conclusion du chapitre 32

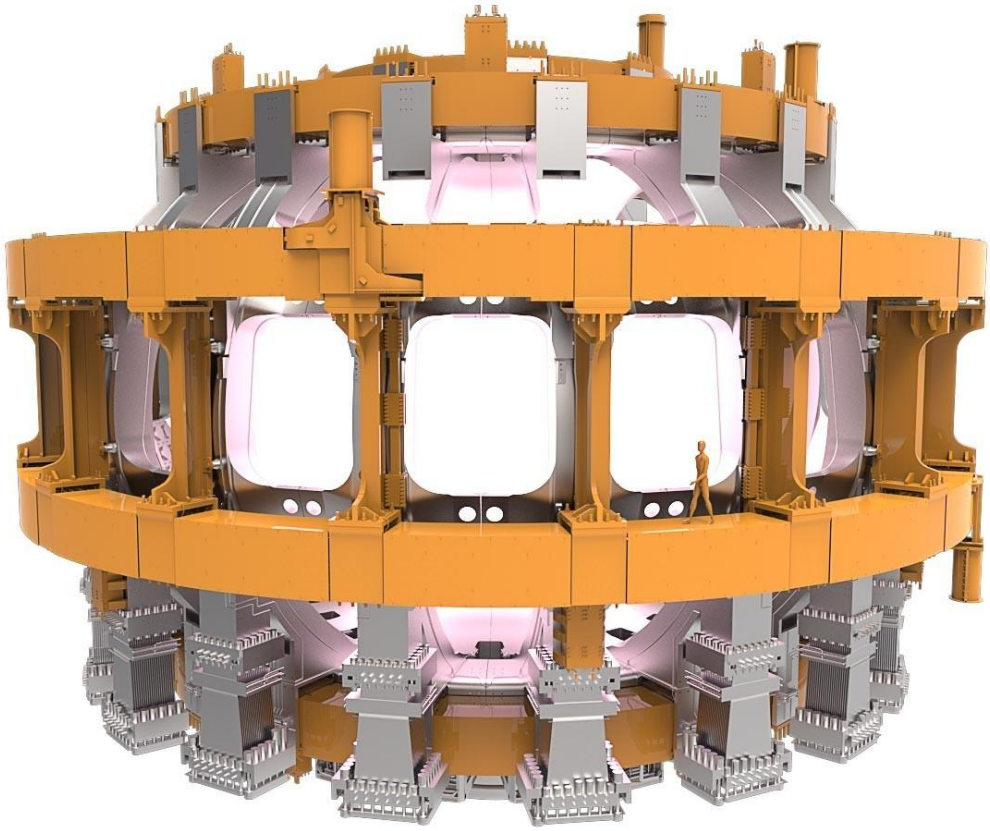

Figure 1.1 – Représentation 3D de la chambre à vide d'ITER avec un plasma. Les bobines de champ poloïdal sont colorées en orange. Sources : www.iter.org.

Qu'est ce que la fusion thermonucléaire et à quoi sert un tokamak ? Pourquoi utilise-t-on le terme nucléaire et quels sont les risques associés à cette machine ? Ce premier chapitre est l'occasion de replacer mes recherches dans leur contexte et de présenter, de manière succincte, les enjeux techniques mais aussi de sûreté, des réacteurs de fusion. Après avoir rappelé les grands principes de la fusion thermonucléaire et des réacteurs de type "tokamak", je ferai une présentation plus détaillée du tritium, isotope radioactif de l'hydrogène, utilisé dans les réactions de fusion pour produire de l'énergie. Nous verrons que cet élément, bien que faiblement radioactif, pose de nombreux problèmes de sûreté et de radioprotection. En particulier, la formation de poussières toxiques et radioactives lors du fonctionnement de ces machines est un sujet qui fait débat et sur lequel se cristallisent les questions liées aux risques radiologiques. Ainsi, j'aborderai les mécanismes de formation de ces poussières, les caractéristiques physico-chimiques de celles retrouvées dans les tokamaks actuellement en fonctionnement et les scénarios d'accident menant à leur dispersion. Enfin, nous verrons que ces poussières radioactives peuvent s'auto-charger électriquement sous l'action du rayonnement béta et ainsi modifier leur adhésion aux surfaces ou leur mobilité lorsqu'elles sont sous forme aérosols.

1.1 Fonctionnement des réacteurs de fusion

1.1.1 La fusion thermonucléaire

La fusion nucléaire est un processus où deux noyaux atomiques légers s'assemblent pour former un noyau plus lourd. Ce processus est la réaction inverse de la fission nucléaire utilisée actuellement dans les centrales pour produire de l'électricité. C'est cette réaction de fusion qui est à l'œuvre dans les étoiles et qui a permis de créer les éléments lourds nécessaires à l'apparition des planètes et de la vie. Dans les étoiles, la force qui permet et entretient ces réactions de fusion nucléaire est la force de gravité. Sur terre, il est impossible d'utiliser cette force pour initier les réactions de fusion mais d'autres voies sont possibles. En particulier, la fusion par confinement magnétique et la fusion par confinement inertielle sont deux solutions réalisables sur Terre et les recherches effectuées dans ces domaines ont déjà montré qu'il était possible de produire plusieurs dizaines de mégajoules d'énergie thermique à partir de ces deux technologies.

Les réactions de fusion qui dégagent le plus d'énergie sont celles qui impliquent les noyaux de deutérium (D) et de tritium (T). La réaction entre les deux isotopes (deutérium et tritium) de l'hydrogène est celle qui semble la plus accessible sur Terre tout en promettant un apport d'énergie suffisant pour la production d'électricité. Cette réaction est présentée schématiquement sur la figure 1.2. Les réactions de fusion impliquant les atomes de

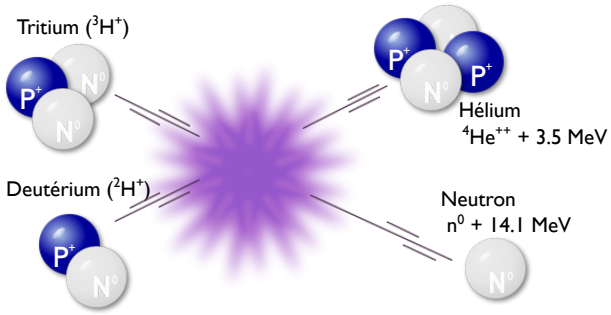

Figure 1.2 – Schéma de la réaction de fusion entre un atome de tritium et un atome de deutérium.

deutérium et de tritium s'écrivent de la façon suivante :

$$D^+ + D^+ \longrightarrow {}^3He^{++}\,(0.82\,\text{MeV}) + n\,(2.45\,\text{MeV}) \tag{1.1}$$

$$D^+ + D^+ \longrightarrow T^+\,(1.01\,\text{MeV}) + {}^1H^+\,(3.03\,\text{MeV}) \tag{1.2}$$

$$D^+ + T^+ \longrightarrow {}^4He^{++}\,(3.5\,\text{MeV}) + n\,(14.1\,\text{MeV}). \tag{1.3}$$

On constate que la fusion d'un atome de deutérium (D) avec un atome de tritium (T) est celle qui libère le plus d'énergie et conduit à la formation d'une particule alpha (^{4}He) et d'un neutron n ayant des énergies de 3.5 MeV et 14.1 MeV respectivement. L'énergie emportée par la particule alpha servira à chauffer le plasma tandis que le neutron énergétique ira

percuter les parois du réacteur transmettant ainsi sont énergie cinétique aux matériaux. La chaleur résultante de ces interactions sera récupérée par un circuit d'eau sous pression installé dans les parois.

La difficulté principale pour provoquer les réactions de fusion est d'arriver à rapprocher suffisamment les atomes et ainsi vaincre la barrière d'énergie dues à la répulsion électrique qui s'exerce entre ceux-ci. En effet, ces barrières coulombiennes conditionnent les réactions de fusion entre noyaux et il est nécessaire que les noyaux appelés à fusionner se rapprochent à 10 femtomètres (1 fm $= 10^{-15}$ m) afin que les forces nucléaires puissent entrer en actions (Basdevant et al., 2002). Il faut alors augmenter la section efficace des noyaux en leur fournissant de l'énergie cinétique. Cette énergie provient de l'agitation thermique donc de la température du milieu dans lequel ils se trouvent. Les sections efficaces σ pour les interactions D – T et D – D sont présentés sur la figure 1.3 en fonction de l'énergie incidentes des atomes. Pour la réaction de fusion D – T, on constate que la section efficace la plus favorable intervient autour de 100 keV. En pratique, on devra se limiter à des énergies incidentes autour de 10 keV soit environ 100 millions de degrés.

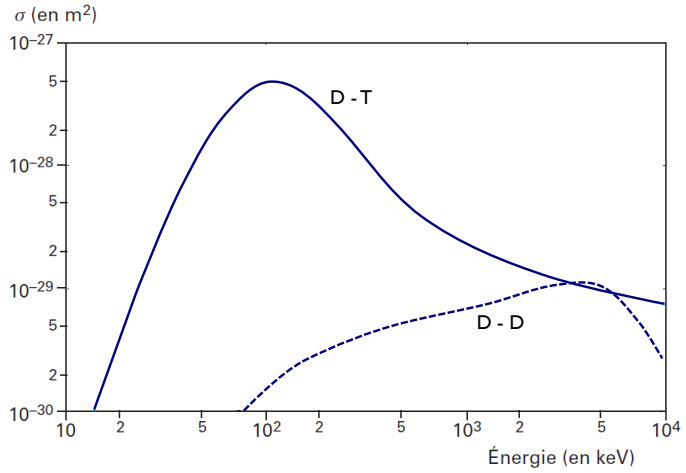

Figure 1.3 – Sections efficaces des réactions Deutérium-Deutérium et Deutérium-Tritium d'après Bonnaud and Rax (2015).

Ainsi, plus l'énergie cinétique des noyaux est élevée plus la probabilité de franchissement de la barrière coulombienne par effet tunnel est grande. Pour arriver à la fusion des noyaux de deutérium et de tritium, il est nécessaire de créer un plasma chaud dans lequel les noyaux des atomes se séparent de leur cortège électronique et deviennent des ions. Les températures à atteindre sont gigantesques (entre 100 et 200 millions de degrés) et impliquent de nombreuses difficultés techniques. Il existe trois méthodes de confinement du plasma : le confinement gravitationnel (réalisé naturellement dans les étoiles), le confinement inertiel (utilisé dans les explosions thermonucléaires et dans la fusion induite par laser) et le confinement magnétique expérimenté dans les tokamaks. Ces machines sont constituées d'une chambre à vide torique dans laquelle on fait « léviter » le plasma pour limiter les contacts avec les parois de la chambre qui ne résisteraient pas à des températures de plusieurs millions de degrés. Cette lévitation est atteinte grâce à un fort champ magnétique créé par

des bobines supra conductrices qui entourent le tore. Le gaz ionisé suit alors les lignes de champs qui parcourent l'intérieur du tore. Parmi les tokamaks actuellement en activité, on peut citer le JET (Joint European Torus) situé près d'Oxford, JT-60 (Jaeri Tokamak) près de Kyoto, WEST à Cadarache (France), DIII-D à San Diego (USA), K-STAR en Corée du Sud, ASDEX Upgrade sur le site de Garching (Allemagne) et EAST à Hefei (Chine) avec un volume de plasma respectif de 100, 90, 25, 20, 18, 13 et 11 m^3. ITER sera le successeur de ces machines avec un volume de plasma de 840 m^3 et a pour objectif de démontrer la faisabilité technique et scientifique de la fusion entretenue dans un plasma deutérium-tritium sur des temps longs.

1.1.2 Le projet ITER

1.1.2.1 Présentation générale

C'est au sommet de Genève en novembre 1985 que naît le projet ITER (*International Thermonuclear Experimental Reactor*). L'URSS propose alors de construire une nouvelle génération de tokamak sur la base d'une collaboration entre USA, Japon, Russie et Europe (à laquelle est associée le Canada). Devant l'ampleur des coûts estimés, les Etats-Unis se retirent du projet en 1998. Ils le rejoignent avec la Chine en 2003 après une révision des coûts et d'âpres négociations. En 2005, un site à proximité du centre de Cadarache (sur lequel était déjà implanté le tokamak du CEA Tore Supra) est finalement retenu pour la construction du réacteur (Ikeda, 2010). Les caractéristiques du réacteur ITER sont présentées sur la figure 1.4. Le principal objectif de ce projet gigantesque est de générer une puissance de 500 MW thermique en consommant 50 MW électrique et sur une durée de 400 secondes. Cependant, ITER ne produira pas d'électricité et est entièrement dédié à la recherche et l'amélioration des connaissances sur la fusion et les plasmas. Dans le cas où le projet est concluant et les objectifs remplis, un prototype de réacteur industriel nommé DEMO sera construit (Federici et al., 2017). Ce prototype sera encore plus grand qu'ITER et aura pour but de démontrer la faisabilité d'une exploitation industrielle à grande échelle de l'énergie de fusion pour la production électrique.

1.1.2.2 Les principaux éléments d'un tokamak

Un tokamak est composé de plusieurs éléments importants : le cryostat, la chambre à vide, les aimants (composés de bobines toroïdales et poloïdales créant les champs magnétiques du même nom), le solénoïde central, la couverture interne et le divertor. La présentation, succincte, de ces différents éléments est largement inspirée des informations que j'ai pu trouver sur le site internet d'ITER (www.iter.org), dans des rapports techniques (Perrault,

- Puissance thermique : 500 MW
- Petit rayon du plasma : 2 m
- Grand rayon du plasma : 6.2 m
- Volume du plasma : 840 m^3
- Volume de la chambre à vide : 3500 m^3
- Champ magnétique toroïdal : 5.3 T
- Pression dans la chambre à vide : 10^{-7} Pa
- Courant plasma : 15 MA
- Flux neutronique moyen : 0.5 MW m^{-2}
- Durée de maintien : 6 min

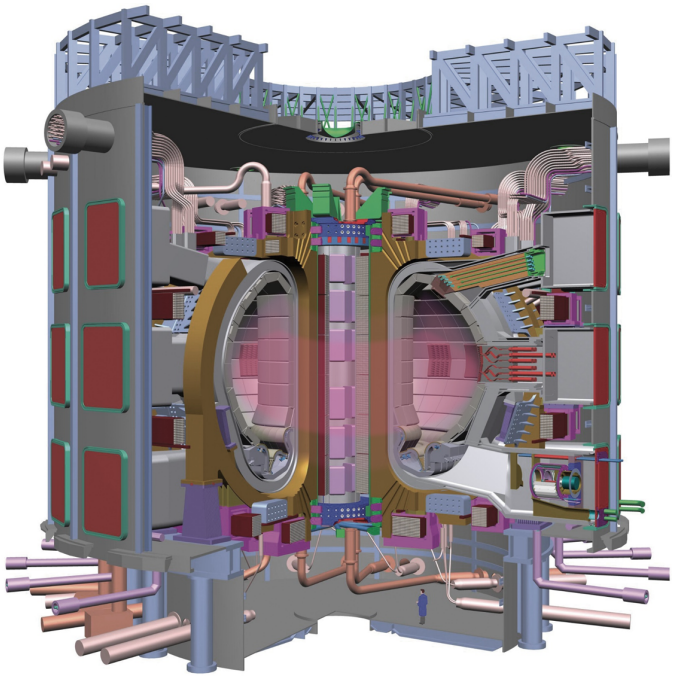

Figure 1.4 – Schéma et paramètres principaux du tokamak ITER. Sources www.iter.org

2017 ; IAEA, 2002) ou des thèses sur le sujet (Reux, 2010 ; Weckmann, 2017). Plutôt que de détailler les choix techniques et les problématiques scientifiques ayant conduit au design actuel du tokamak d'ITER, les paragraphes qui suivent ont pour but de donner une définition simple des principaux éléments présents dans la machine auxquels je ferai parfois référence dans ce manuscrit.

Le cryostat d'ITER qui sera la plus grande chambre à vide au monde (avec un volume de 16 000 m^3) devra maintenir une pression de 10^{-7} Pa (soit 10^{-9} mbar) et une température de -269 °C pour le bon fonctionnement des aimants supraconducteurs et le maintien des réactions de fusion dans la chambre à vide. Fin mai 2020, la base du cryostat pesant 1250 tonnes a été installée avec succès dans le bâtiment tokamak d'ITER (https://www.iter.org/newsline/-/3449).

La chambre à vide A l'intérieur de ce cryostat, la chambre à vide torique fournit un vide poussé pour la création du plasma et agit comme la principale barrière de confinement contre les rayonnements ionisants créés par les réactions de fusion. La chambre à vide sert également de support pour les composants constituant la couverture et le divertor. De plus, elle intègre les circuits de refroidissement qui circulent à travers les doubles parois en acier pour extraire la chaleur générée pendant les décharges plasma. Une coupe transversale de la chambre à vide est reportée sur la figure 1.5.

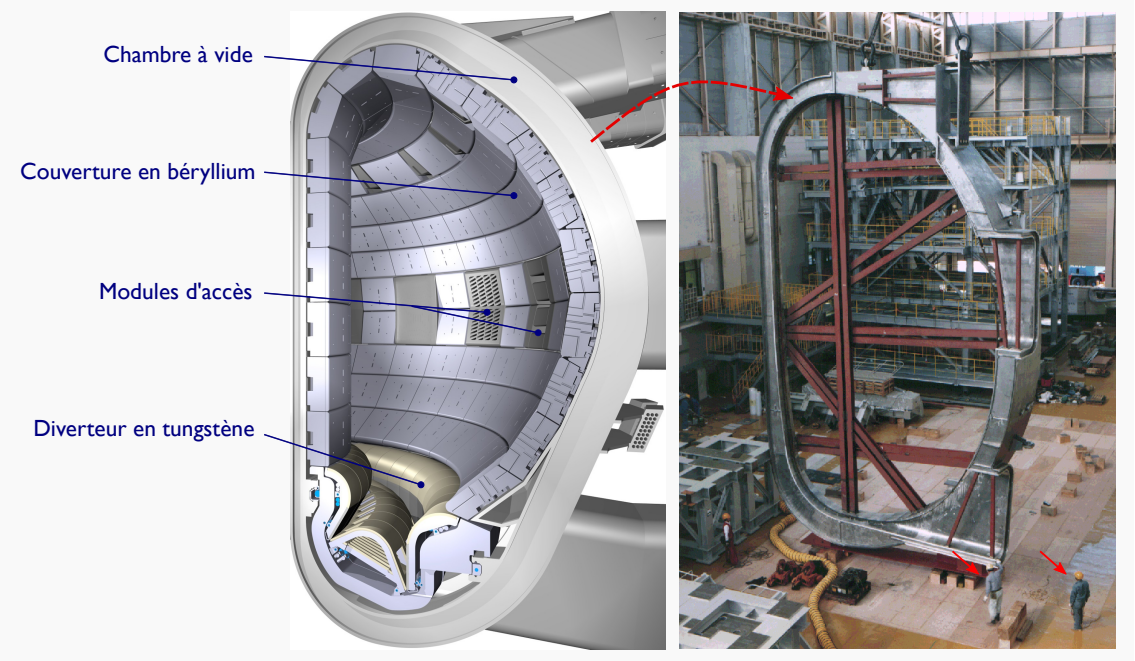

Figure 1.5 – Schéma de la chambre à vide d'ITER avec ses différents composants (source www.iter.org). Photographie d'une maquette à l'échelle 1 d'un secteur de la chambre à vide par Nakahira et al. (1999).

La chambre à vide intègre 44 ouvertures ou ports qui permettent de réaliser des opérations de maintenance à distance ainsi que d'accueillir les systèmes de diagnostics et de chauffage du plasma. Ces systèmes sont répartis dans le plan équatorial du tore (visibles sur la figure 1.5) et peuvent être soit des injecteurs de particules neutres à haute énergie, transférant de la chaleur et/ou de la quantité de mouvement au plasma, ou des chauffages par ondes. Ces ondes permettent de chauffer les ions et les électrons du plasma. Certains de ces systèmes de chauffage peuvent également générer du courant, suppléant ainsi au fonctionnement pulsé du solénoïde central.

La couverture Les 440 modules qui recouvrent complètement les parois intérieures de la chambre à vide protègent la structure en acier et les aimants de la chaleur et des neutrons de haute énergie produits par les réactions de fusion. Comme les neutrons sont ralentis dans la couverture, leur énergie cinétique est transformée en énergie thermique et collectée par le liquide de refroidissement [1]. Les matériaux constituant la couverture en contact avec le plasma doivent satisfaire à plusieurs conditions : résister à des flux de chaleur élevés allant jusqu'à 20 MW m^{-2} ; évacuer le flux de chaleur sortant du plasma et limiter la pollution du plasma par les impuretés et les poussières créés lors des interactions plasma/paroi.

Les matériaux utilisés pour les éléments de première paroi sont le tungstène et le béryl-

1. L'eau de refroidissement, injectée à 4 MPa et 70 °C, est conçue pour éliminer jusqu'à 736 MW de puissance thermique.

lium. Le tungstène a de bonnes propriétés thermiques, mais présente le risque de polluer le plasma du fait de son numéro atomique élevé (74). En effet, plus l'élément est lourd, plus il est susceptible de rayonner une fois ionisé, et donc de refroidir le plasma. A l'inverse, le béryllium est plus léger (Z=4), mais a de moins bonnes propriétés thermiques et sa toxicité le rend difficile à manipuler (Raffray et al., 1997). Il a cependant été choisi comme élément principal de la couverture pour ses propriétés physiques (absorbeur de neutrons) et chimiques (affinité avec l'oxygène pour produire un oxyde stable BeO). Le reste des matériaux utilisé dans la couverture seront de l'acier inoxydable et du cuivre. Le tungstène sera quant à lui utilisé pour le divertor en partie basse de la chambre à vide, à l'endroit ou les flux de chaleur sont les plus forts (Merola et al., 2010).

Le divertor a pour rôle d'extraire la chaleur et l'hélium produit par les réactions de fusion, ainsi que de protéger les parois environnantes des charges thermiques et neutroniques. La structure du divertor est en acier inoxydable surmontée de trois composants faisant face au plasma : les cibles verticales intérieures et extérieures et le dôme. Les cibles verticales intérieures et extérieures sont positionnées à l'intersection des lignes de champ magnétique où le bombardement de particules sera particulièrement intense dans ITER. Pour cette raison, le tungstène qui a le point de fusion le plus élevé de tous les métaux ($T_f = 3422$ °C), a été choisi comme matériau d'armure du divertor. Toutefois, au delà de 1500 °C, le tungstène se recristallise ce qui provoque une forte dégradation de ses propriétés mécaniques. Pour ITER, la température limite sur ces composants est donc située autour de 1500 °C. Le flux de chaleur soutenu par les cibles verticales du divertor d'ITER est estimé entre 10 MW m^{-2} et 20 MW m^{-2} (transitoires) soit des températures à la surface du divertor comprises entre 1100 et 2000 °C (Hirai et al., 2016).

1.2 Le tritium : gestion et toxicité

Je souhaite détailler dans cette section les propriétés et caractéristiques du tritium et de son utilisation, notamment car cet élément est radioactif, donnant aux machines de fusion qui l'utilisent comme combustible le statut d'installation nucléaire de base (INB) avec toutes les contraintes de dimensionnement, de sûreté et de radioprotection que cela implique. Le caractère radioactif du tritium n'est évidement pas l'unique raison du classement de ces installations en INB et l'activation des matériaux de la chambre à vide par les neutrons énergétiques créés lors des réactions de fusion justifie également un pareil classement. On pourrait ajouter à ces contraintes technologiques et d'exploitation l'impact sociétal du caractère nucléaire, et donc radioactif, sur l'opinion publique et les décideurs politiques. L'actuel président d'ITER, Bernard Bigot, évite d'ailleurs d'employer le terme "nucléaire" lors de ses interventions publiques, préférant parler de fusion de l'hydrogène (Marin, 2020).

Cependant, la toxicité du tritium et ses effets sur les organismes vivants sont très différents, et d'un point du vue de la radioprotection bien moins importants, de ceux provoqués par les éléments radioactif tels que l'uranium et les produits de fission utilisés dans l'industrie nucléaire actuelle. De plus, les quantités de tritium présentent annuellement dans une installation comme ITER sont limitées à quelques kilogrammes de tritium. En comparaison, un réacteur à eau sous pression (REP) de 1000 MW consomme en moyenne 200 tonnes d'uranium chaque année.

1.2.1 Origines du tritium

Le tritium est l'isotope radioactif de l'hydrogène de numéro atomique 1 et de masse atomique 3. Cet élément s'écrit indifféremment ^{3}H ou T et les deux notations seront utilisées dans ce manuscrit. Le tritium est un émetteur β^- (béta moins) ce qui signifie qu'il se désintègre avec l'émission d'un électron (et d'un anti-neutrino) pour former un hélium-3 selon la réaction suivante :

$$^3\mathrm{H}^+ \longrightarrow {}^3\mathrm{He}^{2+} + e^- + \bar{\nu}_e \tag{1.4}$$

L'énergie moyenne de cette émission β^- est de 5.685 keV et son énergie maximale est de 18.6 keV. A titre de comparaison, l'iode radioactif ^{131}I utilisé en médecine nucléaire (ou relâché après un accident nucléaire grave) se désintègre par une émission β^- avec une énergie maximale de 606 keV. La faible énergie de l'électron émis par l'atome de tritium induit des distances de parcours du rayonnement β^- qui sont faibles, de l'ordre de 5 mm dans l'air et 0.6 µm dans l'eau et les tissus humains. Ainsi, les cellules sensibles de la peau, situées entre 20 µm et 100 µm de profondeur, ne seront pas atteintes par un rayonnement externe provoqué par le tritium. La période de désintégration du tritium est de 12.4 années ce qui signifie que 5.6 % du tritium disparaît chaque année. Cette décroissance relativement rapide est un avantage non négligeable pour les installations de fusion qui l'utilise car son stockage à long terme n'est pas nécessaire [2]. En revanche, la très grande mobilité du tritium dans les matériaux rend difficile son confinement et la plupart des déchets solides contaminés au tritium sont aujourd'hui sans filière de traitement ou de stockage (ASN, 2018).

1.2.1.1 Origines naturelles

La forme la plus abondante du tritium dans le milieu naturel est l'eau tritiée HTO qui est un peu plus lourde que l'eau légère H_2O du fait des deux nucléons supplémentaires de l'atome

2. En comparaison, le plutonium 239 utilisé par l'industrie nucléaire ou à des fins militaires à une période de demi-vie de 24 110 ans.

de tritium. La première source naturelle de tritium provient de l'interaction entre le rayonnement cosmique et certains composants de l'air. Les neutrons de hautes énergies qui sont alors produits dans la haute atmosphère (entre 10 km et 30 km d'altitude) peuvent réagir avec l'azote pour former du carbone-14 et de l'hydrogène mais aussi du carbone-12, de l'hélium-3 et du tritium. L'existence de tritium atmosphérique d'origine naturelle fut mise en évidence par la mesure du tritium contenu dans les eaux de pluies et de ruissellement (Grosse et al., 1951) avec une concentration moyenne de $0.6\,\mathrm{Bq\,L^{-1}}$.

De même, il a été montré que l'hélium-3 (produit par la désintégration du tritium, éq. 1.4) était présent dans les gaz naturels du sol et des puits de pétrole (Kaufman and Libby, 1954). La production de tritium dans la couche terrestre a été expliquée par la réaction de neutrons avec le lithium ^{6}Li contenu dans les roches. Les neutrons qui interviennent dans cette réaction sont issus de la fission spontanée de l'uranium et du thorium. L'inventaire global du tritium d'origine naturelle est estimé entre 2.8 et 3.7 kg soit une production annuelle entre 150 et 200 grammes. La production dans la couche terrestre est difficile à estimer mais il semble qu'elle soit très faible devant la production atmosphérique (Belot et al., 1997).

1.2.1.2 Origines anthropiques

Le tritium d'origine anthropique provient essentiellement de deux activités humaines, les essais d'armes nucléaires (de fission ou de fusion) et l'industrie nucléaire civile. Le tritium formé par l'explosion d'une bombe à fission provient de l'interaction des neutrons rapides avec les composants de l'air. Dans le cas d'une bombe à fusion, la majorité du tritium est produite par les réactions qui ont lieu au moment de l'explosion. Dès qu'il est relâché, le tritium s'échange rapidement avec l'eau atmosphérique, formant de l'eau tritiée qui se disperse dans l'atmosphère et suit le cycle hydrologique global. Il est ainsi très difficile d'estimer précisément les quantités de tritium rejetées dans l'atmosphère durant les essais nucléaires qui se sont succédés à partir des années 1950 jusqu'au milieu des années 1960. A la fin des années 1980, il est estimé qu'environ 650 kg de tritium ont été dispersés dans la stratosphère et la troposphère, 80 % de cet inventaire étant réparti dans l'hémisphère nord (Belot et al., 1997). Compte tenue de sa période de demi-vie, l'inventaire du tritium dû aux essais nucléaires atmosphériques qui était estimé en 1963 à 650 kg, ne serait plus que de 27 kg en 2020.

Les réacteurs de puissances et les installations de retraitement du combustible rejettent également du tritium dans l'environnement. Le tritium issu des réacteurs nucléaires est formé comme produit de fission ternaire de certains isotopes de l'uranium et du plutonium. Ce tritium reste en très grande partie dans les crayons de combustibles et son passage dans le circuit primaire est négligeable mais peut se produire en cas de défauts ou fissures dans

les gaines en zircaloy qui contiennent le combustible. En revanche, lors du retraitement des assemblages, les crayons contenant les pastilles de combustible sont mis en solution et dissous pour être retraités. L'usine de La Hague, qui effectue ces opérations de retraitement en france, rejette ainsi entre 40 et 80 TBq par an (soit entre 0.1 et 0.2 g) de tritium gazeux dans l'atmosphère et entre 8000 et 14 000 TBq par an (soit entre 27 et 40 g) sous forme d'eau tritiée dans le milieu marin [3]. Ces quantités de tritium rejetés dans l'environnement sont à comparer avec les quantités de combustibles retraités par La Hague qui sont, selon les années, entre 1300 et 1700 tonnes de combustibles (ASN, 2018). On peut également confronter ces chiffres aux 2.4 g de tritium (environ 860 TBq) encore présents dans les quelques 1.18 million de mètres cube d'eau récupérés par Tepco sur le site de Fukishima Daiichi.

Contrairement aux réacteurs à eau légère qui équipent le parc électronucléaire français, ainsi que la majorité des centrales nucléaires à travers le monde, les réacteurs à eau lourde de type CANDU (*CANadian Deutérium natural Uranium reactors*) produisent des quantités de tritium non négligeables. Dans ces réacteurs, l'eau lourde (ou oxyde de deutérium D_2O) est utilisée à la fois comme fluide caloporteur (circuit primaire) et modérateur, le combustible principal étant de l'oxyde d'uranium naturel non enrichi. Dans ce type de réacteur, la production de tritium provient de l'activation neutronique du déutérium constituant l'eau lourde par les neutrons issus des réactions de fission. Pour éviter d'importants rejets de tritium, les centrales équipées de ces réacteurs recyclent les fluides caloporteur et modérateur via des circuits fermés équipés de systèmes de détritiation. Le tritium est alors récupéré sous forme gazeuse valorisable économiquement. Ainsi, la quantité de tritium extraite d'un réacteur CANDU est d'environ 500 g par an (ASN, 2018). Actuellement, 31 réacteurs CANDU sont en exploitation à travers le monde, dont 19 sont situés au Canada. Ces réacteurs sont la principale filière de production du tritium et seront une source d'approvisionnement privilégiée pour ITER qui devrait consommer plusieurs kilogrammes de tritium chaque année (Perrault, 2017).

1.2.2 Dosimétrie et contamination

Nous vennons de le voir, l'utilisation de quantités importantes de tritium dans ITER impose une analyse poussée des risques de contamination, ainsi que la mise en place de barrières adéquates et de stratégies de gestion des effluents et rejets radioactifs. En amont de la mise en service d'ITER, de nombreux projets de recherche sur le tritium et ses effets ont vue le jour (Liger et al., 2018). Au cours de mes propres travaux sur l'adhésion et la mise en suspension de particules, j'ai eu l'occasion de travailler avec du tritium et je présenterai les résultats de ces travaux aux **chapitres 5** et **6**. Par conséquent, je vais rappeler ici

3. Les rejets de La Hague constituent environ 90 % de l'ensemble des rejets français, toutes installations nucléaires confondues.

quelques notions de radioprotection et de dosimétrie et nous verrons quelles sont les voies de contamination de l'organisme par le tritium.

1.2.2.1 Effets des rayonnements ionisants

Les effets de l'exposition aux rayonnements ionisants modifient les constituants de l'organisme à l'échelle des atomes et des molécules tissulaires. Pour de forte expositions, les effets sont appelés "déterministes", en ce sens qu'il existe un seuil au delà duquel les effets apparaissent à coup sûr. Ces effets proviennent de la mort des cellules qui, lorsqu'elle atteint une certaine proportion, entraîne la perte de l'activité tissulaire ou des fonctions de l'organe touché.

Lorsque l'exposition aux rayonnements est inférieure à ce seuil "déterministe", les effets qui peuvent apparaître à plus ou moins long terme sont appelés "stochastiques". Ce sont par exemple, l'apparition de leucémie ou de cancers. Ces effets sont dûs à des modifications de l'ADN du noyau des cellules sous l'action du rayonnement qui, si elles sont mal réparées, peuvent conduire à l'apparition de cancers. L'émergence de ces effets stochastiques est proportionnelle à la dose d'irradiation reçu.

1.2.2.2 Le concept de dose en radioprotection

Afin de pouvoir quantifier ces effets, il est nécessaire de mettre en place un système de mesure rendant compte de la sensibilité des divers organes du corps aux rayonnements ionisants. La radioprotection s'appuie donc sur les concepts de *dose absorbée*, de *dose équivalente* et de *dose efficace*.

La dose absorbée est l'énergie cédée par un rayonnement à l'unité de masse tissulaire. Elle est exprimée en Gray (1 Gy équivalent à $1\,\mathrm{J\,kg^{-1}}$) et est délivrée ponctuellement. La *dose absorbée* est le plus souvent moyennée par la masse de l'organe ou du tissu touché par le rayonnement. Pour chaque tissu ou organe, la probabilité d'apparition d'un effet biologique dépend de la nature du rayonnement. Pour que cela soit pris en compte dans le calcul de la dose effectivement reçue par l'organisme, la CIPR [4] à introduit le concept de *dose équivalente*.

4. Commission Internationale de Protection Radiologique.

La dose équivalente permet de décrire un évènement par une équivalence en photons de toutes énergies. Un facteur de pondération, W_R, est alors attribué pour chaque rayonnement et sa valeur est liée à la nature du rayonnement et à son énergie. La pondération de la *dose absorbée* par le facteur W_R permettra de calculer une valeur de dose produisant le même effet pour tous types d'émissions. Dans le cas des émétteurs β, dont le tritium fait parti, ce facteur de pondération a été fixé par la CIPR égal à l'unité.

La dose efficace L'évaluation du risque de cancers radio-induits en fonction de la sensibilité de chaque organe a été construite pour l'essentiel à partir des conséquences observées sur les survivants de Hiroshima et de Nagasaki qui ont subi une exposition externe à des rayonnements (principalement des photons) de façon aigüe. Ainsi, pour chaque tissu est attribué un facteur W_T représentatif des dommages causés par le rayonnement. La somme des *doses équivalentes* pondérées par les facteurs W_T est appelée *dose efficace* et s'exprime en Sieverts (Sv). A titre d'exemple, ce facteur de pondération du risque stochastique W_T est égal à 0.12 pour les poumons et 0.01 pour la peau (ICRP, 1991). Lorsqu'elle se rapporte à une contamination interne, on parle en général de *dose efficace engagée*. Pour les rayonnements artificiels [5], la *dose efficace* est limitée à 20 mSv par an pour les travailleurs et à 1 mSv pour le public. On retiendra que les coefficients de dose du tritium sont les plus faibles parmi ceux des radionucléides les plus fréquemment rencontrés dans l'environnement [6] : $1.8 \cdot 10^{-11}$ Sv/Bq en cas d'ingestion d'eau tritiée et $4.2 \cdot 10^{-11}$ Sv/Bq pour T_{orga} (tritium organiquement lié). On notera qu'il n'existe pas de coefficient de dose pour du tritium piégé dans des particules solides. A titre indicatif, boire un litre d'eau tritiée entreposée sur le site de Fukushima Daiichi correspond à ingérer une dose d'environ 0.013 mSv (il faudrait donc en boire 76 litres pour atteindre la limite d'exposition de 1 mSv pour le public).

1.2.2.3 Voies de contamination par le tritium

L'incorporation du tritium dans l'organisme peut se faire par ingestion, inhalation ou absorption à travers la peau. Le passage dans le sang est plus ou moins rapide selon la forme chimique initiale du tritium (gaz HT, eau tritiée HTO ou tritium organiquement lié T_{orga}). La diffusion dans les tissus et les organes de ces différentes formes du tritium suit les mêmes voies que l'eau et les substances organiques non radioactives si bien que le tritium se retrouve rapidement dispersé dans tout l'organisme. La diffusion du tritium sous forme d'eau tritiée est particulièrement rapide car son métabolisme est identique à celui de l'eau normale. Il est admis que le renouvellement de l'eau libre corporelle (constituant 70 % du

5. La dose annuelle d'origines naturelles reçue par un français est en moyenne de 2.4 mSv.
6. Le coefficient de dose pour du plutonium 239 est de $2.5 \cdot 10^{-7}$ Sv/Bq et pour du potassium 40 de $2.1 \cdot 10^{-9}$ Sv/Bq.

corps humain) s'effectue avec une période biologique de 10 jours environ. L'eau tritiée est ensuite éliminée normalement par la transpiration, l'air expiré et les urines. Cependant, une petite fraction (environ 3 %) est transformée en tritium organiquement lié et peut être retenue plus longtemps, en particulier dans les tissus osseux, ou T_{orga} peu résider plusieurs années. Ainsi, en cas de contamination par de l'eau tritiée, il est recommandé par la CIPR d'augmenter le renouvellement de l'eau libre dans l'organisme par l'incorporation de 3 à 4 litres de boissons (si possible diurétiques) par jour. Ceci permettrai de réduire le temps de résidence biologique du tritium par un facteur 1/3 voir 1/2.

1.2.3 Effets biologiques et toxicité

Nous avons vu dans les paragraphes précédents que le rayonnement β du tritium, du fait de sa faible énergie, a une distance de parcours très faible. Il ne présente donc un risque radiologique que s'il est absorbé dans l'organisme par inhalation, ingestion ou diffusion cutanée. La majorité de la dose délivrée par le tritium ainsi absorbé provient de l'eau tritiée HTO qui peut être absorbée en quelques minutes mais avec une période biologique courte d'une dizaine de jours. Le reste de la dose dû au tritium (≈ 10 %) vient du tritium organiquement lié T_{orga} qui peut rester dans le milieu cellulaire beaucoup plus longtemps.

Le parcours moyen du β étant du même ordre de grandeur que la dimension du noyau des cellules, l'incorporation de tritium dans l'ADN est le point crucial pour estimer les risques à long terme. Chez l'adulte, 80 % de l'incroporation dans l'ADN se fait dans les tissus à renouvellement rapide. Les lésions causées par le tritium (quelque soit sa forme initiale) dans l'ADN produisent environ 0.1 cassure double brin par noyau cellulaire et sont similaires à celles produites par des rayonnements X ou γ (Belot et al., 1997). En fonction de l'efficacité des mécanismes de réparation et du temps dont dispose la cellule pour réparer, les lésions causées à l'ADN peuvent être soit réparées et sont appelées dans ce cas mutations, soit reconstruites de manière défectueuse ce qui engendre la mort cellulaire. Dans le cas où les brins d'ADN sont reconstruits, la modification chromosomique peut être de deux types : des aberrations instables qui ne seront pas transmises dans les divisions cellulaires suivantes et qui disparaissent donc rapidement après exposition ; des aberrations stables qui sont transmises aux générations cellulaires successives et qui peuvent être détecter plusieurs années après l'exposition. Il existe un certains nombre d'études expérimentales relatives aux effets biologiques du tritium sous forme HTO. Ces études sont faites *in vitro*, sur des lignées cellulaires humaines ou animales, ou *in vivo* le plus souvent avec des rongeurs ou des invertébrés aquatiques. Je ne vais pas détailler ici les différents types d'expérimentations disponibles dans la littérature ni les nombreuses interrogations quant à l'Efficacité Biologique Relative (EBR), fixée arbitrairement à 1 par la CIPR, mais critiquée par un grand nombre d'études (AGIR, 2007).

On retiendra que les études expérimentales sur des rongeurs contaminés au tritium (HTO) ont montré une sur incidence de l'apparition de modifications génétiques, de leucémies et de cancers (Johnson et al., 1995 ; Yamamoto et al., 1995). En revanche, les effets biologiques sur l'homme provoqués par une contamination au tritium à faible dose restent très incertains et peu documentés. De plus, les effets de son intégration dans des nanoparticules de tungstène sur son transfert à travers les tissus biologiques, sont encore méconnus et commencent seulement à faire l'objet d'études spécifiques (Uboldi et al., 2019 ; George et al., 2019). La mise en place d'une radioprotection spécifique au tritium sur une installation telle qu'ITER apparaît ainsi indispensable compte tenu des quantités de tritium qui seront présentes sur le site. De plus, un réacteur de fusion présente de nombreuses spécificités vis-à-vis du transfert du tritium à l'environnement et à l'homme. En effet, celui-ci sera présent dans l'ensemble des matériaux constituants la couverture de la chambre à vide, qui devront être régulièrement changé suite à leur usure par le plasma. La présence de poussières métalliques incorporant du tritium (Grisolia et al., 2015 ; Otsuka and Hatano, 2016 ; Otsuka et al., 2018 ; Ashikawa et al., 2020) et pouvant être facilement mobilisable lors de ces opérations de maintenance constitue donc un réel enjeu pour ITER et les futurs réacteurs de fusion électrogène. Les paragraphes qui suivent aborderont plus précisément les problématiques posées par ces poussières et je présenterai en détails leurs mécanismes de production ainsi que leurs propriétés physiques.

1.3 Les poussières dans les tokamaks

Nous avons vu en début de chapitre que l'enjeu du confinement magnétique est de maintenir le plasma à distance des parois de l'enceinte. Il arrive cependant que le plasma interagisse violemment avec les parois entraînant un arrêt des réactions de fusion (appelées disruptions) et des dommages aux matériaux constituant les parois internes et le divertor. Lors d'une disruption, la croissance d'instabilités dans le plasma altère le confinement magnétique et provoque une perte rapide ($\approx$ 20 ms) et importante d'énergie thermique (appelée extinction thermique). Cela conduit généralement à la perte du courant plasma et s'accompagne d'une perte de stabilité verticale, appelée événement de déplacement vertical (VDE pour *Vertical Displacement Event*). De même, la libération rapide de l'énergie magnétique provoque l'apparition de forces mécaniques importantes qui sont transférées à la structure du tokamak. Des forces de perturbation allant jusqu'à 4 MN ont ainsi été enregistrées au JET, avec des forces de perturbation qui sont couramment supérieures à 1 MN (Flanagan et al., 2015). Une disruption de ce type enregistrée par un caméra sur le tokamak JET est présentée sur la figure 1.6. Pendant la disruption, des flux thermiques élevés peuvent être transférés vers les composants face au plasma (CFP) provoquant la fusion locale des matériaux (le point du fusion du béryllium est ≈ 1300 °C). Pour remédier à ces problèmes, les équipes du JET ont développé des méthodes d'atténuation des disruptions

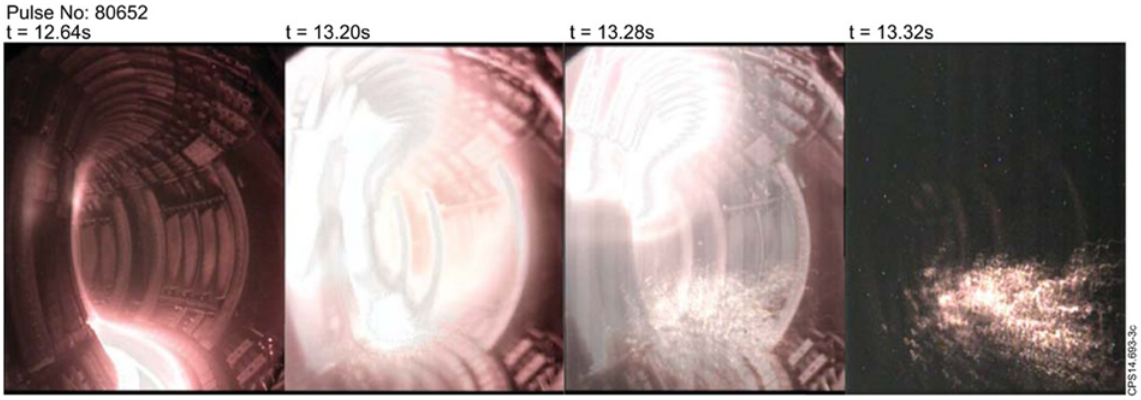

Figure 1.6 – Images de la caméra CCD couleur COHU JET (KL1) durant le tir 80652. Le plasma se termine par une disruption qui induit des forces de 0.43 MN sur la structure de la chambre à vide. Un nuage de débris est observé à $t = 13,20$ s et dans les images suivantes. Sur les deux images à $t = 13,28$ s et $t = 13,32$ s, on distingue nettement le tremblement de la caméra dû au choc éprouvé par la structure durant la disruption (Flanagan et al., 2015).

fondées sur une injection massive de gaz (MGI pour *Massive Gas Injection*) juste avant l'arrêt du plasma. Il a été démontré (de Vries et al., 2014) que l'atténuation par MGI diminue considérablement les forces mécaniques lors de ces évènements plasma. Je ferai cependant remarquer que l'énergie thermique du plasma dans JET est comprise entre 10 et 20 MJ alors que pour ITER, il est prévu des énergies thermiques 300 fois plus importantes, entre 350 et 600 MJ (Reux, 2010). Bien que l'apparition de tels évènements énergétiques soit prise en compte dans le dimensionnement de la chambre à vide d'ITER, ils sont considérés par l'IRSN (Perrault, 2017) et ITER Organisation (Taylor et al., 2012) comme étant les plus dangereux pour l'intégrité de la machine et de ses barrières de confinement.

Ainsi, au fil des décharges, les matériaux face au plasma s'érodent et produisent des poussières qui finissent par se déposer sur les parois et dans le fond de la chambre à vide. De plus, les parois internes seront soumises à un bombardement neutronique de grande énergie (14 MeV) au cours des phases de fonctionnement ce qui fragilise et accélère le vieillissement du revêtement de la chambre à vide et favorise la formation de poussières par pulvérisation. Nous l'avons vu plus haut, la couverture de la chambre à vide est composée de béryllium (Be) dont le rôle est de ralentir les neutrons et de convertir leur énergie cinétique en énergie thermique pouvant être dissipée ou utilisée. Le divertor quant à lui est composé de tungstène (W), matériau pouvant résister à des températures de 3000 °C sur de longues périodes. Cependant, en condition de fonctionnement normale, il est attendu une production de plusieurs dizaines de kilogrammes de poussières de béryllium et de tungstène chaque année (Le Guern et al., 2011 ; Taylor and Cortes, 2014 ; Perrault, 2017) qui se déposeront dans le tore. Une partie de ces poussières viendra alors diluer le plasma et diminuer son efficacité en y introduisant des impuretés. Les limites établies pour ITER en terme de quantités de poussières sont de 1000 kg de poussières (W et Be) et de 1 kg de tritium dans la chambre à vide (Taylor et al., 2012).

Dans le cas d'une perte de confinement dans le tokamak, les poussières accumulées sur les parois et dans le divertor sont susceptibles d'être mises en suspension, pouvant ainsi conduire à des conditions favorables pour une explosion de poussières. La perte de vide peut être liée à une brèche sur un circuit d'eau servant au refroidissement, ce type d'accident est appelé ICE pour *Ingress of Coolant Event* et peut entraîner la formation d'hydrogène notamment par réaction du béryllium avec de la vapeur d'eau. Une brèche peut également survenir sur une des nombreuses fenêtres d'accès à la pression atmosphérique pour de l'instrumentation, on parle alors de LOVA pour *Loss of Vacuum Accident* (Bartels et al., 1998 ; Gay et al., 1998 ; Moon et al., 2018). Pour bien appréhender les aspects de sûreté liés à ces scénarios de perte de vide, il est donc nécessaire de connaître le(s) cycle(s) de formation/dépôt des poussières dans la machine.

1.3.1 Mécanismes de production

Les mécanismes responsables de l'érosion des matériaux faisant face au plasma peuvent être physiques ou chimiques et conduisent, sous certaines conditions, à la production de fines particules métalliques. Ces mécanismes sont résumé dans la figure 1.7 et correspondent à : la pulvérisation (ou *sputtering*) continue par des particules de hautes énergies (ions, impuretés, particules alpha, neutrons) ; la fusion et l'évaporation par chocs thermiques dû à l'apparition d'arcs électriques ou à des disruptions du plasma ; le cloquage (ou *blistering*) des surfaces par un flux de particules chargées (He^{2+}, H^{+}) ; une érosion thermique provoquée par de forts flux de chaleur pouvant détacher les couches de matériaux co-déposées. Ces différents mécanismes de production de poussières se distinguent

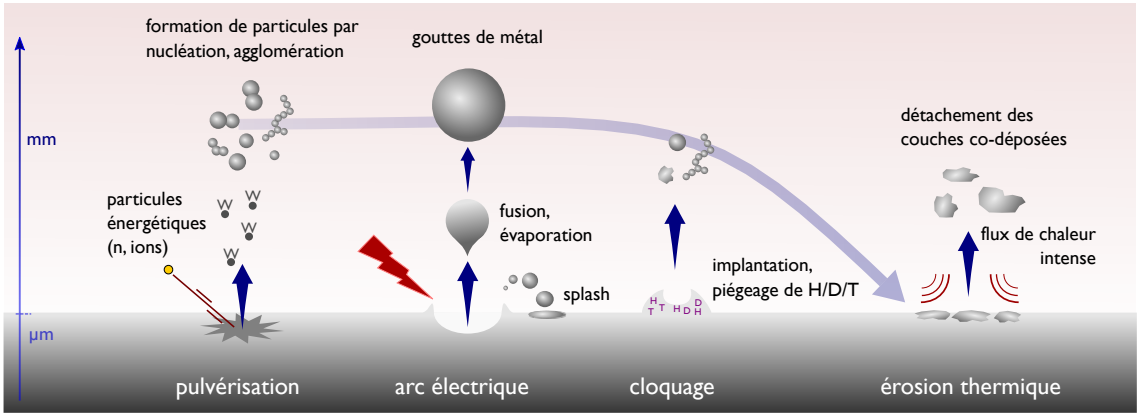

Figure 1.7 – Principaux mécanismes de production de poussières par interactions plasma/paroi d'après Wirth et al. (2015) et Ouaras (2016).

notamment par la taille et la surface spécifique des particules créées. En effet, la réactivité chimique ainsi que le pouvoir de rétention du tritium sont intimement liés à la surface spécifique des particules (Bernard et al., 2019b). L'inventaire en tritium dans les pous-

sières produites dans un tokamak tel qu'ITER dépendra donc fortement du mécanisme de production dominant. Ces mécanismes sont détaillés dans les prochains paragraphes.

1.3.1.1 La pulvérisation ou *sputtering*

La pulvérisation est un mécanisme d'érosion qui concerne l'arrachement des atomes présents à la surface des matériaux suite à l'impact d'une particule énergétique incidente comme un ion ou un neutron (la pulvérisation due au neutron est très faible dans le cas du tungstène). Cette particule incidente transfère son énergie cinétique aux atomes de surface du matériau qui peuvent alors être éjectés si l'énergie transférée est supérieure aux forces de liaison du matériau. Il y a donc un seuil d'énergie E_{th} pour lequel les particules incidentes ne provoquent pas de pulvérisation. En dessous de ce seuil, l'ion incident est neutralisé puis réfléchi ou absorbé dans le matériau. Cela intervient lorsque l'ion incident possède une énergie de l'ordre de quelques électronvolts [7] (eV). De la même manière,

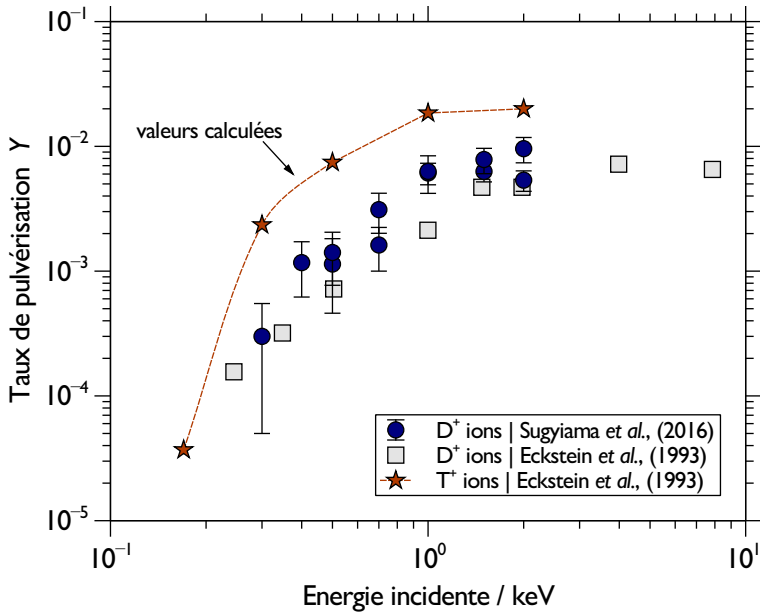

Figure 1.8 – Taux de pulvérisation du tungstène en fonction de l'énergie incidente d'ions de deutérium (Sugiyama et al., 2016) ou de tritium à incidence normale. Les taux de pulvérisation donnés pour les ions tritium sont issus de calculs analytiques par Eckstein et al. (1993).

lorsque la particule incidente dépasse un certain niveau d'énergie cinétique, le régime de pulvérisation laisse place à l'implantation en profondeur de l'ion ou de l'atome neutralisé. Ce phénomène intervient pour des particules incidentes ayant des énergies de plusieurs keV.

Ce phénomène de pulvérisation est caractérisé par l'énergie seuil E_{th} dont nous venons de

7. En physique des plasmas on utilise souvent l'électronvolt comme unité de température. La conversion est 1 eV $\approx$ 11600 K.

parler et par le taux de pulvérisation Y défini comme le rapport entre le nombre d'atomes éjectés de la cible N_E par le nombre de particules incidentes N_I tel que $Y = N_E/N_I$. Pour le tungstène, Sugiyama et al. (2016) ont montré que l'énergie seuil se situe autour de 216 eV lorsque les ions incidents sont du deutérium D^+. Le taux de pulvérisation maximal est atteint pour une énergie d'environ 2.5 keV et vaut 10^{-2} at./ion dans ce cas. Leurs mesures sont représentées sur la figure 1.8 avec des résultats plus anciens obtenus par Eckstein et al. (1993). Pour des ions incident de tritium T^+, peu de données existent dans la littérature. Eckstein et al. (1993) donnent cependant des valeurs calculées analytiquement pour différentes énergies incidentes (reportées sur la figure 1.8) et trouvent une énergie seuil de 136 eV. Ces données montrent des taux de pulvérisation du tungstène supérieurs lorsque les atomes incidents sont du tritium. D'autre part, les températures des ions D^+ et T^+ provoquant la pulvérisation du tungstène sont en grande partie accessible dans un tokamak.

1.3.1.2 La fusion et la vaporisation

La fusion des matériaux face au plasma intervient lorsqu'un arc électrique se forme entre le plasma (anode) et les surfaces métalliques (cathodes) (Behrisch, 2002). C'est un phénomène transitoire très énergétique qui engendre la formation de gouttelettes de métal fondu de quelques micromètres de diamètre (Rohde et al., 2011). De même, des évènements énergétiques tels que des déplacements verticaux du plasma, l'apparition d'électrons découplés ou d'instabilités magnéto-hydrodynamiques (MHD) du plasma de type *Edge-Localized modes* (EMLs) favorisent la formation de micro-gouttelettes de métal (Kajita et al., 2009 ; Klimov et al., 2011). Ces phénomènes ont régulièrement été observés dans les tokamaks métalliques en fonctionnement (Sharpe and Petti, 2002 ; Endstrasser et al., 2011 ; Balden et al., 2014 ; Fortuna-Zalesna et al., 2014 ; Rubel et al., 2018) et nous verrons quelques exemples des particules produites dans ces tokamak au paragraphe 1.3.2.

1.3.1.3 Le cloquage ou *blistering*

Le cloquage intervient lorsque les particules incidentes qui impacte la surface du matériau ne peuvent pas diffuser à l'intérieur de celui-ci et se retrouvent piégées dans la matière formant alors de fines bulles. Si la concentration en atomes à l'intérieure de la bulle atteint un certain seuil, l'action combinée du stress mécanique et de la pression interne du gaz peuvent provoquer des modifications de structure de la surface appelées cloquage. Ce phénomène intervient pour des flux de particules intenses ($10^{21} - 10^{23}$ part. m^{-2}) qui peuvent être rencontrés dans certaines zones du tokamak notamment au niveau du divertor ou des flux de 10^{24} part. m^{-2} peuvent avoir lieu (Johnson and Carter, 2010). Ce mécanisme

d'érosion a été étudié par Ouaras et al. (2015) en exposant des cibles en tungstène a des plasmas froids (230 °C) d'hydrogène. Deux énergies incidentes (120 eV et 220 eV) des ions H^+ ont montrés la formation de nanoparticules avec un diamètre autour de 50 nm. Pour ces énergies incidentes, les auteurs montrent également que la taille des cloques (ou bulles) est de l'ordre du micromètre. Un exemple de la formation de cloques (*blisters*) et des nanoparticules produites lors de l'éclatement de ces structures est reporté sur la figure 1.9.

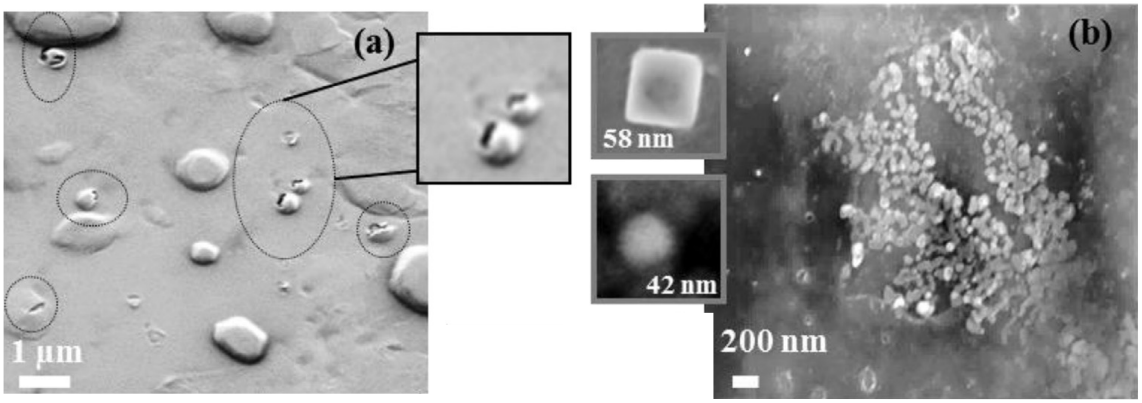

Figure 1.9 – (a) Exemple de la formation de cloques ou *blisters* dans une surface en tungstène soumise à des ions H^+ ayant une énergie incidente de 220 eV. (b) Micrographies MEB des nanoparticules de tungstène issues de l'éclatement des cloques (Ouaras et al., 2015).

1.3.1.4 La fissuration et l'érosion

La fissuration et l'érosion des surfaces se produisent en raison d'un stress mécanique qui peut avoir plusieurs origines. Les composants des parois sont souvent constitués de différents matériaux possédant différents coefficients de dilatation thermique. Ainsi, un flux de chaleur intense peut entraîner des fissures dues à un chauffage asymétrique (c'est-à-dire uniquement sur certaines parties du composant) ou à une augmentation très élevée de la température (choc thermique). Les fissures peuvent être très petites et peu profondes (micro-fissures) ou alors être plus importantes conduisant à la défaillance du composant entier. Ces contraintes mécaniques produisent ainsi de petits fragments aux bords des fissures qui peuvent être libérés sous forme de poussières dans le plasma. La fissuration est un problème pour les matériaux cassants comme le tungstène.

Une fois érodées, ces particules peuvent se re-déposer sous forme de couches de matériaux mixte. Cette couche re-déposée a, dans la plupart des cas, des propriétés mécaniques réduites par rapport aux composants d'origine et peut donc être facilement érodée à nouveau. De même, les dépôts de poussières sur les CFP peuvent former des couches épaisses qui s'écaillent et se décollent, soit en raison de contraintes mécaniques causées par un flux

thermique, soit à cause des vibrations de la structure de la machine (Fortuna-Zalesna et al., 2014). Le résultat est une formation de poussières ayant la forme de flocons ou *flakes* qui peuvent avoir des tailles importantes dans le cas de CFP en graphite (Ivanova et al., 2009 ; Hong et al., 2009) ou être de l'ordre du micromètre pour des CFP en tungstène (Rohde et al., 2009). Ce mécanisme de formation de poussières est prépondérant dans les machines avec des CFP en carbone même si une petite fraction (entre 10 et 20 %) de ces co-dépôts semble effectivement transformée en poussières (Grisolia et al., 2009). Ce facteur de conversion pourrait être sensiblement identique dans le cas de la délamination de co-dépôts de béryllium (faible numéro atomique Z) mais devrait être grandement réduit pour le tungstène.

1.3.2 Exemples de particules produites dans les tokamaks métalliques

La littérature qui concerne les poussières produites dans les tokamaks est très vaste. Aussi, je vais présenter dans cette partie seulement quelques études qui concernent les poussières produites dans des tokamaks utilisant des métaux comme CFP. Sur le tokamak TEXTOR, Winter (1998) remarque l'existence d'un grand nombre de sphères presque parfaites s'étendant sur une large gamme de tailles comme le montre la figure 1.10-**a**. Leur composition est riche en fer avec du nickel (Ni) et du chrome (Cr) ainsi que des couches superficielles minces composées de matériaux à faible numéro atomique. Une texturation de surface est clairement visible sur les plus grandes particules, ce qui témoigne d'une structure composée de différentes phases. La forme parfaitement sphérique des particules suggère que, si

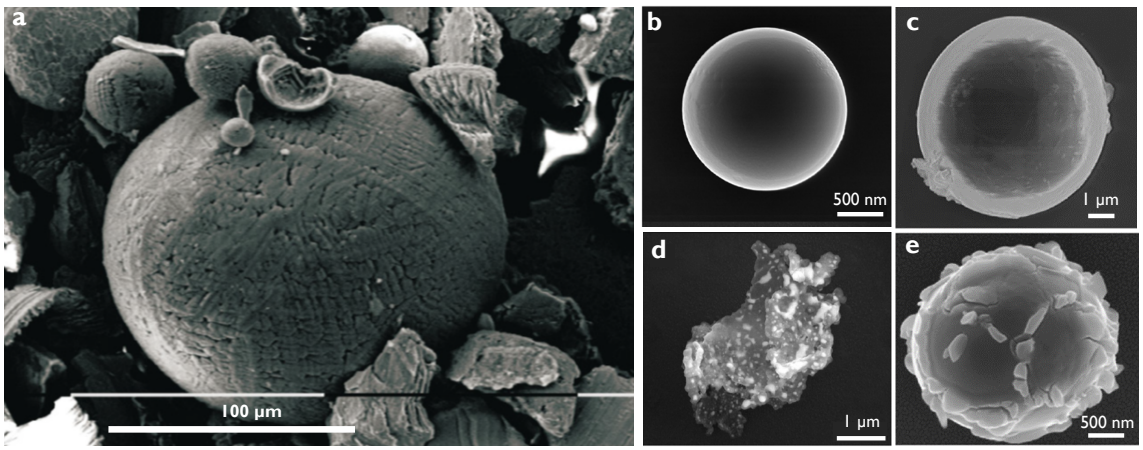

Figure 1.10 – a Particules métalliques (Fe, Ni et Cr) sphériques de grandes tailles identifiées par Winter (1998) dans le tokamak TEXTOR-94. Micrographies MEB de particules de tungstène sphériques (**b-c-e**) observées dans ASDEX-Upgrade par Endstrasser et al. (2011) et Balden et al. (2014). Les particules ont des tailles entre 2 µm et 6 µm et peuvent présenter des matériaux co-déposés à leur surface (**e**). Des flakes (**d**) de petites tailles (quelques µm) ont également été observés par Endstrasser et al. (2011).

elles sont créées à partir de la fusion d'un CFP, elles doivent se solidifier avant de toucher la

paroi du réacteur. Cependant, une autre hypothèse avancée par Winter (1998) est que ces particules sphériques ont été formées à partir des couches métalliques qui constituent le revêtement des CFP en carbone dans TEXTOR-94. Sous l'action d'un flux thermique important, ou d'un arc électrique, le film métallique fusionne et se contracte sous forme de goutte en raison de la tension superficielle du métal qui est plus grande que celle du graphite.

Plusieurs études très détaillées concernent la production de poussières dans le tokamak ASDEX Upgrade dont les CFP sont en tungstène (Rohde et al., 2009 ; Endstrasser et al., 2011 ; Balden et al., 2014 ; Fortuna-Zalesna et al., 2014). En 2015, mon équipe a également réalisée des prélèvements dans ce tokamak avec la première version de la Duster Box (Rondeau et al., 2015). Cet appareil de prélèvement utilise un flux d'air maîtrisé, en terme de forces aérauliques, pour détacher et collecter les poussières déposées sur les surfaces. Je présenterai au **chapitre 3** une nouvelle version de ce dispositif que j'ai développé durant ma thèse et avec laquelle nous avons collecté des échantillons de poussières dans le tokamak WEST.

Il ressort de ces études que deux types de particules sont largement présents dans ASDEX Upgrade. Des particules sphériques de tailles micrométriques ayant un diamètre médian autour de 2 µm (Endstrasser et al., 2011 ; Balden et al., 2014 ; Rondeau et al., 2015), et des poussières de type *flakes* ayant des tailles de l'ordre du micromètre. L'analyse de ces deux populations et de leur distributions granulométriques est donnée par Balden et al. (2014) et résumée dans la thèse de Rondeau (2015). Quelques exemples de particules sphériques de tungstène avec des états de surface distincts sont illustrées sur la figure 1.10-**b-c-e**. Une coupe transversale par FIB (*Focus Ion Beam*) a révélée que le cœur des deux particules **c** et **e** est composé de tungstène solide. De plus, la particule représentée sur la figure 1.10-**e** est recouverte de matériaux à faible numéro atomique (bore, carbone) capturés probablement après sa formation. Selon Balden et al. (2014), l'attachement du matériau se produit de manière dominante pendant le transport des particules à travers le plasma en proche paroi. Un exemple de *flake* (majoritairement composé de tungstène) est donné sur la figure 1.10-**d**. Ce type de particule est fréquent dans ASDEX Upgrade avec un diamètre médian équivalent autour de 0.7 µm (Endstrasser et al., 2011).

1.3.3 Particules formées dans le tokamak JET

Le tokamak JET est actuellement le plus grand tokamak en fonctionnement dans le monde. Depuis une dizaine d'années, des composants face au plasma en tungstène ont remplacés les composants en graphite et la configuration actuelle du JET est celle qui se rapproche le plus de celle d'ITER. Au moins deux points importants doivent cependant être abordés : les tuiles qui tapissent la chambre à vide de JET ne sont pas activement refroidies et sont faites de carbone sur lesquelles un revêtement en tungstène est déposé ; Les facteurs d'échelles

entre JET et ITER sont importants, notamment en termes de puissance plasma (facteur ≈ 300) et d'énergie déposée sur les surfaces en cas de disruption (voir paragraphe 1.3). Cela étant dit, je propose de faire un résumé (non-exhaustif) ci-dessous des nombreuses études qui concernent les poussières retrouvées dans JET depuis sa transformation en tokamak métallique.

Les images de la figure 1.11 montrent des exemples de gouttelettes, éclaboussures et également des morceaux irréguliers de métaux (Ni, Cu, W) documentés par Rubel et al. (2018). Le nickel est le principal composant de l'alliage Inconel, et provient très probablement des protecteurs d'antennes utilisées pour le chauffage du plasma. Les micrographies (**a** et **b**) indiquent que le matériau a été fondu avant d'atteindre la surface sur laquelle les particules se sont déposées. Les auteurs notent que la présence de petites particules de cuivre

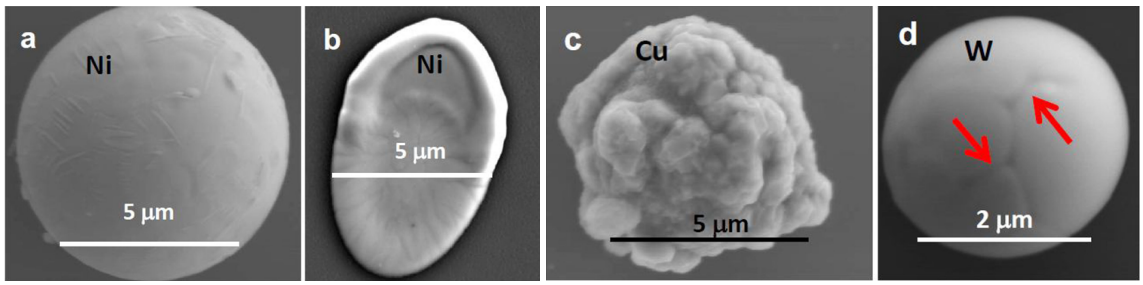

Figure 1.11 – Images MEB de particules métalliques collectées par Rubel et al. (2018) : **a** et **b** gouttelettes et éclaboussures de nickel (Inconel) ; **c** une particule de cuivre et **d** une particule sphérique de tungstène probablement formée par l'agglomération de *flakes* issus du revêtement en W des tuiles de graphites.

(**c**) peut être liée à l'érosion des protections du système d'injection de neutres servant encore une fois au chauffage du plasma. La particule sphérique de tungstène (**d**) n'est pas une gouttelette mais un agglomérat d'un ou plusieurs flocons ou *flakes* (taille allant de 200 nm à 1 µm) provenant du revêtement en tungstène des tuiles face au plasma. Dans leur étude, les auteurs montrent par FIB que cette particule sphérique est creuse, ce qui renforce l'hypothèse de la délamination d'un dépôt de tungstène suivi de sa fusion lors de son passage dans le plasma. On peut percevoir des structures de type couture à la surface de la particule qui sont indiquées par les flèches rouges sur la figure 1.11.

Rubel et al. (2018) notent que ce type de poussières est courant dans JET mais également dans ASDEX Upgrade (Balden et al., 2014), c'est-à-dire dans des machines avec des tuiles revêtues de tungstène. En ce sens, ce type de particules n'est pas pertinent vis-à-vis d'ITER dont les CFP seront des monoblocs de tungstène activement refroidis. Cependant, il est possible qu'apparaissent dans ITER des couches co-déposées riches en tungstène du fait de la pulvérisation des matériaux face au plasma. L'écaillage de ces couches pourrait alors entraîner leur coagulation dans le bord du plasma et, éventuellement, la formation de particules sphériques creuses ou même de gouttelettes.

Ce type de particule a également été retrouvé par Baron-Wiechec et al. (2015) et Fortuna-Zaleśna et al. (2017) suite aux premières campagnes plasma sur JET avec des parois en tungstène. Quelques exemples sont visibles sur la figure 1.12. Les micrographies de la figure

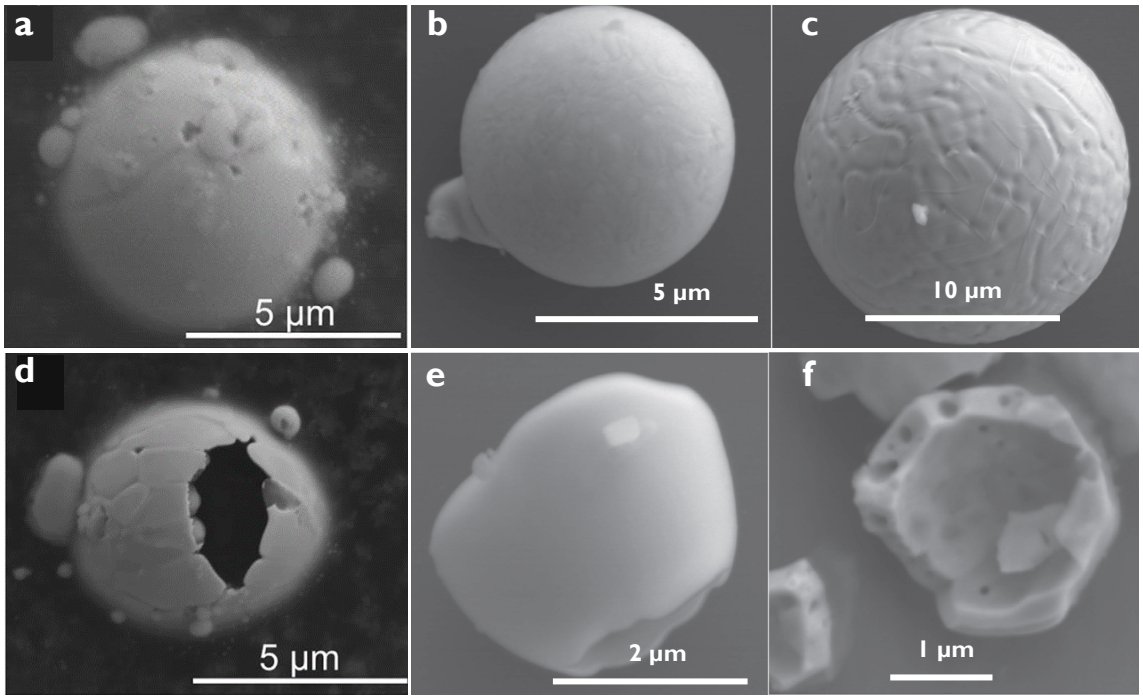

Figure 1.12 – Particules de tungstène sphériques montrant une surface recristallisée. La topographie de la coque fermée (en **a**) et de la coque cassée (en **d**) révèle que ces particules sont creuses (Baron-Wiechec et al., 2015). D'autres exemples de ce type de particules sphériques creuses ont été trouvé par Fortuna-Zaleśna et al. (2017) : (**b**) et (**c**) sphères fermées, (**e**) sphère en phase de formation et (**f**) coque cassée.

1.12 montrent des particules de tungstène sphériques de plusieurs micromètres de diamètre présentant des surfaces texturées ou cristallisées. A nouveau, le fait que les particules (**d-e-f**) sont creuses suggère que ces objets seraient des amas de petits grains de tungstène fondus qui se seraient progressivement assemblés lors de leur transport dans le plasma de bord. L'autre hypothèse avancée par les auteurs est le détachement d'un *flake* qui pénètrerait ensuite dans le plasma. Il acquiert alors un mouvement de rotation ce qui forme cette structure arrondie régulière. Le fait que ces particules sont creuses viendrait de l'occlusion de gaz, c'est-à-dire de deutérium, dont la pression rend ces objets sphériques.

Ce phénomène est également valable pour les composants en béryllium comme le montrent les micrographies (**a**) et (**b**) de la figure 1.13 issues des études de Fortuna-Zaleśna et al. (2017) et Rubel et al. (2018). Les images (**c-d-e-f**) montrent des éclaboussures de béryllium retrouvées après la campagne ILW-2 (*ITER-like Wall*-2) sur JET. Les auteurs notent qu'à la fin de cette campagne, des électrons découplés (*runaway electrons*) de forte énergie ont volontairement été produits dans JET. Ces éclaboussures sont attribuées par Fortuna-Zaleśna et al. (2017) à la fusion partielle des plaques de décharge supérieures dans la machine car une «pluie» de gouttelettes incandescentes venant de ces composants avait

été repérée durant cette opération. L'aspect "liquide" de ces éclaboussures de béryllium fondu visible sur ces images MEB confirme l'hypothèse des auteurs.

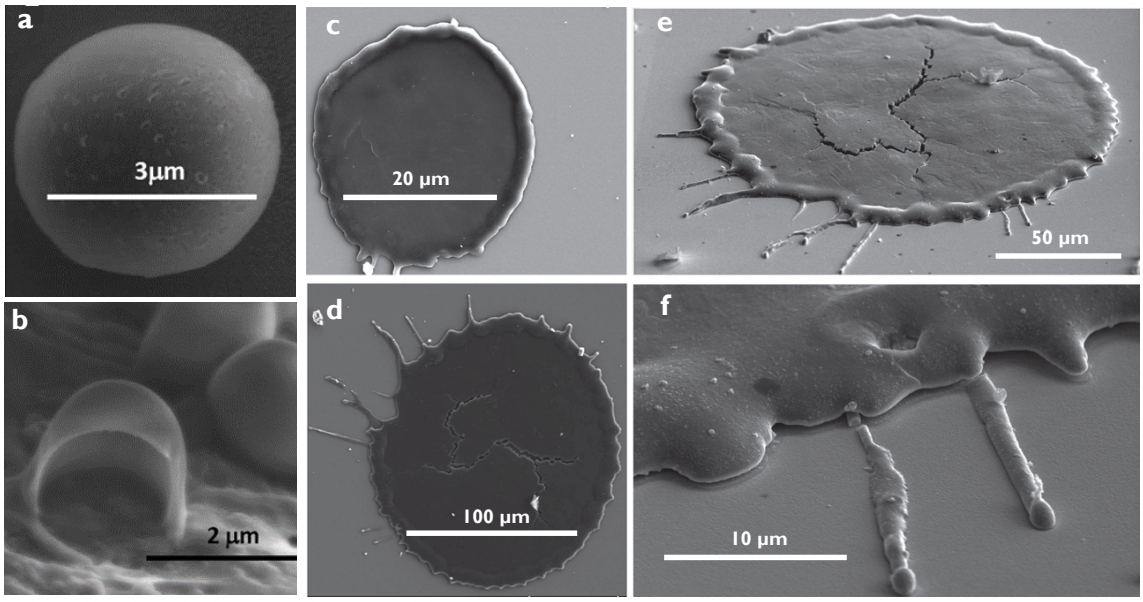

Figure 1.13 – Images MEB de gouttelettes et d'éclaboussures de béryllium retrouvées sur les moniteurs de poussières installés dans JET. **a** gouttelette avec des caractéristiques de surface indiquant la présence de cavités et de petites bulles (Fortuna-Zaleśna et al., 2017). **b** Coupe transversale produite par FIB révélant la structure en bulle dans un dépôt riche en Be provenant du divertor Rubel et al. (2018). **c-d-e-f** Images MEB d'éclaboussures de béryllium fondu provenant d'un limiteur situé en partie haute du tore (Fortuna-Zaleśna et al., 2017).

Suite à ce bref inventaire, plusieurs remarques peuvent être formulées. Premièrement, la présence de particules métalliques, sphériques, de plusieurs micromètres de diamètre est fréquente dans les tokamaks utilisant des CFP en métal (que ce soit des aciers, du tungstène ou du béryllium). Il semble que ces particules sphériques soient en majorité creuses, donnant ainsi des indices importants quant à leur formation. En effet, il s'agit probablement de morceaux de tungstène qui ont été arrachés au revêtement par un choc thermique violent (disruption, arcs électriques, électrons découplés ou instabilités du plasma). En pénétrant dans le plasma de bord (*Scrape-Off Layer* ou SOL en anglais), ces morceaux ou agrégats acquièrent une forme sphérique du fait des fortes contraintes thermiques et des interactions plasma/paroi. Deuxièmement, nous avons vu que des évènements anormaux, type électrons découplés, peuvent induire des dommages importants aux CFP et provoquer leur fusion créant ainsi des gouttes de grande taille (cf. figure 1.13). Enfin, je ferai remarquer que la formation d'agrégats de nanoparticules de tungstène par pulvérisation ou cloquage (*blistering*) dans JET n'a pas été mise en évidence dans ces études bien que la dégradation des surfaces montrant des bulles/cloques soit clairement rapportée dans plusieurs études. Il est cependant raisonnable de penser que des nanoparticules soient effectivement produites au cours des décharges plasma mais que celles-ci suivent un processus d'agglomération et de croissance rapide du fait des conditions thermodynamiques présentes dans le plasma

de bord. Les petites sphères (centaine de nanomètres) visibles sur les micrographies (**a**) et (**d**) de la figure 1.12 viennent étayer cette hypothèse. On peut également mentionner que certains systèmes de collecte des particules (notamment l'aspiration et le brossage des parois) ne sont pas adaptés pour la collecte de particules nanométriques.

1.3.4 Explosion de poussières et dispersion dans l'environnement

Les explosions de poussières sont des accidents sévères bien connus et documentés (Danzi and Marmo, 2019). Ils ont été particulièrement meurtriers dans les industries minières (poussières de charbon), les complexes agricoles (silots de grains, de farine) et les industries de transformation des métaux (aluminium, magnésium, titane). Dans un tokamak, l'explosion de poussières dépend principalement de la concentration en poussières dans le volume de l'enceinte, de la quantité d'hydrogène produite par l'oxydation des surfaces et des poussières présentes dans la machine et de la présence d'une source d'allumage (arcs électrique, surfaces chaudes).

L'explosion de poussières suite à la rupture du vide au cours d'un tir plasma via un des 44 ports d'accès de la chambre à vide est considéré comme très pénalisant pour l'installation. Ce scénario implique la présence d'une grande quantité de poussières sur les parois chaudes de la chambre à vide qui seraient remises en suspension par une entrée d'air violente dans la machine suite à un LOVA (Gelain et al., 2020). Cette entrée d'air éteindrait subitement le plasma provoquant une disruption. Combiné à cette entrée d'air, une perte de confinement sur un circuit de refroidissement (ICE) entraînerait la formation de vapeur d'eau qui viendrait oxyder les surfaces métalliques et les poussières provoquant une production massive de di-hydrogène inflammable. L'atmosphère à l'intérieur de la chambre à vide serait donc un mélange de H_2 inflammable, de poussières chaudes et réactives et d'oxygène (O_2). Une source de chaleur ou une simple décharge électrique pourrait déclencher l'explosion du gaz donnant alors assez d'énergie pour déclencher une explosion de poussières (Denkevits and Dorofeev, 2006 ; Denkevits, 2010). Dans le cas où le plasma à l'intérieur du tokamak est produit à partir d'isotopes de l'hydrogène (D et T), il faut en plus considérer que les matériaux et les poussières présents dans la chambre à vide vont piéger et retenir des quantités plus ou moins grandes de tritium en fonction de leur nature (Bernard et al., 2019b ; Ashikawa et al., 2020). Cette explosion de poussières engendrerait une surpression dites "hors dimensionnement" dans la chambre à vide susceptible de l'endommager sévèrement conduisant à la dispersion des poussières toxiques et radioactives à l'extérieur du tokamak.

Ce type de scénario a été identifié dès la conception du réacteur (Bartels et al., 1998) et dès lors, un très grand nombre d'études numériques et expérimentales ont été réalisées pour quantifier et prévenir ce type d'accident (Honda and Okazaki, 2000 ; Humrickhouse

and Sharpe, 2008 ; García-Cascales et al., 2010 ; Caruso et al., 2015 ; Gélain et al., 2015). Notamment, l'ajout d'un réservoir de décharge connecté à la chambre à vide par une ligne de décharge comportant des disques de rupture a rapidement été proposé pour mitiger le risque de surpression dans le tokamak. Ce système nommé *Vacuum Vessel and Pressure Supression System* (VVPSS) fera 46 m de long pour 6 m de diamètre. Il sera rempli à moitié d'eau permettant de condenser la vapeur d'eau et les gaz venant du tokamak. Les détails techniques de ce système sont consultable dans le rapport technique d'ITER établi en 2002 (IAEA, 2002).

1.4 Auto-chargement électrostatique des poussières dû au tritium

1.4.1 Principe de l'auto-chargement pour un émetteur béta

Lorsqu'un grain de poussière incorpore des éléments radioactifs, l'émission de rayonnements α ou β engendre la production d'ions et d'électrons à proximité du grain ce qui conduit à son auto-chargement électrique. En particulier, la charge résiduelle sur le grain de poussière est de $+4$ charges élémentaires ou $+1$ charge élémentaire pour un rayonnement α ou β respectivement. Une fois émis en dehors du grain, le rayonnement va ioniser les molécules du milieu environnant et créer des ions bipolaires qui vont diffuser dans le milieu. Ces ions peuvent alors se recombiner deux-à-deux ou se fixer sur le grain provoquant sa neutralisation. L'évolution dynamique de la charge électrique d'une particule radioactive est donc le bilan de processus d'auto-chargement et de neutralisation. Cette situation est schématisée sur la figure 1.14. On remarquera que dans la situation où la particule radioactive est dans un environnement ultra-vide ($P_{\text{abs}} = 10^{-9}$ mbar), l'ionisation des molécules du gaz n'a plus lieu et le phénomène de neutralisation disparaît laissant le mécanisme d'auto-chargement contrôler la charge électrique du grain de poussière.

Pour les émetteurs β pur, le taux d'auto-chargement j (nombre de charges élémentaires acquises en fonction du temps) est généralement défini comme le produit de la probabilité d'échappement de l'électron p par l'activité spécifique η (en Bq) de la particule. Pour des émetteurs béta tels que le ^{137}Cs où ^{198}Au, l'énergie des électrons émis est suffisamment grande pour traverser le grain de poussière et la probabilité d'échappement est donc proche de l'unité (Yeh et al., 1976). Dans ces cas là, le taux d'auto-chargement est positif et pris égal à l'activité spécifique selon la relation :

$$j = p \cdot \eta = +1 \cdot \eta. \tag{1.5}$$

Dans le cas du tritium, nous avons vu au pargraphe 1.2 que la faible énergie de l'électron

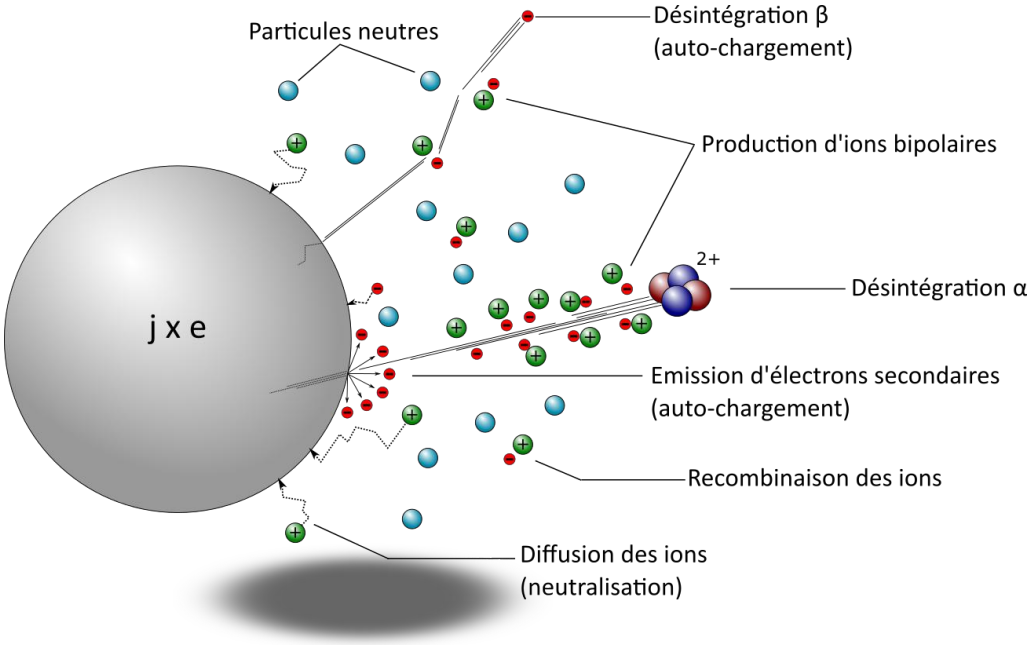

Figure 1.14 – Processus d'auto-chargement d'une particule incluant un radioélément émetteur alpha ou béta d'après Gensdarmes et al. (2001).

émis ($E_{\max} = 18.6$ keV) limite de manière importante son parcours dans la matière. Dans le cas où le grain de poussière est constitué d'un matériau dense comme le tungstène, la distance de parcours du rayonnement β est de quelques dizaines de nanomètres seulement, l'énergie de l'électron étant rapidement dissipée par le rayonnement de freinage (*bremsstrahlung*). Nous verrons plus en détails au **chapitre 5** comment prendre en compte la probabilité d'échappement du β du tritium en fonction de la taille de la particule qui l'incorpore afin de calculer de façon réaliste le taux d'auto-chargement de la particule. Nous allons voir dans le paragraphe suivant que ce phénomène d'auto-chargement électrique du fait de la radioactivité du tritium a déjà été observé sur des échantillons de particules produites dans un tokamak.

1.4.2 Lévitation de particules radioactives dans les tokamaks

Le tokamak américain TFTR (*Tokamak Fusion Test Reactor*) a fonctionné de 1993 à 1997 avec des plasmas de deutérium – tritium et au fil du temps, des poussières et des couches friables de matériaux se sont déposées dans la chambre à vide. A la fin des opérations plasma, certaines tuiles (en carbone) de ce réacteur ont été extraites pour analyses et des échantillons de ces couches co-déposées furent grattés des parois et récupérés dans des petits flacons en plastique couramment utilisés pour la scintillation liquide. D'autres échantillons furent prélevés sur des tuiles ayant été retirées avant le démarrage des essais avec un plasma de tritium. Ces derniers échantillons ne contiennent donc que du deuté-

rium et du carbone. Skinner et al. (2003) ont alors observé que les particules tritiées se mettaient en suspension à l'intérieur du flacon en plastique lorsque celui-ci était frotté avec un morceau de PVC. Ces expériences ont été répétées avec des flacons contenant uniquement du deutérium mais aucune « fontaine » de particules ne fut cette fois-ci observée. Ce phénomène a été observé avec un microscope pouvant enregistrer 8 images/s. Les flacons en plastique contenant les différents échantillons étaient alors frottés pendant 5 secondes puis rapidement placées devant l'objectif du microscope pour l'enregistrement. Ces images sont visibles sur la figure 1.15. Les trois premières images montrent le compor-

Figure 1.15 – Images obtenues à l'aide d'un microscope optique. Les trois premières images correspondent à des particules d'un dépôt formé après une exposition à un plasma de deuterium. Les six images suivantes sont des vues consécutives de particules issues de dépôts formés dans un plasma deuterium-tritium. Sur ces six images, on note une évolution dynamique, montrant la mise en suspension des particules tritiées en présence d'un champ électrique.

tement des particules issues du grattage des tuiles ayant servi uniquement lors d'opérations D-D. Les auteurs ne constatent aucun effet particulier. Les six images suivantes concernent les particules tritiées. Cette fois-ci, des gerbes de particules sont bien visibles montrant la mise en suspension de ces morceaux (entre 1 et 2 mm) de carbone tritiés. Les auteurs ont préalablement mesuré l'activité en tritium contenu dans les poussières de carbone et trouvent une activité spécifique moyenne de $111\,\mathrm{GBq\,g^{-1}}$. Pour un morceau de graphite de $1 \times 1 \times 0.1$ mm et de densité $2\,\mathrm{g\,cm^{-3}}$, on obtient une activité d'environ 20 MBq. Bien que l'étude de Skinner et al. (2003) soit essentiellement descriptive, les auteurs mettent en évidence le phénomène d'auto-chargement de grain de poussières incorporant du tritium via l'établissement d'un champ électrique provoqué par le frottement du flacon en plastique. On remarquera que les activités spécifiques données par Skinner et al. (2003) pour

des particules de graphite sont un ordre de grandeur supérieures aux activités spécifiques trouvées en laboratoire (entre 1 GBq g^{-1} et 10 GBq g^{-1}), pour des particules de tungstène (Grisolia et al., 2019). De plus, il n'existe pas de données disponibles sur les quantités de tritium pouvant être piégées dans des poudres de béryllium. En revanche, une extrapolation raisonnable à partir de données concernant le piégeage de deutérium dans du béryllium massif montre que les activités spécifiques pour des poudres de béryllium tritiées peuvent être très élevées, entre 600 GBq g^{-1} et 6 TBq g^{-1} (Grisolia et al., 2019).

Pour des particules métalliques, on peut par exemple citer l'étude de Winter et al. (2001) qui concerne la mise en suspension de particules d'oxyde de cérium radioactif dans un champ électrique. L'installation expérimentale proposée par les auteurs est composée de deux électrodes placées dans un tube en verre (figure 1.16), de particules d'oxyde de cérium CeO_2 radioactives de 1 µm de diamètre et d'un système de mesure optique. Les particules utilisées ont une activité spécifique de 0.1 Bq par particule et sont déposées sur l'électrode inférieure.

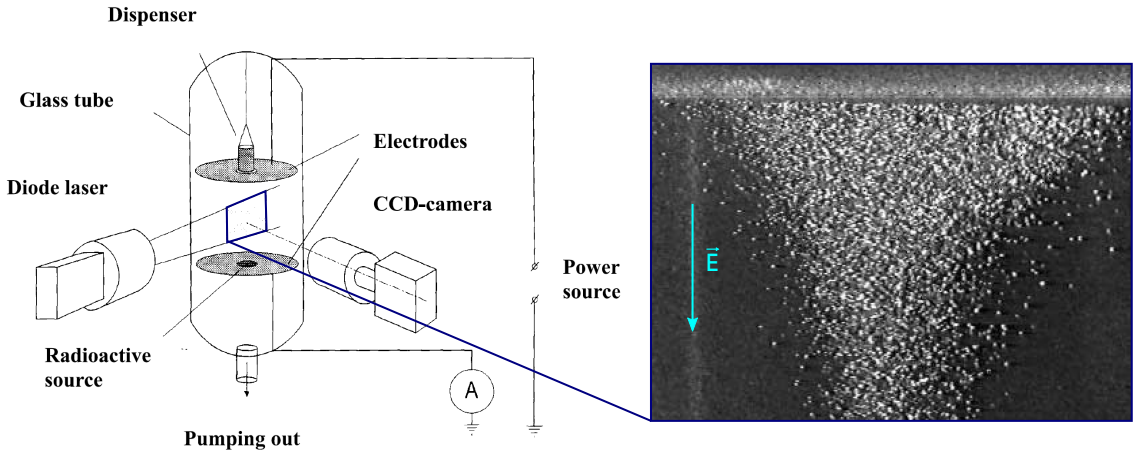

Figure 1.16 – schéma de principe et vue en fonctionnement du *plasma vacuum cleaner*

Les auteurs observent une mise en suspension des particules avec un champ électrique de 30 V cm^{-1}. Ils estiment alors la charge des particules entre 300 et 500 e à partir d'un équilibre de forces entre la gravité et les forces électrostatiques. Cette étude montre la possibilité de contrôler à l'aide d'un champ électrique le comportement des particules radioactives présente sur les parois d'un tokamak. Cependant, hormis la démonstration du phénomène de mise en suspension électrostatique, l'étude ne propose pas d'éléments quantitatifs sur la modification des forces intervenant dans le déplacement des particules radioactives d'oxyde de cérium. Notamment, l'estimation des forces d'adhésion de ces particules n'est pas abordée bien que ces forces soient un paramètre prépondérant dans la mise en suspension.

1.5 Conclusion du chapitre

J'ai montré dans ce chapitre que les interactions plasma/paroi qui ont lieu dans un tokamak peuvent produire de grandes quantités de poussières. La connaissances des caractéristiques physico-chimiques de ces particules est un pré-requis pour leur gestion et pour les études de sûreté du réacteur. Les analyses effectuées par Balden et al. (2014) ; Endstrasser et al. (2011) et Rondeau et al. (2015) ont montré que les particules produites dans le tokamak ASDEX Upgrade sont essentiellement des *flakes* ou des sphères dont les tailles sont comprises entre 0.5 µm et 5 µm de diamètre. De même, les campagnes de collecte effectuées dans JET par Baron-Wiechec et al. (2015) ; Flanagan et al. (2015) ; Fortuna-Zaleśna et al. (2017) montrent la présence de particules de tungstène sphérique entre 1 µm et 20 µm de diamètre. Je montrerai au **chapitre 3** que nous avons également retrouvé ce type de particule dans le tokamak WEST. Il apparaît donc que la fusion des CFP en tungstène est un mécanisme de production de poussières important pour ces tokamaks ayant une couverture interne métallique.

Par ailleurs, la rétention du tritium dans ces poussières est difficile a évaluer mais de récentes études sur des échantillons issus de JET (Otsuka et al., 2018 ; Ashikawa et al., 2020) montrent que ces particules de tungstène ont des activités spécifiques en tritium comprises entre 0.1 GBq g^{-1} et 1 GBq g^{-1}. Nous avons vu à la section 1.4 que cet inventaire en tritium dans les particules provoque leur auto-chargement du fait du rayonnement β du tritium. Par exemple, une particule sphérique de 5 µm de diamètre aura une activité spécifique de 1.26 Bq ce qui correspond à l'émission d'environ $20 \cdot 10^3$ électrons par jour. L'évaluation de la force électrostatique provoquée par cette accumulation de charges sur les particules constitue un enjeu majeur dans mon travail de thèse.

De même, nous avons vu que la mise en suspension, et la transformation de ces poussières en aérosol, est un mécanisme critique pour la sûreté de ces installations qu'il faut pouvoir étudier et anticiper. Ce phénomène de mise en suspension est notamment gouverné par les forces d'adhésion qui agissent entre les particules et les surfaces sur lesquelles elles sont déposées. L'étude expérimentale de ces forces et du phénomène de mise en suspension est au cœur du travail de thèse que je présente dans ce manuscrit. Je commencerai avec le **chapitre 2** par expliquer quels sont les différentes forces qui interviennent dans l'adhésion des particules. En particulier, comment l'intégration d'un élément radioactif tel que le tritium peut modifier l'équilibre de ces forces en favorisant les interactions électrostatiques.

Chapitre 2

Les interactions particule/surface

Sommaire du chapitre

2.1 Une compétition sur plusieurs échelles 36
2.2 Les forces de van der Waals 36
2.2.1 Théorie de Hamaker 38
2.2.2 L'énergie surfacique d'adhésion 40
2.2.3 Mécanique du contact 41
2.2.4 Prise en compte de la rugosité 45
2.2.5 Le modèle de Rumpf 45
2.2.6 Le modèle de Rabinovich 48
2.3 Les forces capillaires 51
2.3.1 Approximation pour une particule micrométrique 53
2.3.2 Effet(s) de la nature des surfaces sur les forces capillaires 54
2.3.3 Effet du potentiel électrique sur les forces capillaires 56
2.4 Les forces électrostatiques 58
2.4.1 Cas d'une particule conductrice 59
2.4.2 Cas d'une particule diélectrique 60
2.4.3 Cas d'une particule conductrice recouverte d'une couche diélectrique 62
2.4.4 Effet(s) de la radioactivité sur l'adhésion 65
2.5 Résumé et conclusion du chapitre 68
2.5.1 Bilan des forces 68
2.5.2 Conclusion du chapitre 69

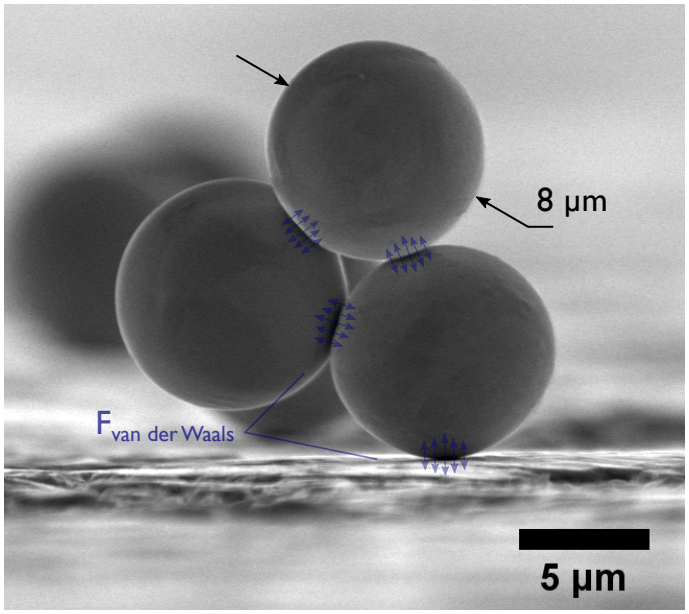

Figure 2.1 – Particules de tungstène déposées sur une surface rugueuse. Les forces de van der Waals agissant aux points de contact entre les particules sont très supérieures à la force de gravité.

Je vais présenter dans ce chapitre les bases théoriques nécessaires à la compréhension des différentes forces agissant dans l'adhésion de particules micrométriques sur des surfaces. En effet, le terme de force d'adhésion regroupe en général plusieurs mécanismes élémentaires qui peuvent être plus ou moins dominants selon les conditions et le milieu dans lequel l'analyse est faite. Par exemple, les forces de van der Waals sont toujours présentes mais peuvent être fortement réduites lorsque la rugosité des surfaces augmente. J'expliquerai l'origine de ces forces et comment elles évoluent avec la rugosité des surfaces. A cette occasion, je décrirai le modèle analytique de Rabinovich et al. (2000b) qui permet de prendre en compte la rugosité des surfaces dans le calcul de la force de van der Waals. Je présenterai ensuite les forces capillaires et le rôle prépondérant que peut avoir l'humidité relative dans l'adhésion, notamment lorsque les matériaux en contact sont hydrophiles. Enfin, je détaillerai l'influence des forces électrostatiques qui peuvent devenir importantes lorsque les particules possèdent une charge électrique.

2.1 Une compétition sur plusieurs échelles

L'étude des forces d'adhésion agissant sur des particules solides dont les tailles sont comprises entre la centaine de nanomètres et plusieurs micromètres fait intervenir plusieurs forces de nature physique très différentes mais principalement régies par des effets de surfaces. En effet, pour des objets si petits, la force de gravité, qui est une force volumique, devient négligeable par rapport aux forces d'adhésion. Ainsi, nous verrons dans ce chapitre que les forces de van der Waals sont des forces d'origines quantiques mais qui ont une influence importante (et mesurable) sur des objets macroscopiques lorsqu'ils sont suffisamment rapprochés. Cette transition entre le monde moléculaire (ou nanométrique) et le monde macroscopique est en général qualifiée d'approche *bottom-up* en ce sens que les forces élémentaires qui agissent sur une particule micrométrique sont décrites individuellement à l'échelle moléculaire. D'autres approches, souvent qualifiées de *top-down*, sont basées sur un bilan énergétique et une vision macroscopique de l'adhésion. Les modèles les plus connus utilisant cette approche sont ceux de Johnson (Johnson et al., 1971) et Derjaguin (Derjaguin et al., 1975). Ils seront décrits de manière succincte au paragraphe 2.2.3. Nous verrons que ces modèles sont basés sur une formulation unique de la force d'adhésion ne permettant pas de différencier les composantes élémentaires de l'adhésion (forces de van der Waals, capillaires, électrostatiques). De plus, ces modèles sont établis à partir d'expériences réalisées sur des matériaux déformables, possédant un faible module de Young (polymères) et sont, par conséquent, corrélés uniquement aux expériences faites sur ces matériaux. Dans le cas de matériaux possédant des modules de Young importants comme les métaux, nous verrons que ces modèles prédisent des forces d'adhésion généralement supérieures de un à deux ordres de grandeurs par rapport aux mesures expérimentales.

2.2 Les forces de van der Waals

Je vais introduire dans cette partie la définition et le calcul des forces regroupées sous le terme de forces de van der Waals. Nous verrons plus spécifiquement comment calculer ces forces dans le cas d'une géométrie sphère/plan applicable à notre problématique. La description des ces forces est très abondante dans la littérature et ce paragraphe reprend en partie les travaux de Parsegian (2005) ; Walton (2008) ; Alvo (2012). Le lecteur intéressé par une description détaillée pourra se tourner vers l'ouvrage de référence écrit par Israelachvili (2011). Les forces de van der Waals sont en réalité une combinaison de plusieurs forces de nature attractive ou répulsive de longue portée à l'échelle de l'atome (jusqu'à plusieurs nanomètres). Ces forces peuvent être comprises simplement en imaginant qu'à un instant précis, un atome et son nuage électronique forment un dipôle qui va créer un champ électrique local. Sous l'effet de ce champ, les atomes voisins vont également se polariser

conduisant à une interaction (attractive) dont l'énergie potentielle d'interaction s'exprime en $1/r^6$:

$$\phi(r) \approx -\frac{C_{vdw}}{r^6}, \tag{2.1}$$

avec r la distance entre les atomes voisins et C_{vdw} une constante qui dépend de la nature des atomes considérés. Cette constante C_{vdw} d'origine microscopique est délicate à évaluer numériquement. Nous allons discuter dans les paragraphes suivants comment obtenir cette valeur.

Proposée par le physicien allemand van der Waals à la fin du 19ème siècle, cette interaction atome/atome d'origine quantique à été rigoureusement décrite 60 ans plus tard par London (1937) grâce à la nouvelle mécanique quantique. Ces interactions sont présentes pour tous types de molécules, qu'elles soient polarisées ou non. Dans le cas de molécules polaires (c'est-à-dire des molécules ayant un moment dipolaire permanent), elles sont appelées forces de dipôles permanents (force de Keesom) ou forces de dipôles induits (force de Debye). Dans le cas de molécules totalement neutres, elles sont appelées forces de dispersion ou forces de London. Parmi ces trois forces, la force de dispersion a généralement la contribution la plus importante et les forces de van der Waals sont souvent assimilées aux forces attractives de London – van der Waals.

La description de l'interaction entre deux atomes voisins doit cependant être complétée car le principe d'exclusion de Pauli interdit aux nuages électroniques des atomes de se pénétrer. Il est donc nécessaire d'ajouter à l'équation 2.1 un terme fortement répulsif à courte distance mais qui décroît rapidement à mesure que les atomes s'éloignent les uns des autres pour laisser place à la partie attractive en $1/r^6$ du potentiel d'interaction. Ce terme de répulsion est classiquement modélisé par un potentiel en $1/r^{12}$ conduisant à l'expression classique du potentiel de Lennard-Jones entre deux atomes ou molécules :

$$\phi(r) = e_0 \left(\frac{r_0}{r}\right)^{12} - 2e_0 \left(\frac{r_0}{r}\right)^{6}, \tag{2.2}$$

où r_0 est la distance entre les deux molécules à l'équilibre (la force dérivant du potentiel est nulle) et e_0 l'énergie d'interaction entre les molécules. Cette configuration est représentée schématiquement sur la figure 2.2.

Dans le cadre d'une étude sur les forces d'adhésion entre un objet macroscopique et une surface, il est intéressant de simplifier le potentiel de Lennard-Jones en ne considérant dans le calcul que la partie attractive en $1/r^6$ et en établissant r_0 comme la distance minimale de "contact" entre les atomes des objets étudiés. Cette contrainte sur la composante répulsive permet d'étendre le concept de "contact" d'un point de vue macroscopique (le point de contact entre deux objets est un point partagé par les deux solides), à une vision plus moléculaire où le point de contact devient la distance de séparation minimale entre les atomes constituant les deux solides.

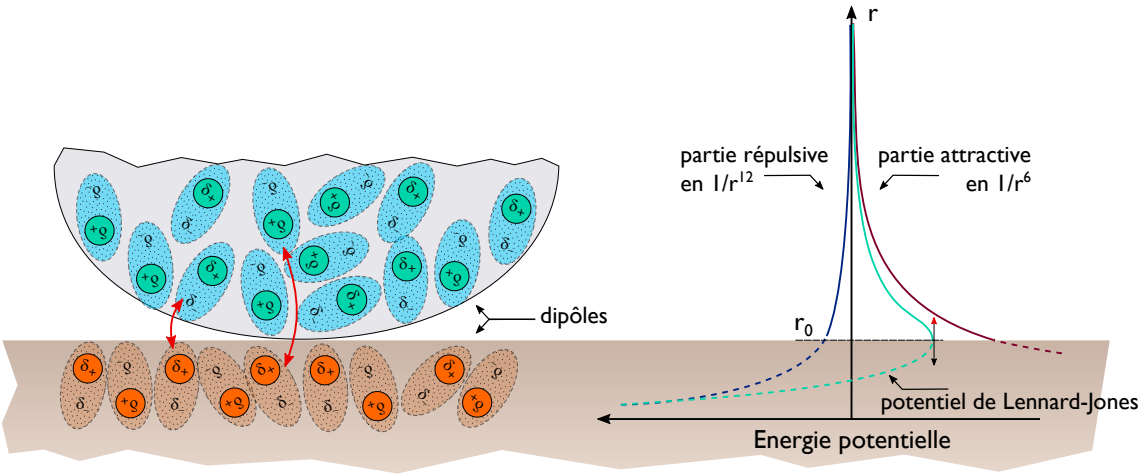

Figure 2.2 – La force de van der Waals agît sur une très courte distance lorsque la particule est proche de la surface. A mesure que la particule se rapproche de la surface, la force de van der Waals est attractive et augmente jusqu'à un minimum r_0 ou la force s'annule puis devient répulsive.

Cette distance d'approche minimale ou distance de séparation minimale est classiquement prise entre 0.2 nm et 0.6 nm en fonction de la nature des solides considérés. En première approximation, elle correspond à la distance séparant les centres de deux atomes, assimilés à des sphères solides, ayant pour rayon le rayon de de van der Waals. Ce paramètre est difficile à mesurer et est, la plupart du temps, ajusté sur les résultats expérimentaux. Par exemple, pour une interaction entre une particule en verre et une surface en verre, la distance minimale d'approche est généralement prise égale à 0.3 nm (Israelachvili, 2011). Pour une interaction entre des objets en tungstène, la distance est plus grande et prise égale à 0.4 nm (Tolias et al., 2018). Nous verrons au **chapitre 4** que les mesures AFM réalisées avec des particules de tungstène sur des surfaces en tungstène montrent un bon accord avec les forces de van der Waals pour une distance minimale de 0.45 nm. Pour des objets macroscopiques avec un nombre connus d'atomes ou de molécules par unité de volume, la force de van der Waals est souvent calculée comme étant la somme de toutes les paires de molécules en interaction. Cette sommation par paire a été effectuée par Hamaker (1937) sur la base des travaux de London. Il est nécessaire de l'intégrer sur le volume total de l'objet, ce qui rend le calcul dépendant des formes des objets. Dans les paragraphes qui suivent, je vais développer le calcul pour une interaction sphère/plan uniquement. On se réfèrera à Israelachvili (2011) pour d'autres géométries.

2.2.1 Théorie de Hamaker

Pour calculer l'énergie d'interaction entre des objets macroscopiques, Hamaker a considéré que les paires d'atomes des deux solides qui interagissent peuvent s'additionner pour obtenir l'énergie d'interaction globale. Pour obtenir l'énergie d'interaction entre une sphère et

un plan, il faut d'abord calculer l'énergie entre une molécule et une surface plane et uniforme. Cette configuration est présentée dans la figure 2.3-**a**. Pour les molécules présentent dans une couronne de section $dxdz$ et de rayon x, le volume de la couronne est de $2\pi xdxdz$ et le nombre de molécules dans cette couronne est de $2\pi\rho xdxdz$ avec ρ la densité de molécules dans le solide. L'énergie d'interaction pour une molécule placée à une distance D de la surface sera donc :

$$\omega(D) = -2\pi\rho \int_{z=D}^{z=\infty} dz \int_{x=0}^{x=\infty} \frac{C_{vdw}}{r^6} x dx. \tag{2.3}$$

dans cette géométrie, $r = (x^2 + z^2)^{1/2}$ soit :

$$\omega(D) = -2\pi C_{vdw}\rho \int_{D}^{\infty} dz \int_{0}^{\infty} \frac{x}{(x^2+z^2)^3} dx = -\frac{\pi C_{vdw}\rho}{6D^3}. \tag{2.4}$$

Cette expression ne dépend que de la distance entre la molécule et le plan de la surface (supposé infini). La force de van der Waals correspondant à cette configuration est simplement la dérivée de l'équation 2.4 soit : $F_{vdw}(D) = -d\omega(D)/dD = -\pi C_{vdw}\rho/2D^4$. A partir

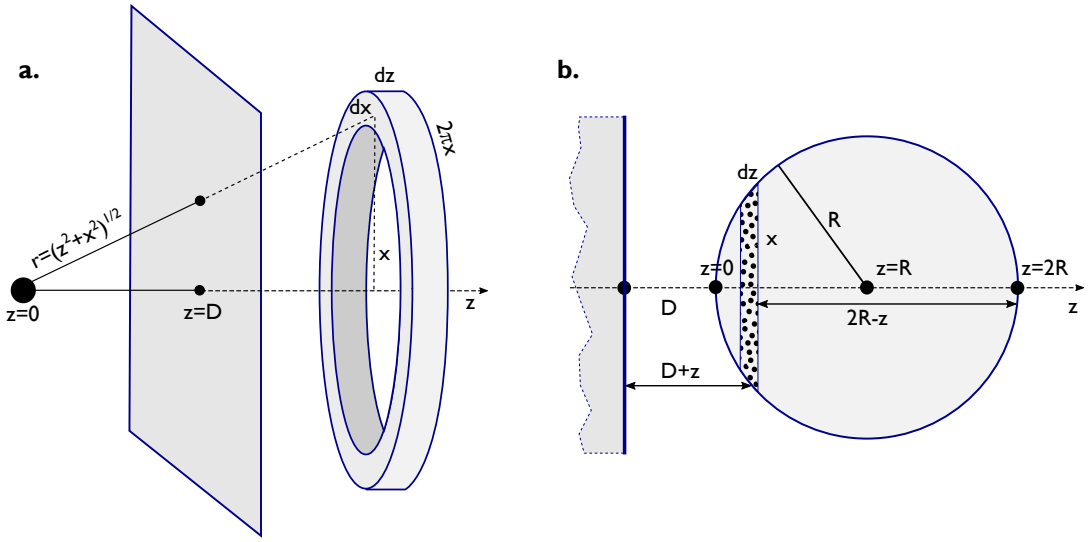

Figure 2.3 – Méthode de sommation des énergies d'interaction entre des molécules constituant des solides macroscopiques. **a.** pour une molécule à proximité d'une surface et **b.** pour une particule sphérique à proximité d'une paroi ($R_p \gg D$).

de l'équation 2.4, Hamaker propose d'étendre le principe de sommation par paire d'atomes au cas d'une particule sphérique de rayon R_p située à une distance D d'une surface solide infinie telle que présentée dans la figure 2.3-**b**. Après quelques lignes de calcul, on peut montrer que l'énergie d'interaction intégrée sur toute la particule sphérique, s'écrit :

$$\begin{aligned} \omega &= -\frac{\pi C_{vdw}\rho_1\rho_2}{6} \int_{z=0}^{2R_p} \frac{\pi\left(R_p^2 - (z-R_p)^2\right)}{(D+z)^3} dz \\ &= -\frac{\pi^2 C_{vdw}\rho_1\rho_2}{6} \left[\ln\left(\frac{D}{2R_p+D}\right) + \frac{2R_p(R_p+D)}{D(2R_p+D)}\right], \end{aligned} \tag{2.5}$$

avec ρ_1 et ρ_2 la densité de molécules dans la surface et la particule respectivement. L'énergie d'interaction ainsi calculée est proportionnelle à la constante de Hamaker (J) que l'on définit par :

$$A = \pi^2 C_{vdw} \rho_1 \rho_2. \tag{2.6}$$

La force de van der Waals entre la particule de rayon R_p située à une distance D de la surface s'exprime en calculant la dérivée de l'énergie d'interaction donnée par l'équation 2.5 :

$$F_{vdw} = -\frac{d\omega}{dD} = -\frac{2AR_p^3}{3D^2(2R_p + D)^2}. \tag{2.7}$$

Dans le cas particulier ou l'on considère une particule sphérique de taille micrométrique en contact avec une surface plane, $R_p \gg D$ et la force de van der Waals donnée par l'équation 2.7 se simplifie :

$$F_{vdw} = -\frac{AR_p}{6D^2}, \tag{2.8}$$

où A représente la constante de Hamaker définie à l'égalité 2.6 qui dépend de la nature des matériaux en contact et du milieu dans lequel ils se trouvent. Pour des surfaces lisses en contact, la distance D correspond à la distance minimale de contact r_0 qui est généralement prise entre 0.2 nm et 0.4 nm. La définition du contact, et notamment la détermination de la valeur de r_0, restent cependant des problèmes ouverts.

2.2.2 L'énergie surfacique d'adhésion

La sommation des énergies par paires d'atomes entre tous les atomes d'un solide A avec tous les atomes d'un solide B et pour deux surfaces planes donne, d'après Israelachvili (2011), l'énergie d'interaction suivante : $\omega = -A/(12\pi D^2)$. Si la sommation est effectuée en incluant les interactions entre les atomes d'un même solide, il faut ajouter un deuxième terme à l'équation. Ce deuxième terme correspond à l'énergie de cohésion des atomes constituant le solide avec leurs voisins immédiats, soit pour $D = r_0$. Ainsi, l'énergie totale à considérer pour les deux surfaces planes séparées par une distance D est de :

$$\omega = -\frac{A}{12\pi}\left(\frac{1}{r_0^2} - \frac{1}{D^2}\right) = -\frac{A}{12\pi r_0^2}\left(1 - \frac{r_0^2}{D^2}\right) \qquad \text{par unité de surface.} \tag{2.9}$$

Pour $D = r_0$, cette énergie est nulle (les surfaces sont en contact) mais pour $D \to \infty$, on obtient l'équation :

$$\omega = -\frac{A}{12\pi r_0^2} = -2\gamma \qquad \text{soit} \qquad \gamma = \frac{A}{24\pi r_0^2} \tag{2.10}$$

Ainsi, l'énergie surfacique d'un solide est égale à la moitié de l'énergie nécessaire pour séparer deux surfaces en contact, soit la moitié de l'énergie d'adhésion. Ce résultat a été obtenu en utilisant la méthode de Hamaker valable pour une sommation entre paires d'atomes

de deux solides situés à une distance D relativement grande l'un de l'autre. Mais dans le cas du contact, cette méthode par sommation soulève à nouveau le choix de la distance de contact r_0. En effet, il a été montré par Tabor (1977) et Israelachvili (2011) qu'il est nécessaire d'adapter l'équation 2.10 par une approche moléculaire rendant compte de l'arrangement géométrique des atomes présent à la surface des solides. La distance de «coupure» r_0 devient ainsi inférieure à la distance interatomique σ entre les centres de deux atomes en «contact». Par exemple, pour une distance interatomique $\sigma = 0.32$ nm (correspondant au paramètre de maille a du tungstène cristallin), Israelachvili recommande d'utiliser une distance de coupure de $r_0 = \sigma/2.5 = 0.128$ nm. L'énergie surfacique peut donc se réécrire comme :

$$\gamma = \frac{A}{24\pi(0.128\text{nm})^2}. \tag{2.11}$$

Cette nouvelle expression de l'énergie surfacique a été comparée à de nombreux résultats expérimentaux et montre un faible écart de 10 à 20 % avec les mesures (Israelachvili, 2011). Pour le tungstène, Tolias (2018) a calculé une constante de Hamaker de 490 zJ ce qui donne une énergie surfacique d'adhésion de 41 mJ m^{-2} en utilisant l'équation 2.10 et de 396 mJ m^{-2} avec l'équation 2.11. On remarquera que ces valeurs, obtenues dans le cadre de la théorie de Hamaker qui ne prend en compte que les forces de van der Waals, sont très inférieures aux valeurs qui prennent en compte les liaisons métalliques entre atomes. En effet, dans le cadre des théories de la mécanique du contact que je vais présenter dans le prochain paragraphe, une énergie surfacique d'adhésion entre 4 J m^{-2} et 4.6 J m^{-2} a été calculée par Vitos et al. (1998) selon l'arrangement cristallin de la surface en tungstène. En complément, Tyson and Miller (1977) ont réalisé des mesures de tension superficielle pour du tungstène liquide et donnent une énergie surfacique d'adhésion de 3.26 J m^{-2}. Nous allons voir dans les paragraphes suivants que ces valeurs élevées de l'énergie surfacique d'adhésion sont à l'origine d'une surestimation systématique de la force d'adhésion donnée par les modèles JKR et DMT pour des particules métalliques déposées sur des surfaces planes.

2.2.3 Mécanique du contact

Ces théories concernent la description des contacts entre deux corps solides, élastiques et homogènes ; généralement deux sphères où une sphère et une surface plane. Le premier à avoir décrit ce type de contact est Hertz (1896), en faisant l'hypothèse que les solides sont élastiques, qu'ils ont des surfaces lisses et possèdent une faible zone de contact par rapport aux dimensions des objets. Johnson et al. (1971) ont étendu la théorie de Hertz en considérant que les solides possèdent une tension de surface finie. Ainsi, les forces d'attractions entre deux sphères ont une portée infiniment faible et se manifestent uniquement dans la zone de contact entre les deux corps. Poursuivant le développement des théories sur l'adhésion, Derjaguin, Muller et Toporov (Derjaguin et al., 1975) font valoir que, puisque

les forces d'attraction entre les surfaces ont une portée limitée, ces forces agissent également dans une région en dehors de la zone de contact où les surfaces ne sont qu'à une faible distance.

2.2.3.1 Le modèle JKR

Le modèle JKR, proposé par Johnson, Kendall et Roberts (Johnson et al., 1971) est basé sur l'hypothèse que l'aire de contact entre une particule sphérique et une surface plane est élargie par les forces de surface, le stress mécanique F exerçant une tension aux bords de la zone de contact et une compression au centre. La géométrie considérée par JKR est présentée sur la figure 2.4. En revanche, ce modèle n'intègre pas les forces attractives présentent entre les deux objets en dehors de la zone de contact. Pour une particule sphérique

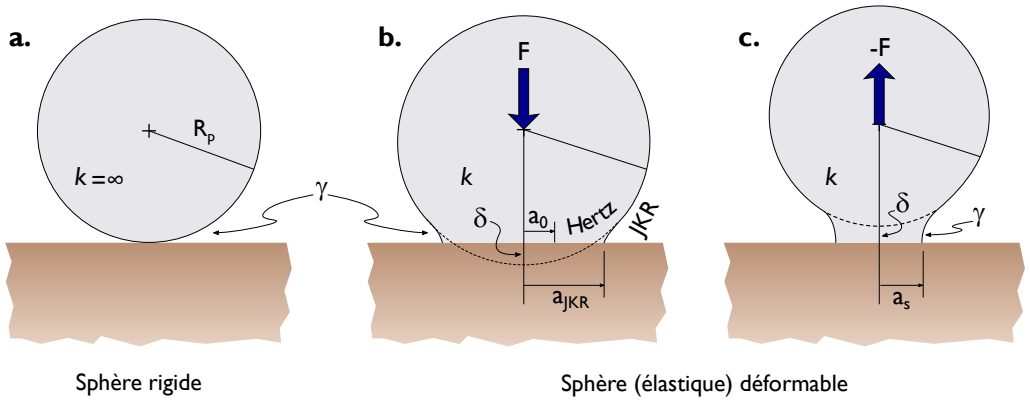

Figure 2.4 – Représentation des géométries de Hertz et JKR pour une sphère rigide sur une surface rigide (**a.**), une sphère déformable sur une surface rigide (**b.**) avec un stress mécanique en compression (F) en absence (Hertz) ou en présence des phénomènes d'adhésion (JKR) ; ou en tension (-F) dans le cas où la sphère est sur le point de rompre le contact avec la surface solide (**c.**).

en contact avec une surface plane, le modèle JKR donne le rayon de contact a_{JKR} entre les deux objets :

$$a_{\mathrm{JKR}}^3 = \frac{R_p}{K}\left(F + 3\pi\Delta\gamma\ R_p + \left[6\pi\Delta\gamma\ R_p F + (3\pi\Delta\gamma\ R_p)^2\right]^{1/2}\right), \tag{2.12}$$

où R_p est le rayon de la particule, $\Delta\gamma$ est l'énergie d'adhésion ($\mathrm{J\,m^{-2}}$), fonction des énergies surfaciques d'adhésion des deux matériaux en contact γ_1 et γ_2 et de l'énergie de l'interface γ_{12} par :

$$\Delta\gamma = \gamma_1 + \gamma_2 - \gamma_{12}. \tag{2.13}$$

Dans le cas d'une interaction dans l'air et pour deux matériaux de nature identique, $\Delta\gamma = 2\gamma$. Dans l'équation 2.12 le critère d'élasticité K est défini par :

$$K = \frac{4}{3}\left[\frac{1-\nu_1^2}{E_1} + \frac{1-\nu_2^2}{E_2}\right]^{-1}, \tag{2.14}$$

où E_i est le module de Young et ν_i le coefficient de Poisson du matériau i. Pour un stress mécanique nul ($F = 0$), correspondant au moment où la force de détachement équivaut à la force d'adhésion, le rayon du point de contact a_0 est donné par :

$$a_0 = \left(\frac{6\pi\Delta\gamma\ R_p^2}{K}\right)^{1/3}, \tag{2.15}$$

De même, la déformation élastique de la surface de la particule s'exprime par $\delta = a_0^2/3R_p$, signifiant que la surface est en compression. Sous l'influence d'une force négative (de détachement), la séparation entre la particule et le substrat intervient pour un rayon de contact réduit à $a_s \approx 0,63\ a_0$ et le modèle JKR prévoit, pour deux objets constitués du même matériau, une force de détachement (opposée à la force d'adhésion) de :

$$F_{\text{JKR}} = -F_{\text{adh}} = -\frac{3}{2}\pi\Delta\gamma\ R_p = -3\pi\gamma R_p. \tag{2.16}$$

2.2.3.2 Le modèle DMT

Derjaguin, Muller et Toporov ont également proposé un modèle théorique pour l'adhésion appelé modèle DMT (Derjaguin et al., 1975). Ce modèle prend en compte l'attraction moléculaire en dehors de la zone de contact mais est limité au contact entre une particule sphérique et une surface plane solide (Figure 2.5). Il établit comment la forme de la particule change sous l'effet des déformations de contact. La force d'adhésion correspond alors au moment où la déformation engendrée par le contact est nulle. Dans le cas d'une sphère sur une surface plane, le rayon de contact a_{DMT} s'écrit :

$$a_{\text{DMT}} = \left(\frac{R_p}{K}(F + 2\pi\Delta\gamma\ R_p)\right)^{1/3}. \tag{2.17}$$

Lorsque le stress mécanique F devient nul, le rayon de contact devient :

$$a_0 = \left(\frac{2\pi\Delta\gamma\ R_p^2}{K}\right)^{1/3}. \tag{2.18}$$

La force d'adhésion donnée par le modèle DMT s'exprime alors simplement :

$$F_{\text{adh}} = -2\pi\Delta\gamma\ R_p = -4\pi\gamma R_p. \tag{2.19}$$

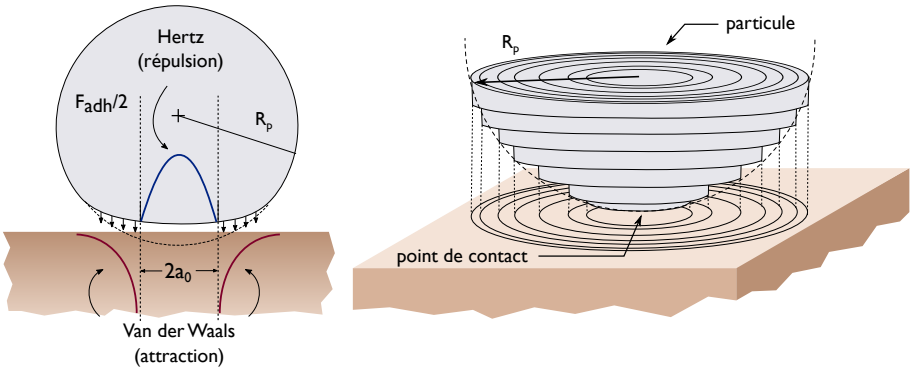

Figure 2.5 – (à gauche) Interaction entre une sphère élastique et une surface plane rigide selon le modèle DMT. Lorsque le stress mécanique est nul, l'attraction produit un cercle de contact fini de diamètre $2a_0$. Cette zone subit alors une compression provoquant une force de répulsion. La région annulaire en dehors de ce cercle de contact subit en revanche les forces attractives de van der Waals. (à droite) Représentation de l'influence des forces de van der Waals à courte distance en dehors de la zone de contact dans l'approximation de Derjaguin.

On constate que la force d'adhésion exprimée par le modèle DMT donne une valeur 25 % plus importante que celle du modèle JKR. De plus, les équations 2.16 et 2.19 sont indépendantes du critère d'élasticité K mais uniquement fonction du rayon de la particule et de l'énergie d'adhésion entre les deux objets. Le débat sur la validité des théories JKR et DMT a duré jusqu'à ce que Tabor (1977) et Maugis (1992) montrent qu'elles étaient des cas extrêmes d'un paramètre adimensionné μ donné par :

$$\mu = \left[\frac{8\,\gamma^2\,R_p}{9\,K^2\,D^3}\right]^{1/3}, \tag{2.20}$$

avec D la distance entre la particule et la surface. Ce paramètre adimensionné μ peut être interprété comme le rapport entre les déformations élastique et l'action des forces d'adhésion. Ainsi, si $\mu \ll 1$ le modèle à utiliser est DMT, correspondant à une petite particule rigide. Si au contraire, $\mu \gg 1$, le modèle à utiliser est JKR, correspondant à une particule élastique de grande taille. Pour une particule sphérique de tungstène de 5 µm de rayon déposée sur une surface de tungstène, le paramètre μ est égal à 0.5. Le modèle à privilégier dans ce cas sera donc le modèle DMT. On peut également calculer les rayons de contact donnés par les modèles JKR et DMT en fonction du rayon de la particule et des paramètres mécaniques suivant : module de Young $E_W = 406$ GPa, coefficient de Poisson $\nu_W = 0.28$, module d'élasticité $K_W = 294$ GPa et énergie d'adhésion $\Delta\gamma = 2\gamma = 0.79$ mJ m^{-2}. Ces calculs sont illustrés sur la figure 2.6. Pour une particule de 5 µm de rayon, le rayon de contact est respectivement de 108 nm et 75 nm pour JKR et DMT ce qui correspond à des surfaces de contact d'environ 36 800 nm^2 et 17 700 nm^2 respectivement. Ces résultats montrent que le(s) "point(s) de contact" entre des particules micrométriques et une surface sont en réalité souvent supérieurs à la rugosité nanométrique présente sur la plupart des surfaces. Ainsi, l'aire de contact entre les deux objets peut être fortement réduite et nous allons voir

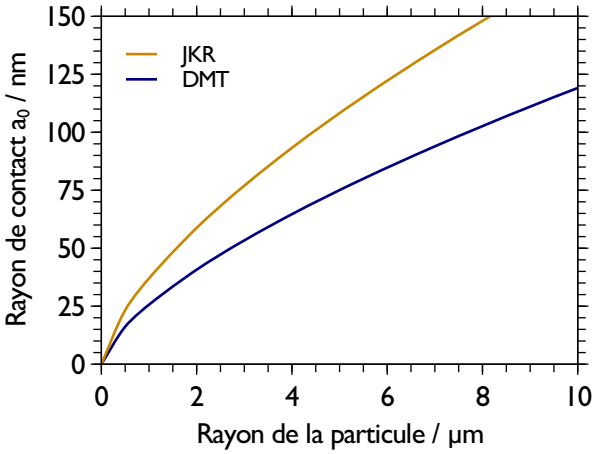

Figure 2.6 – Rayons de contact donnés par les modèles JKR et DMT pour une particule de tungstène déposée sur une surface de tungstène.

dans le paragraphe suivant comment prendre en compte la rugosité des surfaces dans le calcul des forces d'adhésion.

2.2.4 Prise en compte de la rugosité

Nous venons de voir que la théorie de Hamaker et les modèles JKR et DMT peuvent être utilisés pour décrire l'adhésion d'une particule sphérique sur une surface plane. Cependant, ces modèles ne prennent pas en compte la rugosité des surfaces en contact qui provoque une déformation non uniforme au niveau du point de contact. Or, si infime soit-elle, la rugosité est toujours présente dans les surfaces que l'on étudie. De nombreuses études ont montré que l'existence de rugosités nanométriques (Rabinovich et al., 2000a ; Kumar et al., 2013 ; Jacobs et al., 2013) et micrométriques (Beach et al., 2002 ; Götzinger and Peukert, 2004 ; Dejeu et al., 2010) induit une diminution importante de l'adhésion entre deux objets due à une réduction de l'aire effectivement en contact entre les deux surfaces et à une augmentation de la distance entre les objets.

2.2.5 Le modèle de Rumpf

Un modèle classiquement utilisé pour décrire l'adhésion avec une rugosité de surface nanométrique est le modèle de Rumpf (1990) composé de deux termes décrivant la force de van der Waals totale de l'interaction particule/surface. Le premier terme correspond à l'interaction entre la particule en contact avec une aspérité hémisphérique comme représenté sur la figure 2.7, tandis que le second terme correspond à l'interaction libre (en dehors du contact) entre la particule et la surface séparées par la hauteur de l'aspérité. La force

d'adhésion totale s'exprime alors par :

$$F_{vdW} = \frac{A}{6 \cdot D^2} \left[\frac{r_s \cdot R_p}{r_s + R_p} + \frac{R_p}{(1 + r_s/D)^2} \right] \tag{2.21}$$

avec r_s le rayon de l'aspérité et D la distance entre la particule et la surface (pour $D = r_0$ la force d'adhésion est maximale). Bien que ce modèle décrive la méthodologie à suivre pour mesurer la force d'adhésion en présence d'aspérités avec une géométrie hémisphérique, peu de travaux existent sur la validité de cette géométrie par rapport à des surfaces de rugosité connue. Le développement de ce modèle a donc été poursuivi par Rabinovich et al. (2000b) soulignant qu'avec une telle géométrie, le centre de l'aspérité hémisphérique doit être situé à la surface ce qui est généralement trop de simplification pour un substrat réel. De plus,

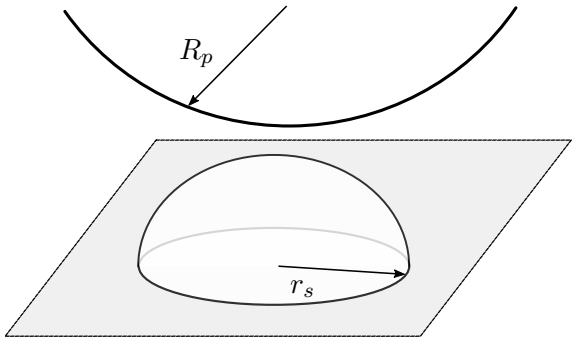

Figure 2.7 – Illustration schématique de la géométrie proposée par Rumpf pour l'interaction d'une particule sphérique de rayon R_p avec une aspérité hémisphérique de rayon r_s.

Rabinovich a noté que le rayon de l'aspérité est difficile à mesurer alors que la microscopie à force atomique est capable de mesurer avec précision la hauteur des aspérités et la rugosité moyenne quadratique (rms) des surfaces. Par conséquent, Rabinovich et al. (2000b) ont proposé une relation entre le rayon de l'aspérité et la rugosité rms qui s'exprime comme suit :

$$r_s = 1.485 \cdot rms. \tag{2.22}$$

En substituant l'équation 2.22 dans l'équation 2.21 on trouve l'expression suivante :

$$F_{vdW} = \frac{A \cdot R_p}{6 \cdot D^2} \left[\frac{1}{1 + R_p/(1.485 \cdot rms)} + \frac{1}{(1 + 1.485 \cdot rms/D)^2} \right], \tag{2.23}$$

qui est présenté par Rabinovich et al. (2000b) comme le modèle de Rumpf modifié. Lorsque plusieurs échelles de rugosités sont prises en compte, la rugosité globale équivalente de la surface peut être calculée comme suit :

$$rms = \sqrt{rms_1^2 + rms_2^2}, \tag{2.24}$$

où rms_1 et rms_2 sont les rugosités quadratiques moyennes des deux échelles respectivement (Rabinovich et al., 2000a).

J'ai représenté sur la figure 2.8-**a.** l'évolution des forces d'adhésion normalisées par le rayon de la particule en utilisant la relation 2.23 pour des particules de tungstène sphériques de 2.5 µm, 5 µm et 10 µm de rayon en fonction de la rugosité rms de la surface. La constante de Hamaker théorique pour une interaction W/W pure est donnée par Tolias (2018) et vaut 490 zJ. La distance minimale d'approche $D = r_0$ est prise égale à 0.45 nm (Batsanov, 2001). On constate un minimum d'adhésion correspondant à la transition entre la force de van der Waals établie au point de contact et celle agissant autour du point de contact (terme de non-contact). Pour une rugosité rms supérieure à environ 10 nm, la force d'adhésion normalisée est régie par le terme de contact de l'équation de Rumpf modifiée tandis que le terme de non contact entre la particule et la surface domine pour une rugosité rms inférieure à 10 nm. Dans le régime d'interaction sans contact correspondant à une rugosité nanométrique inférieure à 10 nm, la force d'adhésion normalisée est indépendante du rayon des particules (deuxième terme dans l'équation 2.23) et augmente lorsque la rugosité à l'échelle nanométrique diminue. Cependant, cette observation n'est pas valable pour le régime de force d'adhésion de contact (premier terme dans l'équation 2.23) où la force normalisée diminue à mesure que la taille des particules augmente pour une rugosité rms donnée. En effet, à mesure que le rayon de la particule augmente, la force d'adhésion normalisée diminue et un déplacement de la composante de contact vers une rugosité rms plus élevée se produit.

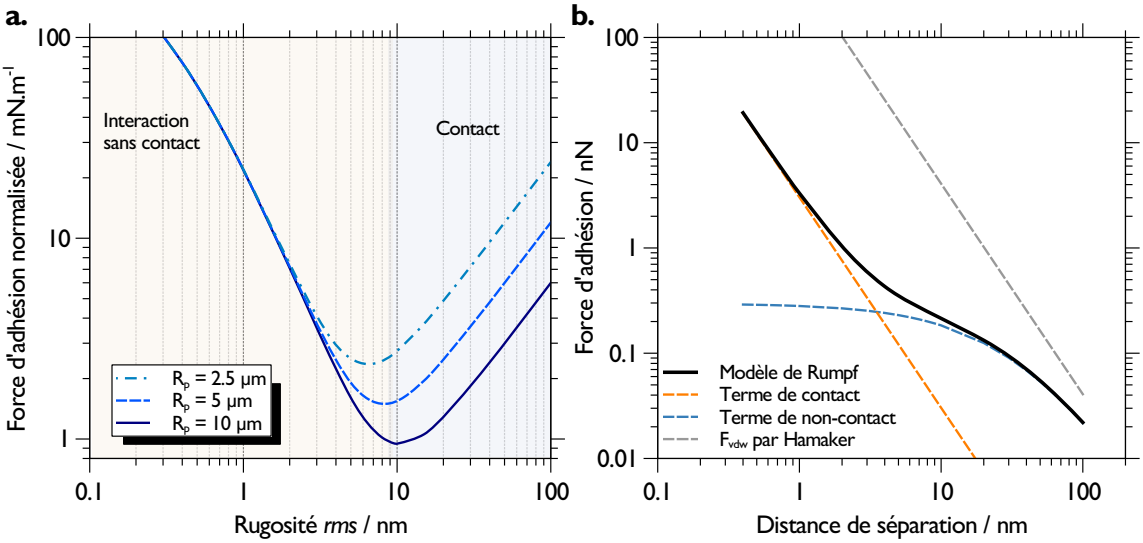

Figure 2.8 – a. Force d'adhésion normalisée par le rayon des particules de tungstène (2.5 µm, 5 µm et 10 µm) en utilisant le modèle Rumpf modifié (éq. 2.23) avec une constante de Hamaker de 490 zJ (Tolias, 2018) en fonction de la rugosité de la surface. Mise en évidence du minimum d'adhésion obtenu avec ce modèle. **b.** Différentes composantes de la force d'adhésion calculées avec le modèle de Rumpf pour une particule de 5 µm de rayon en fonction de la distance entre la particule et la surface. Comparaison avec la force de van der Waals donnée par Hamaker.

Cette transition entre les deux régimes d'adhésion est mise en évidence sur la figure 2.8-**b.** où j'ai calculé l'évolution des deux termes de l'équation 2.23 en fonction de la distance de séparation z pour une rugosité rms fixée à 25 nm. La force de van der Waals classiquement

calculée par la formule de Hamaker 2.8 est également représentée pour comparaison. Ces prédictions du modèle de Rumpf modifié pour des rugosités supérieures à des dizaines de nanomètres a été largement discutée dans la littérature (Götzinger and Peukert, 2003 ; Laitinen et al., 2013 ; LaMarche et al., 2017) et montre systématiquement un mauvais accord avec les expériences en sous-estimant la force d'adhésion.

2.2.6 Le modèle de Rabinovich

Le mauvais accord entre la théorie de Rumpf et les résultats expérimentaux a conduit Rabinovich et al. (2000b) à développer davantage la géométrie de la surface en considérant que le centre de l'aspérité hémisphérique n'est généralement pas aligné avec la surface mais intégré en dessous. En plus de la hauteur des aspérités, un nouveau paramètre λ, décrivant la distance moyenne entre deux aspérités, a été ajouté au modèle. Ce paramètre peut être assimilé à une longueur d'onde. Les auteurs font également remarquer que les surfaces sont le plus souvent composées d'une rugosité nanométrique superposée à une rugosité microscopique plus grande (également appelée ondulation) avec une distance crête à crête λ beaucoup plus grande. Rabinovich *et al.* ont ainsi incorporé la contribution de ces deux échelles de rugosité de surface, caractérisées par leur rugosité quadratique moyenne rms_i et leur longueur d'onde λ_i. La force d'adhésion est alors définie comme la somme des contributions dans l'adhésion de ces différentes structures de rugosité et du plan sous-jacent. Ainsi, les auteurs relient des grandeurs mesurables (λ_i et rms_i) aux dimensions des aspérités (le rayon r_i et la hauteur de l'aspérité H_i par rapport au plan moyen) par les équations suivantes :

$$r_i = \frac{\lambda_i^2}{32 k_1 rms_i} \qquad \text{et} \qquad H_i = k_1 rms_i, \tag{2.25}$$

avec $k_1 = 1.817$ une constante calculée par Rabinovich et al. (2000b) pour des aspérités ayant une géométrie compacte de pics et de creux. La force d'adhésion obtenue par les auteurs est alors donnée par l'équation suivante :

$$F_a = \frac{A R_p}{6 D^2}\left[\frac{1}{1 + 58\text{rms}_2 R_p/\lambda_2^2} + \frac{1}{\left(1 + 58\text{rms}_1 R_p/\lambda_1^2\right)\left(1 + 1.82\text{rms}_2/D\right)^2} + \frac{D^2}{\left(1 + 1.82(\text{rms}_1 + \text{rms}_2)\right)^2}\right]. \tag{2.26}$$

La figure 2.9 illustre une telle géométrie en considérant deux rugosités superposées telles que décrites par Rabinovich. On notera que pour cette géométrie, la hauteur de l'aspérité au-dessus du plan de surface moyen n'est pas égale au rayon de l'aspérité et son origine est située en dessous du plan de surface moyen. L'équation 2.26 reste valide tant que les termes de rugosité rms_i et de longueur d'onde λ_i des deux échelles de rugosité ont des dimensions

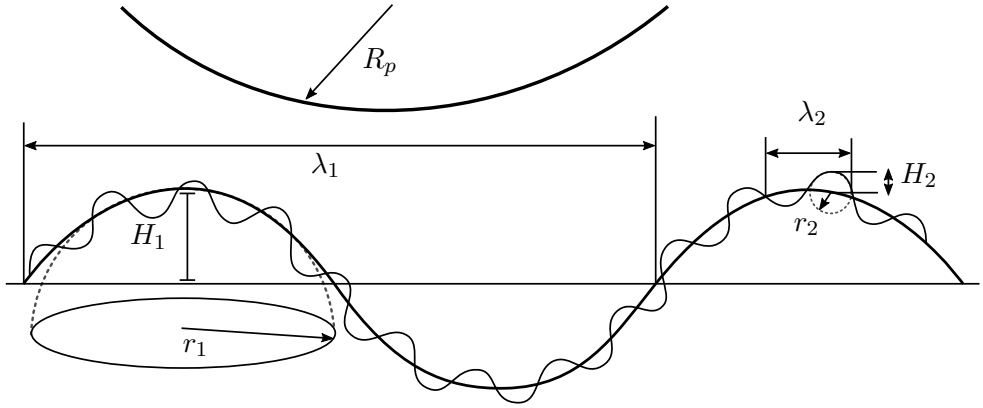

Figure 2.9 – Illustration de la géométrie proposée par Rabinovich et al. (2000b) Pour une surface composée de deux échelles de rugosité.

inférieurs à la taille de la particule. Lorsque la dimension de λ_1 devient comparable au rayon de la particule R_p, le plan moyen de la surface est incorporé dans les aspérités de grandes dimensions et le troisième terme de l'équation 2.26 se simplifie, donnant :

$$F_a = \frac{A \cdot R_p}{6 \cdot D^2} \left[\frac{1}{1 + 58\mathrm{rms}_2 R_p/\lambda_2^2} + \frac{1}{\left(1 + 58\mathrm{rms}_1 R_p/\lambda_1^2\right)\left(1 + 1.82\mathrm{rms}_2/D\right)^2} \right]. \qquad (2.27)$$

Dans un tel cas ($\lambda_1 > R_p$), le terme de contact domine la force d'adhésion totale même si le terme de non-contact garde son influence à l'échelle des rugosités nanométriques. Cette situation est analysée dans la figure 2.10 qui donne la force d'adhésion normalisée par le rayon des particules en fonction de la rugosité nanométrique rms_2, les autres paramètres du modèle étant constant et la constante de Hamaker ainsi que la distance minimale d'approche sont identiques à l'exemple de la figure 2.8.

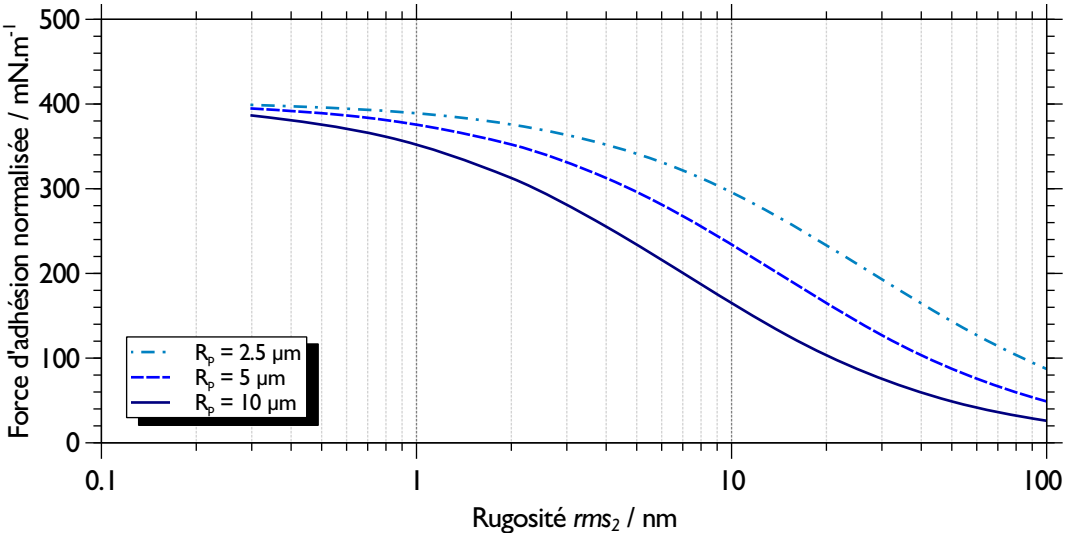

Figure 2.10 – Force d'adhésion normalisée par le rayon des particules (2.5 µm, 5 µm et 10 µm) en utilisant le modèle de Rabinovich et les mêmes paramètres que dans la figure 2.8.

Contrairement au modèle de Rumpf modifié, le modèle de Rabinovich ne prévoit pas une valeur minimale pour la force d'adhésion normalisée mais plutôt une diminution continue à mesure que la rugosité nanométrique de la surface augmente. De plus, les valeurs des forces d'adhésion semblent être un ordre de grandeur supérieures à celles calculées avec le modèle de Rumpf et l'équation 2.23. Bien que la géométrie proposée par Rabinovich montre de bons résultats par rapport aux expériences (Laitinen et al., 2013), elle présente certaines limites :

— les particules et les surfaces qui entrent en contact sont considérées comme indéformables. La déformation plastique décrite par les modèles JKR et DMT est ainsi négligée ;

— le modèle ne considère qu'un seul point de contact entre la particule et la surface qui peut être différent de la position d'équilibre.

Néanmoins, nous verrons au **chapitre 4** que les particules de tungstène que j'ai étudiées correspondent bien aux hypothèses de Rabinovich. Elles sont fixées sous le levier AFM et ne sont donc pas libres de se déplacer pour trouver un point d'équilibre. De plus, l'utilisation d'un matériau dur tel que le tungstène (module de Young de $E = 406$ GPa à température ambiante) pour la particule et le matériau de surface réduit fortement les déformations plastiques qui peuvent survenir lors du contact.

Nous avons abordé dans cette section les forces de Van der Waals et l'influence de la rugosité des surfaces sur ces forces attractives. Nous avons vu que ces forces, d'origines quantiques, sont toujours présentes entre les objets mais que leur magnitude diminue très rapidement à mesure que les objets s'éloignent les uns des autres. Ces forces sont donc prépondérantes à très courtes distances, typiquement $< 5 - 10$ nm, mais disparaissent pour des distances plus grandes. Nous avons également vu que l'adhésion due aux forces de van der Waals va

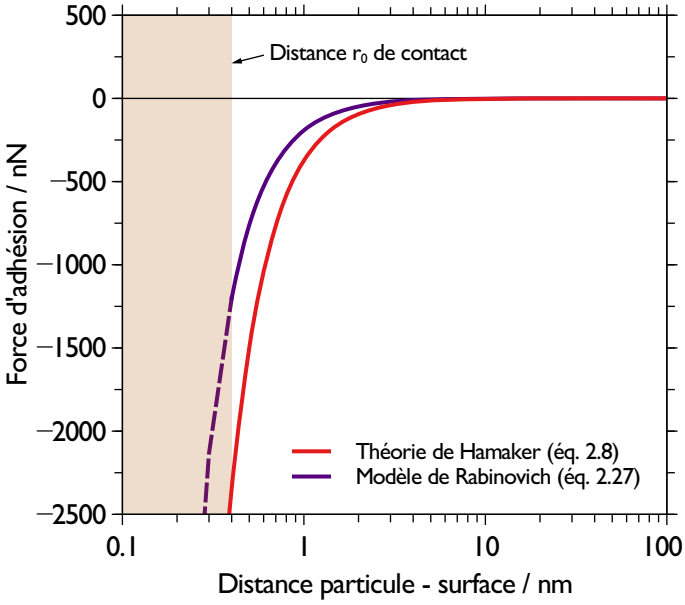

Figure 2.11 – Forces de van der Waals calculées avec la théorie de Hamaker et le modèle de Rabinovich en fonction de la distance entre une particule de tungstène de 5 µm de rayon et une surface rugueuse.

diminuer avec l'augmentation de la rugosité des surfaces. Le modèle analytique de Rabi-

novich et al. (2000a) permet de décrire cette diminution de la force d'adhésion en fonction des paramètres de rugosité des surfaces. Pour illustrer cela, je présente sur la figure 2.11 l'évolution des forces d'adhésion entre une particule de tungstène de 5 µm de rayon et une surface rugueuse en fonction de la distance séparant la particule et la surface. Les deux courbes correspondent aux calculs faits avec la théorie de Hamaker (éq. 2.8) et le modèle de Rabinovich (éq. 2.27). Les paramètres de rugosité nécessaires au calcul des forces avec le modèle de Rabinovich sont extraits du tableau 4.1 et correspondent à une surface de rugosité intermédiaire. Pour obtenir ces courbes de forces, il est nécessaire de connaître la taille des particules, la rugosité des surfaces ainsi que la constante de Hamaker correspondant au couple particule/surface étudié. Je montrerai au **chapitre 4** comment obtenir les paramètres de rugosité ainsi que la constante de Hamaker. On constate que la force d'adhésion maximale intervient lorsque $D = r_0$ soit pour $D = 0.4$ nm dans ce cas. De même, on note qu'au delà d'une dizaine de nanomètres de distance, les forces de van der Waals n'ont plus d'influence sur la particule. Dans la prochaine section, je vais présenter succinctement les forces capillaires qui sont provoquées par la présence de vapeur d'eau dans l'air ambiant. Nous allons voir que ces forces, également attractives, peuvent agir sur des distances bien plus grandes que les forces de van der Waals, notamment lorsque les matériaux étudiés sont hydrophiles.

2.3 Les forces capillaires

L'humidité relative est une variable qui affecte de manière importante l'adhésion des particules sur les surfaces. Lorsque l'humidité relative augmente, de plus en plus de molécules d'eau sont absorbées sur la surface de la particule jusqu'à ce qu'un ménisque d'eau se forme entre celle-ci et la surface avec laquelle elle est en contact. L'apparition d'un film liquide par condensation capillaire entre la surface et la particule a pour conséquence de créer une force d'attraction entre les deux corps. Cet effet suppose donc la présence de vapeur d'eau qui va se condenser dans les aspérités présentes naturellement sur les surfaces. Je présente sur la figure 2.12-**a.** un schéma de cette situation. A l'équilibre thermodynamique, le rayon de courbure du ménisque est égal au rayon de Kelvin qui est reliée à l'humidité relative par l'équation suivante :

$$r_k = \left(\frac{1}{r_1} + \frac{1}{r_2}\right)^{-1} = \frac{\gamma_L V_m}{RT \ln(P/P_{\text{sat}})}, \tag{2.28}$$

avec r_1 et r_2 les rayons de courbure vertical et horizontal du ménisque, γ_L la tension de surface du liquide, V_m son volume molaire, $R = 8.314\ \text{J K}^{-1}\,\text{mol}^{-1}$ la constante des gaz parfaits, T la température et $P/P_{\text{sat}} = \text{HR}$ l'humidité relative. Ainsi, pour de l'eau à 20 °C, $\gamma_L = 72.8\ \text{mJ m}^{-2}$, soit $\gamma_L V_m/RT = 0.54$ nm et l'équation 2.28 se simplifie :

$$r_k = -0.54 \cdot 10^{-9} / \ln(\text{HR}). \tag{2.29}$$

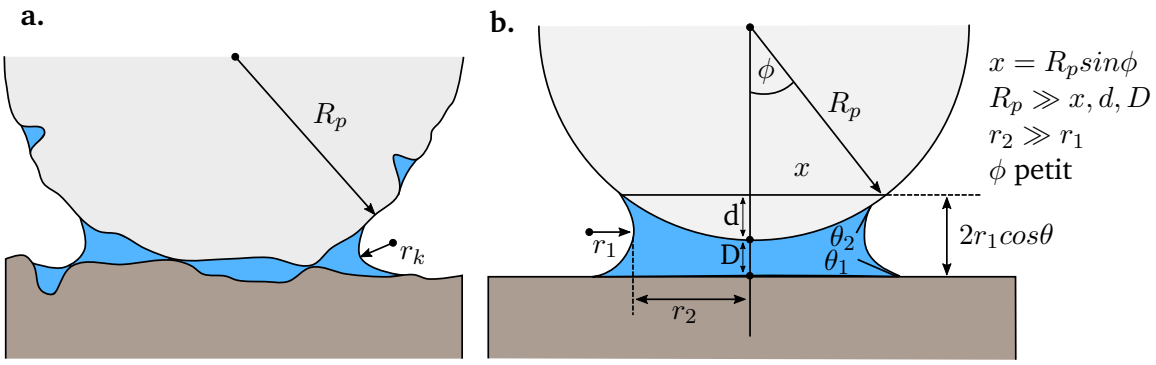

Figure 2.12 – a. Condensation capillaire aux points de contact entre une particule de rayon R_p et une surface rugueuse. Le ménisque concave donne lieu à une pression négative (tension de Laplace) dans le liquide ce qui provoque l'attraction entre la particule et la surface. **b.** Géométrie du pont capillaire entre une particule sphérique et une surface plane. Si l'eau ainsi condensée est en équilibre thermodynamique avec la vapeur environnante, le rayon de courbure du ménisque est équivalent au rayon de Kelvin r_k. Dans une atmosphère saturée, la condensation continuera jusqu'à ce que la surface du liquide ait une courbure moyenne nulle ($r_2 = -r_1$).

Pour une atmosphère saturée en vapeur d'eau (HR = 100 %), le rayon de kelvin tend vers l'infini. On représente sur la figure 2.13 les valeurs du rayon de kelvin pour des humidités relatives comprises entre 10 % et 95 %. On notera qu'en dessous de 10 % d'humidité rela-

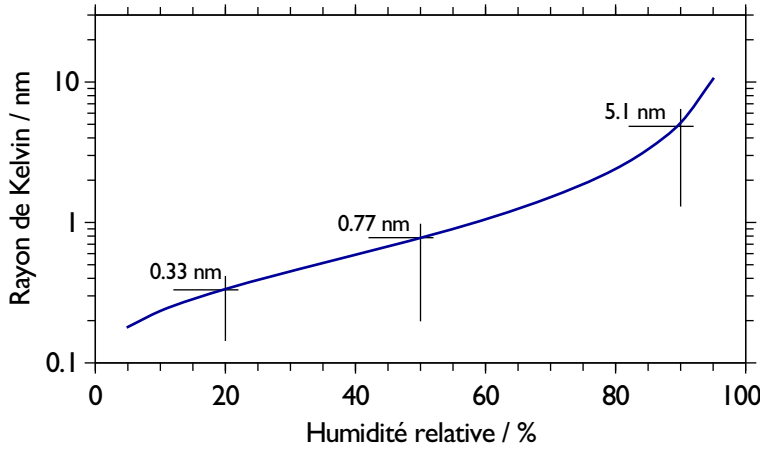

Figure 2.13 – Taille du rayon de Kelvin en fonction de l'humidité relative.

tive, le rayon donné par l'équation 2.29 devient inférieur à la taille d'une molécule d'eau. Dans ces conditions, le rayon de Kelvin n'a plus de sens physique.

La force de capillarité se calcule comme la somme de la tension superficielle du film liquide F_T agissant à l'interface triple gaz/liquide/solide et de la pression négative de Laplace à l'intérieur du ménisque :

$$F_{\text{cap}} = F_T + F_{\Delta P}. \tag{2.30}$$

La force de Laplace $F_{\Delta P}$ est due à la différence de pression entre l'intérieur et l'extérieur du ménisque. Cette pression s'exerce sur la surface de contact entre le solide et le liquide

égale à $A = \pi r_2^2$. Elle est définie par Leite et al. (2012) comme :

$$F_{\Delta P} = A \times \Delta P = \pi r_2^2 \gamma_L \left(\frac{1}{r_1} + \frac{1}{r_2} \right). \tag{2.31}$$

La tension de surface F_T qui s'exerce à une distance r_2 du centre du ménisque s'exprime avec le périmètre du contact entre le ménisque et la particule soit :

$$F_T = 2\pi r_2 \gamma_L \sin\theta, \tag{2.32}$$

avec θ l'angle de contact que forme le liquide avec la surface.

2.3.1 Approximation pour une particule micrométrique

Dans le cadre de mes travaux, je ne vais considérer que l'interaction entre une particule sphérique micrométrique, et une surface lisse. Dans ce cas, le rayon horizontal du ménisque r_2 est très grand par rapport à son rayon de courbure verticale $r_1 = r_k$ qui est de quelques nanomètres. Dans le cas où $r_2 \gg r_1$, la pression de Laplace définie par l'équation 2.31 peut se réécrire comme :

$$\Delta P = \gamma_L \left(\frac{1}{r_1} + \frac{1}{r_2} \right) \approx \gamma_L / r_1. \tag{2.33}$$

Cette pression s'exerce sur une aire de $\pi x^2 \approx 2\pi R_p d$ induisant une force :

$$F_{\Delta P} = -2\pi R_p \frac{\gamma_L}{r_1}. \tag{2.34}$$

Pour des particules micrométriques, l'angle ϕ est petit, la distance $(d + D) \approx 2r_1 \cos\theta$ et la force exercée par la pression de Laplace se réécrit :

$$F_{\Delta P}(D) = -4\pi R_p \gamma_L \cos\theta \left(1 - \frac{D}{2r_1 \cos\theta} \right) = \frac{-4\pi R_p \gamma_L \cos\theta}{(1 + D/d)}. \tag{2.35}$$

La force F_T provenant de la tension de surface du liquide sur le périmètre de la zone de contact est très faible comparée à la force de Laplace sauf dans le cas où $\theta \approx 90°$, soit $\cos\theta \approx 0$ et $\sin\theta \approx 1$. L'équation 2.35 montre que la force de capillarité est maximale lorsque la particule et la surface sont en contact, soit pour $D = 0$ ce qui donne :

$$F_{\Delta P}(D = 0) = -4\pi R_p \gamma_L \cos\theta. \tag{2.36}$$

Cette expression est valable lorsque les deux matériaux en contact sont de même nature avec les mêmes angles de contact ($\theta_1 = \theta_2 = \theta$). Dans le cas contraire, la force de capillarité est donnée par Israelachvili (2011) :

$$F_{\text{cap}} = -2\pi R_p \gamma_L (\cos\theta_1 + \cos\theta_2). \tag{2.37}$$

On constate que la force de capillarité obtenue est indépendante de l'humidité relative du milieu dans lequel se trouve le système particule/surface. En effet, dans la configuration idéale d'une sphère sur une surface parfaitement lisse représentée sur la figure 2.12-**b.**, la taille du ménisque va augmenter avec l'humidité relative mais la pression à l'intérieur de celui-ci va diminuer si bien que la force de Laplace reste constante. Ce résultat est largement contredit par les résultats expérimentaux qui montrent que la nature hydrophile/hydrophobe des surfaces ainsi que la rugosité, aussi petite soit-elle, induisent une dépendance de la force capillaire avec l'humidité relative. Je vais présenter dans le prochain paragraphe plusieurs études expérimentales qui mettent en évidence ces aspects.

2.3.2 Effet(s) de la nature des surfaces sur les forces capillaires

L'adsorption de molécules d'eau augmente l'adhésion due à la tension de surface de l'eau ainsi qu'à la différence de pression à travers le ménisque. Comme la molécule d'eau est une molécule polaire qui peut être attirée par une surface chargée, la présence de charges de surfaces sur une particule peut considérablement affecter l'adsorption des molécules d'eau. Il a par exemple été reporté dans la littérature que l'absorption d'eau peut contribuer au chargement électrique aussi bien qu'à la dissipation des charges en augmentant la conductance du matériau (Taboada-Serrano et al., 2005 ; Kweon et al., 2015). Les effets de l'humidité sur l'adhésion sont donc fortement dépendants du type de matériaux considéré, du potentiel électrique à la surface ainsi que de la taille des particules. En particulier, le caractère hydrophile des surfaces en contact est prépondérant dans l'évolution des forces capillaires et de nombreuses études expérimentales se sont intéressées à ce paramètre. Je

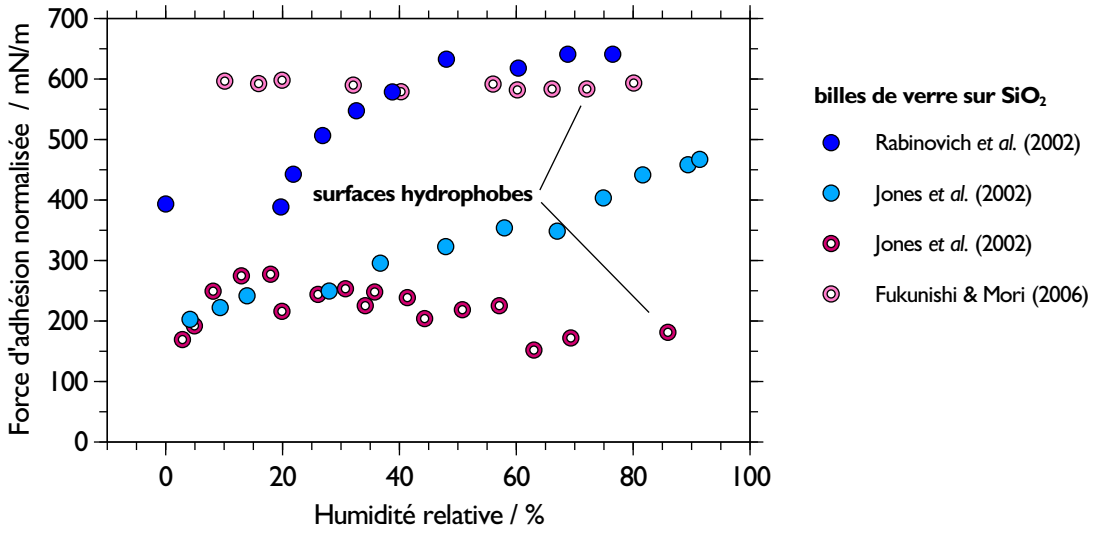

Figure 2.14 – Évolution des forces capillaires normalisées en fonction de l'humidité relative mesurées par AFM dans plusieurs études pour des billes de verre sur du SiO_2.

vais présenter différentes études réalisées par AFM sur l'influence de l'hydrophobie des

surfaces sur les forces capillaires. Ces études ont été réalisées soit en fonctionalisant des leviers AFM avec des billes de verre de plusieurs micromètres de diamètre (Rabinovich et al., 2002 ; Jones et al., 2002 ; Fukunishi and Mori, 2006), soit directement avec des pointes AFM en silicium ou en dioxyde de silicium (Pakarinen et al., 2005 ; Fukunishi and Mori, 2006 ; Chen and Lin, 2008). Les résultats de ces études sont regroupés dans la figure 2.14. Afin de pouvoir comparer les différentes études, j'ai normalisé les forces d'adhésion par le rayon des particules et, dans le cas des pointes AFM, par le rayon du bout de la pointe (équivalent à une sphère). Rabinovich et al. (2002) ont utilisé des billes de verre de 20 µm et 40 µm de diamètre greffées sur des leviers AFM sans pointe. Les substrats utilisés sont en dioxyde de silicium avec des rugosités rms très faibles, entre 0.2 nm et 0.7 nm. Les auteurs ont concentré leur étude sur l'évolution des forces d'adhésion lorsque la rugosité du substrat et l'humidité relative augmentent. Ils montrent d'une part, que l'humidité relative critique à partir de laquelle les forces capillaires interviennent, augmente avec la rugosité du substrat. D'autre part, que les forces capillaires augmentent à mesure que HR augmente. Les données présentées sur la figure 2.14 correspondent aux mesures réalisées avec un substrat de SiO_2 de rugosité $rms = 0.2$ nm. Les résultats montrent une force d'adhésion constante jusqu'à 25 % d'humidité relative. Passé ce seuil d'humidité, les forces d'adhésion augmentent de manière constante. Lorsque la rugosité du substrat de SiO_2 augmente à 0.7 nm, Rabinovich et al. (2002) trouvent une humidité relative critique bien plus élevée, autour de 60 %. Ces travaux peuvent être comparés à ceux de Jones et al. (2002) qui utilisent également des billes de verre de 40 µm de diamètre et un substrat en verre (SiO_2). Leur données montrent que la force d'adhésion augmente de manière constante avec l'humidité relative dans le cas où la surface en verre est simplement nettoyée avant les mesures. On notera que ces valeurs de forces d'adhésion sont inférieures à celles obtenues par Rabinovich et al. (2002) du fait d'une rugosité plus importantes sur les particules de verre utilisées par Jones et al. (2002). La deuxième série de mesure que je présente sur la figure 2.14 issue de l'étude de Jones et al. (2002) a été réalisée avec la même particule de 40 µm mais sur une surface en verre qui a subit un traitement à base d'hexaméthyldisilazane (HMDS) rendant la surface hydrophobe. Dans ce cas là, on constate que les forces d'adhésion ne dépendent plus de l'humidité relative et restent égalent aux valeurs obtenues avec la surface en verre hydrophile lorsque HR < 40 %. Les mesures d'angle de contact réalisées par Jones et al. (2002) donnent respectivement un angle $\theta \approx 20°$ pour la surface en verre non traitée et un angle de $\theta \approx 80°$ pour la surface en verre avec le traitement HMDS. Pour un tel angle de contact, $\cos\theta \to 0$ et la force capillaire décrite par l'équation 2.35 est minimale. Ce résultat est confirmé par l'étude réalisée par Fukunishi and Mori (2006) qui utilisent une bille de verre de 8 µm de rayon et un substrat en verre rendu hydrophobe avec un revêtement d'octadecyltrichlorosilane (OTS). Leurs résultats montrent que l'augmentation de l'humidité relative n'a pas d'influence sur les forces d'adhésion. Des procédures équivalentes ont été réalisées par (Pakarinen et al., 2005 ; Fukunishi and Mori, 2006 ; Chen and Lin, 2008) en utilisant directement des pointes AFM à la place des billes de verre afin de déterminer l'influence de l'angle de contact entre la pointe (qui à un diamètre équivalent très inférieur

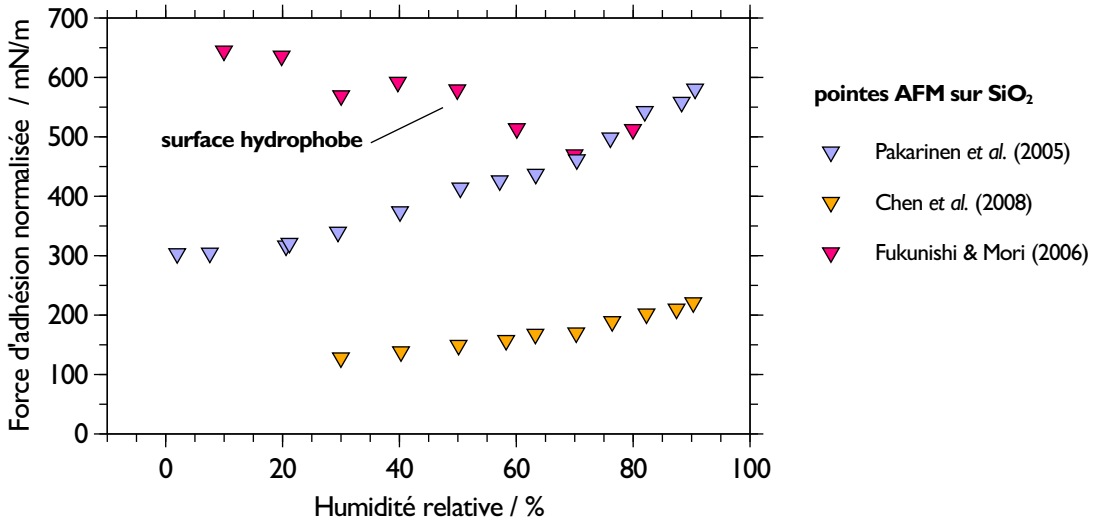

Figure 2.15 – Évolution des forces capillaires en fonction de l'humidité relative mesurées par AFM dans plusieurs études pour des pointes AFM sur du SiO_2.

aux billes de verre) et le ménisque. Les résultats de ces études sont donnés dans la figure 2.15. Dans le cas ou les surfaces sont hydrophiles, on constate à nouveau une augmentation de la force d'adhésion avec l'humidité relative. Pour l'interaction entre la pointe AFM et la surface en verre hydrophobe (fonctionalisée avec OTS), on remarque que la force d'adhésion (capillaire + van der Waals) diminue à mesure que l'humidité relative augmente. Les auteurs attribuent ce résultat aux dimensions nanométriques et à la géométrie pyramidale de la pointe AFM qui favorisent l'apparition d'un grand angle de contact θ_2 et donc une diminution de la force capillaire calculée selon 2.37. L'influence de la géométrie de la pointe AFM sur la forme du ménisque est également démontrée, de manière plus détaillée, par Pakarinen et al. (2005).

2.3.3 Effet du potentiel électrique sur les forces capillaires

Des travaux plus récents (Kweon et al., 2015) sur l'effet de l'humidité et du potentiel de surface entre une particule et un substrat ont montré que l'humidité relative, au-delà d'un certain pourcentage, pouvait soit augmenter l'adhésion, soit au contraire la diminuer. En utilisant la microscopie AFM, Kweon et al. (2015) montrent que l'influence de l'adsorption d'eau sur la force d'adhésion totale et spécifiquement sur la force électrostatique dépend de l'hydrophobie des surfaces. Pour illustrer cela, les auteurs disposent de plusieurs expériences avec différentes configurations particules/surfaces. Nous retiendrons ici deux cas illustrés sur la figure 2.16. Le premier cas concerne une surface hydrophile en mica (minéral du groupe des silicates) et une particule sphérique en or (traitée hydrophobe) de 1 µm de diamètre greffée sur un levier AFM. Un potentiel électrique variable est établi entre la particule et la surface et plusieurs mesures d'adhésion sont réalisées pour différentes

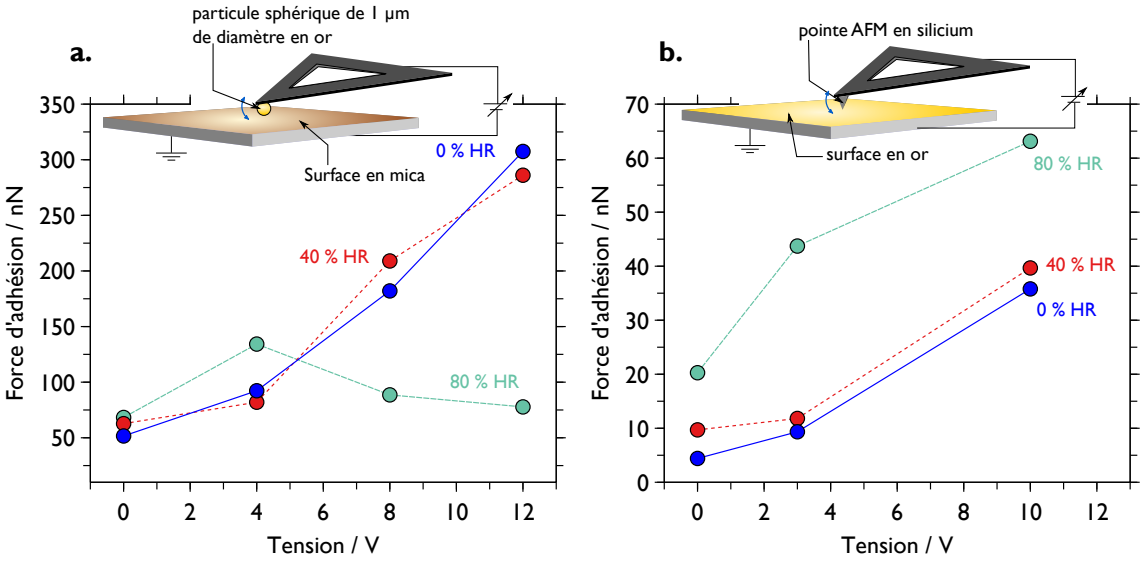

Figure 2.16 – a. Force d'adhésion entre une surface en mica et une particule d'or sphérique de 1 µm de diamètre. **b.** Force d'adhésion entre une pointe AFM en silicium et une feuille d'or en fonction de l'humidité relative et du potentiel électrique appliqué sur la feuille d'or.

tensions électriques et différentes humidités relatives. Le deuxième cas est sur le même principe mais cette fois-ci avec une surface en or et une pointe AFM en silicium (traitée hydrophobe).

Dans le premier cas, on constate que la force d'adhésion augmente avec le potentiel électrique du fait de la contribution des forces électrostatiques que ce soit à 0 % ou 40 % d'humidité relative. En revanche, à 80 % d'humidité relative, la force d'adhésion augmente avec le potentiel électrique entre 0 et 4 V mais diminue ensuite à mesure que le potentiel électrique augmente. Le potentiel de surface joue donc un rôle dans l'absorption des molécules d'eau. En effet, l'augmentation de la force d'adhésion entre 0 et 4 V est plus importante à 80 % HR qu'à 40 % HR ce qui indique que pour une humidité relative élevée, il y a une plus grande adsorption de molécules d'eau pour un potentiel électrique faible. Au-delà d'une certaine quantité de molécules d'eau adsorbées, le potentiel (ou la charge) de surface sont atténués menant à la diminution de la contribution des forces électrostatiques dans l'adhésion. Ainsi, à 80 % HR, la force d'adhésion est dominée par la force de capillarité et est équivalente au cas où aucun potentiel électrique (0 V) n'est appliqué dans le système. Pour le deuxième cas reporté ici, on constate que la force d'adhésion augmente avec le potentiel électrique et ce quel que soit le degré d'humidité relative. Nous l'avons vu au paragraphe précédent, l'adsorption des molécules d'eau dépend de l'hydrophobie du matériau mais également de l'angle de contact entre les surfaces. De plus, en absorbant des molécules d'eau, le silicium se charge négativement du fait de l'apparition de groupe silanols ce qui conduit à une augmentation de la densité de charges négatives lorsque l'humidité relative augmente (Gouveia et al., 2008). Il en résulte une augmentation de la force d'adhésion du fait des forces électrostatiques favorisées dans ce cas par l'adsorption d'eau

sur le système pointe/surface. L'influence des forces électrostatiques sur l'adhésion des particules sera abordée dans la prochaine section.

J'ai montré dans cette section que les forces capillaires peuvent avoir une influence majeure dans l'adhésion des particules. Nous avons vu que la formation d'un ménisque entre une particule et une surface dépend de l'humidité relative du milieu, de la nature des matériaux et de leur charge électrique. Je propose de reprendre l'exemple de la figure 2.11 et de calculer l'évolution des forces capillaires (éq. 2.35) pour une particule de tungstène de 5 µm de rayon en fonction de la distance avec la surface. Cet exemple est reporté sur la figure 2.17 où l'humidité relative est prise à 40 %. Dans le cas où un pont capillaire se forme entre

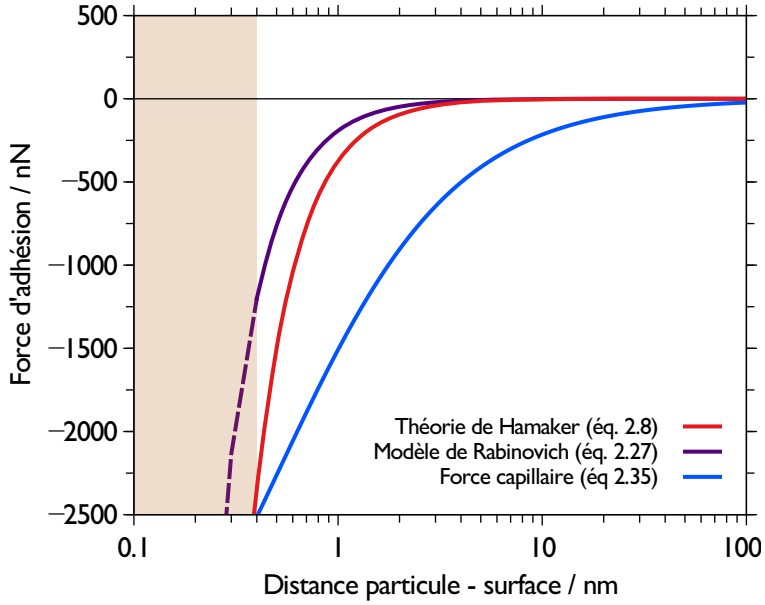

Figure 2.17 – Évolution des forces capillaires et des forces de van der Waals en fonction de la distance entre une particule de tungstène de 5 µm de rayon et une surface rugueuse. L'humidité relative est ici fixée à 40 %.

la particule et la surface, on trouve que les forces capillaires sont prépondérantes devant les forces de van der Waals. De plus, la déformation du ménisque lorsque la particule s'éloigne de la surface provoque le maintien d'une force d'adhésion sur une distance bien plus grande que la zone d'influence typique des forces de van der Waals. Je montrerai au **chapitre 4** des mesures faites par AFM entre une particule de tungstène et une surface en verre ou ces forces capillaires sont bien visibles et écrantent les forces de van der Waals. A cette occasion, je présenterai la technique que utilisée pour réduire ces effets indésirables à mon étude.

2.4 Les forces électrostatiques

La charge électrique portée par les particules est un paramètre important car elle peut fortement influencer leur comportement, notamment en présence d'un champ électrique. Or la plupart des aérosols d'origines naturelles ou artificielles sont électriquement chargés,

les mécanismes de chargement étant très diversifiés. Outre l'émission de particules chargées dans le cas des aérosols radioactifs (Yeh et al., 1976), on peut citer par exemple : la friction (tribo-électrification) (Matsusaka et al., 2010), la pulvérisation (Kok and Renno, 2008), la diffusion d'ions (Intra and Tippayawong, 2009), la charge par champ (Wu et al., 2004), l'émission thermo-ionique (Flanagan and Goree, 2006) ou photoélectrique (Sickafoose et al., 2000). Pour une particule sphérique de rayon R_p dans le vide, l'expression de sa charge électrique Q (supposée uniforme dans toute la sphère) est donnée par la loi de Gauss :

$$Q = \epsilon_0 \oiint_S \vec{E}.d\vec{S} = 4\pi\epsilon_0 R_p^2 E \tag{2.38}$$

avec $\epsilon_0 \approx 8,85.10^{-12}$ F m^{-1} la permittivité du vide. La force électrostatique agissant sur la particule peut alors s'écrire :

$$F_e = QE = 4\pi\epsilon_0 R_p^2 E^2. \tag{2.39}$$

Cette expression est valable pour une particule chargée composée d'un matériau conducteur dans le vide et loin de toutes surfaces. Lorsque la particule est déposée sur une surface, le champ électrique local sera modifié et l'expression 2.39 doit être adaptée.

2.4.1 Cas d'une particule conductrice

Pour une particule conductrice déposée sur une surface conductrice, la force électrostatique peut se calculer analytiquement (Jones, 1995) et s'exprime comme :

$$F_e = 4\pi\epsilon_0 R_p^2 E^2 \left[\xi(3) + 1/6\right], \qquad \text{avec} \qquad \xi(3) + 1/6 \approx 1.37. \tag{2.40}$$

Dans l'équation 2.40 (aussi appelée formule de Lebedev), le paramètre $\xi(\cdot)$ est la fonction *zeta* de Riemann. La valeur de ce paramètre dépend de la nature des matériaux en contact. Ainsi, pour une particule conductrice de molybdène qui repose sur une surface conductrice infinie, Cho (1964) a montré que l'acquisition des charges induites par le champ électrique se fait presque instantanément sur la surface de la particule. L'intégration de cette charge de surface donne la charge totale de la particule, soit :

$$Q = 1,65 \times 4\pi\epsilon_0 R_p^2 E, \tag{2.41}$$

Avec $E = \Delta V/D$ le champ électrique en V m^{-1}, R_p le rayon de la particule (m), ΔV la différence de potentiel (V) et D la distance entre les deux électrodes.

2.4.2 Cas d'une particule diélectrique

Pour une particule diélectrique déposée sur une surface conductrice (voir figure 2.18), la force électrostatique dépend du rayon de la particule R_p, de sa charge Q et de la constante diélectrique ϵ_p du matériau la constituant. En présence d'un champ électrique externe E, la charge de saturation d'une particule diélectrique déposée sur une surface s'exprime suivant la relation (Lackowski et al., 2010) :

$$Q = 12\pi\epsilon_0 \left(\frac{\epsilon_p}{2+\epsilon_p}\right) R_p^2 E, \tag{2.42}$$

ou le facteur $(\frac{\epsilon_p}{2+\epsilon_p})$ est communément appelé le coefficient de Pauthenier (Pauthenier, 1932). On notera qu'il n'existe pas d'expression analytique pour le calcul de la charge d'une particule diélectrique déposée sur une surface. En revanche, la force électrostatique F_e peut être exprimée par (Jones, 1995) :

$$F_e = \alpha \frac{1}{16\pi\epsilon_0}\frac{Q^2}{R_p^2} - \beta QE + \gamma 4\pi\epsilon_0 R_p^2 E^2. \tag{2.43}$$

Le premier terme de cette équation correspond à la force attractive entre la charge de la particule et la charge image qui se crée dans la surface conductrice (voir figure 2.18(a)). Le second terme correspond à la force exercée par le champ électrique sur la particule chargée (c'est la force de Coulomb, figure 2.18(c)) et le troisième terme à la force de polarisation induite sur la particule par le champ électrique et la surface conductrice (figure 2.18(b)). La

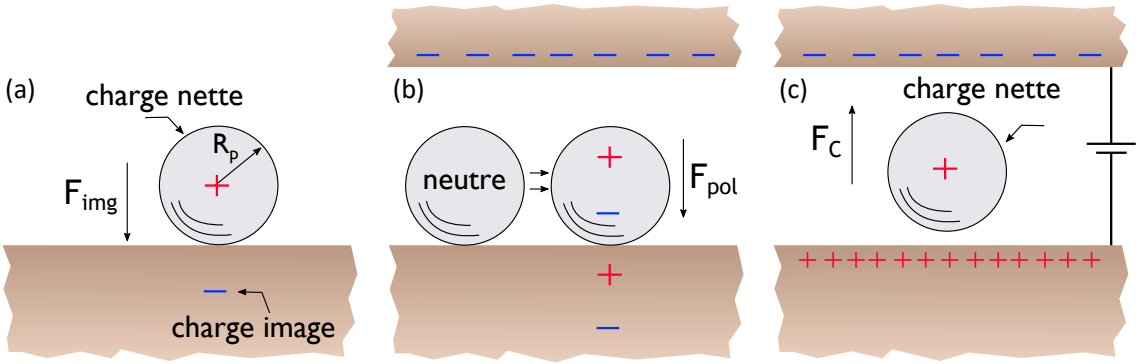

Figure 2.18 – Décomposition schématique des différentes contributions de la force électrostatique agissant sur une particule diélectrique déposée sur une surface conductrice. (a) La force image provient de l'apparition d'une charge image de même intensité mais de signe opposé dans la surface conductrice proche de la particule. (b) La polarisation d'une particule neutre par le champ électrique et déposée sur une surface conductrice entraîne une réorganisation des charges sur la particule. (c) Une particule chargée dans un champ électrique subit la force de Coulomb.

contribution de la force image (proportionnelle à Q^2) est positive (adhésion) car la charge image induite dans la surface conductrice possède une polarité opposée à la charge Q de la particule. Pour simplifier le problème, il est généralement considéré que la charge de la particule est uniformément répartie et peut être assimilée à une charge nette au centre de

la particule comme illustré sur la figure 2.18(a). La force image s'exprime alors par :

$$F_{\text{img}} = \frac{QQ'}{16\pi\epsilon_0 R_p^2} \qquad \text{avec} \qquad Q' = \frac{\epsilon_s - \epsilon_m}{\epsilon_s + \epsilon_m} Q, \tag{2.44}$$

ou ϵ_s, ϵ_m et ϵ_p sont les constantes diélectriques du substrat, du milieu environnant et de la particule respectivement. Dans la plupart des cas, $\epsilon_s \neq \epsilon_m$ et il faut introduire un facteur de correction α qui dépend des constantes diélectriques de la surface, de la particule et du milieu environnant. L'équation 2.44 devient alors :

$$F_{\text{img}} = \alpha(\epsilon_s, \epsilon_m, \epsilon_p) \left(\frac{\epsilon_s - \epsilon_m}{\epsilon_s + \epsilon_m} \right) \frac{Q^2}{16\pi\epsilon_0 R_p^2}. \tag{2.45}$$

On notera que le paramètre α ne peut pas être calculé analytiquement. En effet, ce paramètre prend en compte la rupture de symétrie de la distribution des charges à la surface de la particule diélectrique ($\kappa_p = \frac{\epsilon_p}{\epsilon_0} > 1$) qui se polarise en présence d'un champ électrique. Il en résulte une augmentation de l'adhésion due à la force image qui doit être corrigée par ce facteur α. Cependant, pour une particule dont la permittivité relative κ_p est comprise entre 2 et 10, déposée sur une surface conductrice ($\kappa_s \to \infty$), Jones (1995) a effectué un calcul numérique qui donne $1.33 \leq \alpha \leq 4.8$. La force image agit dans le sens d'une augmentation des forces d'adhésion, notamment dans le cas où la surface sur laquelle est déposée la particule possède une rugosité importante, les forces électrostatiques ayant un plus grand rayon d'action que les forces moléculaires de van der Waals (Zhou et al., 2003). De plus, cette force reste présente même en l'absence d'un champ électrique externe, à condition que la particule possède une charge électrique.

Le deuxième terme de l'équation 2.43 à un signe négatif signifiant que cette contribution de la force électrostatique agit dans le sens du détachement de la particule depuis la surface si $QE > 0$. Le facteur β dépend également des constantes diélectriques de la particule, du milieu environnant et de la surface.

Le troisième terme de l'équation 2.43 est proportionnel à E^2 et provient des moments multipolaires induits dans la particule par le champ électrique externe. Ces moments créent leurs propres images dans le substrat et c'est cette interaction entre ces moments induits et leurs images qui conduit à l'apparition de ce terme en E^2. Pour une particule diélectrique déposée sur une surface conductrice dans l'air, les paramètres β et γ de l'équation 2.43 sont définis ainsi (Jones, 1995) :

$$\beta = 1 + \frac{\delta}{2}, \qquad \gamma = \frac{3}{8}\delta^2 \qquad \text{avec} \qquad \delta = \frac{\epsilon_p - 1}{\epsilon_p + 2}. \tag{2.46}$$

2.4.3 Cas d'une particule conductrice recouverte d'une couche diélectrique

Pour des particules de tungstène exposées à l'air libre, une couche d'oxyde de tungstène va rapidement se former à la surface des particules. Dans une précédente étude (Peillon et al., 2017), nous avons vu que cette couche native d'oxyde de quelques nanomètres d'épaisseur (entre 4 et 10 nm) est suffisante pour que les particules de tungstène adoptent un comportement diélectrique. On peut obtenir la constante diélectrique équivalente d'une telle particule en considérant la constante diélectrique de la couche d'oxyde ϵ_i d'épaisseur $\delta = R_p - R_c$ avec R_c le rayon du cœur de la particule de constante diélectrique ϵ_c. Ce

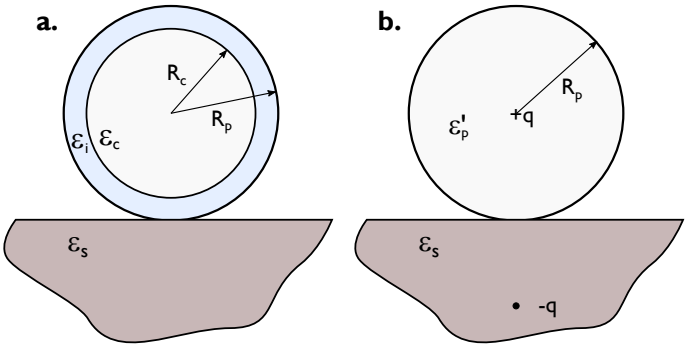

Figure 2.19 – Schéma d'une particule de constante diélectrique ϵ_c recouverte d'une couche diélectrique de constante ϵ_i déposée sur une surface (ϵ_s).

modèle est présenté sur la figure 2.19 d'après Jones (1995). La constante diélectrique de la particule s'écrit alors comme :

$$\epsilon'_p = \epsilon_i \left\{ \frac{a^3 + 2\left(\dfrac{\epsilon_c - \epsilon_i}{\epsilon_c + 2\epsilon_i}\right)}{a^3 - \left(\dfrac{\epsilon_c - \epsilon_i}{\epsilon_c + 2\epsilon_i}\right)} \right\} \qquad \text{avec} \qquad a = \frac{R_p}{R_c}. \tag{2.47}$$

On pourra alors remplacer ϵ_p par ϵ'_p dans l'équation 2.45 pour calculer la force image d'une telle particule. Pour une couche mince de tri-oxyde de tungstène WO_3, Krishnaji et al. (1975) donnent une permittivité relative élevée $\kappa_i = \epsilon_i/\epsilon_0 \approx 30$. Si on applique le calcul (éq. 2.47) au cas d'une particule de tungstène de 1 µm de rayon avec une couche d'oxyde de surface d'environ 10 nm, en supposant $\kappa_i = 10\kappa_c$, on obtient alors $\kappa'_p = \kappa_c + \frac{1}{5}\kappa_c$. Ainsi, une couche d'oxyde de 10 nm ayant une constante diélectrique dix fois plus élevée que le cœur de la particule entraîne une augmentation de 20 % de la constante diélectrique comparativement à celle du matériau du cœur.

Pour illustrer l'influence de cette couche d'oxyde de tungstène sur la force électrostatique j'ai reporté sur la figure 2.20-**a.** le calcul correspondant à l'équation 2.43 pour une particule de 5 µm de rayon dont la constante diélectrique est $\epsilon'_p = 3.6$ (cœur en tungstène avec une couche de 10 nm d'oxyde de tungstène) en fonction du champ électrique. Les trois composantes sont ici représentées en valeurs absolues afin de pouvoir comparer leur magnitudes. On constate que, pour la constante diélectrique utilisée ici, la force de Coulomb est toujours supérieures à la force image et à la force venant de la polarisation de la

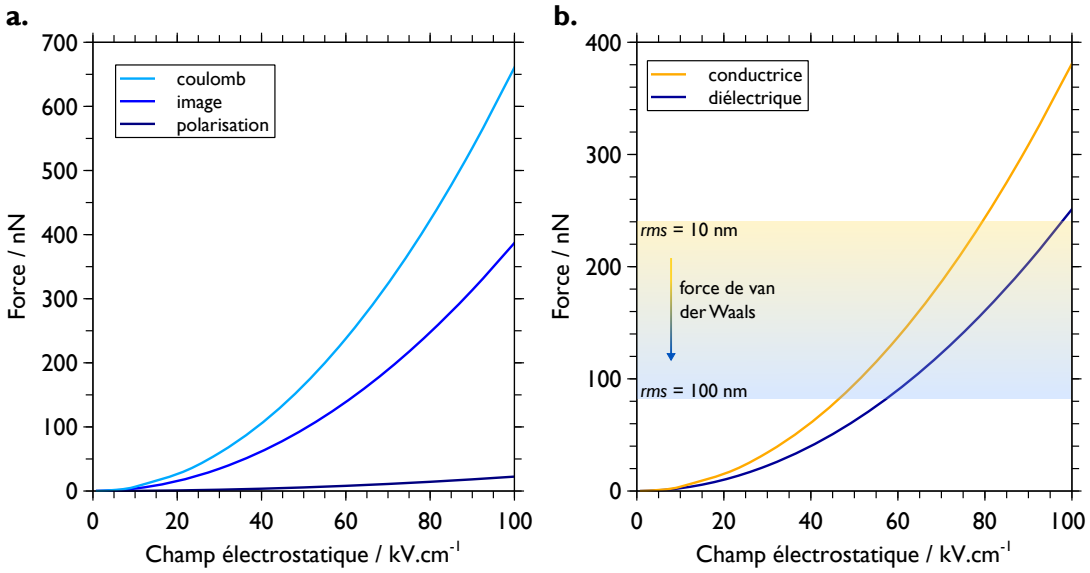

Figure 2.20 – a. Magnitudes des différentes composantes de la force électrostatique sur une particule de tungstène de 5 µm de rayon recouverte d'une couche de WO_3 en fonction du champ électrique. **b.** Comparaison entre une particule de tungstène conductrice et une particule de tungstène recouverte d'une couche diélectrique de 5 µm en fonction du champ électrique. La force de van der Waals calculée avec le modèle de Rabinovich pour des rugosités allant de 10 nm à 100 nm est également représentée.

particule par le champ électrique. En revanche, la force image est non négligeable et aura pour conséquence de diminuer l'action de la force (de détachement) de Coulomb. La force électrostatique totale qui s'applique sur cette particule diélectrique peut s'écrire comme $F_e = -F_{img} + F_C - F_{pol}$ et est reportée sur le graphique 2.20-**b.** avec la force électrostatique correspondant au cas d'une particule conductrice (éq. 2.40) de 5 µm de rayon également. On constate que, pour les champs électrique utilisés, la force électrostatique agissant sur une particule conductrice est toujours supérieures à celle agissant sur une particule diélectrique. Nous venons de le voir, cela est dû à la force image qui participe à augmenter l'adhésion de la particule diélectrique sur la surface. J'ai également reporté sur la figure 2.20-**b.** la gamme de valeur de la force de van der Waals calculée avec le modèle de Rabinovich et al. (2000b) pour une rugosité de surface allant de 10 nm à 100 nm. On constate que pour une faible rugosité, le champ électrique nécessaire pour détacher la particule est supérieur à environ 80 kV cm^{-1}. Pour une rugosité rms de 100 nm, un champ électrique supérieur à 40 kV cm^{-1} est suffisant pour détacher une particule de tungstène de 5 µm de rayon. Ces calculs analytiques sont en bon accord avec les résultats des expériences que nous avions obtenus avec une balance électrodynamique et une poudre de tungstène composée de particules sphériques de diamètre médian égal à 10 µm (Peillon et al., 2017). Lors de ces expériences, nous avions observé qu'un champ électrique de 50 kV cm^{-1} permettait de détacher environ la moitié des particules déposées sur une électrode de tungstène. La rugosité de cette électrode n'était, en revanche, pas connue.

Les données présentées dans cette section et les résultats obtenus sur la figure 2.20-**b.**

montrent que les forces électrostatiques s'exerçant sur une particule (conductrice ou diélectrique) peuvent être du même ordre de grandeur voir supérieures aux forces de van der Waals, notamment lorsque la surface possède une rugosité non négligeable. Dans le cadre d'une étude par microscopie à force atomique, la force électrostatique agissant entre une particule conductrice (greffée sur le levier à la place de la pointe) et un substrat conducteur dépend simplement du potentiel V qui est imposé entre le substrat et la pointe, du rayon de la particule et de la distance D séparant les deux objets. L'expression de cette force a été développée par Hudlet et al. (1998) et s'exprime comme :

$$F_{el} = \pi\epsilon_0 \frac{R_p^2 V^2}{D(D+R_p)}. \tag{2.48}$$

On peut reprendre l'exemple des figures 2.11 et 2.17 et calculer l'évolution des forces électrostatiques (éq. 2.48) pour une particule de tungstène de 5 µm de rayon en fonction de la distance avec le substrat. Ce calcul est reporté sur la figure 2.21 où le substrat est maintenu à un potentiel de 2 V. Avec les paramètres considérés dans cet exemple, on constate que la

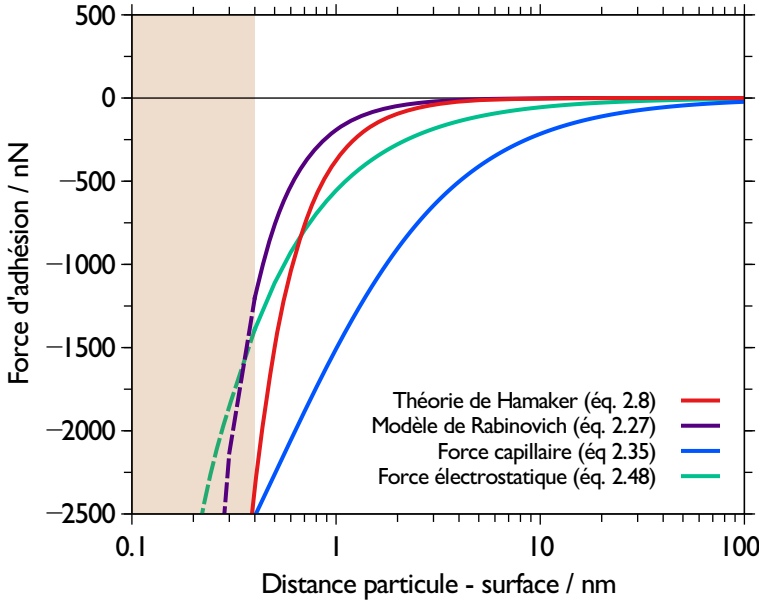

Figure 2.21 – Évolution des forces électrostatiques, capillaires et de van der Waals en fonction de la distance entre une particule de tungstène de 5 µm de rayon et une surface rugueuse. L'humidité relative est ici fixée à 40 % et le potentiel du substrat à 2 V.

force électrostatique intervient dès que la particule est à moins de 20 nm du substrat. De plus, entre 0.4 nm et 20 nm, la force électrostatique reste supérieure aux forces de van der Waals calculées avec le modèle de Rabinovich. En revanche, les forces capillaires restent dominantes dans cet exemple. L'enjeu des mesures AFM que je présenterai aux **chapitres 4** et **5** est de pouvoir identifier et quantifier ces différentes forces en fonction de la rugosité du substrat, de la taille et de la charge électrique des particules.

2.4.4 Effet(s) de la radioactivité sur l'adhésion

Les études disponibles dans la littérature sur l'effet de la radioactivité dans l'adhésion des particules sont peu nombreuses et proviennent principalement d'une équipe de l'*Oak Ridge National Laboratory*. Par exemple, l'étude de Walker et al. (2010) a montré que la force d'adhésion entre une pointe AFM et une surface augmente légèrement lorsque la surface est radioactive. Dans cette étude, les auteurs ont activé une feuille d'or de 5 x 5 x 0.1 mm^3 par irradiation. L'isotope majoritaire produit lors de l'activation de cette surface en or est ^{198}Au qui se désintègre par émissions β et γ avec une demi-vie de 2.7 jours. Le débit de dose initial de cette surface est de 900 $\mu Sv\,h^{-1}$. Cet échantillon en or est alors utilisé comme substrat interagissant avec la pointe du cantilever comme représenté sur la figure 2.22. Les auteurs constatent qu'en présence d'un substrat radioactif, les forces d'adhésion entre

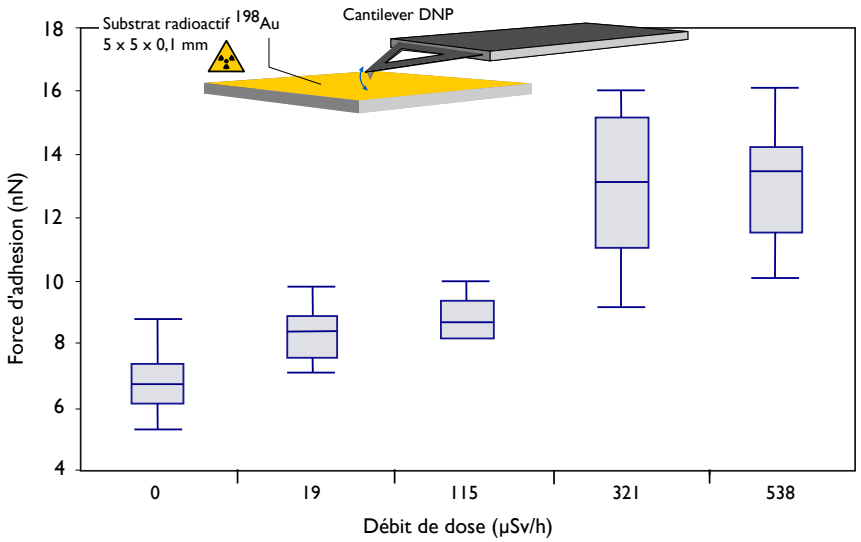

Figure 2.22 – Schéma du dispositif et résultats obtenus par Walker et al. (2010). Les forces d'adhésion augmentent avec le débit de dose de la surface activée.

la pointe et l'or augmentent significativement. Pour un débit de dose de 538 $\mu Sv\,h^{-1}$, la moyenne des forces d'adhésion est de 13.2 nN. Dans le cas où l'or n'est pas activé, la force d'adhésion mesurée n'est que de 6.8 nN. Les auteurs attribuent l'augmentation des forces d'adhésion ($+6.4$ nN) à une force image électrostatique qui apparaît entre la pointe et le substrat étant donné que les forces de van der Waals ne dépendent pas du débit de dose et que la force de Coulomb est limitée par un raccord du substrat conducteur à la masse.

A la suite de ces travaux, Kweon et al. (2013) et Kim et al. (2014) ont étudié directement l'effet de la radioactivité sur le potentiel électrique de surface. Les potentiels de surface des échantillons irradiés, semblables à ceux de Walker et al. (2010) dans l'étude de Kweon et al. (2013), sont obtenu par KPFM (*Kelvin Probe Force Microscopy*). Je présenterai cette technique au **chapitre 5**. Des images du potentiel de surface de plusieurs échantillons d'or activés (feuille de 25 mm^2) sont ainsi obtenues, en fonction de l'activité de l'échantillon

et de l'humidité relative. Ces mesures KPFM montrent que la radioactivité influence très fortement le potentiel électrique de surface des échantillons. En effet, au-delà de 80 µCi (on rappelle que 1 µCi $=$ 37000 Bq), le potentiel de surface de l'or est supérieur à 10 V, valeur maximale du potentiel pouvant être mesuré avec le KPFM. Deux exemples de mesures du potentiel de surface de feuilles d'or activées à 32 µCi et 108 µCi sont montrés sur la figure 2.23. On remarque que la feuille d'or activée à 108 µCi sature le microscope au-delà de 10 V. Les auteurs donnent également les valeurs moyennes du potentiel de surface en fonction de la radioactivité de l'échantillon pour différentes valeurs d'humidité relative (voir figure 2.23-**c.**). Il apparaît naturellement que le potentiel de surface décroît linéairement avec l'activité de l'échantillon puis devient constant pour des activités inférieures à 10 µCi. On remarque également que l'humidité relative n'influence pas significativement le potentiel électrique des échantillons. Sur la base de ces mesures de potentiel, les auteurs

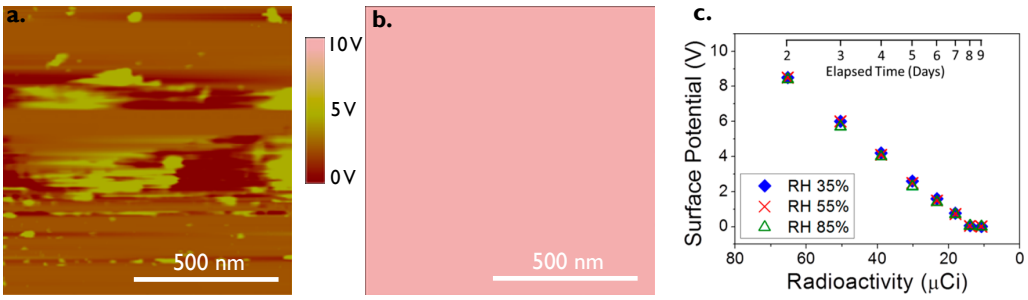

Figure 2.23 – a. Potentiel de surface pour un échantillon d'or activé à 32 µCi. **b.** Potentiel de surface pour un échantillon d'or activé à 108 µCi. Pour cet échantillon, les valeurs du potentiel de surface sont supérieures à 10 V, la limite de saturation de l'instrument KPFM. **c.** Influence de la radioactivité sur le potentiel de surface pour différentes humidité relative. (Kweon et al., 2013).

proposent de calculer la force électrostatique agissant sur la pointe KPFM en assimilant le système pointe/substrat à un condensateur plan-plan infini. Pour une telle configuration, le flux électrique peut s'exprimer avec la loi de Gauss comme $\Phi = Q/\epsilon_0 = EA$ avec E le champ électrique et A l'aire de la surface considérée. Le champ électrique entre deux plaques parallèles peut donc se redéfinir comme $E = \dfrac{\sigma}{2\epsilon_0}$ où σ est la densité surfacique de charge (Q/A en C m^{-2}). Le champ électrique étant également défini par la différence de potentiel ΔV divisée par la distance entre les deux plaques d, la densité surfacique de charge peut se réécrire comme :

$$\sigma = 2\epsilon_0 \frac{\Delta V}{d}. \tag{2.49}$$

En définissant ψ_{ech} et ψ_{pointe} les potentiels de l'échantillon et de la pointe respectivement, la densité surfacique de charge peut être directement mesurée par le KPFM et vaut :

$$\sigma = 2\epsilon_0 \frac{\partial \psi}{\partial z} = 2\epsilon_0 \frac{\psi_{\text{ech}} - \psi_{\text{pointe}}}{z}, \tag{2.50}$$

avec z la distance entre la pointe et l'échantillon. Les auteurs en déduisent la force électro-

statique qui s'exerce sur la pointe par :

$$F_e = -\alpha \frac{\left(\sigma_{\text{pointe}} A_{\text{pointe}}\right)^2}{16\pi\epsilon_0 R_p^2} + \beta \sigma_{\text{pointe}} A_{\text{pointe}} E - \gamma \pi \epsilon_0 R_p^2 E^2, \tag{2.51}$$

où A_{pointe} est l'aire de la pointe qui est ici assimilée à une particule sphérique de rayon R_p =20 nm. Les forces d'adhésion mesurées par Kweon (2013) entre la pointe AFM et le substrat en or sont présentées sur la figure 2.24 pour différentes humidités relatives en fonction de l'activité du substrat. On constate que la force d'adhésion augmente avec

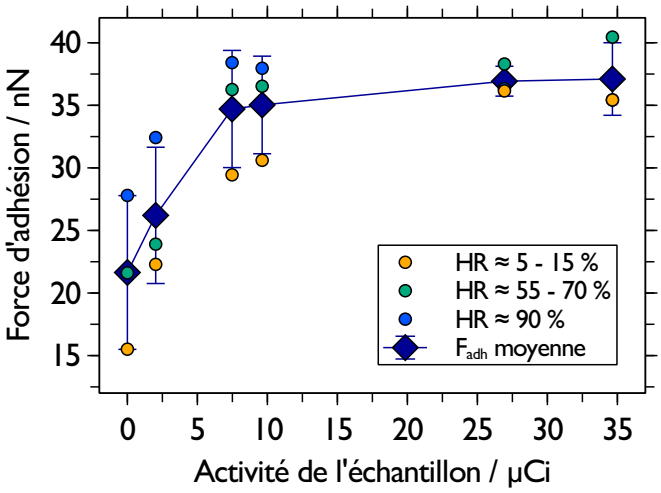

Figure 2.24 – Évolution de la force d'adhésion mesurée par AFM en fonction de l'activité radioactive du substrat en or dans l'étude de Kweon et al. (2013).

l'activité du substrat faisant ainsi apparaître l'action de la force image entre la pointe AFM et le substrat radioactif. Cette force électrostatique s'ajoute à la force capillaire lorsque l'humidité augmente. Pour un substrat en or inactif (0 µCi), la force capillaire vaut environ 12 nN. Lorsque le substrat à une activité de 35 µCi, on remarque que la force d'adhésion totale est d'environ 37 nN. En utilisant l'équation 2.51 les auteurs calculent une force image entre 15 nN et 25 nN selon la géométrie de la pointe. Ces calculs sont confirmés par les résultats expérimentaux de la figure 2.24.

2.5 Résumé et conclusion du chapitre

2.5.1 Bilan des forces

Afin d'illustrer l'influence relative des différentes forces que nous avons vues au cours de ce chapitre, j'ai rassemblé dans la figure 2.25 les calculs de ces forces pour des particules de tungstène ayant un rayon allant de 100 nm à 100 µm déposées sur une surface en tungstène de faible rugosité ($rms = 3$ nm) à l'air ambiant. Cette configuration est résumée dans la figure 2.25-**a** illustrant une particule de 3.5 µm de rayon déposée sur une surface en tungstène. Les forces agissant sur la particule ainsi que les principaux paramètres utilisés dans les calculs sont également donnés.

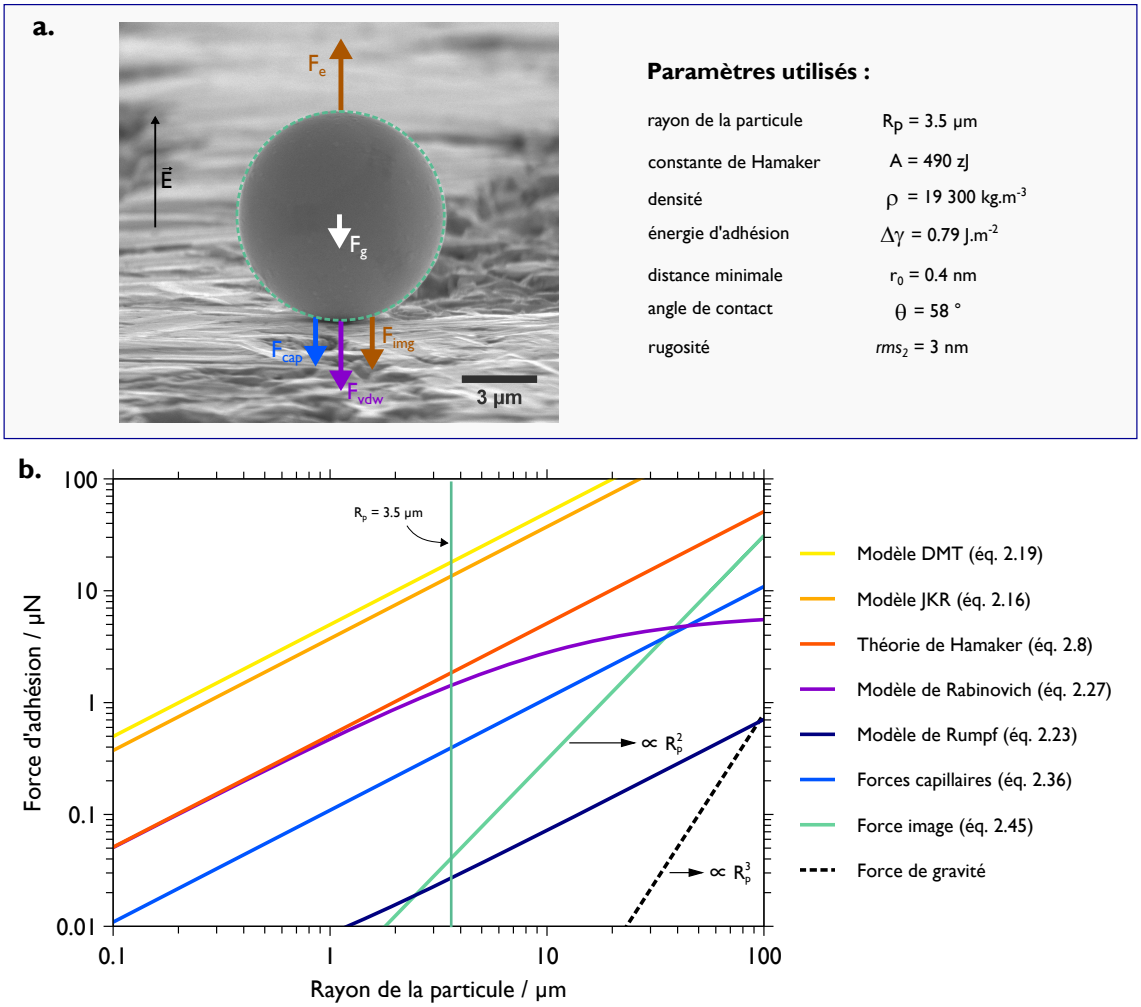

Figure 2.25 – a. Image MEB montrant une particule de tungstène déposée sur une surface en tungstène. Les différentes forces qui agissent sur la particule lorsque le système est à l'air ambiant et en présence d'un champ électrique sont représentées sur l'image. **b.** Calculs des différentes forces intervenant dans l'adhésion que nous avons vues au cours du chapitre. Les paramètres principaux utilisés dans ces calculs sont reportés en **a.**

Le graphique de la figure 2.25-**b** donne l'évolution des forces en fonction de la taille des particules. On remarquera que les forces d'adhésion données par les modèles JKR (éq. 2.16) et DMT (éq. 2.19) sont tout le temps supérieures de plus d'un ordre de grandeur à la force d'adhésion donnée par la théorie de Hamaker (éq. 2.8). On constate également que pour une surface relativement lisse avec une rugosité rms de quelques nanomètres, le modèle de Rabinovich (éq. 2.26) prévoit des valeurs de forces inférieures à celles données par Hamaker pour des particules dont le rayon est supérieur au micromètre. On notera également que les forces d'adhésion données par le modèle de Rumpf (éq. 2.21) sont très inférieures aux forces calculées avec les deux théories de Hamaker et de Rabinovich. Pour le système étudié ici, les forces capillaires sont inférieures aux forces de van der Waals bien que leur contribution soit significative. On notera qu'elles deviennent prépondérantes pour des particules de grandes tailles ($R_p > 30$ µm). Pour la gamme de taille de particule considérée, la gravité n'a que très peu d'influence et, même pour une particule de 100 µm de rayon, reste inférieure d'un ordre de grandeur aux autres forces. Enfin, la force électrostatique image (éq. 2.45) agissant sur des particules diélectriques sujettes à un champ électrique de $1\,\mathrm{kV\,cm^{-1}}$ aura une action significative pour des particules de rayons supérieurs à 10 µm.

2.5.2 Conclusion du chapitre

Ce chapitre a été l'occasion de rappeler l'origine des forces participant à l'adhésion des particules sur les surfaces. Nous avons vu que les forces d'adhésion sont essentiellement gouvernées par trois familles de forces : les forces de van der Waals, les forces capillaires et les forces électrostatiques. La partie 2.2 a montrée que les forces de van der Waals sont omniprésentes aux contacts entre des objets microscopiques. L'influence de ces forces est d'autant plus grande que la rugosité des surfaces en contact est faible. Nous avons vu que le modèle de Rabinovich et al. (2000b) permet de prendre en compte les paramètres de rugosité des surfaces dans le calcul de la force de van der Waals. Nous verrons au **chapitre 4** que ce modèle permet de décrire fidèlement les interactions entre des particules de tungstène micrométriques et des surfaces en tungstène de différentes rugosités.

Lorsque le système particule/surface étudié est soumis aux conditions de l'air ambiant, nous avons vu dans la partie 2.3 que les forces capillaires, provoquées par l'apparition d'un ménisque liquide à l'interfaces des objets, peuvent avoir une influence importante. Notamment, lorsque les surfaces des objets considérés sont hydrophiles, les forces capillaires deviennent prépondérantes et augmentent avec l'humidité relative du milieu ambiant. Nous avons ensuite abordé le rôle des forces électrostatiques pour différents cas. En effet, les différentes composantes de la force électrostatique (force de Coulomb, force image et force diélectrophorétique ou DEP) seront affectées par les propriétés diélectriques des particules. Ces trois composantes de la force électrostatiques ont été décrites en détails dans la partie 2.4 où nous avons vu que la magnitude de la force image ainsi que de la force issue de la

polarisation de la particule (DEP) sont fonction des constantes diélectriques des matériaux constituant la particule et la surface. Enfin, nous avons vu au paragraphe 2.4.4 que la force électrostatique image favorise l'adhésion entre une pointe AFM et un substrat radioactif. Cette force image est dans ce cas du même ordre de grandeur que la force capillaire ou les forces de van der Waals.

Chapitre 3

Caractérisation des poussières et des surfaces

Sommaire du chapitre

3.1 Méthode de collecte 72
3.1.1 Conception et fabrication de la Duster Box 73
3.1.2 Qualification aéraulique 75
3.2 Campagnes de prélèvements dans le tokamak WEST 81
3.2.1 Utilisation de la Duster Box 83
3.2.2 Analyses physico-chimiques des échantillons 86
3.3 Poudres analogues pour le travail en laboratoire 90
3.3.1 Fabrication et conditionnement des poudres 90
3.3.2 Analyses physico-chimiques 91
3.4 Les substrats en tungstène 94
3.5 Conclusion du chapitre 96

Ce chapitre présente la méthode que nous avons employée pour réaliser des prélèvements de poussières dans le tokamak WEST opéré par l'Institut de Recherche sur la Fusion Magnétique (IRFM) du CEA. Je présenterai dans un premier temps les différentes qualifications que nous avons effectuées sur le dispositif Duster Box avant son utilisation dans le tokamak. Nous analyserons ensuite les échantillons que nous avons collecté durant la campagne de prélèvements puis je présenterai les caractéristiques physico-chimiques nous permettant de produire et utiliser des poudres simulantes pour le travail en laboratoire. Nous verrons en fin de chapitre les caractéristiques des substrats en tungstène que j'ai utilisé lors de mes travaux sur les forces d'adhésion.

3.1 Méthode de collecte

De nombreuses techniques sont disponibles pour la collecte des poussières déposées sur les composants face au plasma (CFP) dans un tokamak. L'aspiration est la technique la plus courante et elle est pratiquée de façon quasi systématique de nos jours après les campagnes plasma. Déjà utilisée par Carmack et al. (1998) dans le tokamak DIII-D [1] et par Winter (1998) dans le tokamak TEXTOR-94 [2], cette technique est maintenant mise en œuvre systématiquement dans le tokamak européen JET [3] en utilisant un bras robotisé équipé du système d'aspiration (voir les travaux de (Widdowson et al., 2013 ; Baron-Wiechec et al., 2015 ; Rubel et al., 2018)). On peut également citer les résultats obtenus par Arnas et al. (2010) dans le tokamak MAST [4] ou encore ceux de Balden et al. (2014) dans le tokamak allemand ASDEX Upgrade [5]. Cette technique a l'avantage d'être simple à mettre en œuvre et permet de faire des prélèvements sur de grandes surfaces. En revanche, il est difficile de corréler les caractéristiques des particules trouvées avec leur positions dans la machine.

Une autre méthode couramment utilisée, et qui a l'avantage d'être localisée, consiste à tamponner les surfaces ou des dépôts de poussières sont visibles avec des scotchs carbone montés sur des support de microscopie électronique. Cette méthode a été mise en œuvre dans la plupart des tokamaks par Sharpe and Petti (2002) mais présente plusieurs inconvénients : une force est appliquée sur les surfaces ce qui peut arracher les couches co-déposées et briser les grains de poussières collectés ; la partie visible des poussières ainsi collectées est la face inférieur et leur morphologie peut être difficile à analyser car elles sont emprisonnées dans de la colle. Pour éviter d'avoir recours à une action mécanique pour détacher les poussières, une méthode de collecte à l'aide d'un champ électrostatique a notamment été proposée par Skinner et al. (2008). Mais celle-ci reste difficile à mettre en œuvre dans un environnement tokamak. Une dernière méthode qui est mise en place en particulier sur le JET (Fortuna-Zaleśna et al., 2017) et dans ASDEX Upgrade (Endstrasser et al., 2011) est de disposer dans différents endroits de la chambre à vide des plaques de silicium sur lesquelles vont se déposer les particules par sédimentation/impaction/diffusion lors des tirs plasma. Cette méthode à l'avantage d'être locale et sans aucune action pouvant détériorer les particules qui se déposent sur les plaques de silicium. En revanche, il est nécessaire d'intégrer de manière permanente ces plaques à divers endroits de la chambre à vide ce qui peut être contraignant pour d'autres appareillages et équipements déjà nombreux dans les machines de fusion activement refroidies comme Tore Supra ou WEST.

Dans des travaux récents, notre équipe (Gensdarmes et al., 2013) a utilisé un appareil nommé Duster Box pour collecter des échantillons de poussières dans le tokamak Tore Su-

1. General Atomics, San Diego, CA, USA.
2. Institute of Experimental Physics II, Ruhr-University Bochum, Germany
3. *Joint European Torus* situé au Culham Science Center, Abingdon, Royaume-Uni.
4. *Mega Ampere Spherical Tokamak* également à Culham.
5. *Axially Symetric Divertor Experiment* au Max-Planck-Institut für Plasmaphysik, Garching, Allemagne.

pra (les CFP étaient alors en graphite) et dans ASDEX Upgrade dont les CFP sont en tungstène (Rondeau et al., 2015). L'avantage de cette technique de collecte est de pouvoir faire un prélèvement rapide et localisé à divers emplacements de la chambre à vide (divertor, limiteur, antennes de protections, etc.), ainsi que de fournir des données correspondant aux particules potentiellement mobilisables par un flux d'air. Cette méthode de collecte originale n'avait jamais été utilisée dans un tokamak et les bons résultats obtenus lors des campagnes dans ASDEX Upgrade et Tore Supra nous ont poussé à poursuivre le développement de ce dispositif. Ainsi, à l'occasion du projet STANDS et de mes travaux de thèse, j'ai repensé le fonctionnement de cet appareil afin d'en améliorer les performances. Les paragraphes qui suivent concernent la conception et la qualification aéraulique de cette deuxième version de la Duster Box que nous avons récemment utilisée dans le tokamak WEST [6] après les campagnes plasma C2 (en février 2018) et C4 (en janvier 2020).

3.1.1 Conception et fabrication de la Duster Box

La Duster Box fonctionne avec de l'air comprimé propre et sec (0.5 bar à 2 bar) injecté dans un canal parallélépipédique de $4 \times 20 \times 40$ mm^3 en contact avec la surface à analyser où sont déposées les particules. L'enjeu est de soumettre les différentes zones de cette surface à des écoulements d'air de vitesse contrôlée et connu, puis de mesurer l'impact de cet écoulement sur le détachement des particules. Il est donc essentiel de connaître les vitesses d'écoulement en différents points de la surface. L'entrée de l'air se fait via une fente rectangulaire millimétrique (1×15 mm^2) faisant un angle de 30° par rapport à la surface à analyser de façon à ce que le jet d'air plat soit dirigé vers la surface. En effet, dans le cas où l'écoulement d'air est turbulent (le nombre de Reynolds dans la Duster Box est toujours supérieur à 4000 pour les pressions de fonctionnement choisies), Masuda et al. (1994) montrent que plus l'angle d'impaction du jet d'air est petit par rapport à la surface, plus la région d'influence du jet est grande, ce qui permet d'augmenter l'efficacité de détachement des particules. L'enjeu est de soumettre les différentes zones de la surface analysée à des écoulements d'air de vitesse contrôlée et connu, puis de mesurer l'influence de cet écoulement sur le détachement des particules. Il est donc essentiel de connaître les vitesses d'écoulement en différents points de la surface. Une vue de profil de l'appareil est présentée sur la figure 3.1-a ainsi que le schéma aéraulique (figure 3.1-b) correspondant. Le flux d'air est régulé via une électro-vanne contrôlée par une carte Arduino alimentée par une batterie. A la sortie du canal aéraulique, deux porte-filtres peuvent accueillir des membranes de 47 mm de diamètre pour collecter les particules détachées par l'écoulement d'air. Les filtres utilisés sont des membranes Fluoropore®PTFE (Polytétrafluoroéthylène) avec une taille de pore de 3 µm de la marque Millipore (réf. FSLW04700). Ces filtres sont

6. *Tungsten Environement Steady-state tokamak.* Anciennement Tore-Supra, le tokamak du CEA à été modifié en profondeur entre 2013 et 2016 afin d'étudier des composants en tungstène semblable à ceux qui seront installé dans le divertor d'ITER.

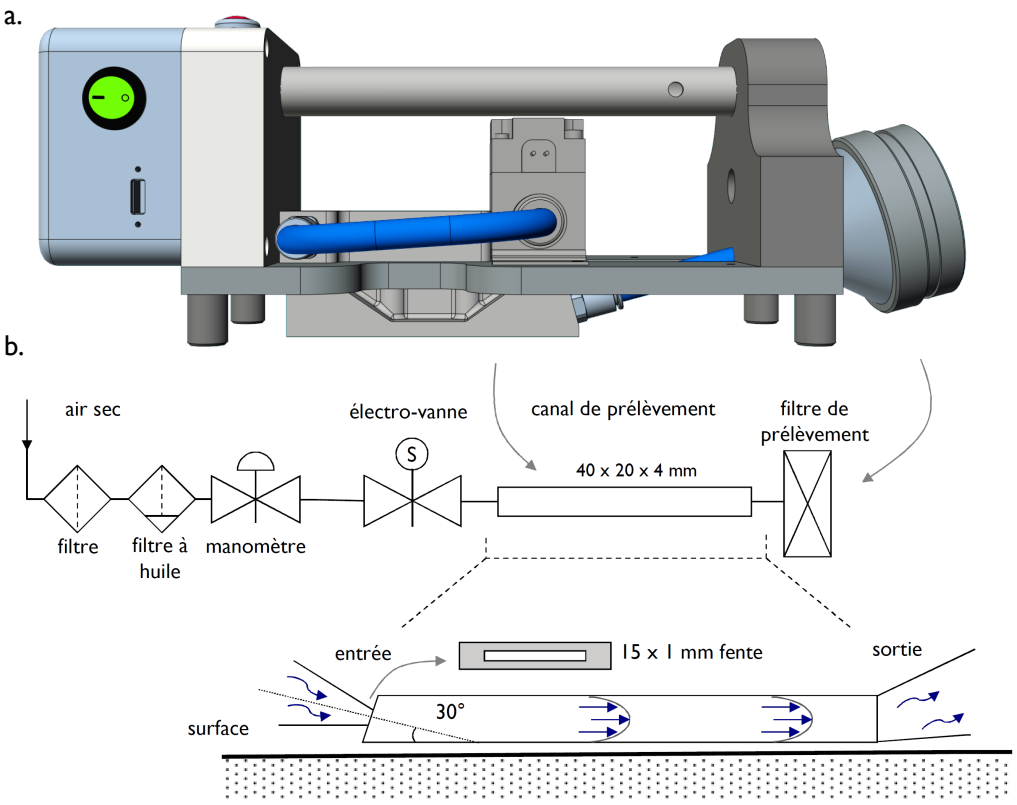

Figure 3.1 – a. Vue de côté de la Duster Box et **b.** schéma aéraulique de l'appareil.

connus pour avoir une perte de charge raisonnable même à des débits d'air élevés (John and Reischl, 1978 ; Baron et al., 2011) ainsi qu'une excellente efficacité de collecte (EC > 99,5%). Grâce à leur structure physique composée de trois couches distinctes, le gaz est forcé de suivre un chemin irrégulier à travers la structure complexe des pores (Soo et al., 2016). La taille de particules la plus pénétrante [7] pour ce type de filtre se situe entre 20 nm et 100 nm avec une efficacité de collecte qui chute à 92 % pour une vitesse nominale nominale de 40 cm s^{-1}. L'efficacité de collecte de ces membranes PTFE revient à 99.9 % lorsque la taille des particules est de 300 nm et au-delà (Zíková et al., 2015). Ayant un débit maximum de 120 L min^{-1} dans la Duster Box, ce qui correspond à une vitesse frontale de 1.15 m s^{-1} pour un filtre de 47 mm de diamètre, j'ai disposé deux porte-filtres en parallèle pour réduire la vitesse frontale à 57.6 cm s^{-1} sur chaque filtre. Ces porte-filtres sont visibles sur la figure 3.1-**a.** à la sortie de l'appareil. L'ensemble de l'appareil est portatif et facilement manipulable par un seul opérateur.

7. l'acronyme anglais MPPS pour *Most Penetrating Particle Size* est le plus souvent utilisé.

3.1.2 Qualification aéraulique

La connaissance de l'écoulement d'air dans le dispositif est cruciale pour le calcul des forces aérauliques permettant le détachement des particules et ainsi l'évaluation de leur adhésion via un bilan du moment des forces. Avant de mesurer les vitesses d'air dans le canal de l'appareil, j'ai commencé par mesurer les débits d'air à l'aide d'un débitmètre *TSI* de 300 L min^{-1} positionné à la sortie de l'appareil pour différentes configurations de pression d'air en entrée de la Duster Box. Les résultats obtenus montrent une relation linéaire entre la gamme de débits (entre 50 et 120 L min^{-1}) et de pressions (entre 0.5 bar et 2.5 bar) testées. Comme les particules déposées sur les surfaces sont entièrement plongées dans la couche limite de l'écoulement d'air, les vitesses des écoulements seront exprimées ici en terme de vitesses de frottement (en m s^{-1}) qui se définie comme :

$$u\star = \sqrt{\frac{\tau}{\rho_f}}, \tag{3.1}$$

où τ est la contrainte de cisaillement (en N m^{-2}) à n'importe quel niveau de l'écoulement et ρ_f (en kg m^{-3}) est la masse volumique du fluide. En règle générale, la vitesse de frottement est approximativement égale à 1/10 de la vitesse de l'écoulement libre.

3.1.2.1 Simulation numériques avec CFX

Lors de la conception de la Duster Box, nous avons réalisé des simulations numériques d'écoulements à l'aide du logiciel *Ansys CFX*. Deux pressions d'alimentation en air comprimé ont été étudiées pour produire un écoulement continu : une pression de 0.75 bar obtenue en régime permanent (correspondant à une consigne expérimentale initiale de 1 bar réglée sur le manomètre détendeur) et une pression de 1.65 bar (correspondant à une pression consigne de 2 bar sur le manomètre). Les résultats des simulations obtenues pour ces deux pressions d'alimentation sont représentés sur la Figure 3.2. Le canal de 20 $\times$ 40 mm^2 de la Duster Box a été divisé en 10 segments de 20 $\times$ 4 mm^2 comme illustré sur la Figure 3.2. Les moyennes et écart-types des vitesses de frottement sur ces 10 segments sont donnés dans les histogrammes **c.** et **d.**. L'entrée de l'air se situe en $x = 0$. Pour la première configuration (0.75 bar soit 70 L min^{-1}), on constate que la zone d'entrée d'air ($x = 0$ mm à $x = 4$ mm) est très inhomogène avec une vitesse de frottement moyenne de 2 m s^{-1} et un écart-type de 0.8 m s^{-1}. On observe ensuite une zone de 3 segments (de $x = 4$ mm à $x = 16$ mm) avec des vitesses de frottement plus importantes autour de 2.5 m s^{-1} puis une zone où la vitesse de frottement décroît de 2.2 m s^{-1} à 0.5 m s^{-1} (de $x = 16$ mm à $x = 40$ mm).

Pour la deuxième configuration (1.65 bar soit 110 L min^{-1}), on constate une vitesse de frottement moyenne plus élevée tout le long du canal aéraulique. La zone d'entrée d'air montre

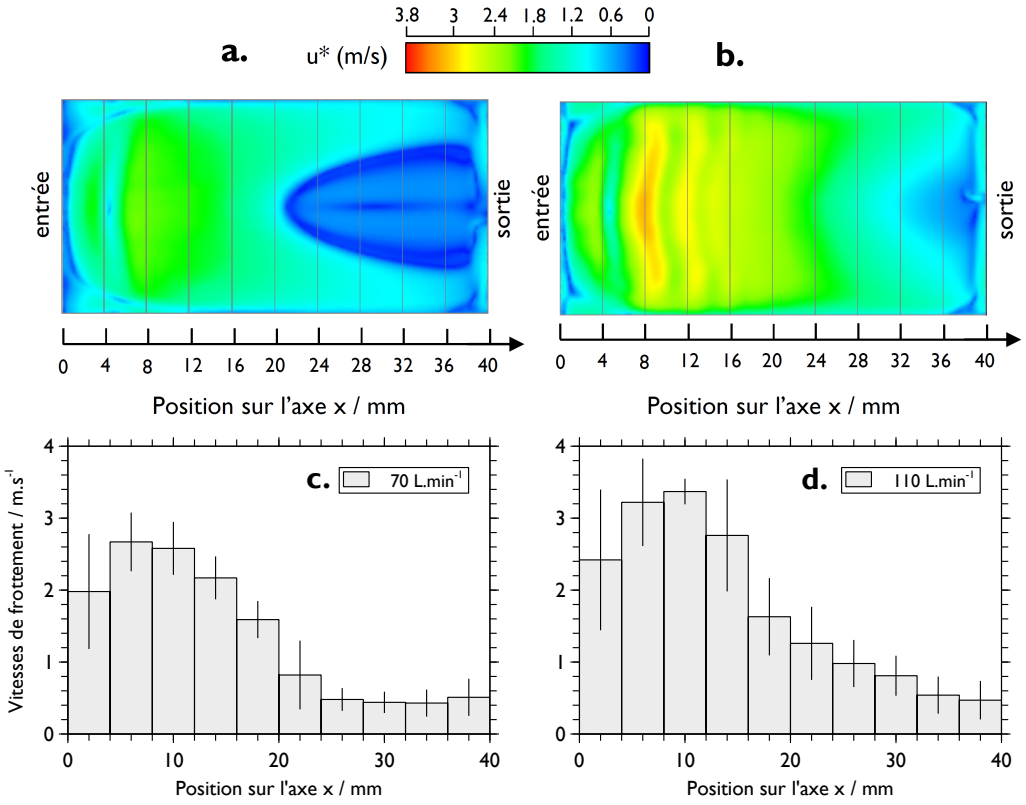

Figure 3.2 – Cartographies 2D obtenues avec *Ansys CFX* pour un débit d'air dans la Duster Box de $70\,\mathrm{L\,min^{-1}}$ (**a.**) et $110\,\mathrm{L\,min^{-1}}$ (**b.**). Histogrammes présentant la valeur moyenne et l'écart-type des vitesses de frottement calculées dans chaque segment du canal de la Duster Box pour les deux débits de $70\,\mathrm{L\,min^{-1}}$ (**c.**) et $110\,\mathrm{L\,min^{-1}}$ (**d.**).

des vitesses de frottement qui vont de $2.4\,\mathrm{m\,s^{-1}}$ à $3.4\,\mathrm{m\,s^{-1}}$ avec un écart-type proche de $1\,\mathrm{m\,s^{-1}}$ à l'entrée du canal. On observe ensuite une zone où la vitesse de frottement décroît de $3.4\,\mathrm{m\,s^{-1}}$ à $0.5\,\mathrm{m\,s^{-1}}$ (de $x = 12$ mm à $x = 40$ mm). Grâce à ces simulations numériques, nous constatons que les petites dimensions du canal de la Duster Box (combinées à différentes pressions de fonctionnement), permettent d'accéder à une gamme de vitesses de frottement relativement étendue. En effet, ces vitesses de frottement correspondent à des vitesses élevées de l'écoulement libre entre $25\,\mathrm{m\,s^{-1}}$ et $200\,\mathrm{m\,s^{-1}}$. Une telle gamme de vitesse d'air est rarement atteinte dans les études sur la mise en suspension qui utilisent des tunnels aérauliques de plus grandes dimensions (se référer par exemple aux travaux de Braaten (1994) ; Ziskind (2006) ; Barth et al. (2013) ; Boor et al. (2013) ; Brambilla et al. (2018)).

3.1.2.2 Mesure des vitesses de frottement locales par anémométrie haute fréquence

Suite à la fabrication de la Duster Box, j'ai entrepris de vérifier ces résultats de simulations numériques à l'aide d'une chaîne anémométrie à fil chaud haute fréquence *Dantec* dont

dispose le laboratoire. Le fil chaud est placé au centre du canal ($y = 0$) le long de l'axe x en 10 points espacés de 4 mm afin de mesurer la vitesse de frottement au centre de chacun des segments définis ci-dessus pour les deux configurations retenues. La mesure de la vitesse de frottement dans le canal de la Duster Box implique d'effectuer une mesure dans la couche limite du l'écoulement fluide. Compte tenu des dimensions du canal de la Duster Box (le diamètre hydraulique est de 6.66×10^{-3} m) et du débit d'air (entre $50\,\mathrm{L\,min^{-1}}$ et $120\,\mathrm{L\,min^{-1}}$) on trouve un nombre de Reynolds qui varie entre 4431 et 10 673 ce qui signifie que l'écoulement d'air est toujours turbulent. Dans une telle configuration, l'épaisseur de la couche limite est très petite et proche de la surface. Il est donc nécessaire d'utiliser une sonde affleurante comme la sonde *Dantec* 55R45 que j'ai montée sur une plateforme fabriquée spécifiquement et visible sur la figure 3.3.

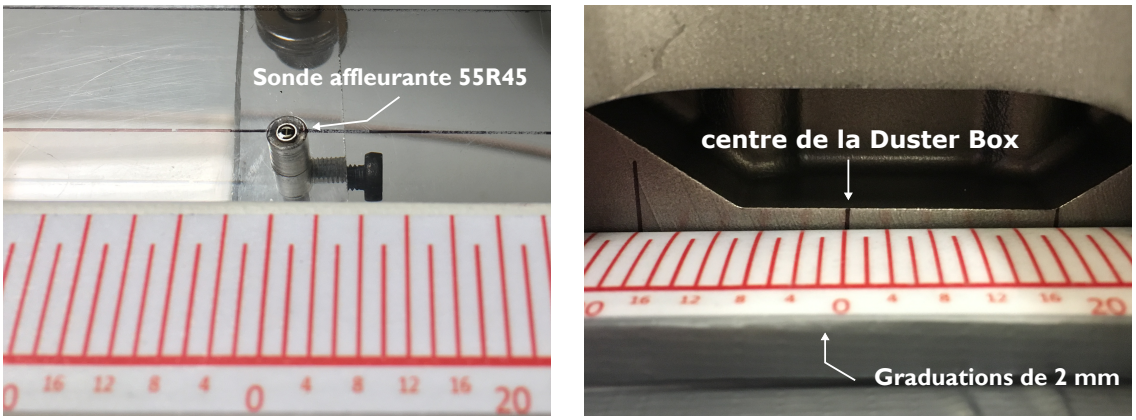

Figure 3.3 – (photo de gauche) La sonde 55R45 est affleurante à la surface au centre de la plateforme. La règle rouge a des graduations de 2 mm et l'origine $x = 0$ est prise au niveau de la sonde. (photo de droite) La Duster Box est placée contre la règle et l'entrée d'air, le centre et la sortie d'air du canal sont marqués sur le côté de l'appareil.

Calibration du fil chaud Nous devons d'abord calibrer la sonde. En effet, le CTA ou anémomètre à température constante fonctionne sur la base d'un transfert de chaleur convectif entre un capteur chauffé et le fluide environnant ; la quantité de chaleur transférée étant principalement liée à la vitesse du fluide. Ainsi, en utilisant des capteurs à fil très fin placés dans un fluide en mouvement, il est possible de mesurer les fluctuations de vitesses à des échelles spatiales fines (de l'ordre de la dizaine de micromètres) et avec une résolution temporelle élevée (acquisition haute fréquence de plusieurs kHz). Une tension analogique directement proportionnelle à la vitesse du fluide est alors délivrée par l'appareil. Nous devons donc calibrer notre capteur (la tension qu'il renvoie) avec un débit d'air connu. Pour ce faire, j'ai utilisé l'installation BISE [8] qui peut fournir des flux d'air avec des vitesses comprises entre $0.5\,\mathrm{m\,s^{-1}}$ et $40\,\mathrm{m\,s^{-1}}$. J'ai déjà utilisé cette soufflerie pour des études de remise en suspension avec des poussières collectées dans Tore Supra (Peillon et al., 2014)

8. Banc de mIse en Suspension par Écoulements d'air

et ses caractéristiques aérodynamiques sont bien connues. Les dimensions du tunnel aéraulique de BISE sont les suivantes : hauteur $h = 6$ cm, longueur $l = 1.80$ m et largeur $L = 7.5$ cm. La première étape est de corriger la vitesse donnée par le capteur de BISE

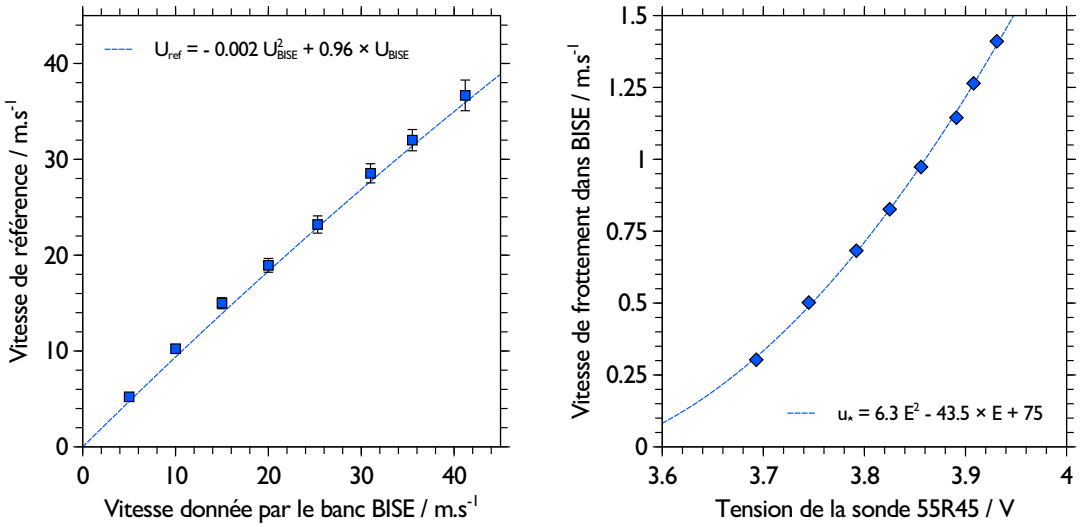

Figure 3.4 – (à gauche) Étalonnage de la vitesse de l'écoulement dans l'installation BISE. (à droite) Étalonnage de la sonde 55R45 avec l'installation BISE.

auquel sont asservies les vannes permettant de contrôler le flux d'air dans l'installation. En utilisant une sonde dédiée (sonde *Dantec* 55P14) et en la plaçant au centre du conduit, j'ai pu mesurer la vitesse réelle et établir l'équation de transfert entre la vitesse affichée dans le logiciel de BISE et la vitesse de référence U_{ref} obtenue avec la sonde 55P14. Cette vitesse de référence est obtenue à l'aide d'une soufflerie d'étalonnage *Dantec Dynamics Flow Unit 90H02* calibrée par le fabricant. Les données de ces mesures et l'équation de correction sont affichées sur la figure 3.4 (à gauche). Maintenant que la vitesse réelle de l'écoulement d'air au centre de la soufflerie ($z = \frac{h}{2}$) est connue, je peux calculer la vitesse de frottement sur la paroi inférieure de l'installation en utilisant l'équation suivante (Peillon et al., 2014) : $u_\star = 0,077 \times U^{0,808}$ m s^{-1}. Pour des vitesses d'écoulement libre au centre du conduit comprises entre 5 m s^{-1} et 36 m s^{-1}, nous trouvons des vitesses de frottement entre 0.3 m s^{-1} et 1.4 m s^{-1}. Ensuite, la sonde *Dantec* 55R45 est positionnée au centre de la soufflerie au ras de la surface ($z = 0$). Il est désormais possible de mesurer la tension fournie par la sonde pour différentes vitesses de frottement du flux d'air. Un tel étalonnage est illustré à la figure 3.4 (à droite) avec l'équation de transfert correspondante. Dans cette configuration, je trouve la relation suivante : $u_\star = 6,3 \times E^2 - 43,5 \times E + 75$ avec E la tension de la sonde en volt (V).

Mesure de la vitesse de frottement dans la Duster Box Maintenant que j'ai déterminé la relation entre la vitesse de frottement et la tension donnée par la sonde 55R45, il est possible de mesurer les vitesses de frottement à l'intérieur de la Duster Box. Afin de carto-

graphier les vitesses de frottement dans l'appareil, j'ai monté la sonde sur une plaque de plexiglas et l'ai alignée avec des règles qui servent de guides pour le canal de la Duster Box. Cette configuration est illustrée sur la figure 3.3. La sonde est fixe et positionnée au centre de la plateforme ($x = y = 0$ mm) et la Duster Box sera déplacée tous les 4 mm le long du guide gradué (axe x), comme illustré dans la figure 3.3. Cette procédure sera répétée sur les côtés du canal de la Duster Box, c'est-à-dire en $y = \pm 5$ mm. Chaque mesure a un temps

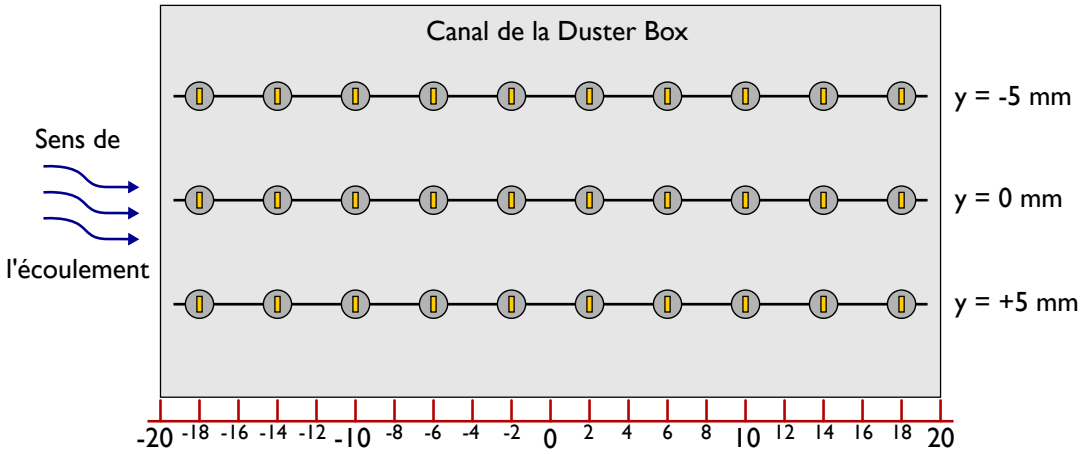

Figure 3.5 – Vue supérieure des positions de mesure avec la sonde 55R45 dans le canal de la Duster Box. Pour chaque configuration de flux d'air, 30 mesures sont réalisées à travers le canal.

d'acquisition de 1 seconde à une fréquence de 1 kHz et est démarrée une fois que le débit d'air est stable à l'intérieur de l'appareil. Une vue schématique de la cartographie réalisée avec cette technique est présentée à la figure 3.5. Un total de 6 débits d'air (50, 70, 90, 110, 130 et 150 L min^{-1}) a été testé, ce qui représente 180 mesures. Les résultats de ces mesures sont illustrés sur la figure 3.6. Chaque graphique est une cartographie 3D des 30 vitesses mesurées aux positions illustrées sur la figure 3.5. Pour les débits d'air testés, les vitesses de frottement à l'intérieur de la Duster Box sont toutes comprises entre 0.5 m s^{-1} et 4 m s^{-1}. Une forme similaire de l'évolution des vitesses de frottement en fonction de la position dans le canal se retrouve dans toutes les configurations. La vitesse de frottement maximale est observée entre 8 mm et 12 mm après l'entrée d'air, là où la nappe d'air frappe la paroi, suivie d'une diminution continue jusqu'à la sortie du canal. Des vitesses de frottement plus élevées peuvent être trouvées des deux côtés du canal pour tous les débits d'air testés.

On peut maintenant comparer les vitesses de frottement obtenues avec *Ansys CFX* (voir figure 3.2) et les données expérimentales acquises avec l'anémométrie à fil chaud. Les données expérimentales présentes sur la figure 3.7 correspondent à la moyenne des 3 positions sur l'axe y ($y = -5$, 0 et $+5$ mm). Les données numériques représentées par les histogrammes sont les moyennes et écart-types des vitesses obtenues dans les 10 segments de 20×4 mm^2 avec une taille de maille de 10 µm^2. Nous trouvons une bonne corrélation entre les données numériques et les mesures expérimentales de la vitesse de frottement dans la

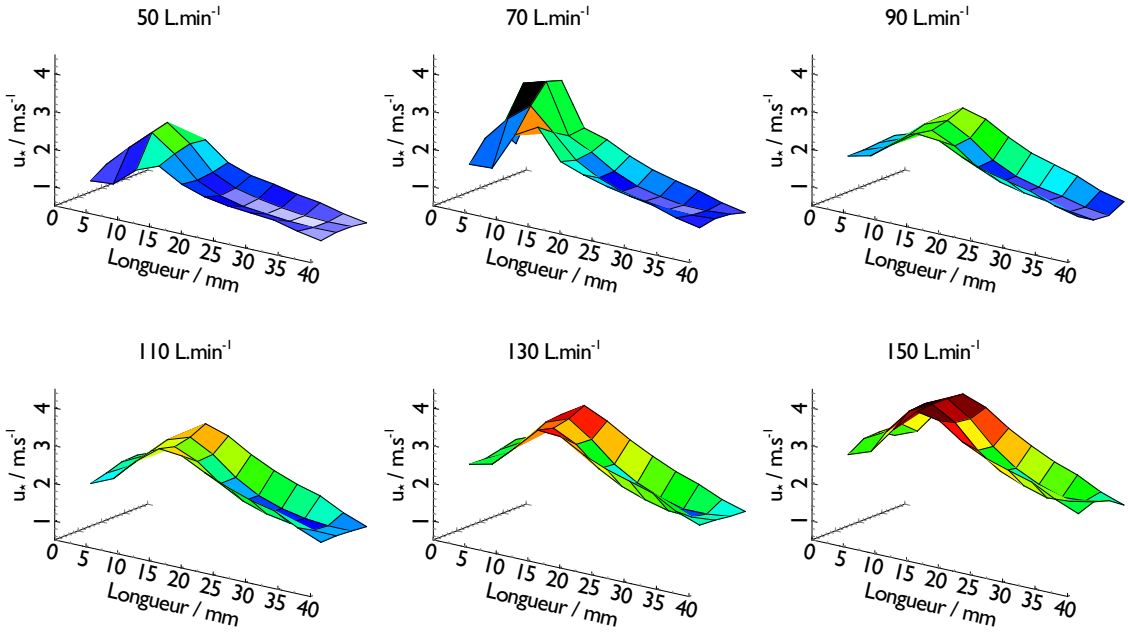

Figure 3.6 – Cartographies 3D des mesures de vitesses de frottement dans la Duster Box effectuées avec l'anémométrie à fil chaud pour les 6 débits d'air testés.

première partie du canal, c'est-à-dire pour une position sur l'axe x entre 0 et 15 mm. Plus en aval, il apparaît que les vitesses de frottement obtenues avec l'anémométrie à fil chaud ont des valeurs plus élevées que les calculs numériques et restent supérieures à $1\,\mathrm{m\,s^{-1}}$. Dans la suite, et notamment au **chapitre 6**, nous travaillerons avec les résultats des simulations numériques obtenues avec *Ansys CFX*.

Nous avons vu que la Duster Box est un appareil pouvant être utilisé dans des environnements très différents grâce à sa maniabilité et ses petites dimensions. Les calculs numériques et les qualifications aérauliques réalisées ont montré des vitesses d'air importantes (vitesses de frottement comprises entre $0.5\,\mathrm{m\,s^{-1}}$ et $3.5\,\mathrm{m\,s^{-1}}$) dans le canal de l'appareil ce qui assure le détachement de particules (de diamètre supérieurs à 1 µm) présentes sur les surfaces sondées. Le prochain paragraphe concernera l'utilisation de ce dispositif de prélèvement dans un environnement tokamak.

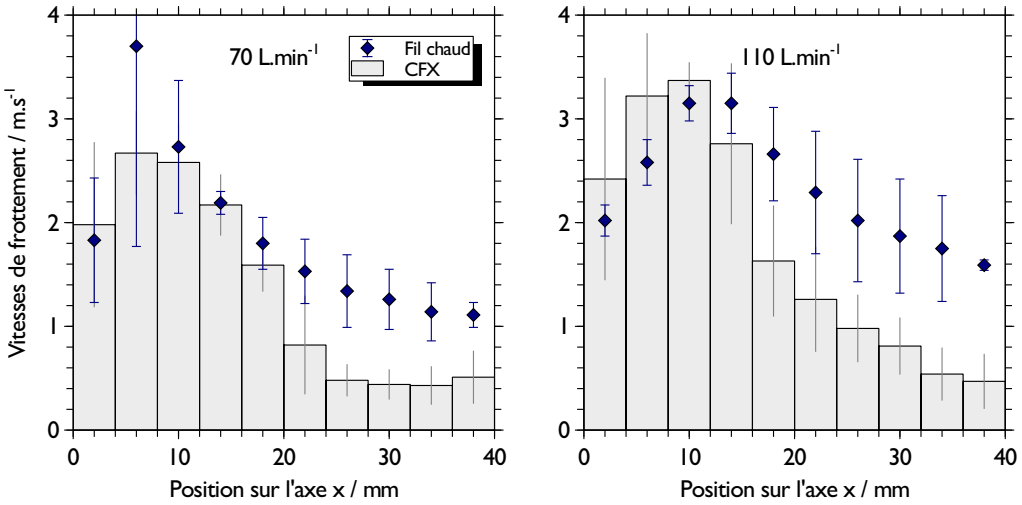

Figure 3.7 – Comparaison entre les vitesses de frottement obtenues numériquement avec *Ansys CFX* et les mesures expérimentales (moyenne des 3 positions sur l'axe y) obtenues avec l'anémométrie à fil chaud.

3.2 Campagnes de prélèvements dans le tokamak WEST

Nous avons effectués des prélèvements de poussières dans le tokamak WEST suite à la campagne C2 qui s'est déroulée entre novembre 2017 et février 2018. Au cours de cette période, 716 plasmas ont été réalisés pour une durée totale de 1553 secondes (soit environ 26 minutes de plasmas cumulés). Le nombre de disruptions [9] dans la chambre à vide est quant à lui de 282 sur cette campagne. Avant de détailler les prélèvements de poussières que nous avons effectués dans la machine, je souhaite donner ici une brève présentation de ce tokamak situé à l'Institut sur la Recherche en Fusion Magnétique (IRFM) au CEA de Cadarache. La figure 3.8 montre l'intérieur de la chambre à vide de WEST avec ses composants essentiels. Je donne également dans cette figure les paramètres principaux de la machine. Ce nouveau tokamak a été nommé WEST pour *Tungsten (W) Environment in Steady-state Tokamak*. C'est en fait une transformation profonde du tokamak Tore Supra (machine avec un environnement "carbone" et un plasma de section circulaire) en une plateforme de tests pour ITER. Le but de cette transformation est d'étudier le divertor qui sera un des composants clés d'ITER [10]. WEST doit donc tester des composants en tungstène qui seront exposés à des flux de chaleur équivalents à ceux attendus sur le futur divertor du tokamak international. En effet, cette partie (visible sur la figure 3.8) qui épouse le plancher de la chambre à vide, reçoit l'essentiel des flux de chaleur et de particules provenant du plasma central. C'est un élément essentiel qui a pour fonction d'extraire les « cendres » (hélium) produites par la réaction de fusion et d'évacuer une partie de la chaleur générée par le système, tout en minimisant la contamination du plasma par les autres impuretés. Le

9. le terme disruption fait référence à l'apparition brutales d'instabilités magnétohydrodynamiques dans la chambre à vide. Elles conduisent à la perte de confinement du plasma en quelques millisecondes.
10. http://irfm.cea.fr/en/west/

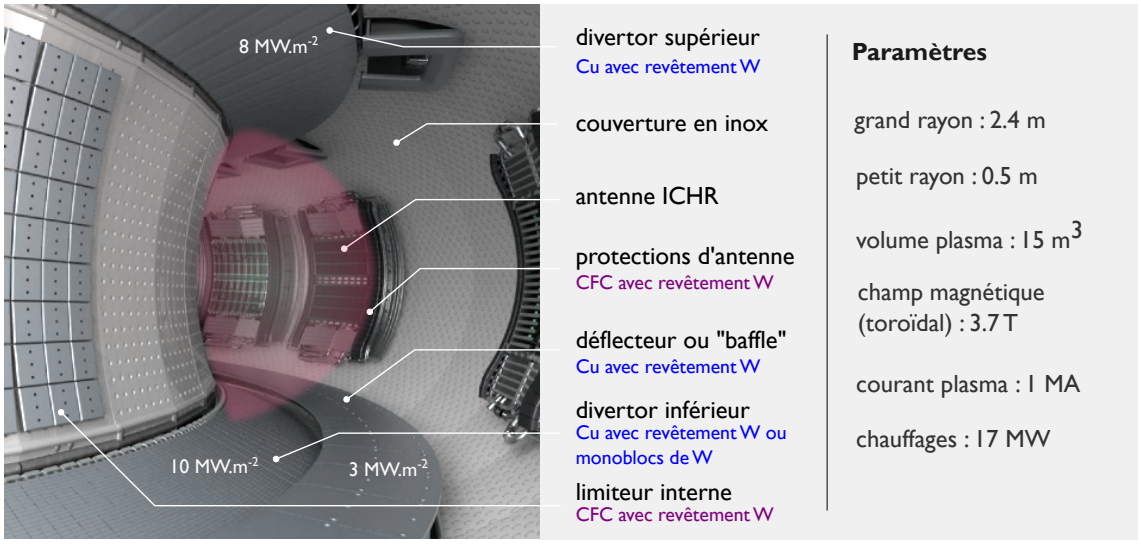

Figure 3.8 – Image montrant l'intérieur de la chambre à vide du tokamak WEST (Crédits CEA/IRFM).

divertor tire parti d'une perturbation du champ magnétique pour guider vers la partie basse de la machine les écoulements de plasma qui atteignent la périphérie. Les densités de puissance reçues par ce composant sont très élevées, 10 MW m^{-2} en fonctionnement normal, et peuvent atteindre 20 MW m^{-2} lors d'évènements transitoires comme les disruptions. Sur WEST, une partie du divertor inférieur est composée d'unités face au plasma [11] de 440 mm de long faites de 35 monoblocs en tungstène de type ITER. Ces aiguilles spécifiques sont visibles sur la figure 3.9-c. La surface de chaque monobloc est de 12 mm $\times$ 26 mm avec un espace d'environ 0.5 mm entre chacun d'eux. Le reste du divertor est composée d'aiguilles dont les blocs sont en cuivre et recouverts de tungstène (PFU inertiels visibles sur la figure 3.8). Le divertor supérieur est fait selon le même assemblage avec des blocs de cuivre recouverts de tungstène. Le déflecteur (baffle) est quant à lui composé de blocs en cuivre recouverts de tungstène pouvant résister à des flux de chaleur de l'ordre de 3 MW m^{-2}. Enfin, les éléments des limiteurs interne ainsi que des protections d'antennes ICRH (*Ions Cyclotron Resonnance Heatings*) sont faits de graphite [12] avec un revêtement en tungstène. Au cours de la campagne C2, des images vidéo (un exemple est visible sur la figure 3.9-b) ont montré les effets d'une production d'électrons découplés (*Runaway Electrons*) lors de disruptions plasma. Un grand nombre de gouttelettes de métal fondu ont été émises par un limiteur de protection d'antenne (LPA visible sur la figure 3.9-a) «vertical» sous le bombardement de ces électrons découplés. Par conséquent, plusieurs prélèvements de poussières ont été effectués sur le baffle situé en dessous et à proximité du LPA composé de tuiles de graphite avec des revêtements en molybdène et en tungstène.

11. appelées PFU pour *Plasma Facing Units*.
12. plus précisément en CFC pour *Carbon Fiber Composite*.

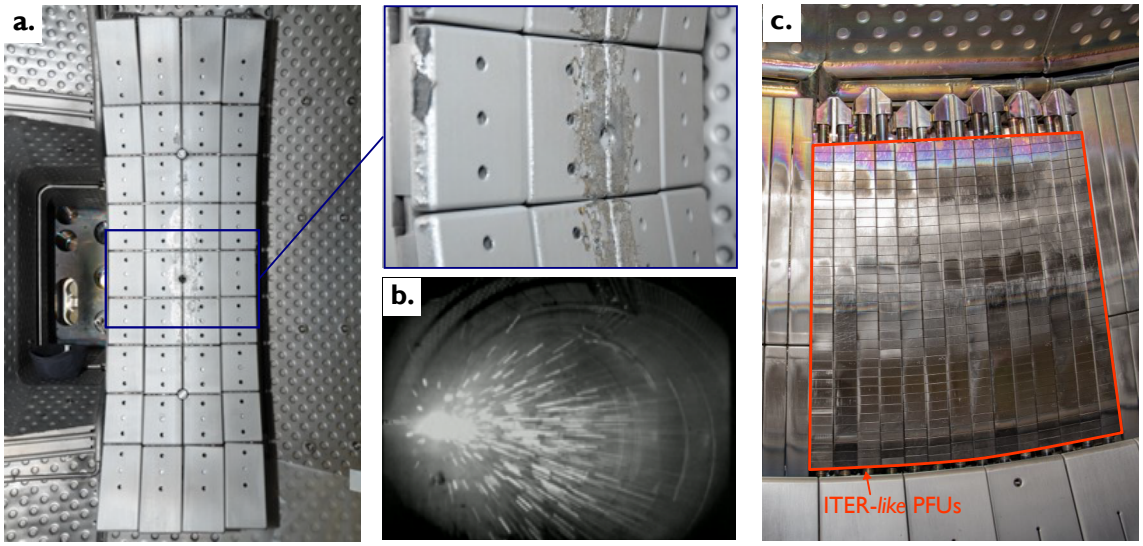

Figure 3.9 – a. Photographie du LPA après la campagne C2 montrant les dégâts causés par les impacts d'électrons découplés. **b.** Image vidéo d'un impact sur le LPA. **c.** Photographie des aiguilles *ITER-like* du divertor de WEST. (Crédits photo CEA/IRFM)

3.2.1 Utilisation de la Duster Box

A la fin de chaque campagne expérimentale, le tokamak est mis à l'arrêt. La première étape consiste à remettre la machine à la pression atmosphérique afin de pouvoir ouvrir la chambre à vide pour y faire les inspections, travaux ou modifications nécessaires. Les prélèvements de poussières sont toujours programmés en premier juste après la remise à l'air de la machine pour limiter les contaminations externes. Cependant, cette première ouverture de la machine (en environnement "tungstène") après une campagne plasma qui a montré des évènements susceptibles de produire des poussières posent des questions de sécurité pour les intervenants dans la machine ; en particulier le risque d'exposition à des particules fines de tungstène qui peuvent être remises en suspension suite à la pressurisation de la machine. Il n'existe, à ce jour en France, pas de réglementation spécifique aux poussières de tungstène dans les environnements de travail. En revanche, sur la base de "poussières métalliques réputées sans effet spécifique", l'INRS [13] recommande une valeur d'exposition moyenne pondérée [14] (VEMP) de $5\,\mathrm{mg\,m^{-3}}$ et une valeur d'exposition de courte durée [15] (VECD) de $10\,\mathrm{mg\,m^{-3}}$. A titre de comparaison, la VEMP recommandé pour le béryllium est de $0.01\,\mu\mathrm{g\,m^{-3}}$.

13. Institut National de Recherche et de Sécurité. http://www.inrs.fr/

14. Elle est la concentration moyenne, pondérée pour une période de 8 heures par jour, en fonction d'une semaine de 40 heures, d'une substance chimique présente dans l'air au niveau de la zone respiratoire du travailleur.

15. Il s'agit de la concentration moyenne, pondérée sur 15 minutes, pour une exposition à une substance chimique présente dans l'air au niveau de la zone respiratoire du travailleur, qui ne doit pas être dépassée durant la journée de travail, même si la valeur d'exposition moyenne pondérée est respectée. L'exposition moyenne au cours d'une période de 15 minutes consécutives peut être comprise entre la VEMP et la VECD, en autant que de telles expositions ne se reproduisent pas plus de 4 fois par jour et qu'elles soient entrecoupées l'une de l'autre par des périodes d'au moins 60 minutes.

3.2.1.1 Remise à l'air de la machine

Après la remontée en pression du tokamak et avant l'entrée des opérateurs dans la chambre à vide, un prélèvement d'aérosol dans la chambre a été réalisé à l'aide d'une canne de prélèvement reliée à un compteur optique de particules (Palas Fidas®Frog) permettant de mesurer en temps réel (échantillonnage sur 1 seconde) la fraction massique de PM1, PM2.5, PM4 et PM10 ainsi que la concentration en nombre de particules. En revanche, cette mesure ne permet pas de distinguer la nature chimique des particules détectées. La figure 3.10 illustre la concentration en nombre de particules dans l'atmosphère à l'extérieur et à l'intérieur de la chambre à vide juste après la remontée en pression. Lors de cette

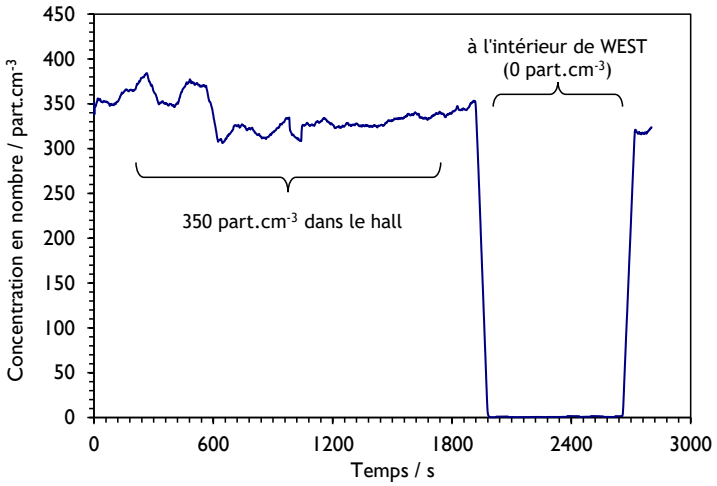

Figure 3.10 – Nombre de particules par cm^3 prélevées par le compteur optique dans le hall de WEST et à l'intérieur du tore juste après la remontée en pression dans la chambre à vide.

phase de pressurisation, un filtre très haute efficacité (THE) a été installé en amont de la vanne de remise à l'air afin de mesurer uniquement l'aérosol éventuellement créé lors de la remontée en pression dans la chambre à vide. Cette mesure de prévention n'a pas révélée de remise en suspension de poussières lors de la phase de pressurisation de la chambre à vide permettant ainsi de rentrer dans le tore sans danger.

3.2.1.2 Stratégie de prélèvements

Au total, 9 prélèvements ont été réalisés à plusieurs endroits du divertor et du baffle de WEST. Une cartographie des différents éléments de la chambre à vide de WEST est donnée sur la figure 3.11. Les prélèvements ont été réalisés lors du recouvrement du baffle du secteur Q5A, où se trouve le sas permettant l'entrée dans le tore, jusqu'au secteur Q1B. Ces prélèvements sur le baffle ont été effectués dans les secteurs Q4B, Q4A, Q3B, Q3A (sous le limiteur de protection d'antenne qui a été impacté par des électrons découplés), Q2B et

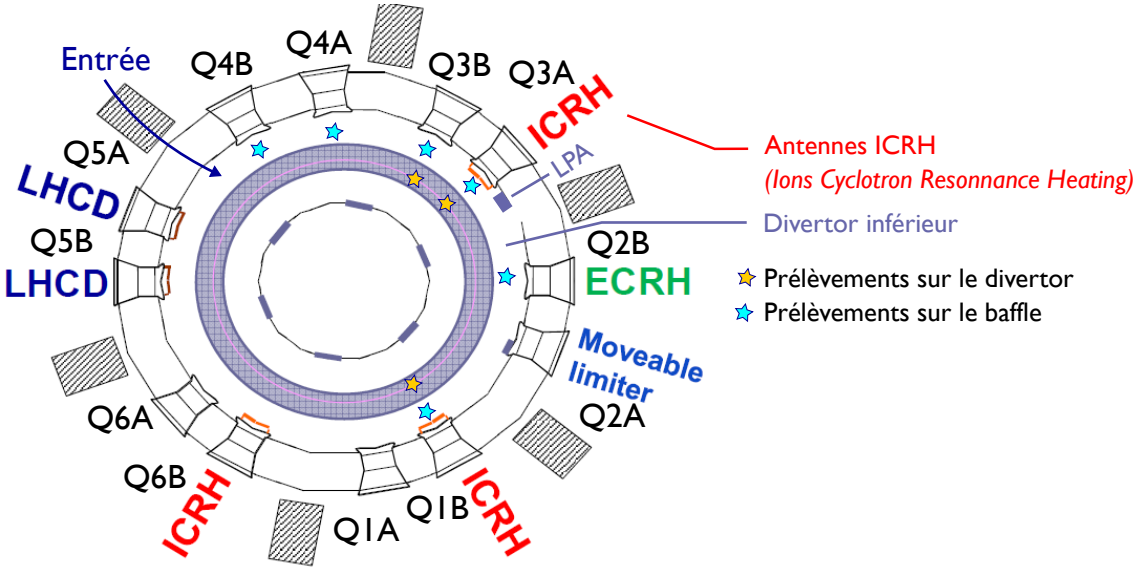

Figure 3.11 – Vue de dessus de la chambre à vide de WEST avec les principaux secteurs et composants installés dans la machine. Les prélèvements réalisés sont repérés par les étoiles de couleurs. (Crédits CEA/IRFM)

Q1B. La présence de débris métalliques a été remarqué lors des prélèvements en Q3A et Q2B. Des mesures sur le divertor ont été réalisées à proximité des secteurs Q3B, Q3A et Q1B où le champ magnétique est plus fort. La figure 3.12 montre une photographie d'un

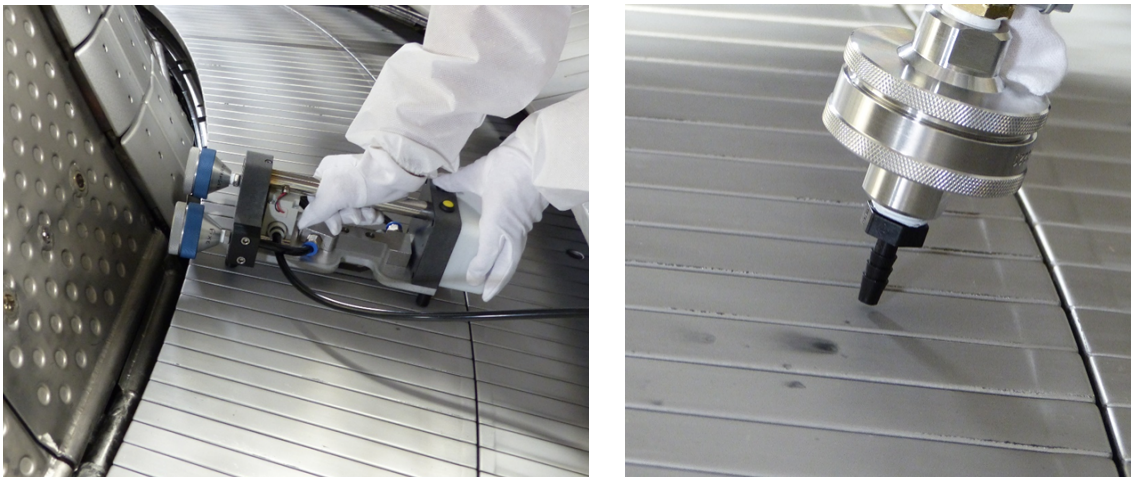

Figure 3.12 – Photographies des systèmes de prélèvement de poussières utilisés dans WEST. A gauche la Duster Box sur une aiguille du divertor, à droite le système d'aspiration avec le porte filtre. (Crédits photo CEA/IRFM)

échantillonnage avec la Duster Box sur un PFU inertiel du divertor. En plus des sondages réalisés avec la Duster Box, Cécile Arnas [16] (qui organise les campagnes de prélèvements de poussières dans WEST) a effectuée des prélèvements par aspiration à l'aide d'un porte

16. Directrice de recherche au PIIM (Physique des Interactions Ioniques et Moléculaires), UMR 7345, Université Aix-Marseille.

filtre équipé d'un bec de 0.5 mm de diamètre. Ce dispositif est visible sur l'image de droite de la figure 3.12.

3.2.2 Analyses physico-chimiques des échantillons

Les filtres utilisés pour le prélèvement de poussières avec la Duster Box ont été analysées par microscopie électronique à balayage (MEB) au laboratoire. Ce microscope est équipé d'une sonde de spectroscopie à rayons X à dispersion d'énergie (ou EDS pour l'abréviation anglaise [17]). Au total, 24 particules sphériques de tungstène, d'acier inoxydable, de molybdène et d'argent ainsi que 34 poussières de formes irrégulières provenant de la délamination du revêtement ont été observées. La taille typique des particules sphériques résultant de l'émission de gouttelettes de matière fondue est comprise entre 5 et 30 µm. La présence de poussières sphériques de tungstène et de molybdène a été attribuée à des événements anormaux, principalement en raison de l'impact des électrons découplés à proximité du LPA. La présence de poussières sphériques en acier inoxydable peut être attribuée à une fusion locale sur la paroi de la chambre à vide, probablement lors de la formation d'arcs. Enfin, les poussières composées d'argent peuvent provenir des protections des antennes ICRH.
Les micrographies MEB des figures 3.13-a à 3.13-c montrent des particules de tungstène sphériques avec des diamètres compris entre 10 et 70 µm. La partie inférieure de la figure 3.13-a montre une microparticule sphérique de tungstène de $\approx$ 70 µm de diamètre. Notons que ce type de particules sphériques de plusieurs dizaines de micromètres avaient déjà été observé par Winter (1998) dans le tokamak TEXTOR-94. Les auteurs suggéraient que la forme parfaitement sphérique de ces particules signifiait une solidification loin des parois après une pulvérisation du métal par un arc électrique ou une disruption. Des particules sphériques en tungstène ont également été observées dans ASDEX Upgrade par Balden et al. (2014) et également attribuées à un arc électrique. La distribution en tailles, établie lors la campagne plasma de 2009 sur ce tokamak, a révélé une taille moyenne de $\approx$ 1 µm et un maximum de $\approx$ 30 µm. Des particules sphériques de tungstène ont également été observées dans le JET par Fortuna-Zaleśna et al. (2017). Dans ce cas, les images MEB publiées ont montré une gamme de tailles allant de 2 à 20 µm. Sur la figure 3.13-a, à gauche de la sphère de tungstène, un morceau de tungstène d'une épaisseur de $\approx$ 10 µm compatible avec le revêtement de tungstène sur les PFC inertiels est visible. La partie supérieure de la figure 3.13-a montre un morceau d'acier inoxydable (120 µm de longueur) qui a été arraché de la première paroi. La figure 3.13-b montre des particules sphériques de molybdène de 10 µm et 5 µm de diamètre ainsi qu'un morceau de molybdène provenant de la protection des antennes ICRH. Dans WEST, le molybdène est utilisé comme couche intermédiaire entre le revêtement en tungstène et la tuile de carbone afin d'assurer une bonne accroche du tungstène (Firdaouss et al., 2017). Deux sphères de tungstène sont encore visible sur la

17. Energy Dispersive X-ray Spectroscopy

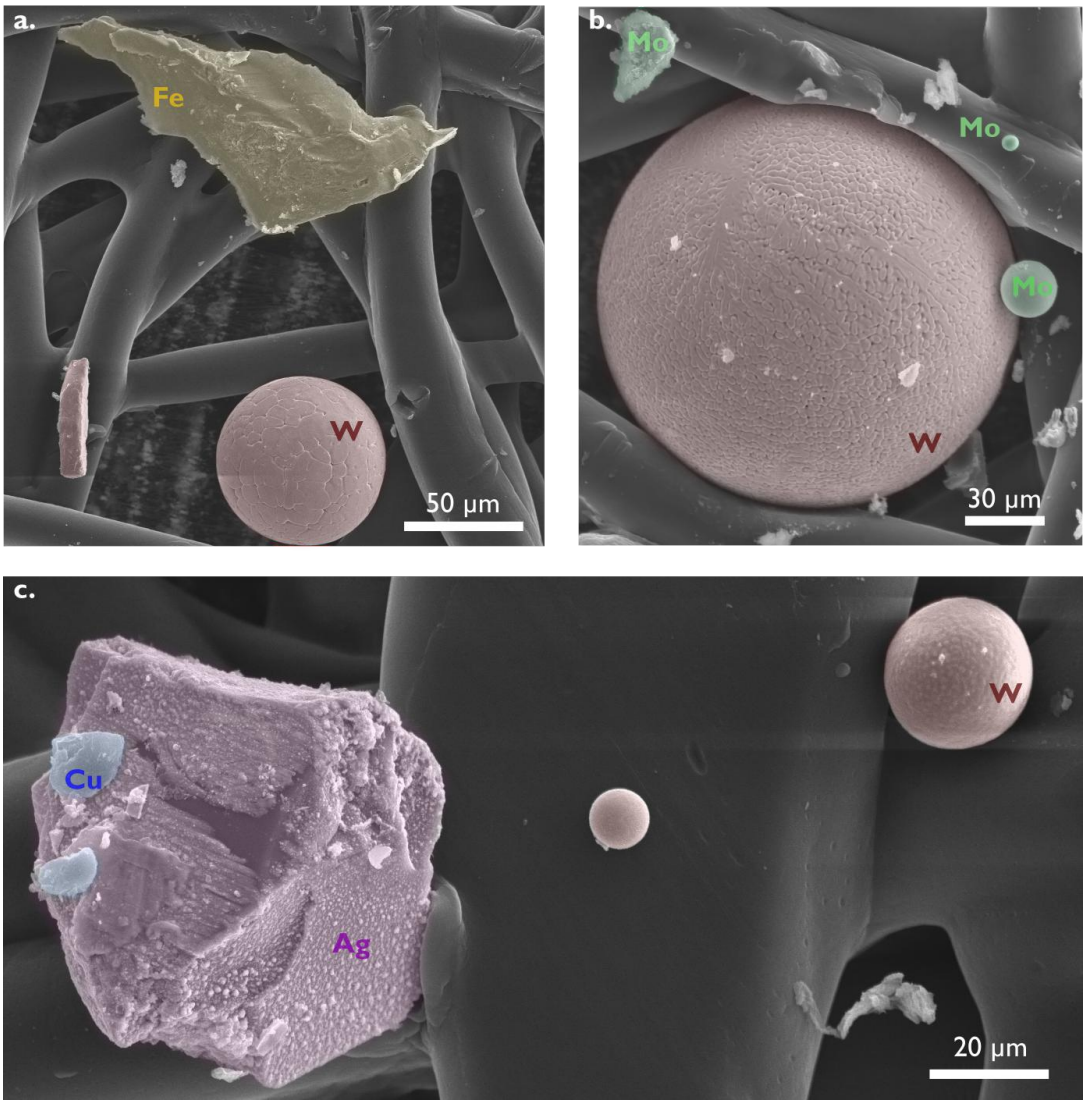

Figure 3.13 – Micrographies MEB et analyses EDS (**a.** - **c.**) de particules collectées avec la Duster Box dans le tokamak WEST.

figure 3.13-c ainsi qu'un morceau d'argent sur lequel sont déposés des poussières de cuivre provenant du baffle. Sur la figure 3.14-a, on retrouve une particule d'acier inoxydable en partie recouverte d'argent. Cet acier inoxydable peut par exemple provenir des panneaux qui tapissent et protègent la chambre à vide. Les figures 3.14-b et 3.14-d montrent des particules de tungstène de plus petites tailles que sur la figure 3.13 avec des diamètres entre 5 µm et 10 µm. Pour finir, la figure 3.14-c présente une bulle de tungstène de $\approx$ 22 µm formée suite à l'impact d'électrons découplés sur le LPA provoquant la vaporisation (puis condensation) du tungstène en surface. De telles bulles ont également été observées dans le JET par Rubel et al. (2018) mais avec des tailles plus petites.

Cette section a montré que des particules sphériques de tungstène de plusieurs micromètres de diamètre sont présentent dans le tokamak WEST suite à la campagne plasma C2. Ces particules peuvent être denses (pleines) ou creuses comme des bulles (coquille à noyau

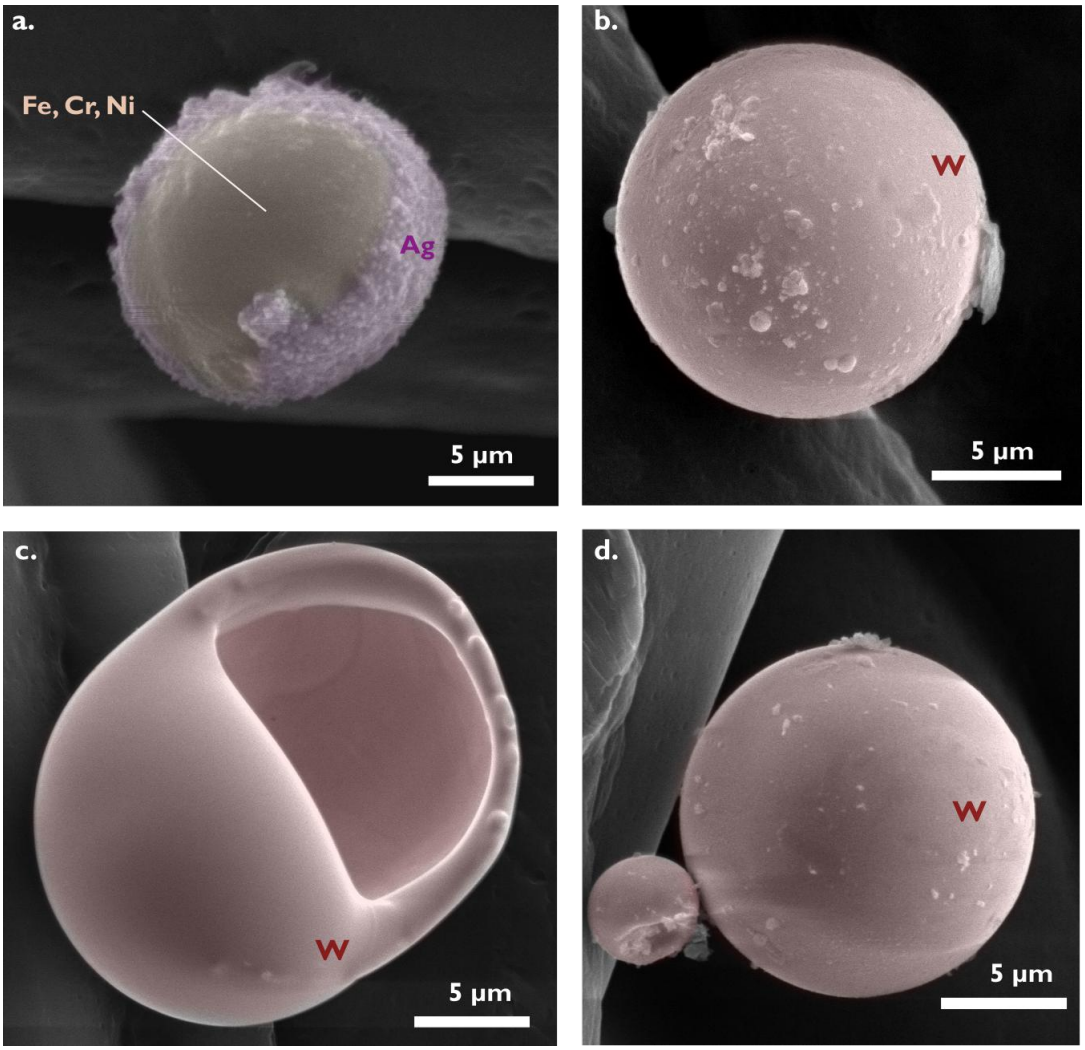

Figure 3.14 – Micrographies MEB et analyses EDS d'une particule d'acier inoxydable recouverte d'argent (**a.**) et de particules de tungstène (**b.** - **d.**) collectées avec la Duster Box dans le tokamak WEST.

vide). Il convient de rappeler que la formation d'arcs est depuis plusieurs années considérée comme une source majeure d'impuretés lorsque les parois de la machine sont en métal (Behrisch, 2002). Il semble que ce phénomène représente un enjeu majeur pour les futures machines métalliques comme ITER. Ce processus de formation par des arcs électriques a également été illustré dans ASDEX Upgrade (Endstrasser et al., 2011) mais aucune évaluation claire de la production de poussières par ce type d'évènements n'a été déduite. On notera également que nous n'avons pas observé de particules de tailles inférieures à 1 µm sur nos filtres lors de cette campagne alors que des expériences de laboratoire ont mis en évidence une production de particules fractales de plusieurs centaines de nanomètres (Acsente et al., 2015) ayant des surfaces spécifiques (SSA) élevées. Dans ce cas là, les poussières sont produites lorsqu'une cible de tungstène est pulvérisée par un plasma d'argon pendant plusieurs centaines de secondes. De même, des agrégats de particules na-

nométriques peuvent être produits par accrétion de la matière érodée dans la zone basse température du plasma de bord (Winter, 2004).

Afin de pouvoir réaliser des expériences contrôlées en laboratoire, je présenterai dans les paragraphes suivants les poudres avec lesquelles j'ai choisi de travailler pour simuler les particules de tungstène trouvées dans WEST.

3.3 Poudres analogues pour le travail en laboratoire

Les poudres que je vais décrire ici ont servi dans toutes les phases expérimentales de mon travail de thèse. J'ai choisi de travailler uniquement avec des poudres de tungstène composées de particules sphériques. Ce choix est motivé par plusieurs raisons :

- Ce type de particule correspond aux poussières produites par un arc électrique et nous avons trouvé un certains nombre de ces particules métalliques sphériques lors des prélèvements dans WEST ;
- la granulométrie des poudres composées de particules sphériques est mieux maîtrisée et les conversions sont simplifiées (pas de facteur de forme) ;
- cela permettra, entre autre, d'éviter tout problème d'interprétation des résultats vis-à-vis de la forme des particules et de faciliter la comparaison avec les modèles d'adhésion et de mise en suspension que nous allons utiliser.

3.3.1 Fabrication et conditionnement des poudres

Deux poudres de tungstène ont été principalement utilisées dans mes expériences. La première est commercialisée par la société *Tekna Advanced Materials Inc*. Cette poudre de tungstène référencée W25 a subi un processus de sphéroïdisation (Jiang and Boulos, 2006) qui permet d'obtenir une grande quantité de particules sphériques dans la gamme 5 - 50 µm. Ces particules ont ensuite été tamisées au laboratoire en utilisant une colonne de tamisage avec des tailles de mailles décroissantes de 20 µm, 15 µm et 5 µm. Avant le tamisage, les poudres ont été déposées dans un bêcher contenant de l'éthanol et mises au bain à ultrasons pendant 2 minutes avant d'être versées sur le premier tamis. La colonne de tamisage est ensuite agitée pendant 30 minutes. Les différents tamis sont récupérés et séchés (40 °C) pendant plusieurs heures. Les particules séchées sont ensuite versées dans des piluliers à l'aide de pinceaux. Cette procédure de tamisage permet d'éliminer les plus grands diamètres (supérieurs à 20 µm) ainsi que les agrégats. La deuxième poudre de tungstène a été achetée auprès de la société *Alfa Aesar* et envoyée à *Tekna Advanced Materials Inc.* pour subir le même procédé de sphéroïdisation. Cette deuxième poudre, notée AF5 dans la suite, a été tamisée selon le même protocole que la poudre de tungstène W25.

3.3.2 Analyses physico-chimiques

3.3.2.1 Granulométries

Je vais présenter ici les distributions granulométriques normalisées en volume des deux poudres de tungstène avant et après le conditionnement expliqué au paragraphe précédent. Les distributions granulométriques présentées sur les figures 3.15-a pour la W25 et 3.15-b pour l'AF5 ont été obtenues avec le granulomètrePSD-3603 *Aerosizer* de la société TSI. Le principe de fonctionnement de cet appareil est reporté en Annexe B-1. Le diamètre géométrique médian de la poudre W25 est de 17 µm et l'écart-type géométrique de la distribution est de 1.52. Le diamètre géométrique médian de la poudre AF5 est de 11.5 µm et l'écart-type géométrique de la distribution est de 1.63. L'insert de la figure 3.15-a montre

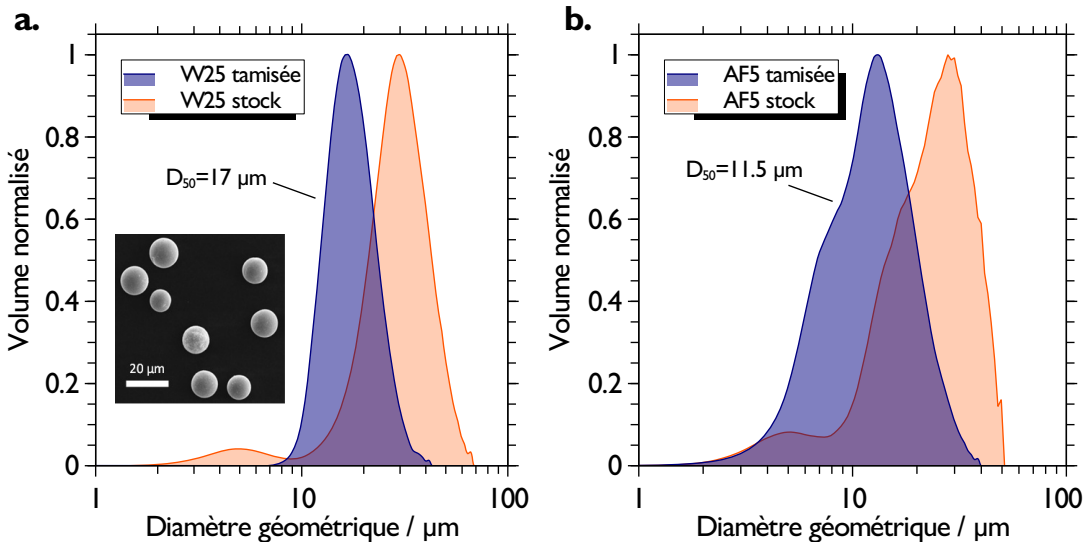

Figure 3.15 – Distributions granulométriques en volume de la poudre Tekna W25 (**a**) et AF5 (**b**) avant/après tamisage. Insert **a** : image MEB des particules de tungstène sphériques constituant la poudre W25 après tamisage.

une micrographie MEB d'un échantillon tamisé de poudre W25 composée de particules sphériques de diamètre compris entre 10 µm et 20 µm. Les distributions granulométriques de la figure 3.15 montrent un effet clair de la procédure de tamisage en réduisant la taille du diamètre géométrique médian et la largeur de la distribution. La distribution granulométrique de la poudre AF5 montre une plus grande dispersion en tailles [18] mais avec des diamètres plus petits.

18. On notera que l'échelle des abscisses est logarithmique. L'étalement de la distribution est donc visuellement amplifié.

3.3.2.2 Mesures de la surface spécifique

Pour compléter la caractérisation des propriétés physiques des poudres tamisées W25 et AF5, des mesures de surfaces spécifiques (SSA) ont été effectuées avec la méthode BET (Brunauer, Emmet et Teller) par adsorption d'azote en utilisant l'instrument BET COULTER SA3100 (voir Annexe B-2). Avant la mesure, le dégazage des échantillons est réalisé à 120 °C pendant 90 minutes sous un flux d'hélium afin d'éliminer l'eau pouvant être adsorbée sur les particules. Les résultats obtenus avec cette technique ont donné une surface spécifique de 0.024 ± 0.01 m^2 g^{-1} pour la poudre W25 et de 0.067 ± 0.01 m^2 g^{-1} pour la poudre AF5. On remarquera que ces valeurs trouvées expérimentalement sont très proche des valeurs obtenues par le calcul suivant :

$$\text{SSA} = \frac{N_p \cdot S_p}{N_p \cdot M_p}, \tag{3.2}$$

avec N_p le nombre totale de particules, $S_p = \pi d_s^2$ la surface moyenne et $M_p = \rho_p \frac{\pi}{6} d_m^3$ la masse moyenne d'une particule constituant la poudre. Pour une distribution granulométrique suivant une loi log-normale, on peut utiliser la relation de Hatch et Choate pour obtenir les diamètres moyens de surface d_s et de masse d_m d'une particule avec les expressions suivantes :

$$d_m = D_{50\text{N}} \cdot \exp\left(1.5 \ln^2(\sigma_g)\right) \text{ et } d_s = D_{50\text{N}} \cdot \exp\left(\ln^2(\sigma_g)\right) \tag{3.3}$$

où $D_{50\text{N}}$ et σ_g représentent le diamètre médian et l'écart-type géométrique de la distribution granulométrique en nombre. L'équation 3.2 peut alors se réécrire :

$$\text{SSA} = \frac{6\left[\exp\left(\ln^2(\sigma_g)\right)\right]^2}{\rho_p \cdot D_{50\text{N}}\left[\exp\left(1.5 \ln^2(\sigma_g)\right)\right]^3}, \tag{3.4}$$

avec $\rho_p = 19300$ kg m^{-3} la masse volumique des particules, le diamètre géométrique médian en nombre $D_{50\text{N}} = 14.1 \cdot 10^{-6}$ m et l'écart-type géométrique $\sigma_g = 1.25$ pour la poudre W25. Pour la poudre AF5, $D_{50\text{N}} = 4.5 \cdot 10^{-6}$ m et $\sigma_g = 1.35$. En remplaçant ces données dans l'équation 3.4, on trouve des valeurs de surface spécifique de 0.019 m^2 g^{-1} et 0.056 m^2 g^{-1} pour les poudres W25 et AF5, respectivement. En prenant en compte l'erreur standard de 0.01 m^2 g^{-1}pour les mesures BET, la surface géométrique des poudres est très proche de la surface spécifique mesurée expérimentalement. Ce résultat indique que la surface des particules de tungstène produites par sphéroïdisation est très peu poreuse.

3.3.2.3 Analyse XPS des particules de tungstène

Une analyse XPS (*X-ray Photoelectron Spectroscopy*) de la poudre W25 a été effectuée à l'aide d'un appareil ThermoFisher ESCALAB 250xi équipé d'une source de rayon X monochromatique Al – Kα de 1486.6 eV. Ces mesures ont été faites par Frédéric Miserque du Service de la Corrosion et du Comportement des Matériaux dans leur Environnement (CEA/DEN/SCCME) à Saclay. Le principe de l'XPS est résumé dans l'Annexe B-3. Une énergie de balayage de 20 eV a été utilisée pour une acquisition haute résolution des niveaux de cœur de la région W – 4 f dont les composants spin-orbite sont bien séparés. L'ajustement du spectre XPS est réalisé avec le logiciel commercial Avantage®. Le spectre présenté sur la figure 3.16-**a.** a été recomposé en utilisant 4 doublets (couplage des spins 4 $f_{5/2}$ et 4 $f_{7/2}$).

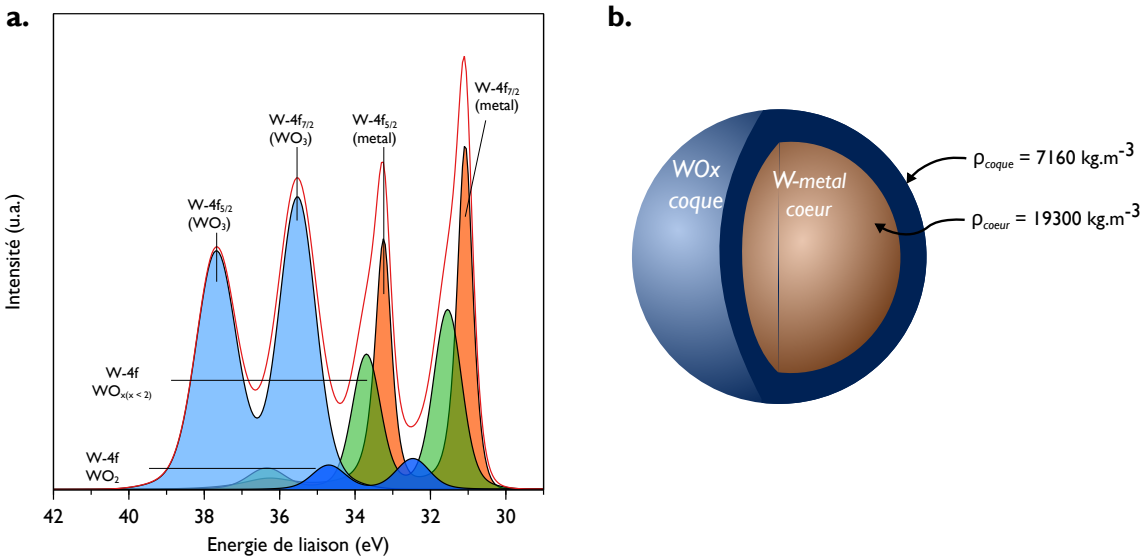

Figure 3.16 – a. Spectre XPS des niveau 4f du tungstène montrant une grande contribution de l'oxyde de tungstène présent à la surface des particules. **b.** Schéma du modèle cœur/coquille considéré pour l'estimation de la couche d'oxyde.

Pour toutes les contributions, nous avons constaté que la séparation des doublets 4 $f_{5/2}$ - 4 $f_{7/2}$ est fixée à 2.2 eV avec des rapports de surface entre les deux pics également fixes avec un ratio $3:4$. Ces contributions sont attribuées au tungstène métallique W (contribution orange sur la figure 3.16-**a.**) avec des énergies de liaison de 31 eV et 33.2 eV pour les niveaux de cœur W – 4 $f_{7/2}$ et W – 4 $f_{5/2}$ respectivement. La présence de W – 4 f dans WO_x ($x < 2$) est révélée par les deux pics à 31.7 eV et 33.9 eV (contribution verte sur la figure 3.16-**a.**) et une contribution assez faible de WO_2 (bleu foncé) a été trouvée avec les niveaux 4 $f_{7/2}$ et 4 $f_{5/2}$ situé à 32.4 eV et 35.5 eV. Enfin, une importante contribution de WO_3 (en bleu clair sur la figure 3.16-**a.**) a été trouvée à 35.6 eV et 37.8 eV pour les niveaux W – 4 $f_{7/2}$ et W – 4 $f_{5/2}$ respectivement. L'analyse de l'aire des différents pics montre une contribution relativement importante des oxydes du tungstène WO_3 à hauteur de 30 % et WO_x avec

$x < 2$ à hauteur de 14 % à la surface des particules de tungstène. La proportion de tungstène métallique quant à elle est évaluée à environ 36 %. A partir de cette mesure XPS, et en considérant que la couche d'oxyde est uniforme à la surface des particules, l'épaisseur estimée de la couche de WO_3 est de 6 nm sur une particule de 13 µm de diamètre.

3.3.2.4 Mesure de la densité des poudres de tungstène

Pour compléter cette estimation de l'épaisseur de la couche d'oxyde faite à partir du spectre XPS, nous avons fait une mesure de la densité réelle de chacun des lots de poudres avec un pycnomètre à hélium ACCUPYC 1330 et une cellule de 10 cm^3 de volume (voir Annexe B-4). Avant la mesure, le dégazage des échantillons a été effectué à 130 °C pendant plusieurs heures dans l'air. La densité obtenue après 50 mesures est de $\rho_{W25} = 18820 \pm 20$ kg m^{-3} et $\rho_{AF5} = 18725 \pm 50$ kg m^{-3} pour les poudres W25 et AF5 respectivement. Pour estimer l'épaisseur de la couche d'oxyde de tungstène, j'ai alors considéré une particule avec une simple structure cœur/coque présentée sur la figure 3.16-b avec une densité du cœur égale à la masse volumique du tungstène métallique ($\rho_{coeur} = 19300$ kg m^{-3}) et une densité de la coque égale à la densité du trioxyde de tungstène, c'est-à-dire, $\rho_{coque} = 7160$ kg m^{-3}. Pour les particules de 13 µm de la poudre W25, cela correspond à une épaisseur de coque de $\approx 80 \pm 5$ nm ce qui représente $\approx 0,04$ % de WO_3 en volume pour une telle particule. Pour les particules de 4.5 µm qui composent la poudre AF5, on trouve une épaisseur d'oxyde de $\approx 36 \pm 5$ nm.

Ces valeurs d'épaisseur de couche de WO_3 semblent surestimées au regard des résultats obtenus avec l'XPS présentés sur la figure 3.16-c et qui montrent la présence de tungstène métallique dans les dix premiers nanomètres de la surface des particules. Le calcul réalisé à partir de la mesure de densité des poudres doit donc être considéré comme une estimation dans le cas où il n'est pas possible de réaliser de mesures XPS.

3.4 Les substrats en tungstène

Suite à la caractérisation des poudres, je vais maintenant présenter les différents substrats en tungstène que j'ai utilisé lors de l'étude sur l'influence de la rugosité des surfaces vis-à-vis de l'adhésion. Cette problématique constitue une partie importante de mon travail de thèse et sera l'objet du prochain chapitre. Je décrirai dans cette partie comment ont été fabriquées ces surfaces. Nous verrons plus en détails dans le prochain chapitre leurs caractéristiques, notamment en termes de rugosité. Dans WEST, les composants en tungstène qui font face au plasma n'ont pas subi de traitements de surface particuliers. De plus, lorsque ces surfaces sont exposées à des tirs plasmas répétés, leur rugosité augmente de manière importante

(Autricque et al., 2018) et des structures en forme d'éponge (appelées aussi fuzz) peuvent apparaître (Stancu et al., 2017). Pour étudier l'influence de ces dégradations sur l'adhésion des particules, j'ai choisi de travailler avec trois substrats en tungstène dont les rugosités appartiennent à plusieurs domaines de textures : poli miroir (rugosité nanométrique), lisse (rugosité intermédiaire) et rugueux (rugosité micrométrique).

La première surface de tungstène à été poli à la main en utilisant différents grades de papier SiC de polissage ainsi que de la pâte diamanté pour atteindre un état de surface dit "poli miroir", c'est-à-dire avec une rugosité $rms < 10$ nm. La seconde surface a également été poli à la main et présente une rugosité rms de 100 à 200 nm (appelée surface intermédiaire dans la suite du texte). La troisième surface en tungstène a été fabriquée par l'équipe de Gheorghe Dinescu travaillant à l'INFLPR en Roumanie [19]. Le principe est d'utilisé un substrat en tungstène comme électrode dans une décharge radiofréquence (RF) par cathode creuse, l'hélium étant le gaz de décharge. Cette technique permets d'exposer les substrats à un bombardement ionique et à des températures élevées (entre 800 °C et 1230 °C) provocant la formation de bulles par cavitation sous la surface en tungstène. Ce phénomène conduit à l'effritement du substrat qui devient très texturé avec une rugosité importante faisant apparaître des structures nanométriques de grandes tailles. Plus de détails sur cette technique sont donnés par Stancu et al. (2017). Ce substrat visible sur la figure 3.17 sera appelé "surface rugueuse" dans la suite. Les dimensions des substrats en tungstène sont d'environ 5 x 5 mm^2.

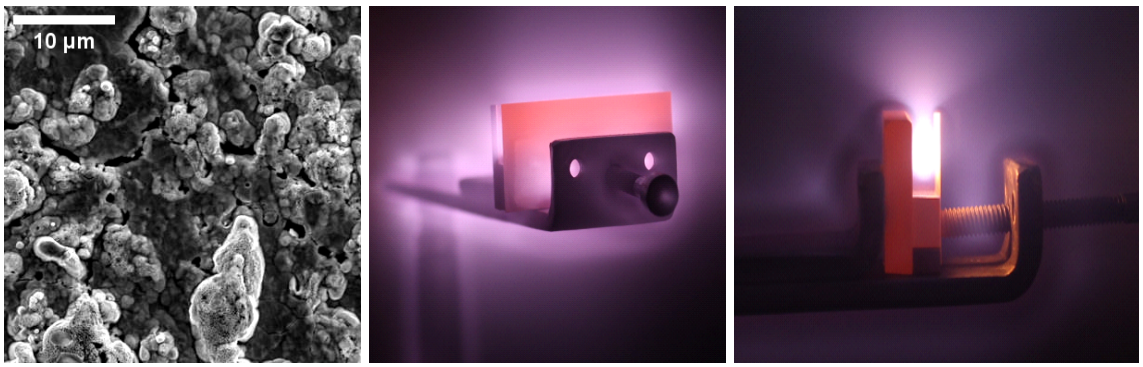

Figure 3.17 – (à gauche) Micrographie MEB de la surface de tungstène exposée à un plasma d'hélium. (au centre et à droite) Photographies du procédé d'érosion par plasma d'hélium. Crédits (Stancu et al., 2017).

19. National Institute for Lasers, Plasma and Radiation Physics, Magurele, Bucharest.

3.5 Conclusion du chapitre

Nous avons vu dans ce chapitre les différentes méthodes de collectes disponibles pour faire des prélèvements de poussières dans un tokamak. J'ai présenté au paragraphe 3.1.1 le dispositif que nous avons construit et son originalité par rapport aux autres méthodes couramment utilisées. La qualification aéraulique de la Duster Box est une étape importante, aussi bien pour connaître l'efficacité de l'appareil que pour les études de mise en suspension en laboratoire que nous verrons au **chapitre 6**. Grâce à ce dispositif, nous avons pu collecter un certain nombre de poussières dans le tokamak WEST du CEA. Le paragraphe 3.2.2 était consacré à l'analyse des caractéristiques physiques (tailles et formes) et chimiques (compositions) des particules prélevées à différents endroits de la chambre à vide. Sur la base de ces résultats, j'ai choisi de travailler avec deux poudres de tungstène composées de particules sphériques dans la gamme de taille 1 - 20 µm. Ces poudres simulantes ont été caractérisées au paragraphe 3.3. Leur forme et leurs tailles sont très similaires à celles des particules de tungstène trouvées dans WEST. Ces travaux ont fait l'objet d'une publication dans la revue *Nuclear Materials and Energy* (Peillon et al., 2020). En revanche, nous avons observé qu'une couche d'oxyde de tungstène de plusieurs nanomètres d'épaisseur était présente à la surface des particules. Bien que de très faible dimension, cette couche d'oxyde peut poser des problèmes sur le chargement des poudres en tritium ainsi que sur l'interprétation des résultats de mise en suspension comme nous le verrons aux **chapitres 5** et **6**. Pour finir, j'ai présenté au paragraphe 3.4 les méthodes de fabrications des substrats en tungstène qui seront utilisés dans le prochain chapitre. Nous nous intéresserons dans celui-ci à l'influence de la rugosité des surfaces (en particulier lorsqu'elles subissent une dégradation par un procédé plasma) sur les forces d'adhésion des particules de tungtène.

Chapitre 4

La mesure des forces d'adhésion

Sommaire du chapitre

4.1 Mesures indirectes sur un ensemble de particules 100
4.1.1 Détachement centrifuge 100
4.1.2 Détachement électrostatique 102
4.2 La microscopie à force atomique (AFM) 103
4.2.1 Mesures de topographies et de rugosités 103
4.2.2 Principe du mode PF-QNM 109
4.2.3 Fonctionalisation des leviers AFM 110
4.2.4 Calibration des leviers AFM 112
4.3 Considérations pratiques pour la mesure en mode PF-QNM 114
4.3.1 Distributions des forces d'adhésion 114
4.3.2 Présence d'impuretés lors des mesures 116
4.3.3 Influence de l'humidité 117
4.4 Estimation de la constante de Hamaker 122
4.4.1 Méthode du "saut au contact" 122
4.4.2 Courbe de phase/distance 124
4.4.3 Force de détachement avec prise en compte de la rugosité 126
4.5 Comparaison avec le modèle de Rabinovich 129
4.5.1 Surface en verre 129
4.5.2 Surface en tungstène poli miroir 131
4.5.3 Surface en tungstène de rugosité intermédiaire 134
4.5.4 Surface en tungstène rugueuse 135
4.6 Conclusion du chapitre 135

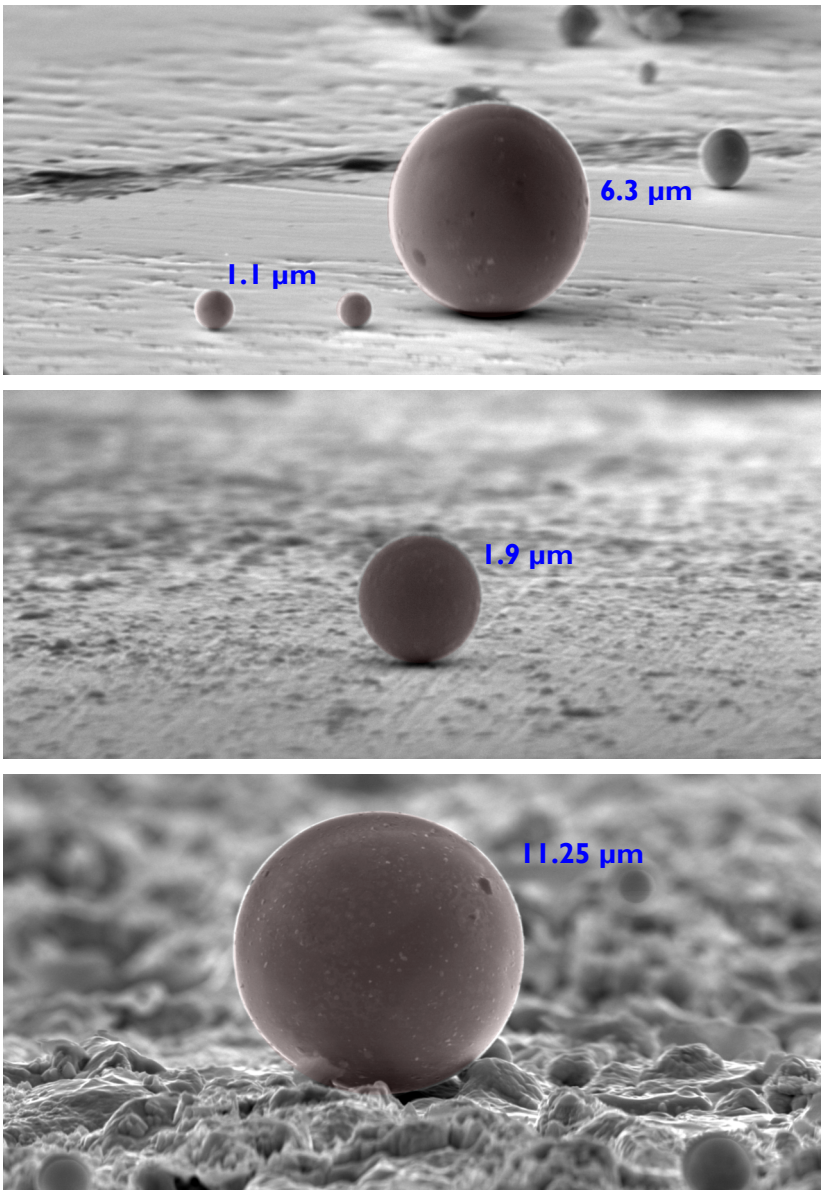

Figure 4.1 – Micrographies MEB avec un angle de 85° de particules de tungstène déposées sur des surfaces en tungstène polie miroir (haut), de rugosité intermédiaire (centre) et rugueuse (bas).

Nous allons voir dans ce chapitre la technique que j'ai utilisée pour mesurer les forces d'adhésion entre des particules de tungstène sphériques et les surfaces en tungstène de différentes rugosités présentées au ***Chapitre 3****. Dans une première partie, je présenterai plusieurs techniques de mesures permettant de trouver la force d'adhésion moyenne d'un ensemble de particules déposées sur une surface. Nous verrons les avantages et inconvénients de ces méthodes. La suite du chapitre sera consacrée aux mesures de forces d'adhésion que j'ai effectuées à l'Institut des Nanosciences de Paris à l'aide d'un microscope à force atomique (AFM). A cette occasion, je présenterai en détail l'utilisation d'un tel instrument pour la mesure de forces ainsi que pour l'évaluation de grandeurs physiques telle que la constante de Hamaker entre deux objets. Nous verrons comment greffer les particules qui nous intéressent sur des leviers AFM et la procédure de calibration utilisée sur ces leviers fonctionalisés. Certains problèmes, inhérent aux mesures AFM en conditions ambiantes, seront abordés et je décrirai en détails l'influence de l'humidité relative sur les mesures de forces. Grâce à cet appareil, j'ai pu faire une analyse détaillée du rôle de la rugosité des différents substrats en tungstène sur l'adhésion des particules en fonction de leur taille. Nous verrons notamment que l'AFM permet une description précise de la rugosité de ces surfaces ce qui m'a permis de comparer les résultats expérimentaux obtenus avec un modèle d'adhésion basé sur les forces de van der Waals en prenant en compte la rugosité des surfaces.*

4.1 Mesures indirectes sur un ensemble de particules

Il existe plusieurs méthodes pour mesurer la force d'adhésion entre des particules et une surface. Dans le cas où de nombreuses particules (identiques ou non) sont dispersées sur une surface, la force nécessaire pour le détachement de chacune de ces particules ne sera pas constante. Dans une telle configuration, il est d'usage de déterminer la force d'adhésion en calculant le ratio entre le nombre de particules détachées par une certaine force, qu'elle soit aérodynamique, électrostatique ou centrifuge et le nombre de particules initialement déposées. Dans cette partie je vais donc présenter les principales techniques de mesures (indirectes) de la force d'adhésion moyenne agissant sur un dépôt de particules. Parmi les méthodes les plus couramment utilisées, nous pouvons citer la centrifugation (Krupp, 1967 ; Mizes et al., 2000), les particules étant détachées par la force centrifuge lorsque la surface sur laquelle elles sont déposées est mise en rotation rapide. Viennent ensuite les méthodes par détachement aérodynamique (Matsusaka and Masuda, 1996) par vibration (Ripperger and Hein, 2004) ou par détachement inertiel (Wanka et al., 2013). De même, les méthodes par détachement électrostatique (Cho, 1964 ; Cooper et al., 1988 ; Takeuchi, 2006 ; Szarek and Dunn, 2007), ont été et sont encore beaucoup utilisées. Dans les paragraphes qui suivent, je vais présenter plus en détails deux techniques, la centrifugation et la balance électrodynamique, qui ont toutes deux été récemment utilisées pour mesurer l'adhésion de poudres de tungstène déposées sur des surfaces en tungstène (Peillon et al., 2017 ; Tolias et al., 2019). Ce sera l'occasion de voir les avantages et inconvénients de ce genre de dispositifs.

4.1.1 Détachement centrifuge

La méthode de détachement par force centrifuge est utilisée depuis longtemps pour mesurer l'adhésion des particules sur une surface. Les particules sont d'abord déposées sur une surface plane qui est ensuite solidement attachée à un support placé dans une centrifugeuse. La surface est alors mise en rotation à des vitesses séquentielles de plus en plus élevées conduisant au détachement progressif des particules comme illustré sur la figure 4.2. La quantité de particules ayant été détachées à chaque palier de vitesse peut être déterminée de plusieurs manières. Dans le passé, cela était déterminé en mesurant le changement de réflectivité du dépôt ou bien par pesée, en mesurant la perte de masse du dépôt après chaque séquence. Aujourd'hui, la microscopie est plus largement utilisée (Mizes et al., 2000) et permet de compter précisément sur une petite zone le nombre de particules s'étant détachées après chaque palier de vitesse de rotation. La vitesse de rotation du substrat est généralement de plusieurs milliers de tours par minute. Pour des particules de silice de diamètre compris entre 5 µm et 50 µm, Salazar-Banda et al. (2007) ont utilisé des vitesses de rotation allant jusqu'à 14 000 tr/min. Le principe est que la force résultant

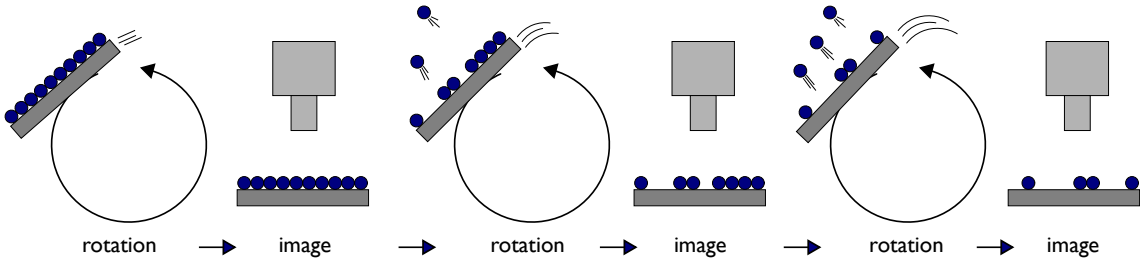

Figure 4.2 – Méthode de détachement par la force centrifuge. Le substrat est mis en rotation de manière séquentielle à des vitesses de plus en plus élevées. Après chaque séquence de rotation, le nombre de particules restant sur le substrat est déterminé par microscopie.

de la vitesse de rotation angulaire d'une particule ayant une masse définie et placée à une distance connue de l'axe de rotation devienne supérieure à la force d'adhésion lorsqu'on atteint une vitesse de rotation critique. La force centrifuge générée dans la direction opposée à l'axe de rotation s'exprime par :

$$F_{cent} = M \cdot \omega^2 \cdot d_c \tag{4.1}$$

avec M la masse de la particule détachée (kg), ω la vitesse angulaire (rad.s^{-1}) et d_c (m) la distance entre la particule et l'axe de rotation. Cette méthode a récemment été mise en œuvre par l'ONERA [1] pour mesurer les forces d'adhésion des poussières constituant le régolithe lunaire et ainsi proposer des solutions aux problèmes de contamination rencontrés par les équipements lors des missions spatiales (Oudayer et al., 2019). Même si ces problématiques sont assez éloignées du sujet qui nous occupe, les conditions d'études (vide spatial, chargement électrostatique par le vent solaire et le rayonnement cosmique) rappellent celles présentes dans un tokamak (ultra-vide, bombardement neutronique et autochargement électrostatique) ce qui nous a poussé à collaborer avec l'équipe en charge de ces questions à l'ONERA. Les résultats qu'ils ont obtenus avec le simulant de poussières lunaires DN1-A (composé essentiellement de particules de silice ayant des tailles entre 20 et 50 µm) montrent des forces d'adhésion du même ordre de grandeur ($\approx 10 - 20$ nN) que pour les particules de tungstène déposées sur des surfaces très rugueuses (Autricque et al., 2018). Ces expériences ont également mis en lumière la limitation de la méthode de mesure par force centrifuge, notamment concernant la vitesse de rotation du dispositif (1400 t/min) insuffisante pour détacher 100 % des particules déposées. De même, le comptage par microscopie optique à travers un hublot de la chambre à vide dans laquelle sont installés les échantillons s'est révélé délicat et dans tous les cas limité aux plus grosses tailles de particules supérieures à 20 µm.

1. Office National d'Études et de Recherches Aérospatiales.

4.1.2 Détachement électrostatique

La méthode par détachement électrostatique consiste à placer un dépôt de particules dans un champ électrique qui est augmenté de manière séquentielle. Le système est généralement composé de deux électrodes qui se font face et entre lesquelles est établie une différence de potentiel (voir figure 4.3). Pour chaque palier de champ électrique, les particules qui se détachent peuvent être comptées soit par microscopie *in-situ* en temps réel à l'aide d'une caméra rapide (Takeuchi, 2006), soit après chaque palier de tension (Szarek and Dunn, 2007). La force d'adhésion est alors obtenue de manière indirecte en la considérant équivalente (mais de signe opposé) à la force électrostatique qui a été nécessaire pour détacher les particules (Hu et al., 2008). Elle s'exprime alors comme :

$$F_{\text{adh}} = F_e = E \cdot Q_p \qquad \text{avec} \qquad Q_p = \frac{\pi^3}{18} p \epsilon_0 D_p^2 E, \tag{4.2}$$

où D_p est le diamètre de la particule et p est le coefficient de Pauthenier défini au **Chapitre 2** par l'équation 2.42. Les premières études quantitatives sur l'efficacité de déta-

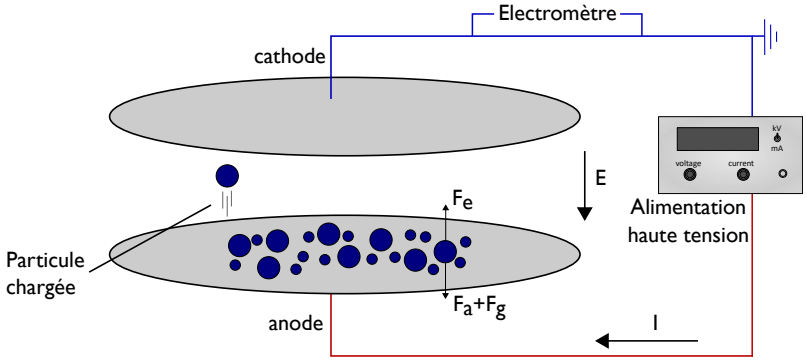

Figure 4.3 – Principe de la mesure des forces d'adhésion par détachement électrostatique par Hu et al. (2008).

chement des particules sous l'effet de champs électriques furent introduites par Cho (1964) puis Cooper et al. (1988). Les particules étaient déposées sur une surface conductrice, polie, et exposée à des champs électriques d'intensités connues pendant 5 minutes dans une enceinte sous vide. Le nombre de particules sur l'électrode avant et après l'expérience était compté, la différence caractérisant alors l'efficacité de détachement. Les auteurs constatèrent la nécessité d'utiliser des champs électriques très intenses (supérieur à 100 kV cm^{-1}) pour détacher 95 % des particules micrométriques (entre 1 µm et 15 µm) composées de verre, de nickel et de polystyrène. La nécessité de disposer de champs électriques très intenses pour détacher des particules de tungstène déposées sur une électrode en tungstène a récemment été confirmé par Tolias et al. (2019). Les auteurs ont en effet utilisé des champs électriques allant jusqu'à 600 kV cm^{-1} pour détacher toutes les particules de

tungstène [2] afin d'en déduire leur force d'adhésion. Nous reparlerons de cette étude dans la partie 4.5 à la fin de ce chapitre.

4.2 La microscopie à force atomique (AFM)

Nous avons vu dans les paragraphes précédents des techniques "indirectes" pour la mesure des forces d'adhésion s'exerçant sur un ensemble de particules. Je vais maintenant décrire une méthode de mesure "directe" de cette force grâce à un microscope à force atomique. Cette technique relativement récente (Ducker et al., 1991) est très largement utilisée dans de nombreux domaines (en particulier en physique des matériaux et en biologie) pour mesurer les propriétés mécaniques d'objets aux échelles micro et nanométriques (Butt et al., 2005). Depuis son apparition à la fin des années 80 (Binnig et al., 1986), la technique AFM a bénéficié et bénéficie encore de nombreux développements métrologiques ce qui se traduit par une diversité très importante de ses modes d'utilisation. En effet, outre les propriétés mécaniques des matériaux, il est possible de sonder les propriétés électriques, magnétiques, élastiques ou topographiques, ces mesures pouvant se faire en environnement contrôlé, sous vide ou en voie liquide. Dans le cadre de mes travaux, j'ai privilégié l'utilisation du mode *tapping* (ce mode est expliqué à l'Annexe A-1) pour faire des images de topographie des surfaces analysées et le mode *PeakForce* pour faire les mesures de forces d'adhésion. Nous verrons au **chapitre 5** les modes électriques dont je me suis également servi pour faire des mesures de potentiel électrique sur les particules.

4.2.1 Mesures de topographies et de rugosités

Avant de présenter les mesures de rugosité effectuées sur les substrats en tungstène, il convient de rappeler les définitions des paramètres utilisés pour décrire les surfaces. Des définitions plus complètes pouvant facilement être trouvées par ailleurs, je ne présenterai que les deux paramètres R_a et R_q que je vais utiliser dans ce document.

2. un champ électrique d'une intensité de $34\,\mathrm{kV\,cm^{-1}}$ est nécessaire pour atteindre la décharge électrique dans l'air dans les conditions standard.

4.2.1.1 Rugosités Ra et Rq

La rugosité R_a est définie comme la moyenne arithmétique des hauteurs et aspérités de la surface par rapport au plan centré. Ce paramètre de rugosité R_a est calculé par :

$$R_a = \frac{1}{l} \int^{l} |z(x)| \cdot dx, \tag{4.3}$$

où l représente la longueur échantillonnée sur la surface et $z(x)$ la hauteur d'un point sur le profil par rapport au plan centré. De même on peut définir la moyenne quadratique des hauteurs et aspérités R_q [3] par :

$$R_q = \sqrt{\frac{1}{l} \int^{l} z^2(x) \cdot dx}. \tag{4.4}$$

Au regard de ces deux définitions (représentées sur la figure 4.4), un pic un peu large ou une anomalie au niveau de la texture microscopique de la surface aura une influence plus importante (augmentation de la sensibilité de mesure) sur la moyenne quadratique R_q que sur la moyenne arithmétique R_a. Dans la suite du manuscrit, je ferai référence principalement au paramètre R_q ou rms dans un soucis de précision. Ces deux paramètres sont

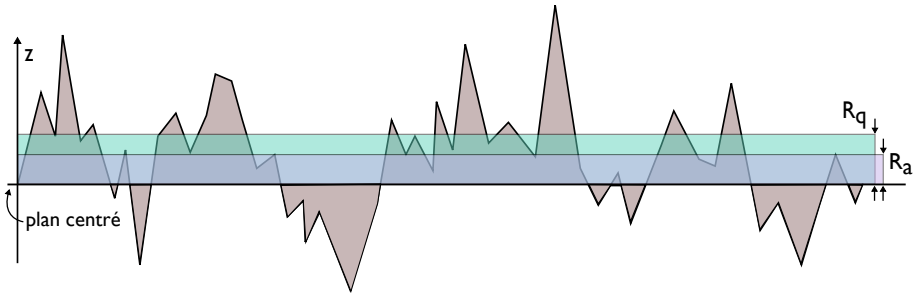

Figure 4.4 – Profil aléatoire d'une surface montrant les différents paramètres utilisés pour décrire la rugosité.

faciles d'utilisation et sont très largement employés pour décrire rapidement la rugosité des surfaces. En revanche, ces paramètres décrivent une rugosité locale de la surface et auront des valeurs différentes selon qu'ils sont mesurés sur 100 µm^2 ou sur 50 nm^2. Ce point a notamment été souligné par Ibrahim et al. (2008) et plus récemment par LaMarche et al. (2017). Dans le cadre de mon étude, il est essentiel de pouvoir distinguer les différentes rugosités rms et les longueurs d'ondes caractéristiques des objets étudiés (substrat ou particules). Nous avons vu au **chapitre 2** (§ 2.2.6) que le modèle de Rabinovich et al. (2000b) nécessite la description de deux échelles de rugosité généralement représentées par une rugosité nanométrique superposée à une rugosité plus large appelée aussi ondulation. Afin d'extraire des images de topographies AFM les paramètres décrivant ces deux échelles de rugosité, il faudra veiller à acquérir des images assez grandes et avec une résolution suffi-

3. équivalente à l'appellation anglophone rms pour *Root Mean Square*.

sante permettant de mesurer les dimensions caractéristiques (λ et rms) des deux échelles de rugosité. En pratique, on cherchera à obtenir des images dont la taille est plusieurs fois la longueur d'onde de l'échelle d'ondulation. De même, la résolution de l'image devra être adaptée pour que la distance séparant deux points de mesures soit inférieure à la longueur d'onde de l'échelle de rugosité nanométrique. La procédure de mesure de ces paramètres de rugosité est détaillée dans les paragraphes suivants.

4.2.1.2 Topographies des surfaces

Des mesures topographiques AFM en mode Scanasyst (*Bruker*) avec des pointes Scanasyst standard ont été effectuées sur les trois surfaces et sont illustrées dans la figure 4.5. Les scans effectués ont une taille de 50 x 50 µm^2 avec une résolution de 2048 points par 2048 lignes. Les histogrammes de hauteur des trois substrats sont également représentés sur la figure 4.5 avec des ajustements gaussiens qui permettent de calculer les rugosités rms (moyenne quadratique des hauteurs/aspérités) de chaque substrat. Ces ajustements sont obtenus en effectuant une régression linéaire sur les paramètres μ et σ de la fonction gaussienne :

$$f(x) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} \exp - \frac{(x-\mu)^2}{2\sigma^2}, \tag{4.5}$$

avec x la hauteur d'une aspérité μ l'espérance mathématique et σ ($= rms$) l'écart type. Ainsi, nous obtenons des rugosités R_q de 11.5 nm, 185 nm et 712 nm pour les trois substrats respectivement.

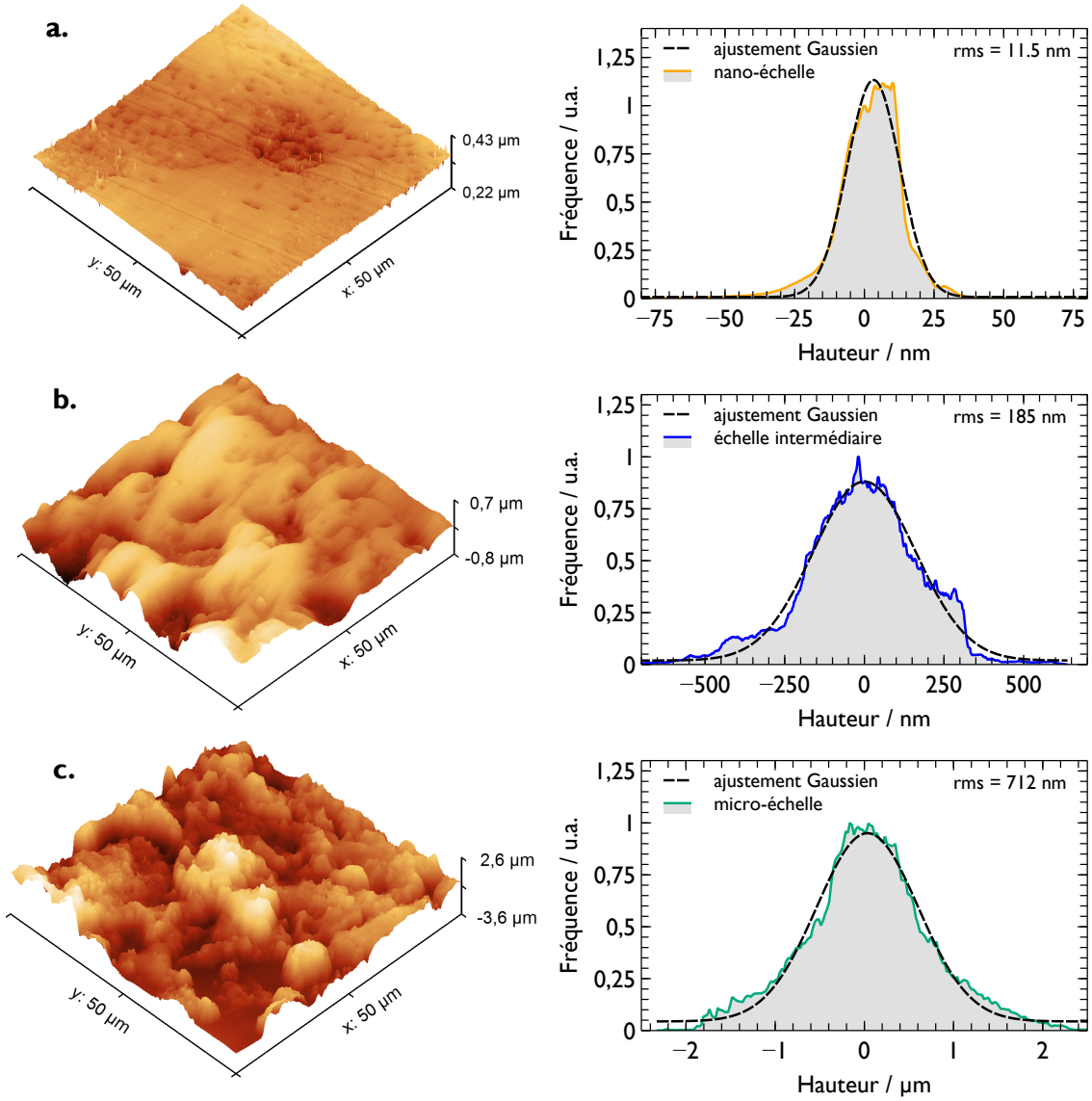

Figure 4.5 – Topographies 3D et distributions des hauteurs pour les trois surfaces de tungstène étudiées : **a.** surface polie miroir avec une rugosité nanométrique ; **b.** surface polie avec une rugosité intermédiaire et **c.** surface exposée à un plasma avec une rugosité micrométrique. Les histogrammes de hauteurs des trois surfaces sont représentés avec des ajustements gaussiens.

A titre de comparaison, la rugosité de surface du divertor de WEST a été mesurée par microscopie confocale (Gauthier et al., 2013) avant son installation dans la machine. La rugosité R_q moyenne ainsi mesurée sur 12 unités face plasma est comprise entre 800 nm et 1000 nm. Ces valeurs sont dans la même gamme de rugosité que le substrat rugueux que nous avons fabriqué et analysé au paragraphe 3.4.

4.2.1.3 Paramètres de rugosité des surfaces

La caractérisation de la rugosité des surfaces sur lesquelles nous faisons les mesures de forces est déterminante pour l'utilisation du modèle de Rabinovich et al. (2000a,b). Je vais décrire dans ce paragraphe la méthode que j'ai utilisée pour extraire les paramètres de rugosité des différentes surfaces. Il faut d'abord réaliser un scan relativement grand, supérieur à 20×20 µm^2 de la surface pour identifier les structures répétitives présentent sur la surface. Le scan doit également être réalisé avec un échantillonnage suffisamment grand, supérieur à 512 points par ligne dans tous les cas. J'ai également réalisé certaines images avec une résolution de 1024 et 2048 points par ligne. Le temps d'acquisition pour ce type de mesure varie entre 30 minutes et 90 minutes selon la taille de la zone scannée et l'échantillonnage choisi. Le modèle considère deux échelles de rugosité, une première échelle dont les dimensions caractéristiques sont de l'ordre du micromètre que l'on appellera "ondulation" (le terme anglais souvent rencontré dans la littérature est *waviness*) à laquelle se superpose une deuxième échelle dont les dimensions caractéristiques sont nanométriques. Cette seconde échelle est la plupart du temps définie comme étant la rugosité primaire de la surface. Ces deux échelles de rugosité sont décrites par un couple de paramètres représentatifs de la taille et du nombre d'aspérités présent à la surface. Ils correspondent à la hauteur des aspérités H_i par rapport au plan moyen de la surface et à au rayon de ces aspérités R_i considérées dans le modèle comme sphérique. Ces grandeurs ne sont pas directement accessibles par la mesure mais Rabinovich et al. (2000b) proposent de mesurer plutôt la longueur d'onde λ_i ainsi que la hauteur quadratique moyenne rms_i pour chaque échelle de rugosité. Ces mesures sont alors reliées aux paramètres H_i et R_i par :

$$R_i = \frac{\lambda_i^2}{32 \cdot k_1 \cdot rms_i} \qquad \text{et} \qquad H_i = k_1 \cdot rms_i \tag{4.6}$$

avec $k_1 = 1.817$ une constante qui a a été calculée pour une géométrie compacte de bosses et de creux. Pour illustrer ces mesures, je présente un exemple de la procédure que j'ai utilisée sur la figure 4.6. J'ai d'abord réalisé un scan de 20×20 µm^2 avec un taux d'échantillonnage de 512 points par ligne sur la surface en tungstène de rugosité intermédiaire. Sur cette image (figure 4.6**-a.**) je trace un profil de 25 µm de longueur et perpendiculaire aux structures visibles sur l'image AFM. Les deux échelles de rugosité de ce profil sont ensuite identifiées dans le logiciel d'analyse *Gwyddion*. Cette étape est représentée dans le graphique **b.** de la figure 4.6. Je peux alors isoler l'ondulation (graphique **c.**) et la rugosité (graphique **d.**) extraites du profil de surface (nommée ici texture).

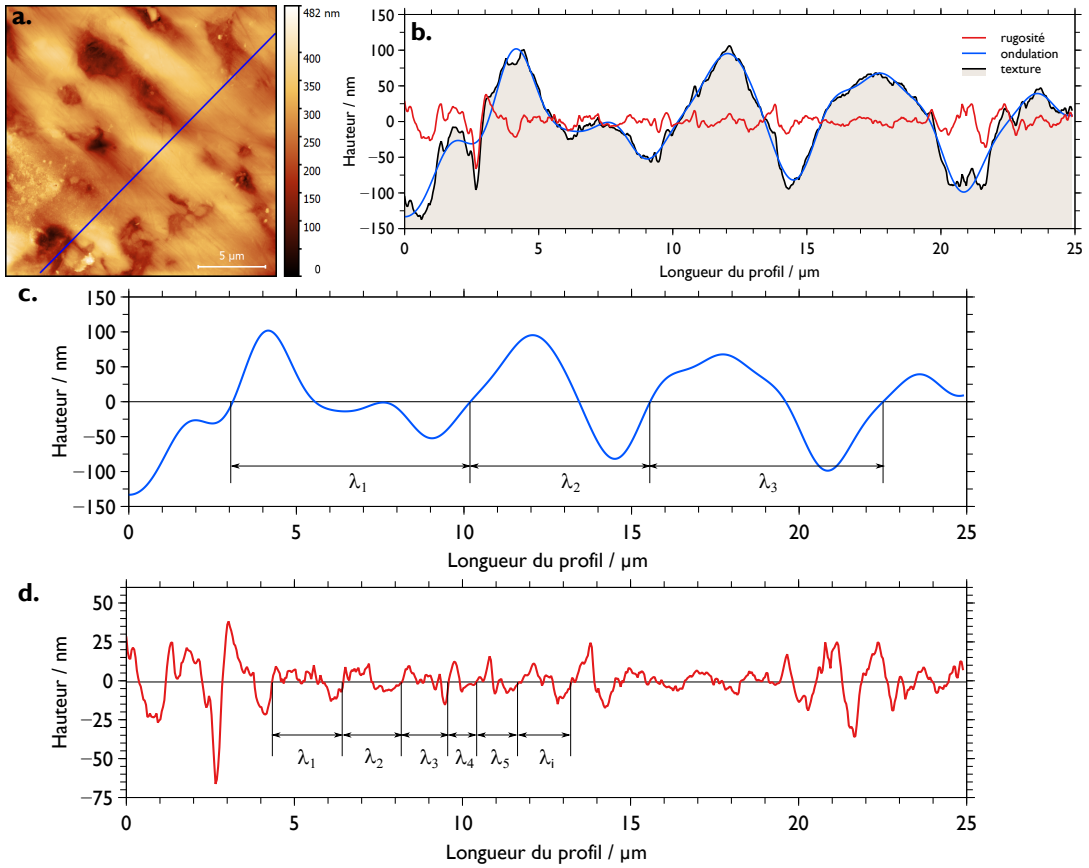

Figure 4.6 – Exemple de la procédure utilisée pour extraire les paramètres de rugosité de la surface de tungstène de rugosité intermédiaire. **a.** Topographie AFM de la surface avec le profil extrait représenté par la ligne bleue. **b.** Analyse du profil avec Gwyddion pour extraire les deux échelles d'ondulation et de rugosité. **c.** Ondulation le long du profil. **d.** Rugosité le long du profil.

Il s'agit ensuite de mesurer les longueurs d'ondes caractéristiques de ces deux échelles de rugosité. J'ai représenté sur les graphiques **c.** et **d.** comment calculer ces longueurs d'ondes. Sur le graphique d'ondulation, seulement trois longueurs d'ondes sont visibles avec une valeur moyenne égale à 6.28 µm. La même chose est effectuée le long du profil de rugosité et l'on trouve une valeur moyenne de 1.71 µm. Ces valeurs sont directement données par le logiciel d'analyse qui calcule le nombre de fois où le profil croise le plan médian (ici à la hauteur $z = 0$), ce qui correspond à $\lambda/2$. De même, le logiciel donne la hauteur quadratique moyenne des différents profils. Dans cette exemple, la rms de l'ondulation vaut 54 nm tandis que celle de la rugosité est de 8 nm. On obtient alors les quatre paramètres nécessaires à l'utilisation du modèle de Rabinovich. J'ai répété cette procédure au minimum trois fois sur chacune des quatres surfaces étudiées. Les paramètres ainsi trouvés sont donnés dans le tableau 4.1.

Tableau 4.1 – Paramètres de rugosité des surfaces (en nm) utilisés avec le modèle de Rabinovich

Substrats	λ_1 (nm)	$\mathbf{rms_1}$ (nm)	λ_2 (nm)	$\mathbf{rms_2}$ (nm)
Verre	-	-	342	2.9
W poli miroir	2780	9.6	1500	3.2
W intermédiaire	6350	67	1710	9.5
W rugueux	7580	418	2400	57

4.2.2 Principe du mode PF-QNM

Les mesures de forces d'adhésion ont été réalisées avec un AFM multimode 8 (*Bruker*) en mode PF-QNM (*PeakForce Quantitative Nano-Mechanical mode*) à l'air ambiant. Ce mode est uniquement disponible chez *Bruker* et est également utilisé par le microscope en mode automatique appelé *ScanAsyst*. Le mode PF-QNM permet de réaliser simultanément des images de topographies et de propriétés mécaniques (élasticité, adhésion, déformation et dissipation) de l'échantillon analysé. Comme la force appliquée sur l'échantillon par la pointe est contrôlée, ce mode permet également de produire des courbes de forces à partir desquelles sont extraites des données quantitatives sur les propriétés du matériau étudié. Dans ce mode le levier (aussi appelé cantilever) oscille à une fréquence proche de 2 kHz permettant ainsi de faire une image rapidement tout en restant très en dessous de la fréquence de résonance du levier[4], contrairement au mode *Tapping*. La pointe (ou la particule) qui est présente au bout du levier vient alors toucher la surface de manière intermittente avec toujours la même force que l'on fixe via le *Setpoint* du microscope. La boucle d'asservissement du microscope est définie par cette valeur de force d'appui. Le déroulement d'une mesure PF-QNM est classiquement expliqué par la courbe force-distance représentée sur la figure 4.7. La force d'adhésion représentée sur la figure 4.7 se calcule en utilisant la loi de Hooke :

$$F_{adh} = K \cdot \delta, \tag{4.7}$$

avec K la constante de raideur du levier (exprimée en $\mathrm{N\,m^{-1}}$) et δ (m) sa déformation verticale directement extraite de la courbe de force. Ces deux paramètres dépendent des caractéristiques physiques du levier, longueur, largeur, épaisseur et matériau. Dans notre cas, il faut également prendre en compte les caractéristiques des objets que l'on va greffer sur les leviers AFM, à la place de la pointe. La procédure utilisée pour réaliser ces greffes est expliquée dans le prochain paragraphe. Nous verrons ensuite comment calibrer les leviers ainsi greffés.

4. pour les leviers que j'ai utilisés, la fréquence de résonnance était généralement autour de 70 kHz.

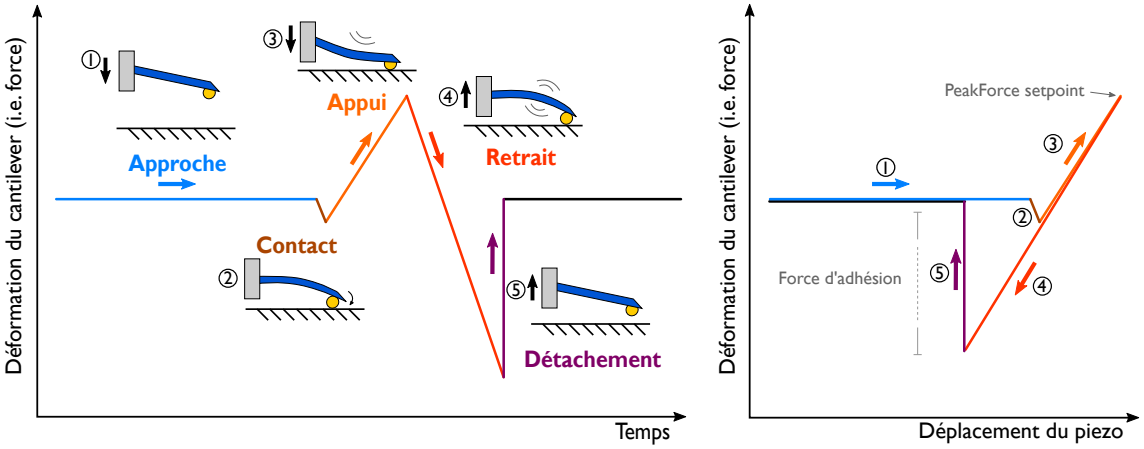

Figure 4.7 – Schéma de principe de la mesure PF-QNM. (1) la pointe se rapproche du substrat et une instabilité due aux forces de van der Waals apparaît à quelques nanomètres du substrat. (2) Le levier se courbe et la pointe entre en contact avec le substrat. (3) La pointe est alors avancée de manière continue jusqu'à ce qu'une force positive préalablement fixée (c'est le *Peakforce setpoint*) soit atteinte. (4) La pointe est ensuite éloignée du substrat à la même vitesse. Durant cette phase de retrait, le mouvement du levier reproduit la courbe initiée lors du mouvement durant la phase (3). A cause des forces d'adhésion dans la région de contact, la pointe ne se sépare pas du substrat au même point où avait été établi le contact. (5) Il en résulte une force négative supplémentaire pour détacher la pointe du substrat et une séparation abrupte apparaît. Cette force nécessaire à la séparation est la force d'adhésion que l'on cherche à mesurer.

4.2.3 Fonctionalisation des leviers AFM

Pour les mesures de force par AFM entre les particules de tungstène et les différents substrats qui m'intéressent, il a fallu greffer sur des leviers CP-FM (sonde colloïdale pour la modulation de force) des particules sphériques de plusieurs tailles issues des deux lots de poudres W25 et AF5 (pour les rayons inférieurs à 4 µm). N'ayant pas le matériel nécessaire au laboratoire, j'ai envoyé des échantillons de poudre à la société SQUBE [5] pour réaliser ces opérations selon la méthode introduite par Ducker et al. (1991) et bien détaillée par Gan (2007). La procédure, assez délicate, requiert un microscope optique à fort grossissement avec une table de déplacement micrométrique, un ou deux micromanipulateurs ayant au moins deux axes de liberté (latéral et vertical) et des fils de cuivre avec des diamètres de quelques dizaines de micromètres (≈ 40 µm) fixés à l'extrémité du bras micromanipulateur. Un schéma de cette procédure est présenté sur la figure 4.8.

5. https://www.sqube.de/

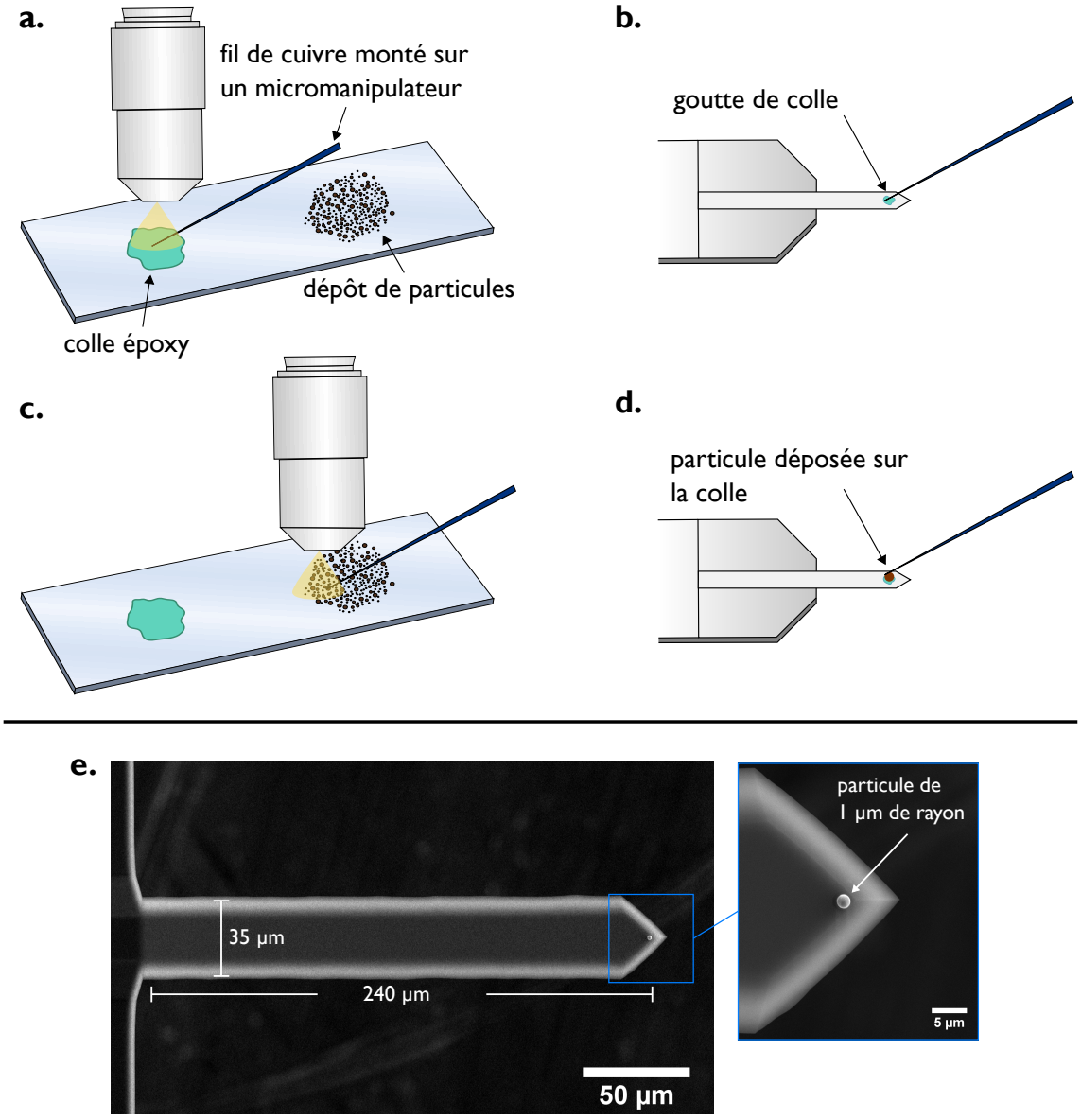

Figure 4.8 – **a.** De la colle époxy et quelques particules sont déposées sur une lamelle en verre. A l'aide du microscope et du micromanipulateur, une goutte de colle est prélevée à l'extrémité du fil de cuivre. **b.** La goutte de colle est ensuite déposée à l'extrémité du levier AFM. La quantité de colle déposée doit être la plus faible possible. **c.** Avec un deuxième fil de cuivre, une particule ayant la taille désirée est prélevée. Les forces de van der Waals suffisent à fixer la particule sur le fil. **d.** La particule est ensuite déposée sur le point de colle à l'extrémité du levier AFM. La colle époxy est alors durcie avec une lampe UV pendant plusieurs minutes. **e.** Images MEB montrant un exemple d'une particule de 1 µm de rayon greffée au bout d'un levier AFM.

Les leviers ainsi fonctionnalisés ont été vérifiés avec le MEB (JEOL JSM-6010) du laboratoire après les greffes afin de mesurer le rayon des particules et de vérifier l'absence de contamination (poussières) sur celles-ci. La Figure 4.9 montre des micrographies au MEB de ces particules une fois fixées sur les leviers AFM. Sept rayons (R_p) ont été étudiés : 1 µm, 1.8 µm, 3 µm, 3.9 µm, 5.5 µm, 7.5 µm et 10.5 µm.

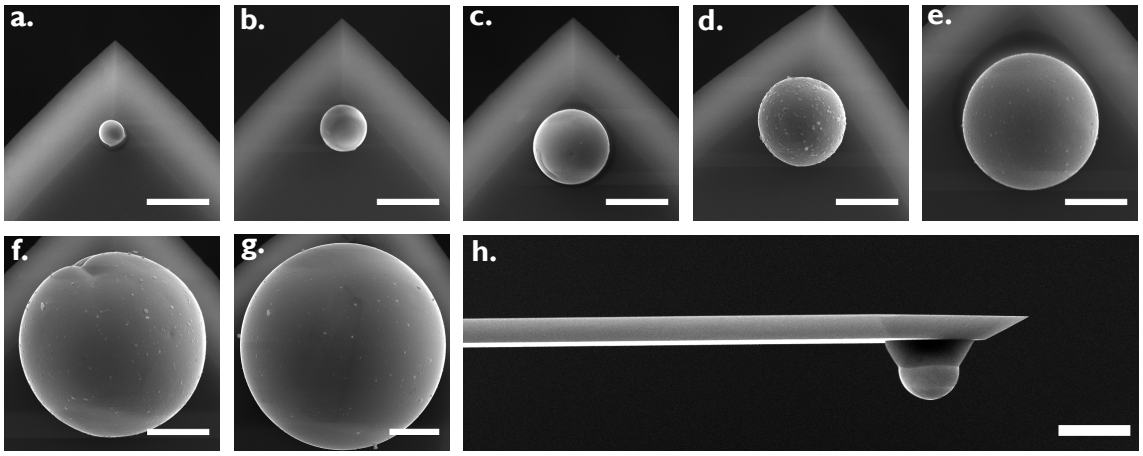

Figure 4.9 – Micrographies MEB des particules de tungstène sphériques greffées sur les leviers AFM. Les rayons des particules sont : **a.** 1 µm, **b.** 1.8 µm, **c.** 3 µm, **d.** 3.9 µm, **e.** 5.5 µm, **f.** 7.5 µm et **g.** 10.5 µm. L'image **h.** présente une vue de côté du levier **d.** avec la particule de 3.9 µm de rayon. Les échelles sont toutes égales à 10 µm.

4.2.4 Calibration des leviers AFM

4.2.4.1 La sensibilité de la déformation verticale ou *deflection sensitivity*

Pour faire des mesures quantitatives des propriétés nano-mécaniques sur un échantillon, il est nécessaire de calibrer la constante de raideur du levier utilisé ainsi que la sensibilité du système à mesurer la déformation verticale de levier. Cette sensibilité est reliée au trajet optique du laser qui permet de détecter les mouvements du cantilever. Ainsi, les conditions environnementales, la qualité du matériel utilisé (laser, photodiode, miroirs et prismes) ainsi que le revêtement réfléchissant déposé au dos des cantilervers conditionnent la précision de la mesure. La calibration de la déformation du levier se fait simplement en réalisant une courbe d'approche/retrait décrite précédemment sur la figure 4.7 sur un échantillon de référence propre et dur afin d'avoir le minimum de déformations latérales et une superposition presque parfaite des phases d'appui et de retrait. Dans notre cas, nous allons utiliser le saphir qui possède un module d'élasticité très élevé (400 GPa). Il s'agit alors de calculer le coefficient de la pente sur la courbe de force pendant la phase d'appui (phase 3 sur la figure 4.7). Durant cette phase, la platine piézoélectrique monte et se rétracte à vitesse constante pour appuyer puis libérer le levier AFM. On obtient alors une variation du signal donné par le détecteur photo-diode (en volts) en fonction du déplacement de la platine piézoélectrique (en nanomètre). Cette séquence est décrite sur la figure 4.10. Nous obtenons donc un coefficient de conversion (noté ΔV) entre le signal renvoyé par le détecteur et la distance verticale parcourue par la platine piezoélectrique. Ce coefficient correspond à la sensibilité de déformation verticale du levier (appelée en anglais *deflection sensitivity*). Pour les leviers que j'ai utilisés, ce paramètre est généralement compris entre 55 nm V^{-1} et 65 nm V^{-1}. Lors de la calibration d'un levier, il convient d'effectuer plusieurs

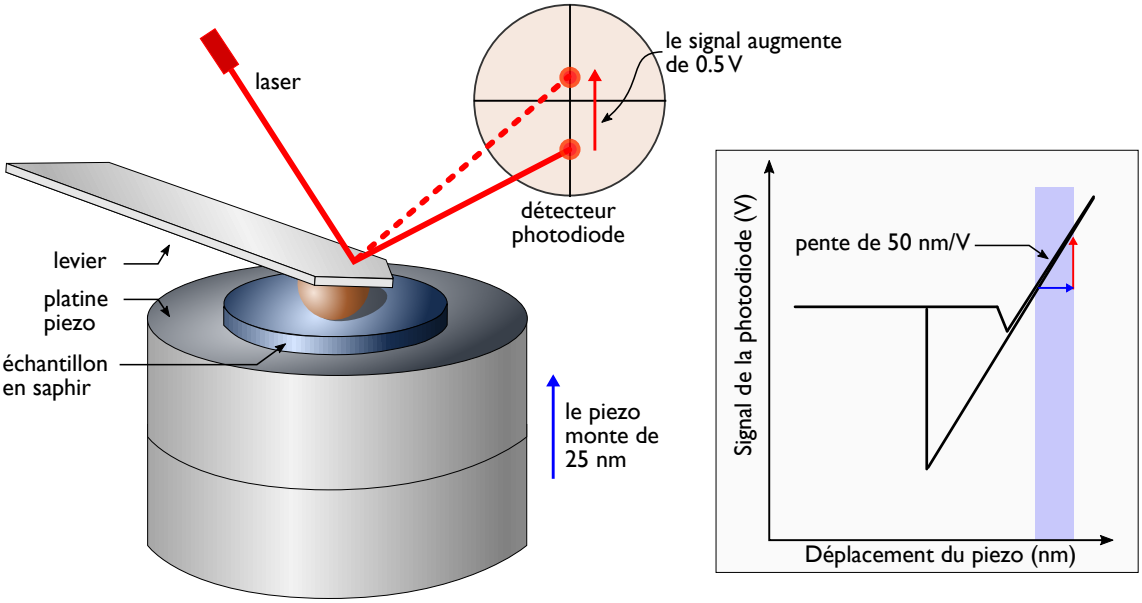

Figure 4.10 – Calibration de la déformation du levier en fonction de la sensibilité de la photodiode.

rampes (ou courbes approche/retrait) à différents endroits de la surface de référence (le saphir dans notre cas) afin de connaître la dispersion des valeurs de déformation verticale du levier. Par exemple, pour le levier avec la particule de 3.9 µm sur la figure 4.9-d, j'ai répété cette procédure de calibration quatre fois. Les valeurs trouvées donnent une moyenne de 60.2 nm V^{-1} avec un écart-type de 1.8 nm V^{-1}. Pour tous les autres leviers testés, l'écart-type sur ce coefficient de calibration ne dépasse pas 2.5 nm V^{-1}. L'ensemble des valeurs trouvées pour le paramètre ΔV sont résumées dans le tableau 4.2. Une fois que la sensibilité de déformation du levier est obtenue, il est nécessaire de calibrer sa constante de raideur.

4.2.4.2 La constante de raideur

La constante de raideur K des leviers fonctionnalisés a été mesurée en utilisant la méthode *Thermal Tune* fournie par le logiciel de l'AFM. La méthode *Thermal Tune* étalonne la constante de raideur d'un levier en ajustant la densité spectrale de puissance des vibrations du levier avec une courbe lorentzienne connue. La procédure d'étalonnage est répétée trois fois pour chaque levier afin d'obtenir une bonne estimation de la constante de raideur[6]. Les rayons des sphères de tungstène greffées sur les leviers et les constantes de raideur correspondantes sont résumés dans le tableau 4.2.

6. Cette procédure est faite après avoir réalisé les greffes de particules sur les leviers.

Tableau 4.2 – Rayons des particules de tungstène greffées sur les leviers AFM mesurés au MEB. Sensibilité de la déformation et constantes de raideur des leviers avec les particules attachées.

Figure 4.9	**a.**	**b.**	**c.**	**d.**	**e.**	**f.**	**g.**
R_p / µm	1.0	1.8	3.0	3.9	5.5	7.5	10.5
ΔV / nm V^{-1}	61.5	60.3	59.2	60.2	63.2	65.4	61.2
K / N m^{-1}	2.5	2.7	2.2	1.9	1.9	2.3	3.0

L'incertitude sur la mesure du rayon est de 0.1 µm.
L'incertitude sur la sensibilité de déformation est de 2.5 nm V^{-1} et celle sur la mesure de la constante de raideur de 0.1 N m^{-1}.

4.3 Considérations pratiques pour la mesure en mode PF-QNM

Je vais présenter dans cette section la méthode que j'ai adoptée pour extraire des mesures PF-QNM les distributions de forces d'adhésion entre les particules de tungstène sphériques que je viens de présenter et les trois surfaces de tungstène décrites au paragraphe 3.4. A noter que des mesures d'adhésion sur une surface en verre ont également été réalisées. Pour commencer, tous les substrats ont été nettoyés par bains ultrasons d'acétone puis d'éthanol et séchés avant d'être montés dans l'AFM. Pour chaque configuration particule/surface, une image topographique AFM d'une taille minimale de 10 x 10 µm^2 composée d'une matrice de 128 x 128 points avec une fréquence de balayage de 0.1 Hz a été réalisée. Une valeur de force d'adhésion peut ainsi être obtenue pour chaque pixel de l'image d'adhésion. La distribution des forces d'adhésion est alors extraite de l'image d'adhésion et ajustée à l'aide d'une fonction mathématique. La moyenne et la dispersion de ces fonctions décrivant les forces d'adhésion seront, plus tard, comparées à un modèle physique intégrant la rugosité des surfaces.

4.3.1 Distributions des forces d'adhésion

A l'inverse des techniques de mesures indirectes que nous avons vu au début de ce chapitre, les mesures de forces effectuées avec l'AFM ne concernent qu'une seule particule de taille fixe. Pour être le plus représentatif possible de l'interaction entre un grand nombre de particules d'une même taille avec le substrat choisi, j'effectue donc un très grand nombre de mesures de forces sur des zones relativement grandes avec une seule particule. Cela me permet d'obtenir une description statistique du comportement d'une population de particules ayant la même taille mais déposées à différents endroits sur la surface. Ainsi, pour extraire une valeur moyenne de la force d'adhésion, j'ajuste des fonctions mathématiques (gaussienne ou lorentzienne) sur les distributions issues des images d'adhésion. Trois exemples de cette procédure sont donnés sur la figure 4.11. Pour les deux premiers exemples, la fonction correspondant le mieux à la distribution des forces d'adhésion est une fonction gaussienne déjà définie au paragraphe 4.2.1.2 par l'équation 4.5. J'ajuste alors la fonction

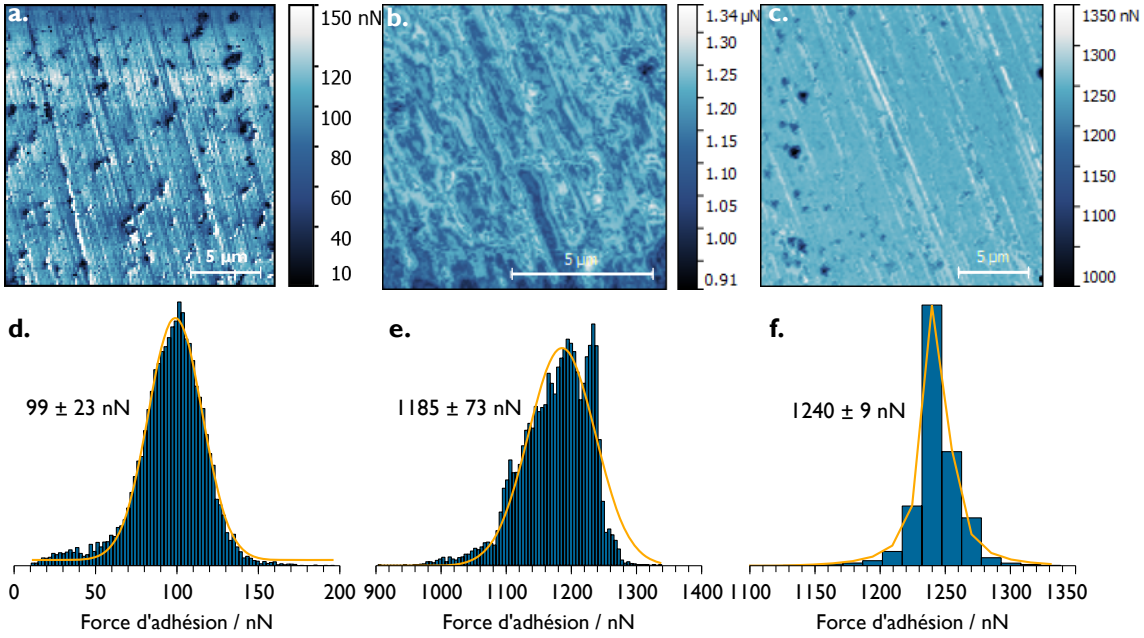

Figure 4.11 – Exemples de distributions de forces d'adhésion obtenues avec le substrat en tungstène poli miroir et une particule de : 1 µm de rayon (**a.** et **d.**) et 5 µm de rayon (**b.**, **e.** et **c.**, **f.**)

en faisant une régression linéaire sur les deux paramètres μ et σ qui correspondent à la moyenne et l'écart type des forces d'adhésion. Pour le troisième exemple (**c.** et **f.** sur la figure 4.11), il est plus adapté d'utiliser une fonction lorentzienne pour décrire la distribution des forces d'adhésion. Cette fonction s'exprime par :

$$f(x) = y_0 \left[\frac{a}{b^2 + (x - x_0)^2} \right], \tag{4.8}$$

où x_0 est la médiane de la distribution, b le paramètre d'échelle correspondant à la moitié de la largeur à mi-hauteur de la distribution et y_0 la position initiale sur l'axe des ordonnées et a la hauteur du pic de la distribution. La description de la distribution des forces d'adhésion sur une surface rugueuse est classiquement faite à l'aide d'une fonction log-normale ou gaussienne (Fritzsche and Peuker, 2016 ; Brambilla et al., 2018). Cependant, lorsque la surface ne présente pas beaucoup d'aspérités, l'utilisation d'une distribution de Weibull ou d'une distribution de Cauchy (représentée par une fonction lorentzienne) peut être plus adaptée (Götzinger and Peukert, 2004).

Répétabilité de la mesure Pour la plupart des systèmes particule/substrat, au moins trois régions différentes du substrat ont été balayées, donnant ainsi trois fonctions de distribution des forces d'adhésion. Il convient de rappeler ici que, pour chaque image d'adhésion, 16 384 valeurs de force sont obtenues, donnant dans une seule image une bonne représentation statistique de la distribution des forces d'adhésion entre la particule et le substrat. Pour tester la répétabilité de la mesure des forces d'adhésion faite en mode PF-QNM, j'ai

enregistré successivement deux images d'adhésion sur une même zone. Ces deux images (visible sur la figure 4.12-b. et 4.12-c.) ont une taille de 10 x 10 µm^2 et les paramètres de scan sont identiques. Le substrat utilisé est le tungstène poli miroir et la particule utilisée à un rayon de 5 µm. On montre ainsi que les moyennes des forces d'adhésion mesurées sur chaque scan sont identiques, 1232 ± 31 nN pour le scan **b.** et 1234 ± 28 nN pour le scan **c.**, soit un écart inférieur à 0.2 % sur la moyenne des forces d'adhésion entre les deux mesures. L'écart-type géométrique des distributions visibles sur le graphique de la figure 4.12 est également faible et vaut environ 3 %.

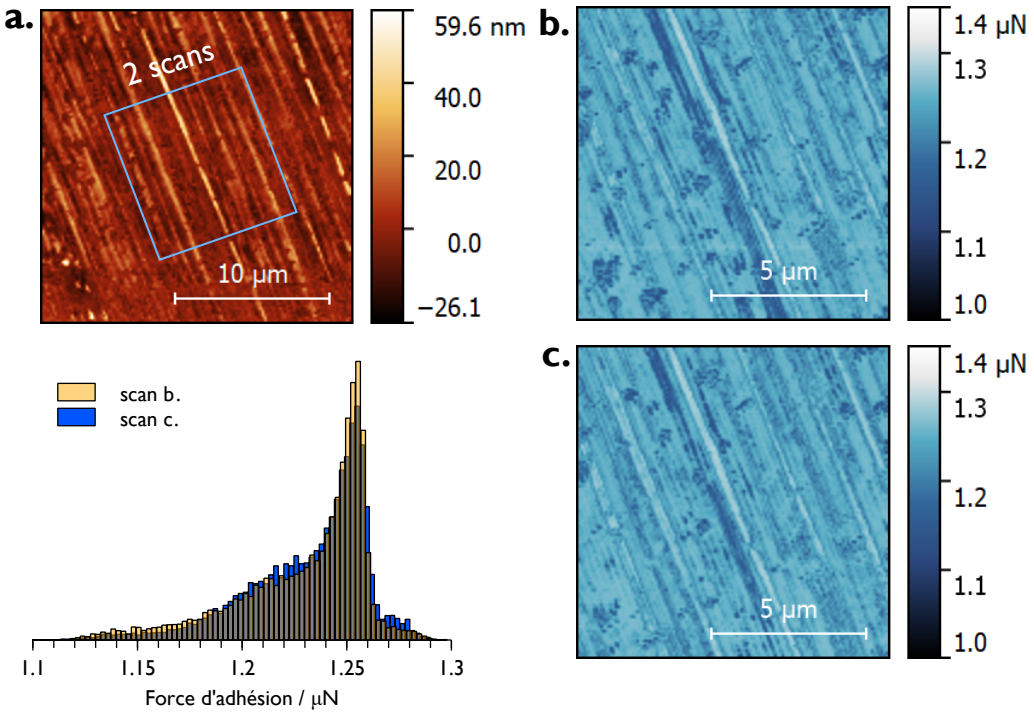

Figure 4.12 – a. Topographie AFM de 20 µm de large montrant la zone ou les deux cartographies d'adhésion (**b.** et **c.**) ont été effectués. Le diagramme présente les deux distributions des forces d'adhésion extraites de chacune des cartographies.

4.3.2 Présence d'impuretés lors des mesures

Au cours des nombreuses mesures que j'ai effectuées sur les différents substrats, j'ai pu observer à plusieurs reprises que les particules greffées sur les leviers se contaminaient au cours du scan de la surface. En effet, malgré un contact réduit du fait de l'utilisation du mode *PeakForce*, les zones scannées sont relativement étendues et la présence d'impuretés sur les surfaces inévitable, les mesures se faisant dans l'air ambiant du laboratoire. Lorsqu'une impureté se fixe sur la particule, on voit généralement apparaître un changement brusque sur les images de topographie et d'adhésion. La présence d'une impureté sur la particule se traduit par une forte diminution des forces d'adhésion, la distance entre la

particule et la surface étant augmentée proportionnellement à la taille de l'impureté ainsi "ramassée" par la particule. Un exemple de ce problème est donné sur la figure 4.13. Le scan s'effectue du haut vers le bas et arrivé au 2/3 de l'image, on constate un saut marqué sur les images de topographie (à gauche) et d'adhésion (au centre). Lorsque l'on extrait les forces d'adhésion sous la forme d'un histogramme (à droite de la figure), on constate une diminution d'environ 300 nN entre la zone ou le scan s'est déroulé normalement et la zone ou une impureté s'est accrochée sur la particule. Dans cet exemple, je vais seule-

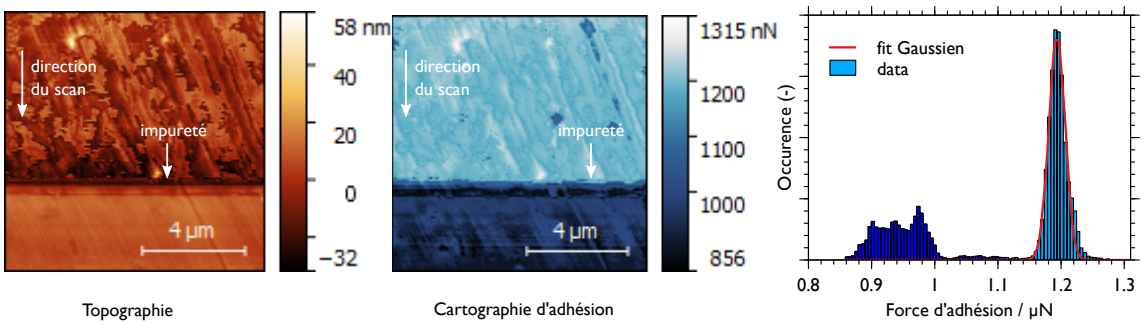

Figure 4.13 – Exemple montrant une impureté collectée par la pointe au cours d'un scan en mode PF-QNM. Arrivé au 2/3 de l'image, on constate un saut marqué sur les images de topographie (à gauche) et d'adhésion (au centre). Une diminution d'environ 300 nN sur les forces d'adhésion est clairement visible sur l'histogramme (à droite).

ment conserver la distribution (gaussienne) des forces d'adhésion correspondant à la partie haute de l'image (en bleu clair). Pour limiter la pollution des échantillons par des petites poussières, les surfaces sont systématiquement rincée à l'éthanol puis à l'eau déminéralisée avant les expériences. Une fois les échantillons en place dans le microscope, j'isole le microscope de l'air ambiant en le plaçant dans une enceinte en verre hermétique. Cette enceinte peut aussi être alimentée par de l'azote afin de diminuer l'humidité relative présente dans l'air du laboratoire. Ce dispositif est décrit dans le paragraphe suivant.

4.3.3 Influence de l'humidité

Nous l'avons vu au **Chapitre 2**, lorsque les mesures sont réalisées dans l'air ambiant, l'humidité joue un rôle prépondérant sur l'adhésion des objets de taille micrométrique. Les mesures de forces que j'ai effectuées avec l'AFM se sont étalées sur plusieurs semaines. L'humidité relative dans le laboratoire varie donc de manière importante, entre 30 % les jours de beau temps à 65 % les jours de pluie. Pour limiter l'influence des conditions environnementales, l'AFM peut être placé dans une enceinte en verre hermétique et alimentée en azote. La mesure de l'humidité relative et de la température à l'intérieur de l'enceinte est faite en temps réel avec un capteur *Sensirion SHTC3* relié par un câble *USB* directement à l'ordinateur. Ce capteur permet de mesurer une humidité comprise entre 0 % et 100 % avec une précision absolue de 2 %. L'ensemble de ce dispositif est visible sur la figure 4.14. L'enceinte en verre est posée sur un joint polymère et un capot en laiton également équipé

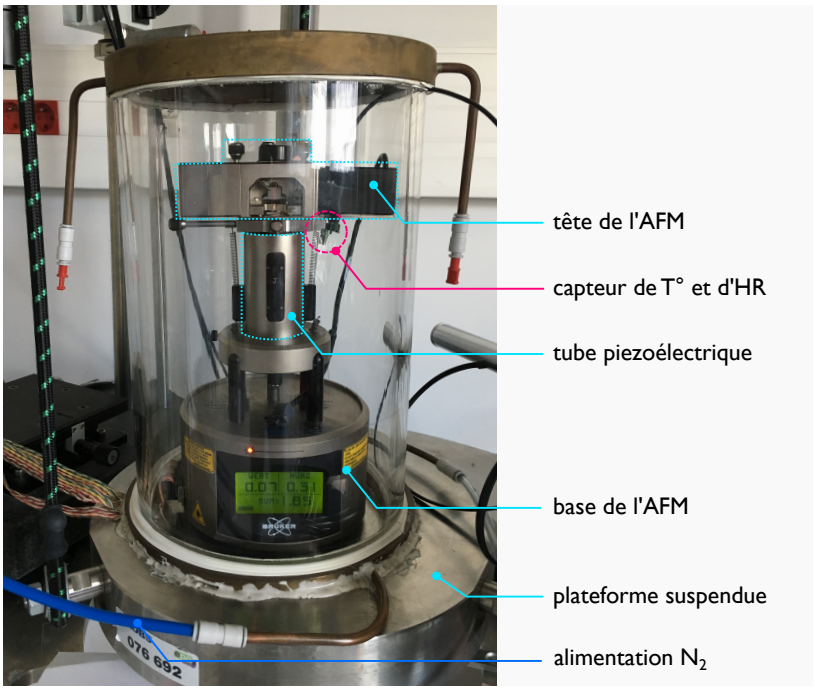

Figure 4.14 – Photographie montrant l'AFM multimode 8 à l'intérieur de l'enceinte en verre alimentée en azote.

d'un joint vient fermer le système sur le dessus. Il subsiste tout de même quelques fuites, notamment au niveau du passage du capteur d'humidité, ce qui limite les humidités relatives atteignables à l'intérieur de l'enceinte entre 3 % et 9 %. J'ai utilisé ce dispositif systématiquement lorsque j'effectuait des mesures de forces entre les particules de tungstène et la surface en verre.

Un exemple montrant l'influence de l'humidité sur la mesure des forces d'adhésion pour un scan réalisé sur un substrat en verre avec une particule de 1.8 µm de rayon pour deux humidités relatives différentes est donné sur la figure 4.15. Sur l'image de gauche, l'humidité relative dans le laboratoire était de 53 % au moment de la mesure. Après avoir mis le microscope dans l'enceinte en verre et fait une purge à l'azote, j'ai refait la mesure d'adhésion sur la même zone en conservant les mêmes paramètres de scan. Le résultat est visible sur l'image de droite, l'humidité relative étant alors de 10 %.

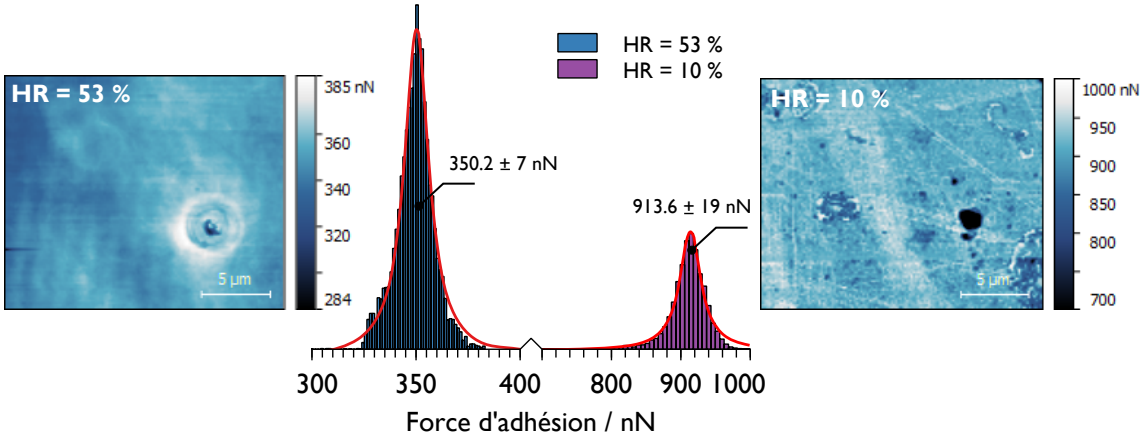

Figure 4.15 – Exemple montrant l'influence de l'humidité sur la mesure des forces d'adhésion pour un scan réalisé sur le substrat en verre avec une particule de 1.8 µm de rayon pour deux humidités relatives (HR $=$ 53 % sur l'image de gauche et HR $=$ 10 % sur l'image de droite). Les histogrammes montrent les distributions des forces d'adhésion des deux mesures avec leur ajustement lorentzien.

L'histogramme de la figure 4.15 montre les distributions des forces d'adhésion des deux mesures avec leur ajustement lorentzien. Lorsque l'humidité relative dans la pièce était de 53 %, la médiane des forces d'adhésion était de 350.2 nN. Une fois que l'humidité relative a été diminuée à 10 %, la médiane des forces d'adhésion est passée à 913.6 nN (soit une augmentation d'environ 550 nN). On note également la différence de contraste entre les deux images. Dans un environnement sec, les aspérités de la surface sont bien visibles. En revanche, lorsque la mesure est faite dans une atmosphère humide, l'interaction entre la particule et la surface est écrantée par la formation d'un ménisque d'eau entre cette dernière et la surface pour chaque point de contact. L'image résultante correspond donc aux forces d'adhésion entre la particule de tungstène et un film d'eau de quelques nanomètres d'épaisseur présent sur la surface en verre.

La formation de ce ménisque d'eau est clairement visible lorsqu'on réalise une rampe d'approche/retrait dans ces conditions. Un exemple d'une telle rampe est donné sur la figure 4.16. Lors de la phase d'approche un premier saut d'adhésion, correspondant aux forces capillaires créées lors du contact entre la particule ($R_p = 1$ µm) et le film liquide, intervient à 28 nm de la surface en verre. Quelques nanomètres après, l'approche continuant, un deuxième saut est visible jusqu'au point de contact entre la particule et la surface. Ce deuxième saut correspond aux forces de van der Waals qui se développent entre la particule et la surface à mesure que celle-ci se rapproche. Mais contrairement à un "saut au contact" classique qui intervient très brusquement et sur seulement quelques nanomètres proche de la surface, ce deuxième saut est fortement ralenti par les forces hydrodynamiques qui s'exercent sur la particule. Lors de la phase de retrait, on constate que la force de *pull-off* nécessaire au détachement entre la particule et la surface est quasiment identique à la force d'attraction obtenue au moment du contact. Ce résultat montre que les forces de van

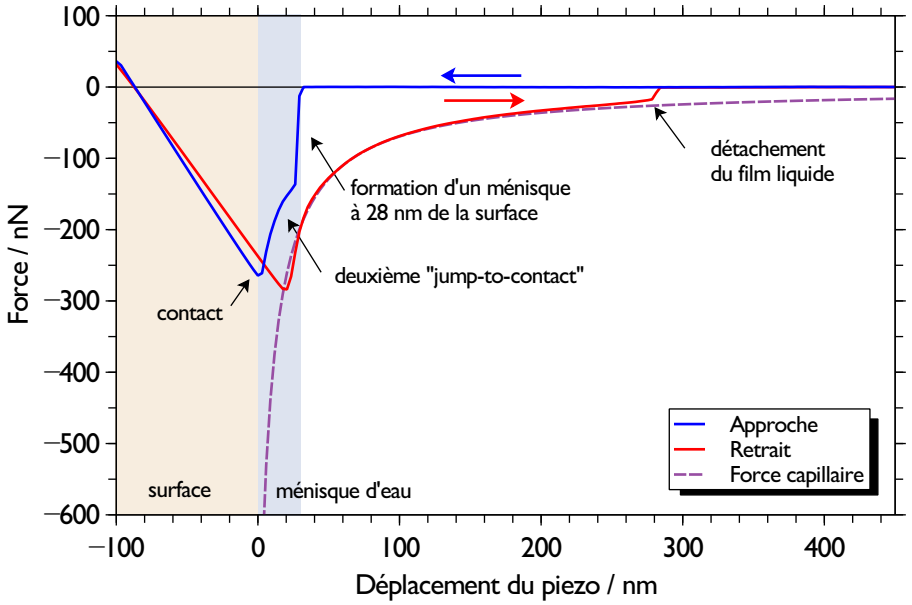

Figure 4.16 – Courbe d'approche/retrait réalisée avec une particule de tungstène de 1 µm de rayon sur une surface en verre pour une humidité relative de HR = 53 %.

der Waals n'ont pas pu se développer du fait de la présence du film d'eau sur la surface, celui-ci augmentant la distance entre la particule et la surface. En effet, pour un tel système ($R_p = 1$ µm, $A_{W/Si} = 250$ zJ et $r_0 = 0.3$ nm), le calcul des forces de van der Waals en utilisant la théorie de Hamaker (Chapitre 2, éq.2.8) donne une force de 453 nN. La forme de la courbe de retrait suggère une élongation du pont capillaire entre la particule et la surface. Ce résultat montre que le film liquide est mobile sur la surface en verre ce qui a pour effet d'augmenter le volume liquide du pont capillaire et par conséquent réduire l'adhésion (Cleaver and Tyrrell, 2004). Cette séquence peut être schématisée par les quatres phases représentées sur la figure 4.17.

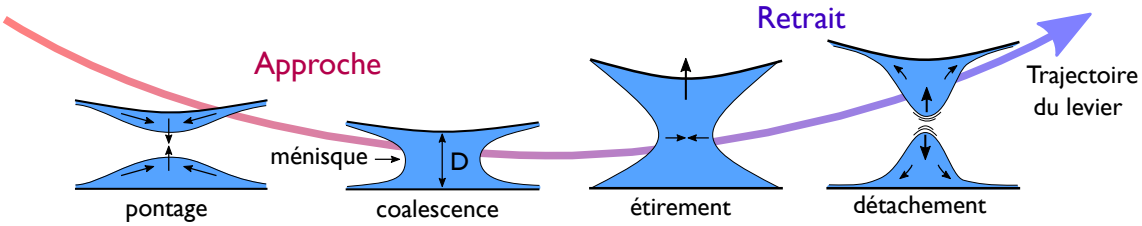

Figure 4.17 – Séquences d'approche/retrait du levier AFM en cas d'humidité relative élevée pour des matériaux hydrophiles. Si une pellicule d'eau est adsorbée sur la surface, un pont capillaire se forme. Le ménisque créé entre la particule et la surface s'étire à mesure que le levier se retire jusqu'au détachement.

J'ai représenté par la ligne violette en pointillés sur la figure 4.16 la force de capillarité qui s'exerce sur la particule en fonction de la distance avec la surface. L'expression utilisée

pour ce calcul est (Israelachvili, 2011) :

$$F_{\text{cap}} = -\frac{4\pi R_p \gamma_L \cos\theta}{1 + (D_i/r_k)}, \tag{4.9}$$

avec $R_p = 1\,\mu\text{m}$ le rayon de la particule, $\gamma_L = 0.072\,\text{N m}^{-1}$ la tension superficielle de l'eau à 20 °C, θ l'angle du ménisque, D_i la distance entre la particule et la surface et r_k le rayon de Kelvin. Le rayon de Kelvin s'obtient avec l'équation suivante (Sedin and Rowlen, 2000) :

$$\frac{1}{r_k} = \frac{1}{\varepsilon} \times \ln\left(\frac{P}{P_{\text{sat}}}\right), \tag{4.10}$$

avec $\frac{1}{\varepsilon} = \frac{R \cdot T}{\gamma_L \cdot V_m} = 0.54\ \text{nm}^{-1}$ ou $R = 8.31\,\text{J mol}^{-1}\,\text{K}^{-1}$ est la constante des gaz parfaits, T est la température et $V_m = 1.8 \cdot 10^{-5}\ \text{m}^3\,\text{mol}^{-1}$ le volume molaire de l'eau à 20 °C. Pour une humidité relative de 53 %, on trouve que le rayon de Kelvin est égale à $r_k = -0.85$ nm[7]. En remplaçant ces valeurs dans l'équation 4.9, on obtient un bon accord avec la force de détachement en fonction de D_i.

Dans le cas où les mesures étaient réalisées sur les surfaces en tungstène, j'ai utilisé ce système lorsque l'humidité relative dans la pièce dépassait 40 %. En effet, pour des humidités relatives supérieures à 40 % j'ai remarqué une influence significative de l'humidité, en particulier avec le substrat en tungstène poli miroir. Pour les substrats plus rugueux, la contribution des forces capillaires devient négligeable (Rabinovich et al., 2002) et les forces d'adhésion demeurent constantes quelque soit l'humidité relative. Je donne sur la

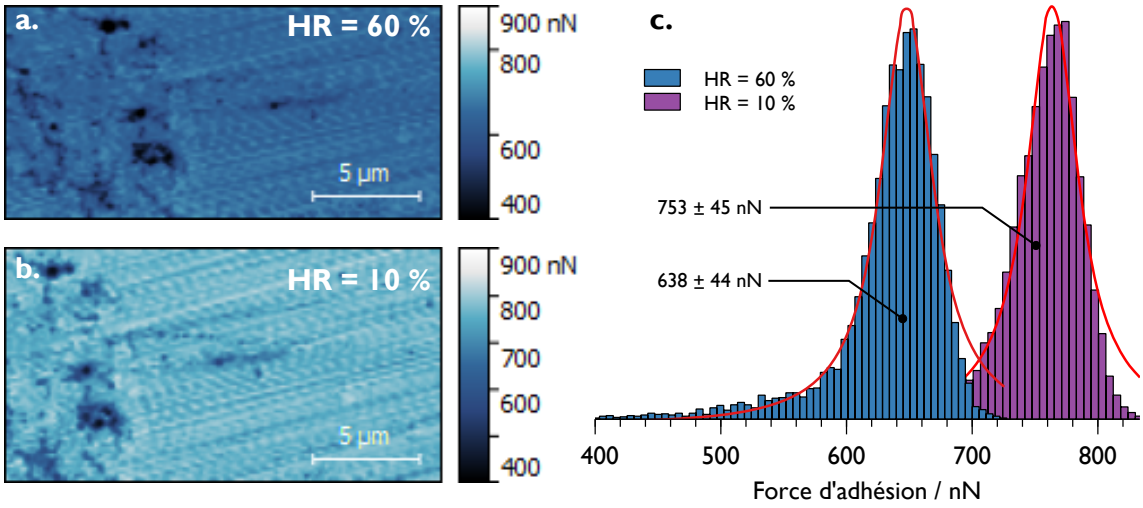

Figure 4.18 – Exemple montrant l'influence de l'humidité sur la mesure des forces d'adhésion pour un scan réalisé sur le substrat en tungstène poli miroir avec une particule de 3.9 µm de rayon pour deux humidités relatives (HR= 10 % sur l'image **a.** et HR= 60 % sur l'image **b.**). **c.** Histogrammes montrant les distributions des forces d'adhésion des deux images avec leur ajustement lorentzien.

figure 4.18 un exemple d'une mesure réalisée avec une particule de tunstène de 3.9 µm sur

7. Le rayon de Kelvin est négatif car le ménisque est concave.

le substrat en tungstène poli miroir lorsque l'humidité relative dans le laboratoire est de 60 % (un jour de pluie donc !). J'ai donc placé le microscope dans l'enceinte que j'ai purgée avec de l'azote pendant 30 minutes jusqu'à atteindre une humidité relative de 10 %. La même zone de 10 µm par 20 µm a été à nouveau scannée, les paramètres de mesure étant inchangés entre les deux images **a.** et **b.** de la figure 4.18. En traçant les histogrammes correspondants (figure 4.18-**c.**), on remarque que les distributions des forces d'adhésion sont similaires mais avec une augmentation de l'adhésion d'environ 115 nN pour la mesure faite dans l'enceinte sous azote.

4.4 Estimation de la constante de Hamaker

4.4.1 Méthode du "saut au contact"

Il existe plusieurs méthodes pour mesurer la constante de Hamaker à l'aide d'un microscope à force atomique. La plus intuitive consiste à réaliser une courbe d'approche/retrait entre le levier fonctionnalisé et la surface en se concentrant sur la phase d'approche (Butt et al., 2005). En particulier à l'endroit où les forces de van der Waals viennent perturber l'équilibre quasi-statique du levier provoquant très rapidement le contact entre la pointe et la surface. Cette phase est couramment appelée "saut au contact" ou *jump-into-contact* (JC). En effet, le levier AFM évolu dans un champ de force non-linéaire provoqué principalement par les forces électrostatiques à grande distance (>30 nm) et les forces de van der Waals à très courte distance (<10 nm). En l'absence de force électrostatique, et si l'on connait le rayon de la particule greffée sur le levier AFM et la constante de raideur du levier, il est possible de modéliser la phase de saut au contact avec la théorie classique de Hamaker. L'avantage de cette méthode est qu'elle est insensible aux éventuelles rugosités de surface puisque l'ajustement du modèle se fait sur la courbe d'approche, avant le contact (Das et al., 2007). Pour une interaction entre une sphère de rayon R_p et une surface lisse, la force mesurée par l'AFM, résultant des forces de van der Waals décrites au **chapitre 2** (§ 2.2) s'écrit :

$$F_{\text{afm}} = F_{\text{vdw}} = \frac{A \cdot R_p}{6 \cdot D_i^2}, \tag{4.11}$$

avec A la constante de Hamaker et D_i^2 la distance de la sphère avec la surface. Il suffit alors d'ajuster le modèle à la courbe d'approche dans la région du "saut au contact" en faisant varier la valeur de la constante de Hamaker. Un exemple de cette procédure est donné sur la figure 4.19 en utilisant une particule de tungstène de 1 µm de rayon et la surface de tungstène poli miroir. La région du "saut au contact" est donnée dans l'agrandissement de la figure 4.19. La constante de Hamaker trouvée dans ce cas est égale à 430 zJ.

On remarquera que l'instabilité provoquée par la force de van der Waals apparaît lorsque la particule est à environ 6 nm de la surface. L'adhésion dûe aux forces de van der Waals est importante dans le cas étudié ici (interaction W/W) et la constante de raideur du levier utilisé est relativement faible (2.53 N m^{-1}) ce qui provoque une déformation verticale du cantilever importante avec un détachement qui intervient à 100 nm de la surface. La

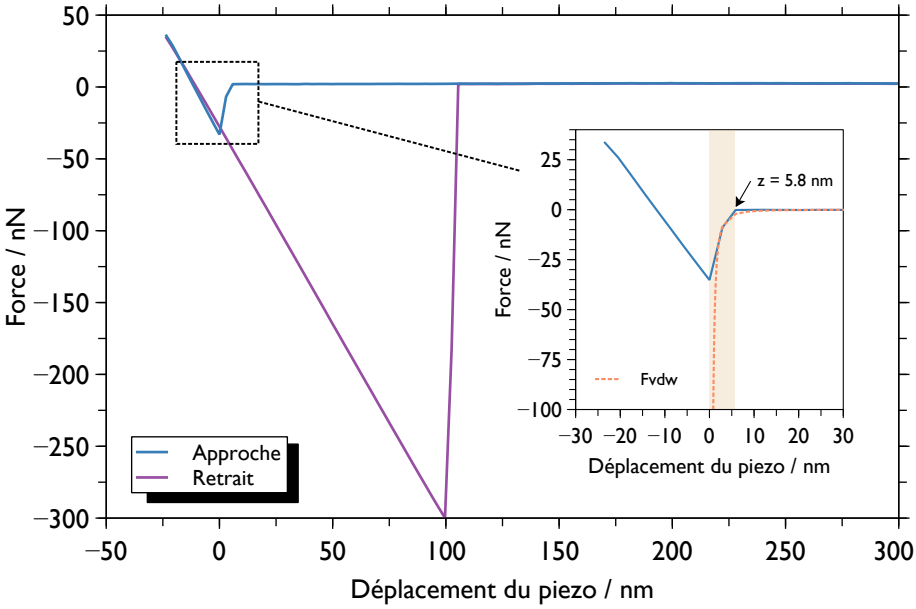

Figure 4.19 – Exemple de mesure de la constante de Hamaker en utilisant la méthode du "saut au contact". La courbe de force a été réalisée avec une particule de tungstène de 1 µm de rayon et la surface de tungstène poli miroir. La constante de Hamaker trouvée dans ce cas est égale à 430 zJ.

procédure que je viens de décrire nécessite d'avoir au préalable correctement mesuré la constante de raideur du levier ainsi que sa sensibilité de déformation verticale (voir paragraphe précédent). Il faut également connaître la taille de la particule et que celle-ci soit sphérique. Ces mesures préalables doivent être effectuées avec soins car leurs incertitudes vont se propager sur le calcul de la constante de Hamaker. De plus, la zone de "saut au contact" est très petite, seulement quelques nanomètres à proximité de la surface, et le nombre de points enregistrés par l'AFM dépend de la vitesse d'approche de la pointe. Dans l'exemple de la figure 4.19, j'ai effectué l'acquisition à une fréquence de 0.1 Hz avec un échantillonnage de 256 points. La longueur de la rampe d'acquisition mesure quant à elle 400 nm. Le levier se déplace donc à une vitesse d'environ 40 nm s^{-1} et sa position est enregistrée tout les 1.5 nm environ. Ainsi, le nombre de points de mesures décrivant le "saut au contact" est très faible, seulement 4 points disponibles pour ajuster notre modèle de van der Waals. Cette limitation qui conduit à une grande incertitude sur la mesure de la constante de Hamaker peut être en partie résolue en augmentant la résolution du microscope au cours de l'acquisition (Fronczak et al., 2017).

4.4.2 Courbe de phase/distance

La méthode décrite au paragraphe précédent est effectuée avec l'AFM en mode contact, c'est-à-dire que le levier est statique pendant la phase d'approche et de retrait. Pour améliorer l'échantillonnage dans la zone proche de la surface, une solution est de faire les mesures en mode dynamique ou le cantilever est mis en vibration à sa fréquence de résonance. Ce mode est couramment appelé *tapping mode* et est détaillé dans l'annexe 1. Je vais donc présenter dans ce paragraphe une autre procédure, fondée sur la mesure du décalage de l'amplitude et de la phase du pic de résonance du levier AFM lorsque celui-ci est approché de la surface (Rodriguez et al., 2012). En mode *tapping*, le levier peut être considéré comme un oscillateur harmonique dont la fréquence de résonance ω_0 va être amortie par la présence du substrat. Cet amortissement est caractérisé par un facteur de qualité Q et est lié à la masse du levier m_c par l'expression $\gamma_D = m_c(\omega_0/Q)$. Pour compenser le décalage en fréquence ainsi que l'amortissement, une force périodique $F_0\cos(\omega_0 t)$ est appliquée par la boucle d'asservissement de l'AFM sur le levier. Pour limiter le gradient de forces entre le levier AFM et la surface aux seules forces de van der Waals, il est nécessaire d'éliminer les forces capillaires (en plaçant le système dans l'enceinte en verre par exemple) ainsi que les forces électrostatiques en s'assurant que le levier et le substrat sont tous deux reliés à la masse. Dans ce cas, l'interaction entre la particule greffée sur le levier et le substrat avant le contact peut être modélisée par la force de van der Waals uniquement. Le décalage de phase du levier s'exprime par $\Delta\phi \approx Q\sigma/K$ avec K la constante de raideur et $\sigma \equiv -\sum_i \partial F_i/\partial D$ la somme sur le gradients des forces impliquées dans l'interaction. Dans notre cas, nous considérons uniquement les forces de van der Waals et on obtient donc :

$$\sigma = -\frac{\partial}{\partial D}\left(\frac{AR_p}{6D^2}\right) = \frac{AR_p}{3D_i^3}, \tag{4.12}$$

avec A la constante de Hamaker et D_i la distance particule/surface. La phase devient donc :

$$\phi = \phi_0 + \frac{QAR_p}{3KD_i^3}. \tag{4.13}$$

Nous avons vu au paragraphe 4.2.4 comment obtenir la constante de raideur K avec la fonction *thermal tune* de l'AFM. En mode *tapping*, le logiciel de l'AFM donne également accès au facteur de qualité Q via le panneau *tune* qui doit être utilisé avant chaque mesure. En prenant $\phi_0 = 90°$, la constante de Hamaker devient l'unique paramètre libre du modèle. On peut alors ajuster le modèle donné par l'équation 4.13 sur la partie attractive des courbes de phase/distance données par l'AFM. J'ai suivi cette procédure, bien détaillée par Rodriguez et al. (2012), pour deux tailles de particules de tungstène ($R_p = 3.5$ µm et 1.8 µm) et pour différentes humidités relatives. Les résultats de ces mesures faites avec la surface en tungstène poli miroir ainsi que l'ajustement du modèle (lignes rouges continues) sont représentés sur la figure 4.20. En enregistrant le décalage de phase plutôt que la position du levier, on constate que la zone juste avant le contact est décrite par beaucoup plus

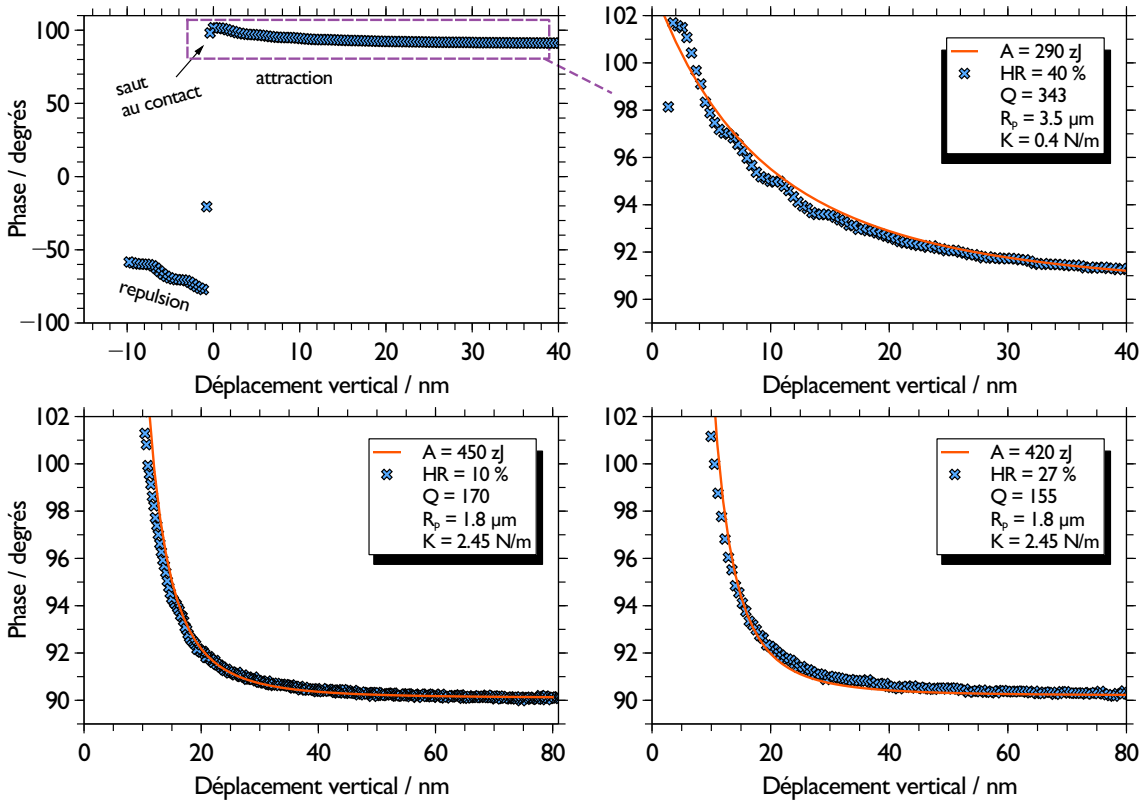

Figure 4.20 – Exemples de courbes de phase/distance pour deux tailles de particules de tungstène interagissant avec la surface en tungstène poli miroir.

de points que la précédente méthode ce qui permet un ajustement du modèle avec plus de précision. Dans le premier cas ($R_p = 3.5$ µm) présenté sur la figure 4.20-**a.** et 4.20-**b.**, j'ai réalisé la mesure dans les conditions ambiante, c'est-à-dire avec une humidité relative de 40 %. La constante de raideur du levier est de $0.4\,\mathrm{N\,m^{-1}}$ et son facteur de qualité égal à 343. En utilisant ces paramètres et le modèle de l'équation 4.13, je trouve une constante de Hamaker de 290 zJ, bien inférieure aux valeurs usuelles ($400 - 500$ zJ) pour l'interaction tungstène/tungstène (Tolias, 2018). Outre la rugosité du substrat poli miroir qui induit déjà une réduction importante de la force de van der Waals comparé au cas d'une surface parfaitement lisse, la faible valeur obtenue pour A dans ce cas particulier provient vraisemblablement de l'humidité relative et de la rugosité de la particule. Comme nous le verrons dans les paragraphes suivant, les particules que j'ai utilisées qui ont des rayons supérieurs à 2 µm présentent la plupart du temps un dépôt de particules nanométriques à leur surface, rendant celle-ci rugueuse. Cette hypothèse est en partie validée par les résultats obtenus dans les exemples **c.** et **d.** de la figure 4.20. Pour ces deux mesures, j'ai utilisé un levier AFM avec une particule de tungstène de 1.8 µm de rayon. La constante de raideur pour ce levier est de $2.45\,\mathrm{N\,m^{-1}}$ et son facteur de qualité est égal à 170 pour le premier essai avec HR $= 10$ % et 155 pour le deuxième essai avec HR $= 27$ %. Pour ces deux mesures, on constate un très bon accord entre les données expérimentales et le modèle pour des valeurs de la constante de Hamaker égales à 450 zJ et 420 zJ respectivement. Ces valeurs

sont très proches de la valeur trouvée avec la méthode du saut au contact décrite dans le paragraphe précédent. On peut également noter que là encore, nous constatons une diminution des forces de van der Waals lorsque l'humidité relative augmente. Ce point avait déjà été remarqué par Das et al. (2007) en effectuant des mesures de la constante de Hamaker par la méthode du "saut au contact" à des humidités relatives situées entre 33 % et 55 %.

4.4.3 Force de détachement avec prise en compte de la rugosité

Je vais présenter dans cette partie la troisième méthode que j'ai utilisée pour mesurer la constante de Hamaker dans le cas d'un contact tungstène/verre et tungstène/tungstène. Cette méthode consiste à répéter des courbes d'approche/retrait à plusieurs endroits sur les surfaces étudiées. Pour cela, l'AFM est opéré en mode PF-QNM et je réalise une image telle que je l'ai expliqué dans le paragraphe 4.3.1. Je peux ensuite déterminer sur l'image à quels endroits faire les courbes de forces grâce à la fonction *point and shoot* du logiciel du microscope. Les points où effectuer ces courbes peuvent être définis selon une matrice dont les grandeurs sont données par l'utilisateur. On peut également positionner à la main les endroits où faire les mesures. L'avantage de cette procédure est de pouvoir effectuer ces mesures à la volée, en même temps que je fais des cartographies d'adhésion en mode PF-QNM. Je peux alors extraire de chacune des courbes de retrait la valeur de la force de détachement ou *pull-off force*. Pour obtenir une valeur moyenne de la constante de Hamaker, j'effectue au minimum vingt séquences d'approche/retrait à différents endroits espacés de 1 µm au minimum. On peut alors utiliser l'équation 4.11 pour calculer la constante de Hamaker dans le cas de surfaces parfaitement lisses :

$$A_{\text{exp}} = \frac{6 \cdot F_{\text{afm}} \cdot r_0^2}{R_p}. \tag{4.14}$$

Par exemple, la moyenne sur vingt mesures de la force de détachement pour une particule de tungstène de 10.5 µm de rayon en interaction avec la surface en tungstène poli miroir est de 2130 ± 218 nN. En prenant une distance minimale de $r_0 = 0.45$ nm (Tolias et al., 2018), on trouve une valeur moyenne de 246 ± 25 zJ. Ce résultat est environ deux fois plus faible que la valeur théorique $A_H \approx 400 - 500$ zJ récemment calculée par (Tolias, 2018) avec la théorie de Lifshitz pour une interaction W/W.

Cette faible valeur obtenue expérimentalement peut s'expliquer par l'influence de la rugosité des deux surfaces en contact. En effet, le substrat en tungstène que j'ai utilisé présente une rugosité de surface nanométrique avec une $rms \approx 11.5$ nm. De même, la particule de tungstène possède une rugosité de surface que j'ai pu mesurer en faisant une image AFM du sommet de la particule en mode *tapping* (image de 2×2 µm^2) visible sur la figure 4.21-**a**. La figure 4.21-**b** donne les hauteurs des aspérités le long d'un profil de 2 µm extrait de

la topographie AFM. On peut ensuite ajuster un fonction polynomiale (ligne en pointillés rouges) en forme de parabole sur le profil des hauteurs (ligne continue bleue). En substituant aux données l'ajustement polynomial, on représente sur la figure 4.21-**c** la rugosité du sommet de la particule. Pour ce profil, la rugosité rms obtenue est égale à 1.29 nm. Bien

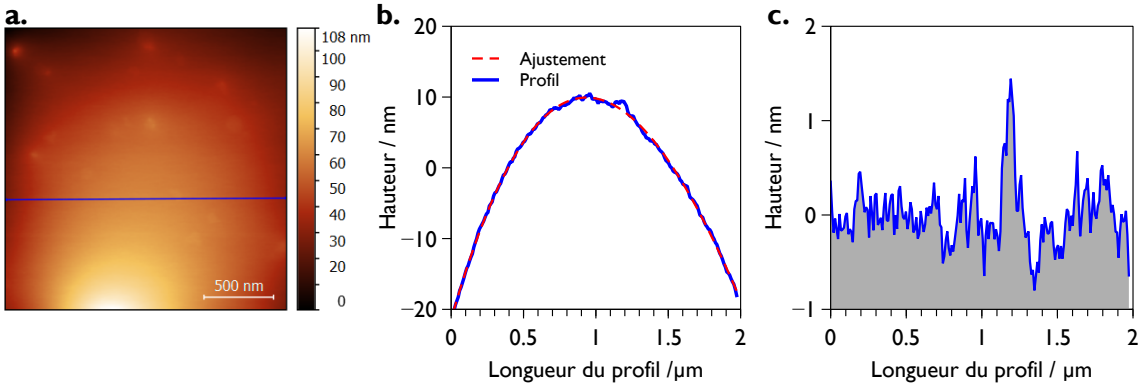

Figure 4.21 – a. Topographie du sommet de la particule de 10.5 µm de rayon. **b.** Profil effectué sur le sommet de la particule de tungstène (ligne bleue) et ajustement parabolique (ligne rouge). **c.** Rugosité du sommet de la particule après soustraction de l'ajustement parabolique.

qu'une telle valeur de rugosité soit proche de l'échelle atomique, il a été montré par Jacobs et al. (2013) que cela peut réduire l'adhésion de près d'un ordre de grandeur comparée au cas d'une surface atomiquement plate. Pour prendre en compte l'effet de la rugosité dans le calcul de la constante de Hamaker, nous allons utiliser la formule donnée par Rabinovich et al. (2000b) et que nous avons déjà vue au **chapitre 2** :

$$A_{\text{exp}} = \frac{6 \cdot F_{\text{afm}} \cdot r_0^2}{R_p} \left[\frac{1}{1 + \frac{58\text{rms}_2 R_p}{\lambda_2^2}} + \frac{1}{\left(1 + \frac{58\text{rms}_1 R_p}{\lambda_1^2}\right)\left(1 + \frac{1.82\text{rms}_2}{r_0}\right)^2} \right]^{-1}, \tag{4.15}$$

avec F_{afm} la force de détachement mesurée par AFM et rms_i, λ_i les paramètres des deux échelles de rugosité tels que définis dans le paragraphe 4.2.1.3. En appliquant ce calcul à l'exemple ci-dessus (particule de tungstène de 10.5 µm), on trouve une constante de Hamaker de 454 ± 47 zJ. Nous obtenons donc une valeur moyenne expérimentale pour la constante de Hamaker qui est en très bon accord avec la valeur théorique pour une interaction W/W, en particulier si l'on considère les conditions expérimentales, les mesures ayant été réalisées à pression atmosphérique et une humidité relative de 10 %. J'ai répété ce type de mesures pour quatre tailles de particules de tungstène avec des rayons de 1 µm, 1.8 µm, 3 µm et 10.5 µm.

L'ensemble des valeurs expérimentales de la constante de Hamaker obtenues avec le modèle de Rabinovich et les paramètres de rugosité du substrat en tungstène poli miroir et de la surface en verre issus du tableau 4.1 sont présentées sur la figure 4.22. La moyenne et l'écart-type correspondant à chaque série de mesure sont également représentés sous les nuages de points. Comme on peut le voir, les mesures effectuées sont répétables avec une

variation maximale de 10 % pour la plus grande taille de particule utilisée. Pour les quatre

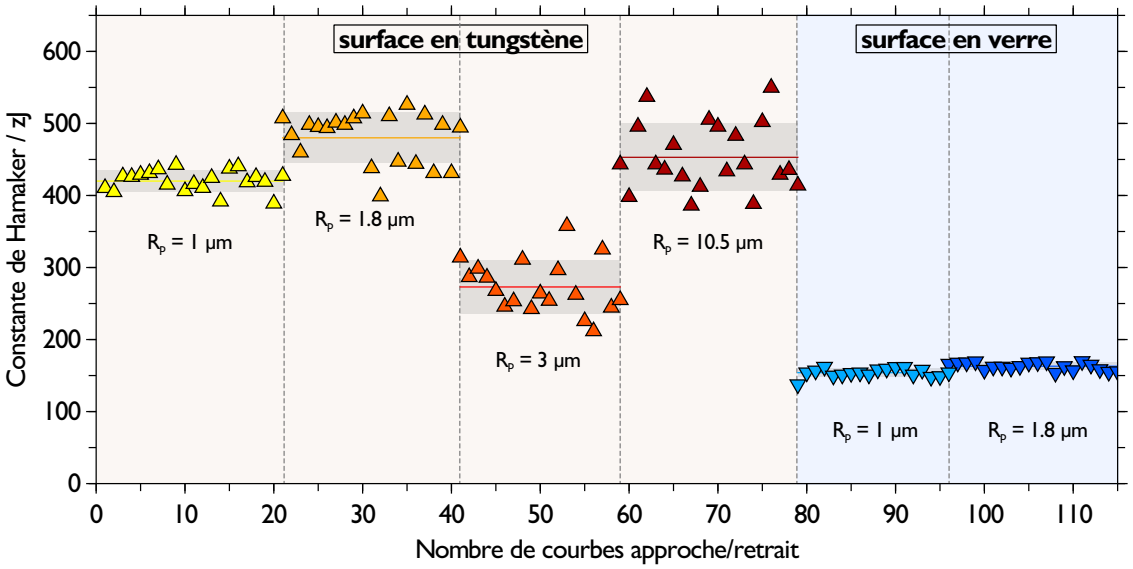

Figure 4.22 – Constantes de Hamaker obtenues pour la surface en tungstène poli miroir et la surface en verre en utilisant différentes tailles de particules.

tailles de particules testées avec la surface en tungstène poli miroir, on remarque que la dispersion des résultats augmente avec la taille de la particule, notamment pour les particules de 3 µm et de 10.5 µm de rayon [8]. De plus, on trouve que les valeurs de la constante de Hamaker issues des mesures avec la particule de 3 µm de rayon sont très inférieures à celles obtenues avec les trois autres particules. Ces données confirment le résultat obtenu au paragraphe précédent avec cette même particule et viennent conforter l'hypothèse d'une rugosité importante à la surface de cette particule ce qui entraîne une réduction importante de l'adhésion. A l'inverse, la dispersion des résultats autour de la valeur moyenne obtenue pour la particule de 1 µm de rayon est faible et vaut environ 3 %. A titre de comparaison, Tolias et al. (2019) ont trouvé une constante de Hamaker de 393 zJ pour une interaction entre des particules de tungstène de 4.5 µm de rayon et une surface en tungstène avec une rugosité rms située entre 20 et 100 nm. Les résultats obtenus pour la particule de

Tableau 4.3 – Constantes de Hamaker obtenues avec les différentes méthodes pour plusieurs tailles de particules de tungstène et pour une surface en tungstène poli miroir et une surface en verre.

		$A_{W/W}$ (zJ)		
R_p (µm)	$A_{w/verre}$ (zJ)	Pull-off	Phase/distance	JC
1	154 ± 6	420 ± 15		430
1.8	163 ± 5	480 ± 35	435 ± 15	
3		273 ± 37	290	
10.5		454 ± 47		

1.8 µm de rayon donnent une valeur moyenne de 480 ± 35 zJ pour la constante de Hama-

8. pour ces deux tailles, la dispersion des résultats autour de la moyenne est de 10 % et 13 % respectivement.

ker. Cette valeur est très proche de la valeur théorique (498 zJ) calculée par Tolias (2018) pour une interaction W/W se faisant dans le vide. Les deux séries de mesures réalisées avec la surface en verre (SiO_2) donnent des valeurs moyennes de la constante de Hamaker pour une interaction tungstène/verre relativement différentes mais avec une faible dispersion des données. La valeur théorique de la constante de Hamaker pour une interaction dans le vide entre deux objets de SiO_2 est de 65 zJ (Israelachvili, 2011). Pour une interaction entre une particule de tungstène et une surface en verre dans le vide, on peut calculer la constante de Hamaker théorique résultante par $A_{W/SiO_2} = \sqrt{A_W \times A_{SiO_2}}$ ce qui donne $A_{W/SiO_2} = 180$ zJ. Les moyennes de la constante de Hamaker obtenues expérimentalement pour une interaction W/SiO_2 et reportées dans le tableau 4.3 sont donc très proche (écart relatif autour de 10 %) de la valeur théorique. Les moyennes et écart-types de toutes les mesures sont regroupés dans le tableau 4.3 où figurent aussi les résultats obtenus avec les méthodes de "saut au contact" (noté JC dans le tableau 4.3) et de phase/distance vues aux paragraphes 4.4.1 et 4.4.2 respectivement. On remarquera que les trois méthodes que j'ai présenté dans cette partie pour mesurer la constante de Hamaker donnent des valeurs sensiblement équivalentes pour une même taille de particule. De plus, excepté pour la particule de 3 µm de rayon, l'ensemble des valeurs obtenues sont en accord avec les valeurs théoriques trouvées dans la littérature. Dans le cadre de mon étude, centré sur l'influence de la rugosité, la troisième méthode (mesure de la force de *pull-off*) est la plus rapide et la plus facile à mettre en œuvre. Étant donné que cette méthode de mesure intègre les effets de la rugosité, elle est la plus pertinente à utiliser pour la suite de mon étude.

4.5 Comparaison avec le modèle de Rabinovich

Cette partie présente les résultats des mesures de distributions de forces d'adhésion réalisées pour plusieurs tailles de particules avec les trois substrats en tungstène et le substrat en verre. Les moyennes et écarts-types des ajustements (gaussien ou lorentzien) des distributions de forces d'adhésion obtenues selon la procédure décrite au paragraphe 4.3.1 sont comparées aux calculs de force d'adhésion effectués avec le modèle de Rabinovich en utilisant les paramètres de rugosité des surfaces donnés dans le tableau 4.1.

4.5.1 Surface en verre

Les résultats des mesures PF-QNM pour une interaction entre les particules de tungstène et une surface en verre ainsi que les calculs faits avec le modèle Rabinovich sont présentés sur la figure 4.23. Ces calculs ont été réalisés avec une distance minimale d'approche de $r_0 = 0.3$ nm et une constante de Hamaker pour une interaction W/SiO_2 de $A_{exp} = 160$ zJ

tirée du tableau 4.3. Ces calculs sont représentés par la ligne continue dans la figure 4.23. Sont également représentés les calculs utilisant une variation de 10 % de la constante de Hamaker soit $A_{\text{min}} = 146$ zJ et $A_{max} = 176$ zJ déduites des mesures présentées dans la figure 4.22. Ces valeurs limites sont notées $A_{\pm 10\%}$ et décrites par les zones grises dans la figure 4.23. A titre de comparaison, j'ai également tracé la force de van der Waals entre une sphère de tungstène et une surface en verre parfaitement lisse (sans prise en compte de la rugosité). On constate que pour les plus petites particules de 1 µm et 1.8 µm de rayon, les forces d'adhésion sont bien représentées par la théorie classique de Hamaker en utilisant la constante trouvée au paragraphe 4.4. En revanche, pour les particules plus grandes, les forces d'adhésion obtenues sont très inférieures à la force de van der Waals et une prise en compte de la rugosité de la surface est nécessaire. Pour les particules de rayons supérieurs à 3 µm de rayon, on obtient une bonne description des mesures de forces d'adhésion par le modèle de Rabinovich avec les paramètres de rugosité de la surface en verre donnés dans le tableau 4.1. J'ai ensuite comparé mes résultats à des mesures réa-

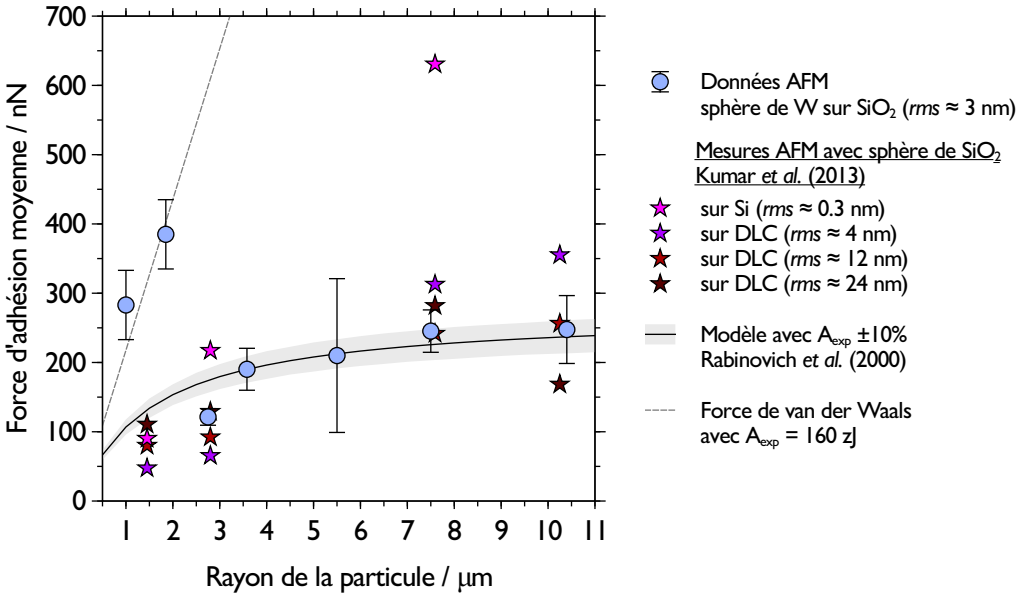

Figure 4.23 – Forces d'adhésion moyenne en fonction du rayon des particules de tungstène pour une surface en verre. Le modèle de Rabinovich est représenté avec une variation de 10 % sur la constante de Hamaker A_{exp} trouvée expérimentalement au paragraphe 4.4.

lisées par Kumar et al. (2013) sur des systèmes particules/surfaces similaires. Dans cette étude, les auteurs ont utilisé des particules sphériques de verre borosilicaté greffées sur des leviers AFM sans pointe. Les particules ont des rayons de 1.45 µm, 2.78 µm, 7.59 µm et 10.26 µm. Les mesures de forces d'adhésion sont réalisées à l'aide d'un AFM en faisant des courbes d'approche/retrait sur différentes surfaces. La force de détachement (*pull-off force*) est alors extraite sur un grand nombre de mesures. Les surfaces testées par Kumar et al. (2013) sont de deux types : un wafer en silicium présentant une "rugosité" atomique ($rms \approx 0.3$ nm) et trois wafers de silicium sur lesquels ont été réalisés des revêtements de carbone type diamant DLC (*Diamond-like Carbon*) par déposition chimique en phase va-

peur (ou CVD pour l'anglais *chemical vapor deposition*). Ces trois substrats ont des rugosités rms de 4, 12 et 24 nm respectivement. Pour le wafer de silicium de très faible rugosité, on constate une augmentation linéaire des forces d'adhésion avec la taille des particules avec une tendance similaire à ce que l'on observe pour les particules de tungstène de 1 µm et 1.8 µm de rayon. Les auteurs précisent que la constante de Hamaker utilisée pour l'interaction SiO_2 sur Si est prise égale à 131 zJ ce qui explique en partie le décalage observé avec mes mesures. En revanche, on remarquera que les forces d'adhésion obtenues pour les petites particules de tungstène (1 µm et 1.8 µm) sont en accord avec la théorie de Hamaker (avec $A_{exp} = 160$ zJ) qui ne prend pas en compte la rugosité. Cette première comparaison laisse donc penser que pour les particules de tungstène de petites tailles, la rugosité effectivement "vue" par la particule est très inférieure à la rugosité $rms \approx 3$ nm que j'ai mesurée sur une aire de 20×20 µm^2 sur la surface en verre. Les résultats des autres mesures effectuées par Kumar et al. (2013) lorsque la surface présente une rugosité rms comprise entre 4 et 24 nm ont la même évolution, en fonction de la taille des particules, que mes propres mesures utilisant des particules de tungstène. De plus, on observe un accord quantitatif entre ces différentes expériences et le modèle de Rabinovich pour les rugosités de surface considérées.

4.5.2 Surface en tungstène poli miroir

Les mesures d'adhésion et les calculs correspondants à la surface poli miroir sont présentés sur la figure 4.24. Les mesures faites sur cette surface avec des particules de tungstène de rayons compris entre 1 µm et 10.5 µm présentent des forces d'adhésion moyennes comprises entre 300 nN et 1700 nN respectivement. Les écarts-types des forces d'adhésion moyennes sont compris entre 5 % et 22 %. Les paramètres du modèle de Rabinovich sont : une distance minimale d'approche de $r_0 = 0.45$ nm et une constante de Hamaker pour une interaction W/W de $A_{\text{exp}} = 454 \pm 45$ zJ tirée du tableau 4.3. En comparaison, le calcul de la force de van der Waals (éq. 4.11) entre une sphère de tungstène de 10.5 µm de rayon et une surface en tungstène parfaitement lisse donne 3350 nN ce qui équivaut à deux fois la valeur expérimentale trouvée. Cette surestimation du modèle est, comme précédemment, liée à la rugosité de surface de la particule. Ceci est confirmé par la figure 4.24 où le modèle de Rabinovich est cohérent avec les données pour la plupart des particules testées à l'exception des particules de plus petits rayons (1 µm et 1.8 µm) et de la particule de 3.9 µm de rayon. En effet, la force d'adhésion moyenne expérimentale avec la particule de 3.9 µm de rayon est de 414 nN, ce qui est deux fois plus faible que l'adhésion prédite par le modèle de Rabinovich. Une telle baisse de l'adhésion peut à nouveau s'expliquer par la rugosité de surface de la particule elle-même.

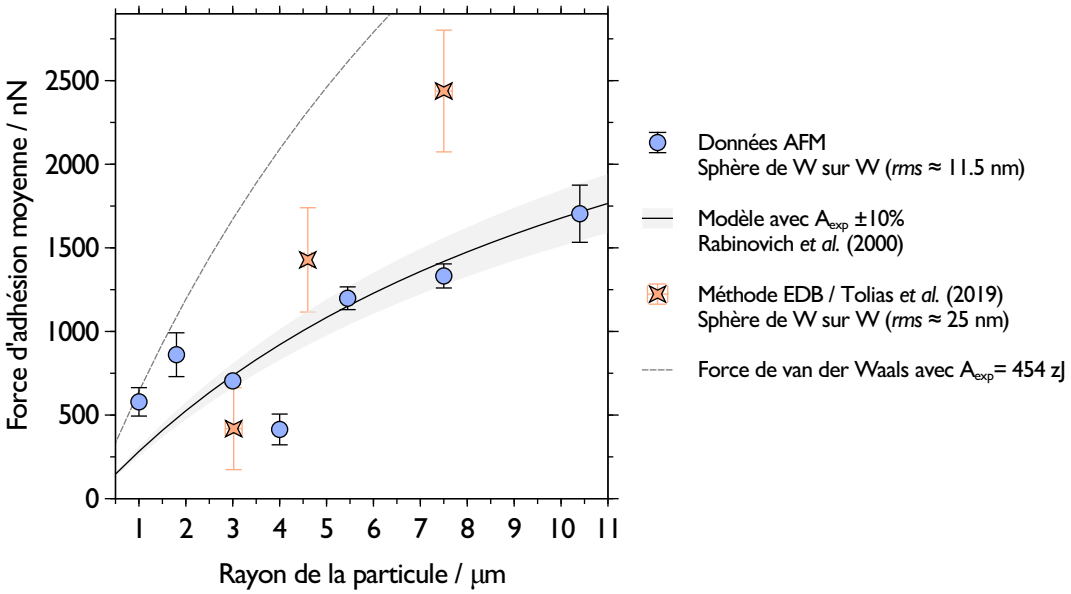

Figure 4.24 – Forces d'adhésion moyenne en fonction du rayon des particules de tungstène pour une surface de tungstène poli miroir. Le modèle de Rabinovich est représenté avec une variation de 10 % sur la constante de Hamaker A_{exp} trouvée expérimentalement au paragraphe précédent.

Effet de la rugosité de la particule Pour confirmer cette hypothèse, j'ai mesuré la topographie du sommet de cette particule avec l'AFM en mode *ScanAsyst*. Une micrographie MEB de la particule ainsi que la zone scannée par AFM sont représentées sur la figure 4.25. Un profil de hauteur d'une longueur de 1.5 µm est également donné sur la figure. Après avoir redressé l'image AFM comme expliqué sur la figure 4.21 j'ai trouvé une surface nanostructurée avec une rms de 4 nm. Les impuretés ultra-fines attachées à la surface de la particule visibles sur l'image MEB sont des nanoparticules de tungstène provenant d'une vaporisation plus forte du tungstène dans certaines région de la torche à plasma utilisée dans le procédé de fabrication de ces poudres. Ce phénomène à déjà été documenté par Jiang and Boulos (2006). Une rugosité aussi importante ne peut être ignorée et doit être intégrée dans le calcul. Pour ce faire, j'ai simplifié le problème en considérant que la rugosité de la particule rms_1 s'additionne à la rugosité nanométrique rms_2 du substrat. On peut ainsi réécrire la rugosité utilisée par le modèle de Rabinovich comme suit : $rms_3 = \sqrt{rms_1^2 + rms_2^2}$ ce qui donne une valeur de 12.3 nm. Avec cette nouvelle valeur de rugosité, le calcul de la force d'adhésion pour la particule de 3.9 µm de rayon donne 440 nN ce qui est beaucoup plus proche de la valeur expérimentale observée compte tenu des variations sur la constante de Hamaker ($\approx 10\%$).

Comparaison avec des données issues de la littérature J'ai également reporté sur la figure 4.24 des mesures de forces d'adhésion moyennes faites par Tolias et al. (2018) pour des particules de tungstène sphériques déposées sur une surface en tungstène relativement lisse (la rugosité rms est évaluée par les auteurs entre 20 et 100 nm). Ces mesures n'ont

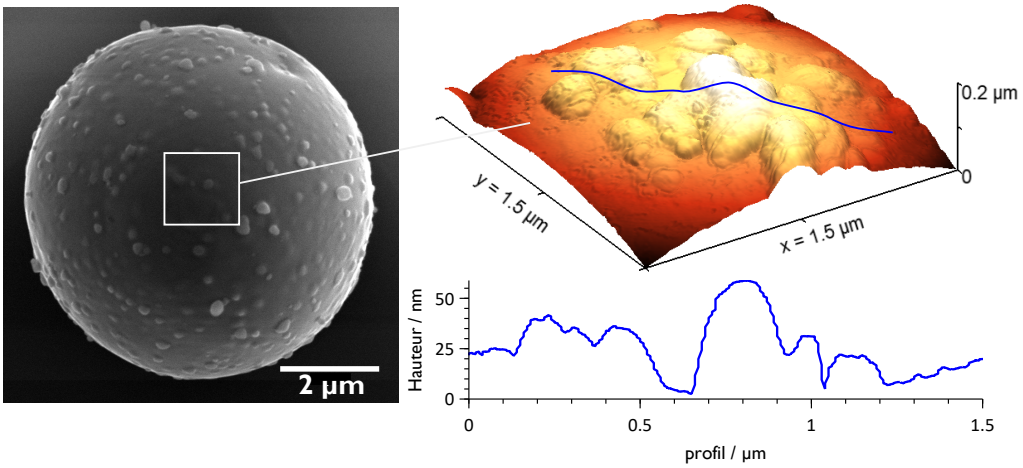

Figure 4.25 – Micrographie MEB de la particule de 3.9 µm de rayon et cartographie AFM du sommet de la particule avec un profil de hauteur extrait de l'image AFM.

pas été obtenues par AFM mais avec la méthode de la balance électrodynamique que j'ai présentée au paragraphe 4.1.2. Elles ont donc été réalisées sous vide ($P_{abs} = 5 \cdot 10^{-4}$ mbar) et pour des dépôts de plusieurs centaines de particules. Trois populations de tailles différentes composées de particules dont les rayons moyens sont de 3 ± 0.5 µm, 4.4 ± 0.4 µm et 7.2 ± 0.9 µm respectivement ont été étudiées. Dans ces expériences, le champ électrique maximal utilisé est de 600 kV cm^{-1}.

On constate que la force d'adhésion moyenne obtenue pour les particules de 3 µm de rayon est du même ordre de grandeur que celle que j'ai obtenue par AFM. En revanche, pour les deux populations de particules de tailles supérieures (4.4 µm et 7.2 µm), on note des forces d'adhésion moyennes plus importantes (respectivement de 1639 nN et 2527 nN) malgré une rugosité du substrat qui semble plus élevée dans cette étude, entre 10 et 100 nm d'après Tolias et al. (2018). Ce point est particulièrement intéressant car l'augmentation importante des forces d'adhésion observée par les auteurs laisse penser que le substrat en tungstène utilisé a une rugosité rms inférieur au nanomètre. Par contre, il faut se rappeler que ces mesures ont été réalisées sous vide, c'est-à-dire sans aucune influence des forces capillaires qui peuvent écranter les forces de van der Waals lorsqu'un ménisque se développe entre la particule et la surface (voir paragraphe 4.3.3).

Une autre hypothèse pouvant conduire à ces différences entre les deux méthodes de mesures peut être la rugosité des particules utilisées lors de mon étude. En effet, l'ensemble des mesures réalisées pour une taille de particule donnée ont été faites avec une seule particule. A l'inverse, les expériences de Tolias et al. (2018, 2019) concernent plusieurs centaines de particules d'une même taille. C'est là un des avantages de la technique de la balance électrodynamique. Ainsi, on peut émettre l'hypothèse que pour la majorité des particules composant les poudres de tungstène produites par la méthode de sphéroïdisation par torche plasma, leur surface est exempte d'impuretés. En moyenne donc, sur un

grand nombre de particules, la rugosité de la surface des particules est très faible. C'est ce que l'on peut également observé sur les résultats AFM avec les plus petites particules de 1 µm et 1.8 µm de rayon. Cet aspect était déjà visible sur la figure 4.9 présentée en début de chapitre. En revanche, pour les particules de plus grandes tailles, la présence d'impuretés à leur surface pourrait expliquer les différences observées avec les résultats de Tolias et al. (2018, 2019).

4.5.3 Surface en tungstène de rugosité intermédiaire

Les mesures d'adhésion obtenues avec la surface de tungstène de rugosité $rms \approx 185$ nm sont présentées dans la figure 4.26-**a** avec les calculs du modèle Rabinovich. Les forces d'adhésion obtenues avec les même particules que précédemment sont comprises entre 10 nN et 105 nN, soit plus d'un ordre de grandeur en dessous des résultats obtenus avec la surface de tungstène poli miroir. De plus, les écarts-types des forces d'adhésion moyennes sont beaucoup plus importants avec des valeurs comprises entre 19 % et 46 %. Le modèle de Rabinovich est cohérent avec les données pour les particules d'un rayon supérieur à 5.5 µm, mais ne décrit pas la réduction d'adhésion observée lorsque le rayon des particules est inférieur à 5 µm. Cette particularité reste inexpliquée.

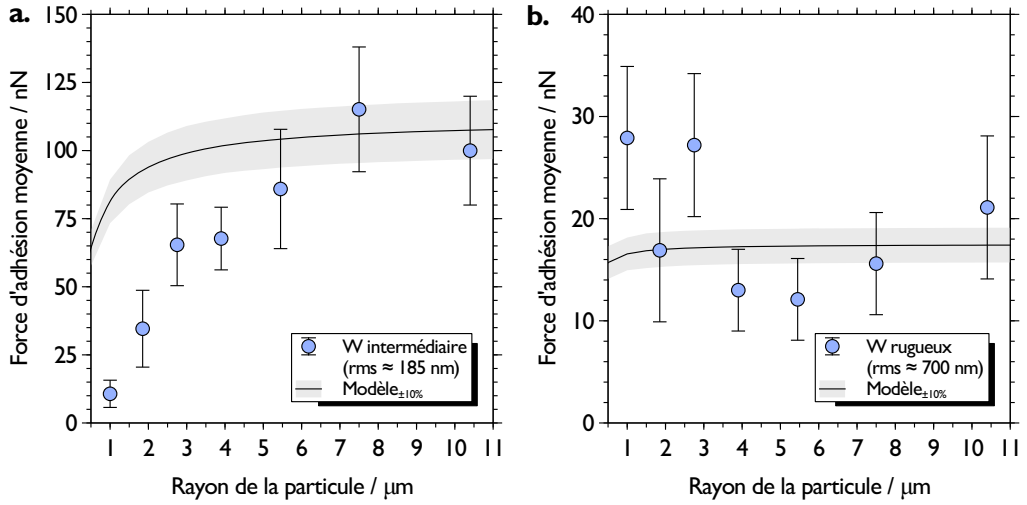

Figure 4.26 – Force d'adhésion moyenne en fonction du rayon des particules de tungstène pour une surface de tungstène de rugosité intermédiaire (**a.**) et rugueuse (**b.**). Le modèle de Rabinovich est représenté avec une variation de 10 % sur la constante de Hamaker A_{exp} trouvée précédemment.

4.5.4 Surface en tungstène rugueuse

Les mesures d'adhésion obtenues avec la surface de tungstène de rugosité $rms \approx 700$ nm sont présentées dans la figure 4.26-**b** avec les calculs du modèle Rabinovich. Les mesures de forces d'adhésion entre les particules de tungstène et cette surface sont comprises entre 10 nN et 30 nN soit une réduction de presque deux ordres de grandeurs par rapport à la surface poli miroir. Les écarts types des forces d'adhésion moyennes sont conséquents et supérieurs à 80 % sur l'ensemble des particules testées. Dans un tel cas, avec un substrat très texturé avec une rugosité micrométrique, l'adhésion des particules devient indépendante de la taille des particules. Cet aspect avait déjà été remarqué par Laitinen et al. (2013). Dans ce cas, la rugosité de surface semble jouer le rôle dominant alors que la taille des particules a une influence secondaire sur la force d'adhésion. Ce comportement est toutefois bien décrit par le modèle de Rabinovich qui renvoi des valeurs qui sont du même ordre de grandeur que les données expérimentales.

4.6 Conclusion du chapitre

J'ai présenté dans ce chapitre la technique de la microscopie à force atomique avec laquelle j'ai réalisé des mesures de forces d'adhésion entre des particules sphériques de tungstène avec des rayons compris entre 1 µm et 10.5 µm et des substrats en verre et en tungstène présentant différentes rugosités. Les paramètres permettant de décrire la rugosité de ces surfaces ont été obtenus par AFM en suivant une procédure rigoureuse présentée au paragraphe 4.2.1. J'ai ensuite rappelé les étapes mises en œuvre pour fonctionnaliser les leviers AFM avec les particules de tungstène et faire leur calibration. Nous avons ensuite abordé l'effet de l'humidité relative et des forces de capillarité sur ces mesures. J'ai notamment montré qu'une humidité relative supérieure à 40 % provoquait une diminution de l'adhésion due aux forces de van der Waals dans le cas d'une interaction W/W. De plus, le paragraphe 4.3.3 à montré que les forces capillaires étaient prépondérantes lorsque le substrat est en verre, nécessitant de mettre l'AFM dans une enceinte hermétique purgée en azote. Ces dispositions m'ont permis de faire une étude détaillée des différentes méthodes permettant de mesurer la constante de Hamaker des systèmes étudiés. Il ressort de cette étude une constante de Hamaker environ égale à 160 ± 10 zJ pour un système W/SiO_2 et comprise entre 420 et 480 zJ pour un système W/W. Ces valeurs obtenues au paragraphe 4.4 sont en très bon accord avec les valeurs théoriques issues de la littérature.

Sur la base de ces résultats, j'ai présenté au paragraphe 4.5 les mesures de forces d'adhésion effectuées en mode PF-QNM pour chaque système particule/surface. A cette occasion, nous avons constaté que les forces de van der Waals sont toujours inférieures à leurs valeurs théoriques quelque soit le système étudié. En effet, les surfaces ne sont jamais parfaitement

lisses et nous observons déjà une diminution d'un ordre de grandeur lorsque le substrat présente une rugosité nanométrique comme c'est le cas avec le substrat en tungstène poli miroir ou la surface en verre. Avec des rugosités de surfaces plus grandes, supérieures à ≈ 100 nm, nous avons constaté une diminution supplémentaire de deux ordres de grandeur de l'adhésion des particules de tungstène par rapport à la surface poli miroir. J'ai ensuite comparé ces données au modèle de Rabinovich et al. (2000a) basé sur les forces de van der Waals et intégrant la rugosité des surfaces via une description géométrique des aspérités. Ces résultats expérimentaux ainsi que leur analyse avec le modèle de Rabinovich ont fait l'objet d'une publication dans *Journal of Aerosol Science* (Peillon et al., 2019). Il ressort de cette étude que :

— La comparaison avec le modèle de Rabinovich a montrée un accord quantitatif avec les expériences d'adhésion pour la gamme de taille de particules étudiées et pour une surface lisse ($rms \approx 10$ nm), mais aussi pour des surfaces beaucoup plus rugueuses, avec une rugosité rms proche du micromètre.

— Pour toutes les configurations testées, j'ai pu démontrer la précision du modèle à condition que la rugosité de la surface soit parfaitement décrite.

— Pour les mesures effectuées sur la surface en tungstène très rugueuse, la dépendance des forces d'adhésion avec la taille des particules est secondaire comparée à l'influence de la rugosité de la surface.

Les bonnes prédictions du modèle de Rabinovich montrent qu'il peut être utilisé pour décrire les forces d'adhésion dans les modèles de remise en suspension comme le modèle Rock'n roll de Reeks and Hall (2001). L'avantage de ce modèle de force par rapport aux corrélations empiriques classiquement utilisées (Biasi et al., 2001), est de considérer la rugosité du substrat sur lequel sont déposées les particules comme paramètre clé pour prédire le détachement. La prise en compte de la rugosité des surfaces dans les modèles de mise en suspension de particules est un sujet relativement récent (Prokopovich and Starov, 2011 ; Brambilla et al., 2018) et qui nécessite de développer des études expérimentales spécifiques (Henry and Minier, 2018). En effet, lorsqu'elles sont disponibles, les distributions expérimentales des forces d'adhésion obtenues par AFM peuvent être utilisées dans les codes numériques de remise en suspension (Guingo and Minier, 2008 ; Benito et al., 2015) en lieu et place des approches statistiques couramment employées pour décrire les forces d'adhésion.

Chapitre 5

Mesure de l'état de charge de particules radioactives par KPFM

Sommaire du chapitre

5.1 Tritiation des poudres 140
5.1.1 Procédure de chargement 140
5.1.2 Absorption/désorption du tritium 141
5.1.3 Préparation des échantillons 145
5.2 Mesure du potentiel de surface par KPFM 148
5.2.1 Principe du Mode KPFM (Klevin Probe Force Microscopy) 149
5.2.2 Les deux modes de mesures AM et FM 150
5.2.3 Comparaison des deux modes AM et FM 152
5.2.4 Travaux de sortie 153
5.3 Mesures de la différence de potentiel de contact (CPD) 155
5.3.1 Mesure de la CPD relative sur des particules d'acier 156
5.3.2 Mesure de la CPD relative sur des particules de tungstène 159
5.3.3 Interprétation des résultats 160
5.4 Évaluation du taux d'auto-chargement par simulations Monte Carlo 165
5.4.1 Probabilité d'échappement des électrons 165
5.4.2 Taux d'auto-chargement des particules 166
5.4.3 Auto-chargement sous vide 167
5.4.4 Auto-chargement à l'air ambiant 167
5.5 Conclusion du chapitre 169

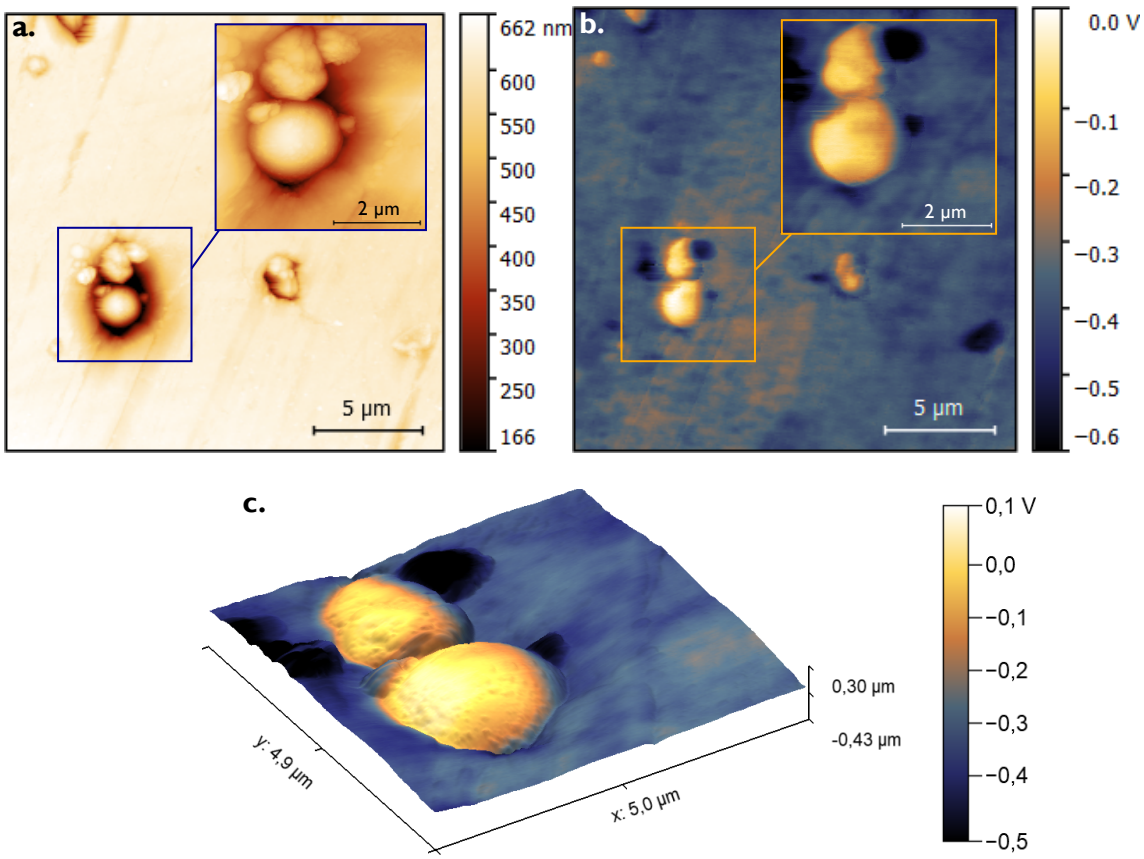

Figure 5.1 – Exemple d'une mesure KPFM sur des particules de tungstène piégées dans une matrice d'indium. **a.** Topographie de 20×20 µm^2 montrant deux particules de tungstène (voir agrandissement). **b.** Cartographie du potentiel de surface sur la même zone ; le contraste de potentiel entre les particules de tungstène et le substrat en indium est dû à la différence de travail de sortie de ces deux matériaux. **c.** Représentation en trois dimensions de la zone où se trouvent les deux particules. La cartographie de potentiel est ici superposée à la topographie par une représentation en fausses couleurs.

Ce chapitre introduit les expériences que j'ai faites sur des particules ayant été marquées avec du tritium. Ces chargements en tritium ont été effectués à l'institut Joliot du CEA Saclay et je décrirai la procédure utilisée dans la première partie du chapitre. A cette occasion, nous verrons que la rétention du tritium par des particules microniques de tungstène ou d'acier est assez faible permettant de manipuler ces poudres relativement facilement en boîte à gants. J'aborderai ensuite le conditionnement de ces poudres afin de disposer d'échantillons pouvant être étudiés par microscopie à sonde de Kelvin (KPFM) à l'institut des Nanosciences de Paris. Cette technique de mesure sera présentée dans la section 5.2 où nous verrons ses différents modes de fonctionnement et les bases théoriques de la méthode. A la suite de ces rappels, je présenterai les mesures de potentiel de surface que j'ai effectuées sur des particules de tungstène et d'acier ayant été chargées en tritium. L'interprétation de ces mesures nous montrera que la faible activité spécifique des poudres de tungstène ne provoque pas de différence, d'un point de vue du potentiel de surface des particules, par rapport à des poudres de tungstène non tritiées. En revanche, une augmentation du potentiel de surface a été observée sur des particules d'acier chargées en tritium. Cette augmentation du potentiel, due à un excès de charges positives sur les particules, sera expliquée dans la dernière partie du chapitre à l'aide de simulations Monte Carlo permettant de calculer les taux d'auto-chargement des particules en fonction de leur taille et de leur activité spécifique.

5.1 Tritiation des poudres

Cette partie présente la procédure de chargement en tritium ainsi que la préparation d'échantillons pour la mesure du potentiel de surface des particules par KPFM. Les poudres de tungstène W25 et AF5, dont les caractéristiques ont été présentées au **chapitre 3** (§ 3.3), ainsi qu'une poudre composée de particules d'acier ont été utilisées dans ces expériences.

5.1.1 Procédure de chargement

Le tritium (T_2) a été acheté auprès de TRITEC (pureté 99 %). A l'air ambiant, les poudres métalliques présentent, la plupart du temps, une couche d'oxyde dite native à leur surface. Cette couche d'oxyde représente généralement un frein à la diffusion du tritium et doit donc être enlevée. La méthode précédemment développée par El-Kharbachi et al. (2014) et Bernard et al. (2019a) au laboratoire tritium de l'institut Joliot est utilisée pour charger les poudres de tungstène et d'acier. La procédure de chargement est constituée de plusieurs étapes :

1. Pour enlever la couche d'oxyde, les particules sont exposées à une atmosphère réductrice d'hydrogène. La poudre est recuite à 743 K pendant 2 h dans une atmosphère d'H_2 sec à une pression de $1.14 \cdot 10^5$ Pa. La réduction de l'oxyde génère de l'eau qui est collectée dans un ballon (piège froid) plongé en permanence dans un mélange réfrigérant (carboglace).
2. L'ampoule en verre contenant la poudre désoxydée est ensuite chargée en tritium (gaz) à une pression de $p(T_2) = 0.45 \cdot 10^5$ Pa et scellée dans la boîte à gants à température ambiante. Elle est ensuite chauffée à 743 K pendant 2 h ce qui provoque l'augmentation de la pression en tritium dans l'ampoule jusqu'à $1.14 \cdot 10^5$ Pa.
3. Ce traîtement thermique est stoppé en plongeant l'ampoule dans de l'azote liquide pour geler tous les processus de piégeage et de diffusion du tritium dans les particules.
4. La cinétique de désorption à température ambiante est alors déterminée en exposant la poudre à un flux d'air (500 mL min^{-1}) pendant plusieurs jours jusqu'à atteindre un plateau dans la quantité cumulée de tritium désorbé.

Les mesures de dégagement de gaz sont effectuées au cours du temps avec un échantillonneur de tritium (barboteur MARC 7000, SDEC France 2010) connecté à la sortie de la boîte à gants où la poudre tritiée est stockée pour dégazage. Le tritium est piégé dans les quatres biberons de l'appareil via le principe de bullage. L'eau tritiée (HTO) contenue dans le gaz porteur reste piégée dans l'eau froide des deux premiers biberons. Pour piégé le tritium sous forme de gaz (HT), le gaz porteur est acheminé vers un catalyseur à l'oxyde de cuivre (CuO) qui est maintenu à une température de 450 °C qui permet de transformer HT en

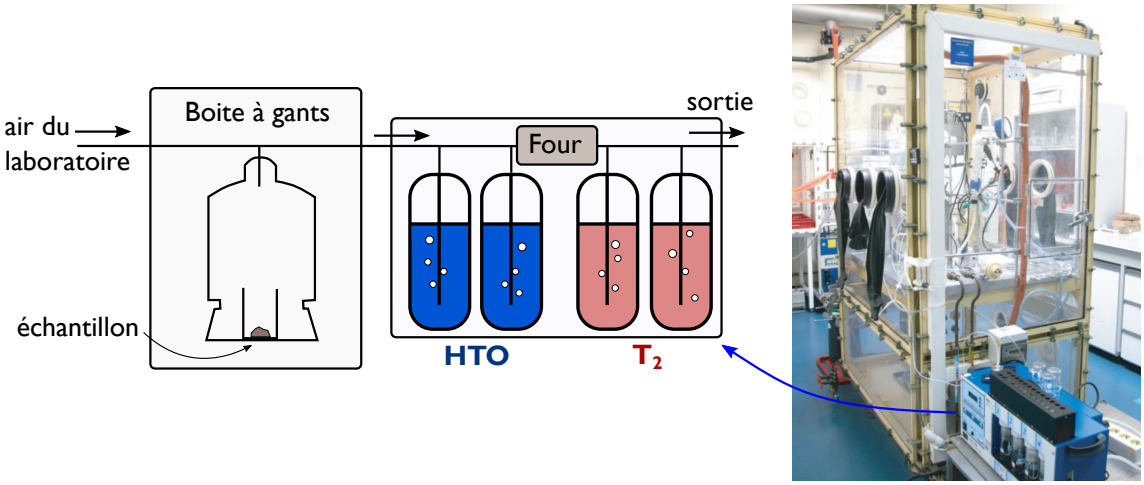

Figure 5.2 – Boîte à gants utilisée pour le chargement des poudres en tritium et schéma montrant le trajet du gaz pour la mesure du tritium désorbé à l'aide du barboteur MARC 7000.

HTO. Le bullage du gaz dans les biberons 3 et 4 permet donc de piéger cette espèce, sur le même principe que les deux premiers biberons. Ce dispositif, présenté sur la figure 5.2, permet donc de collecter le tritium présent dans un gaz et de séparer les espèces tritiées initialement présentes. Un prélèvement dans les biberons du barboteur est effectué à intervalles choisis et son activité est mesurée par un comptage à scintillation liquide (analyseur Tri-Carb 2910TR). La quantité de tritium mesurée est alors liée au volume d'air qui a traversé l'appareil et à la quantité de tritium dégazée par la poudre. A la fin du processus de dégazage, l'activité du tritium piégé dans les particules est déterminée séparément par un comptage à scintillation liquide après dissolution d'une petite quantité (quelques mg) de poudre tritiée dans une solution de peroxyde d'hydrogène H_2O_2 (30 % vol. dans H_2O) sans dilution supplémentaire dans de l'eau distillée. Environ un millilitre de solution est utilisé pour dissoudre un milligramme de poudre. Le processus de dissolution dure environ 4 jours. Les mesures de cinétique de désorption et d'activité piégée sont répétées trois fois pour un même lot de poudre pour vérifier la répétabilité des mesures. Les moyennes et écart-types de ces expériences sont données sur les figures 5.3-**a.** et 5.3-**b.** pour les poudres de tungstène W25 et AF5, respectivement.

5.1.2 Absorption/désorption du tritium

5.1.2.1 Poudres de tungstène sphériques

L'absorption/désorption du tritium a été mesurée pour un lot de 548 mg de poudre W25 et un lot de 520 mg de poudre AF5. Les figures 5.3-**a.** et 5.3-**b.** présentent la quantité de tritium désorbée par les deux poudres ainsi que la quantité de tritium piégée dans les particules. Pour les deux poudres, le dégagement gazeux se produit dans les 2 jours,

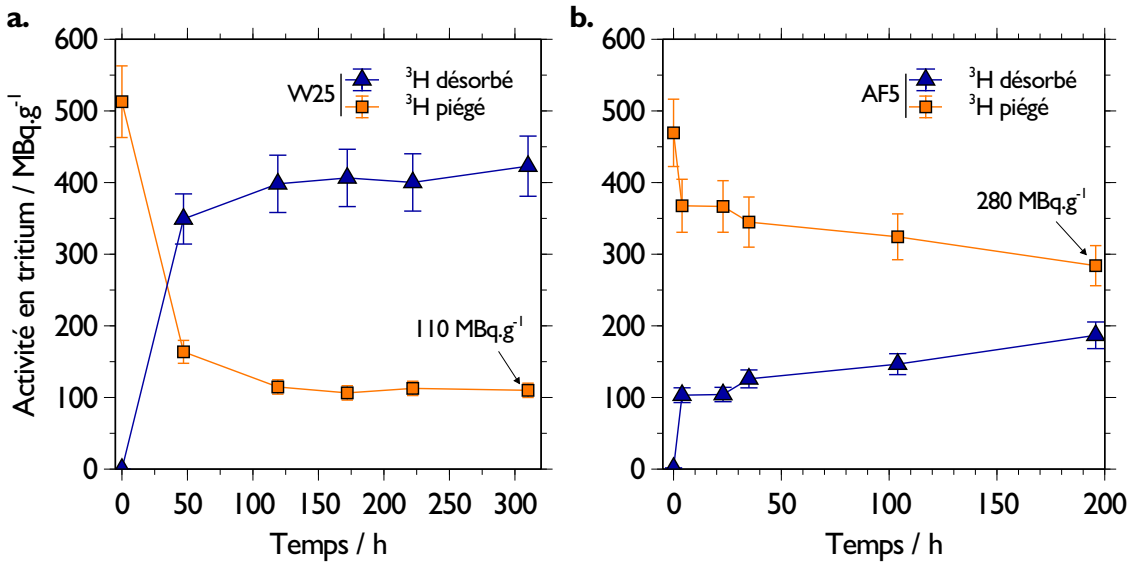

Figure 5.3 – Activités spécifiques désorbées et piégées dans les poudres de tungstène W25 (**a.**) et AF5 (**b.**).

principalement sous forme de HTO. Après 13 jours de désorption, l'activité spécifique totale de tritium libérée par la poudre W25 (figure 5.3-**a.**) est de 423 MBq g^{-1} et l'activité du tritium piégé dans les particules est de 110 MBq g^{-1}. Pour le deuxième cas, après 8 jours de désorption, l'activité spécifique totale de tritium libérée par la poudre AF5 (figure 5.3-**b.**) est de 187 MBq g^{-1} et l'activité du tritium piégé dans les particules est de 284 MBq g^{-1}.

5.1.2.2 Poudres de tungstène variées

Nous pouvons comparer ces activités spécifiques à celles obtenues pour d'autres types de poudres de tungstène. En effet, cette procédure de tritiation a été appliquée au laboratoire tritium de l'institut Joliot à plusieurs types de particules de tungstène et à un échantillon massif de tungstène (El-Kharbachi et al., 2014). Les caractéristiques physiques des différentes poudres sont résumées dans le tableau 5.1. Des nanoparticules de tungstène produites par broyage planétaire, ablation laser (Bernard et al., 2016) et pulvérisation magnétron combinées à une agrégation gazeuse (Bernard et al., 2019a) ont été testées.

L'activité du tritium piégé dans les nanoparticules de tungstène (NPs) est toujours supérieure à 1 GBq g^{-1} et une forte dépendance avec la taille des particules et la surface spécifique est observée. Une poudre de tungstène commercialisées par *Alfa Aesar* (lot n°61300762) avec des particules de tailles comprises entre 1 et 5 µm a été chargée en tritium de la même manière et a montrée une activité piégée dans la gamme 1-10 GBq g^{-1}. Pour les particules de tungstène sphériques micrométriques utilisées dans mes travaux, la surface spécifique est très faible (< 0.1 m^2 g^{-1}) et l'activité piégée dans la poudre est

Tableau 5.1 – Caractéristiques des différentes poudres de tungstène chargées en tritium à l'Institut Joliot (CEA Saclay).

réf.	El-Kharbachi et al. (2014)	Bernard et al. (2016)	Bernard et al. (2019b)	Bernard et al. (2016)	Cette étude	El-Kharbachi et al. (2014)
Procédé	Broyage planétaire	Ablation laser	MS-GA	Poudre commerciale	Sphéroïdisation plasma	W massif poli miroir
Diamètre géométrique	20 - 40 nm	60 - 80 nm	100 - 150 nm	0.7 - 2.9 µm	11.5 - 17 µm	-
Forme	NPs et agrégats	NPs et gouttes	NPs étoiles	Monocristallin facété	sphères	éch. polycristallin
Surface spécifique ($m^2\,g^{-1}$)	15.5 - 7.5	43.5	4	1.9 - 0.45	0.067 - 0.024	-
Composition	99.9 % W	9 % W 91 % WO_3	63 % W 37 % WO_3	99 % W	99 % W	99.9 % W
Activité spécifique ($GBq\,g^{-1}$)	34 - 19	20.7	1.4	8.8 - 3.4	0.28 - 0.09	0.12

NPs : nanoparticules
MS-GA : Magnetron sputtering combined with gas-aggregation.

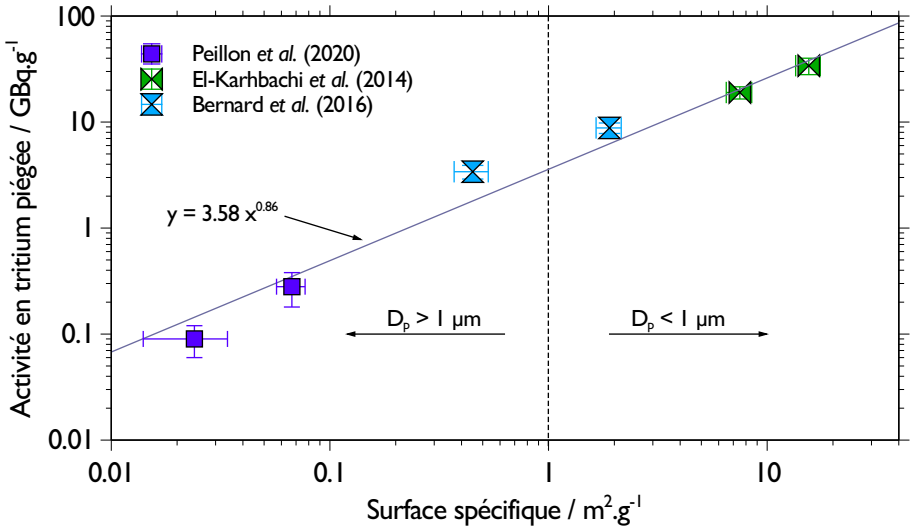

Figure 5.4 – Activité des poudres de tungstène chargées en tritium à l'institut Joliot en fonction de leur surface spécifique.

proche de l'activité piégée dans l'échantillon massif. Le tableau 5.1 montre que la surface spécifique et l'activité spécifique en tritium sont étroitement liées ce qui souligne l'hypothèse d'une forte concentration de pièges à la surface des particules (Hodille et al., 2017). La relation entre la surface spécifique et l'activité piégée est donnée dans la figure 5.4. Pour les particules de tungstène micrométriques, les surfaces spécifiques sont toutes inférieures à $1\,m^2\,g^{-1}$ et l'activité piégée se situe entre $0.1\,GBq\,g^{-1}$ pour les particules sphériques et $3.4\,GBq\,g^{-1}$ pour la poudre commerciale d'*Alfa Aesar*. Lorsque les particules de tungstène ont des tailles sub-micrométriques, la surface spécifique augmente de manière importante et les activités piégées atteignent des dizaines de $GBq\,g^{-1}$. À partir des points expérimentaux présentés sur la figure 5.4, une corrélation entre la surface spécifique (SSA en $m^2\,g^{-1}$) et l'activité moyenne piégée A_T (en $GBq\,g^{-1}$) est trouvée avec une pente $A_T = 3.58 \times \mathrm{SSA}^{0.86}$.

5.1.2.3 Poudre d'acier

En plus des deux lots de poudres de tungstène AF5 et W25, j'ai également utilisé une poudre faite de particules sphériques d'acier inoxydable. Cette poudre a été préparée par l'équipe du laboratoire tritium de l'institut Joliot dans le cadre du projet TRANSAT (Liger et al., 2018). A ma connaissance, il n'y a pas eu de mesures de la surface spécifique sur cette poudre. En revanche, son activité spécifique en tritium est de $1\,GBq\,g^{-1}$. Avant son chargement en tritium, j'ai effectué des mesures de la distribution granulométrique (en nombre et en masse) de cette poudre qui sont présentées sur la figure 5.5-**a**. Le diamètre géométrique médian en nombre (D_{50N}) est de 3 µm avec un écart-type géométrique de 1.35. Son diamètre géométrique médian en volume (D_{50V}) est de 4.4 µm avec un écart-type géomé-

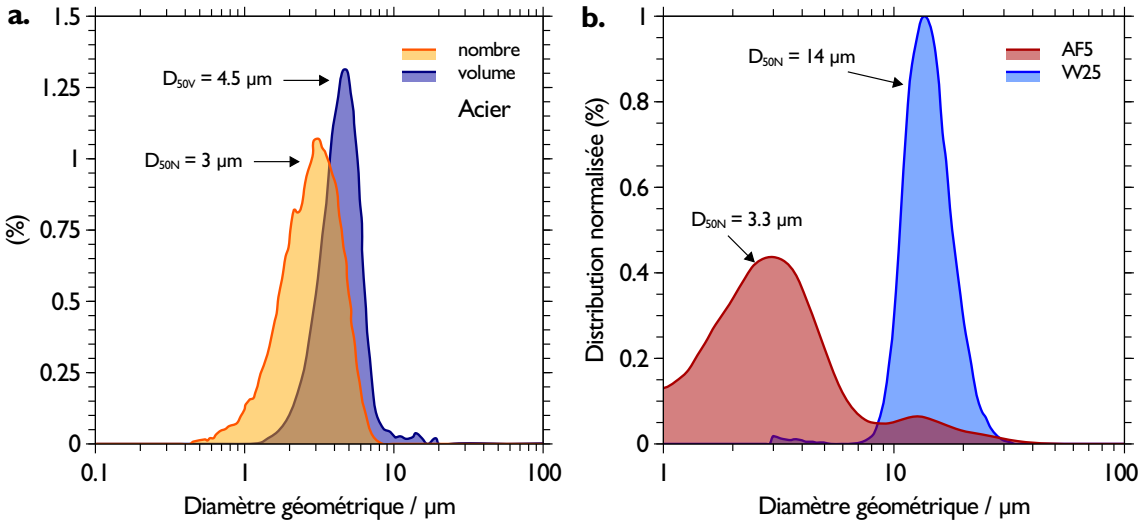

Figure 5.5 – a. Distributions granulométriques en nombre et en volume pour la poudre d'acier. **b.** Distributions granulométriques normalisées en nombre pour les poudres AF5 et W25.

trique de 1.29. Je rappelle également sur la figure 5.5-**b** les distributions granulométriques normalisées en nombre des deux poudres de tungstène AF5 et W25. Les diamètres géométriques médian en nombre sont de 3.3 µm et 14 µm, avec des écart-types géométriques de 2.45 et 1.30, pour les poudres AF5 et W25 respectivement.

5.1.3 Préparation des échantillons

Les différents lots de poudres que nous avons chargés en tritium m'ont servi pour deux types d'expériences :

1. des expériences de mise en suspension par des écoulements d'air que nous décrirons au **chapitre 6** ;
2. des mesures du potentiel de surface des particules tritiées par méthode KPFM qui seront présentées dans la section 5.2.

J'ai effectué ces mesures KPFM à l'Institut des Nanosciences de Paris, dans un laboratoire qui ne possède pas d'habilitation pour la manipulation du tritium. Cependant, concernant le tritium, la réglementation ADR [1] autorise la manipulation d'une source tritiée ayant une activité maximale de 1 GBq avec une contamination surfacique ne dépassant pas 0.4 Bq cm^{-2}. Pour réaliser les mesures du potentiel de surface sur les particules tritiées, il a donc fallu préparer des échantillons ayant une très faible quantité de particules afin de limiter l'activité de l'échantillon et que les particules soient emprisonnées dans une matrice pour éviter toute contamination de l'AFM et du laboratoire. Pour ce faire, j'ai choisi d'utiliser de

1. Accord européen relatif au transport international des marchandises Dangereuses par Route.

l'indium, qui est un métal malléable à température ambiante, en guise de matrice ou les particules tritiées sont emprisonnées.

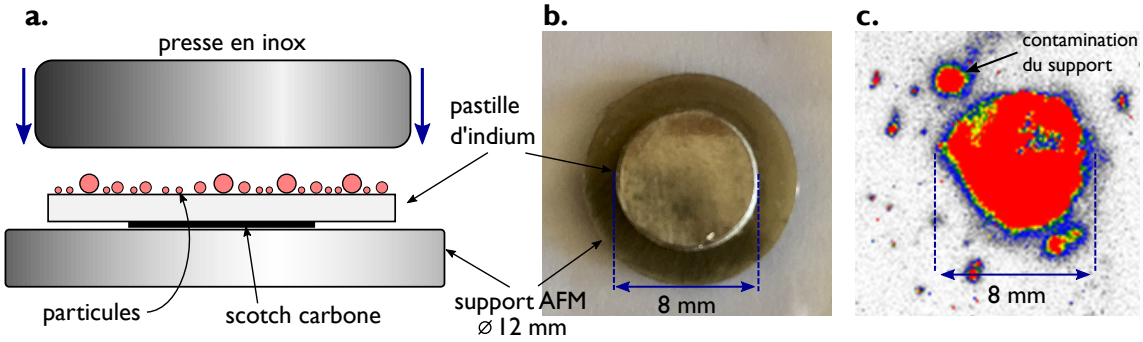

Figure 5.6 – a. Procédure utilisée pour intégrer les particules tritiées dans une pastille d'indium. **b.** Photographie de la pastille d'indium fixée sur le support AFM. **c.** Image d'autoradiographie de la pastille d'indium montrant une activité β relativement homogène sur la surface de la pastille d'indium.

La préparation des échantillons s'est faite en boîte à gants à l'institut Joliot (CEA/Saclay) selon la procédure suivante : une pastille d'indium de 8 mm de diamètre est découpée à l'emporte pièce dans un feuillet d'indium. Cette pastille est ensuite collée sur un support AFM en acier inoxydable de 12 mm de diamètre à l'aide d'un scotch carbone. Une photographie de la pastille d'indium sur le support AFM est visible sur la figure 5.6-**b**. L'ensemble est ensuite placé sous une cloche de sédimentation en boite à gants. Quelques mm^3 de poudres tritiées sont alors déposées dans le système de dispersion qui équipe la cloche de sédimentation. Ce système sera présenté plus en détails au paragraphe 6.2.1 du **chapitre 6**. La poudre est donc dispersée de manière homogène sur la pastille d'indium mais également sur le support AFM en inox. Après avoir attendu quelques minutes, le temps que toutes les particules aient sédimenté, la cloche est enlevée. Nous avons alors utilisé un bloc d'acier inoxydable de 4 cm de côté et dont une face est polie miroir pour presser (manuellement) les particules dans la matrice d'indium. Cette étape est schématisée sur la figure 5.6-**a**. Avant de sortir l'échantillon de la boite à gants, le support et la pastille sont rincés abondamment à l'éthanol de manière à enlever toutes les particules qui n'auraient pas été fixées dans la matrice d'indium ou celles qui se sont simplement déposées sur le bord du support. Un contrôle de contamination radiologique est alors effectué par le SPR [2] du CEA pour vérifier l'absence de contamination labile sur l'échantillon et autoriser son transport en dehors du site.

Sur un de ces échantillons nous avons effectué une mesure par autoradiographie [3]. L'image

2. Service de Protection contre les Rayonnements

3. L'autoradiographie est une technique d'imagerie d'émission réalisée à partir d'une source radioactive placée au contact d'une émulsion ou d'un film photographique. La particularité de cette technique est que la source de rayonnement n'est pas une source externe mais est incluse dans l'échantillon dont on produit une image. Cette technique est particulièrement adaptée pour détecter la présence d'émetteurs β pur comme le tritium. Elle a, par exemple, été récemment utilisée pour détecter du tritium dans des poussières issues

de la figure 5.6-**c** montre le résultat obtenu avec cette technique. Les nuances de couleurs indiquent la quantité relative du rayonnement β qui a imprimé l'émulsion photographique, les zones rouges étant celles ou il y a le plus d'activité. On constate que notre procédure d'intégration des particules dans l'indium permet une bonne répartition (homogène) des particules tritiées sur toute la surface de la pastille. De plus, cette image confirme que les particules sont restées en surface et que le rayonnement β issu du tritium parvient bien à sortir des particules de tungstène pour imprimer l'émulsion photosensible.

La même procédure à été suivie pour préparer des échantillons avec des particules non radioactives. Un exemple d'une pastille d'indium contenant des particules de tungstène issues de la poudre W25 est présenté sur la figure 5.7. Les agrandissements sont des micrographies MEB montrant la répartition des particules à la surface de la pastille d'indium.

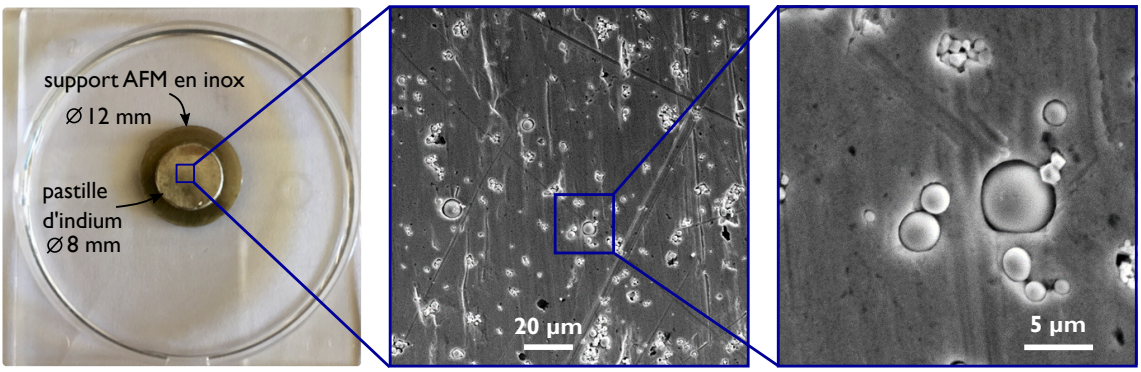

Figure 5.7 – Exemple d'une pastille d'indium fixée sur un porte échantillon d'AFM en inox. Les micrographies MEB montrent que les particules de tungstène sont réparties de manière homogène dans la pastille d'indium.

Nous allons voir dans la section suivante comment réaliser des mesures du potentiel de surface sur ces différents échantillons.

du tokamak JET (Otsuka et al., 2018). En revanche, il est difficile d'extraire de ces images des informations quantitatives sur l'activité spécifique des échantillons

5.2 Mesure du potentiel de surface par KPFM

La microscopie à sonde de Kelvin ou KPFM pour *Kelvin Probe Force Microscopy* est un outil permettant de mesurer localement, à l'échelle nanométrique, la différence de potentiel de contact entre une pointe AFM conductrice et un échantillon métallique ou semi-conducteur. Cette différence de potentiel de contact est le plus souvent notée V_{CPD} avec CPD pour *Contact Potential Difference*. La technique permet donc de cartographier le travail de sortie ou le potentiel de surface d'un échantillon (conducteur ou non) avec une très haute résolution spatiale. Cette méthode doit son nom à Lord Kelvin qui, en 1898, montra qu'un potentiel électrostatique est créé lorsque deux plaques conductrices, de différentes natures, sont mises en contact. Le potentiel de contact établi par le condensateur plan imaginé par Kelvin s'exprime par :

$$V_{\text{CPD}} = \frac{\phi_1 - \phi_2}{|e|} \tag{5.1}$$

où ϕ_1 et ϕ_2 sont les travaux de sortie des deux conducteurs et e la charge élémentaire ($e = -1.602 \times 10^{-19}$ C). Le travail de sortie étant un paramètre fondamental des matériaux, on peut considérer que les deux conducteurs constituent un condensateur soumis à un potentiel électrique constant. Si l'on fait varier leur distance relative de manière périodique (par exemple en faisant osciller une des deux plaques), on module aussi la capacité ce qui induit un courant électrique. La capacité entre les deux plaques s'écrit alors comme $C = C_0 + \Delta C \cos \omega t$ et le courant résultant comme :

$$i(t) = -V_{\text{CPD}} \cdot \omega \cdot \Delta C \cdot sin(\omega t) \tag{5.2}$$

avec V_{CPD} la différence de potentiel de contact (en volt), ω la fréquence de vibration de la plaque (en rad s^{-1}) et ΔC la variation de la capacité (en farad). On peut alors mesurer V_{CPD} en appliquant un potentiel constant V_{DC} au système si bien que le courant s'exprime par $i(t) = -\left[V_{\text{CPD}} + V_{\text{DC}}\right] \omega \Delta C \cdot sin(\omega t)$. La tension qui permet d'annuler le courant entre les deux plaques est alors exactement l'inverse du potentiel de contact. Cette méthode est très sensible pour des échantillons macroscopiques avec une résolution en énergie de l'ordre de 1 meV mais elle n'est pas résolue spatialement. De plus, la méthode de Kelvin implique de mesurer un courant électrique qui, pour des plaques de dimensions microscopiques, devient trop faible pour conserver une bonne sensibilité de la mesure. Avec l'arrivée de la microscopie à force atomique (AFM) et de la très grande sensibilité des leviers AFM aux champs de forces, la méthode de Kelvin est rapidement adaptée à l'AFM par Nonnenmacher et al. (1991) en mesurant la force électrostatique entre la pointe du levier et le substrat plutôt que le courant électrique.

5.2.1 Principe du Mode KPFM (Klevin Probe Force Microscopy)

Nous venons de le voir, la méthode KPFM combine la résolution spatiale de l'AFM avec la mesure du potentiel de contact entre une pointe AFM conductrice et l'échantillon via la variation de la force électrostatique entre la pointe et la surface. Ainsi, les travaux de sortie ϕ_1 et ϕ_2 de l'équation 5.1 correspondent aux travaux de sortie de la pointe ($\phi_1 = \phi_{\text{éch}}$) et de l'échantillon ($\phi_2 = \phi_{\text{pointe}}$). L'équation 5.1 devient :

$$V_{\text{CPD}} = \frac{(\phi_{\text{éch}} - \phi_{\text{pointe}})}{|e|}. \tag{5.3}$$

Pour un métal, le concept de travail de sortie ϕ peut, dans sa formulation la plus simple, se définir comme la quantité d'énergie nécessaire pour arracher un électron du niveau de Fermi (E_F) jusqu'à un point situé en dehors du métal correspondant à l'énergie du vide E_v égale à l'énergie d'un électron au repos dans le vide. La mesure de ce travail de sortie par KPFM est schématisée dans la figure 5.8. Initialement, la pointe et l'échantillon (ayant

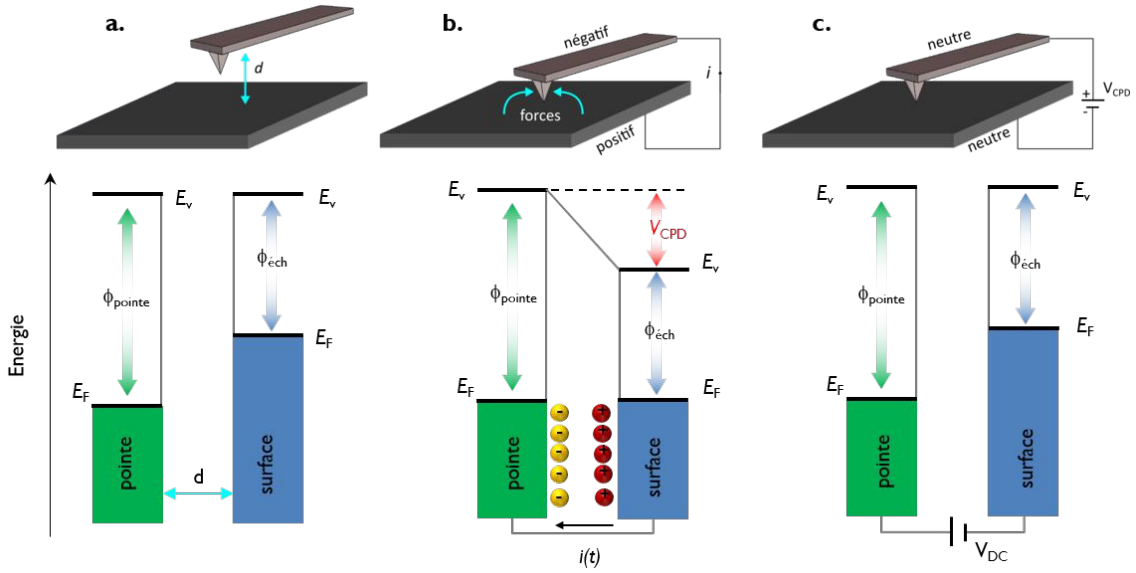

Figure 5.8 – Niveaux d'énergies électroniques de la pointe AFM et de l'échantillon lors d'une mesure KPFM d'après Melitz et al. (2011). **a.** La pointe et l'échantillon sont séparés d'une distance d, sans contact électrique. **b.** La pointe et l'échantillon sont en contact, un courant i se forme, et le potentiel de contact V_{CPD} apparaît. **c.** Un potentiel externe V_{DC} est appliqué entre la pointe et l'échantillon de manière à annuler la force électrostatique. E_v et E_F sont les niveaux d'énergie du vide et de Fermi pour chacun des matériaux.

des travaux de sortie différents) sont séparés par une distance d suffisamment grande pour prévenir toute interaction électrostatique. Le diagramme d'énergie correspondant à cette situation est représenté sur la figure 5.8-**a.** Lorsque la pointe s'approche de l'échantillon, un transfert de charges se crée et les niveaux de Fermi des deux matériaux s'alignent (figure 5.8-**b**). Ce mouvement d'électrons crée un courant électrique transitoire, le temps que les deux matériaux atteignent l'équilibre thermodynamique. On remarquera que les niveaux

d'énergies de Fermi des deux matériaux se sont alignés mais que les niveaux d'énergies du vide sont différents, ce qui traduit la présence d'un champ électrique entre les deux matériaux. La pointe et la surface sont donc chargées et une différence de potentiel (V_{CPD}) entre la pointe et la surface se forme induisant une force électrostatique entre les deux matériaux. Une boucle de rétroaction du KPFM applique alors une tension externe (V_{DC}) de même valeur mais de signe opposé à V_{CPD} pour compenser la force électrostatique initialement créée par les charges de surfaces dans la zone de contact (voir figure 5.8-**c.**). La valeur de la tension électrique V_{DC} est donc égale à la différence des travaux de sortie de la pointe et de l'échantillon. Ainsi, le travail de sortie de l'échantillon peut être obtenu à condition de connaître au préalable celui de la pointe. En ajustant la tension V_{DC} pour chaque pixel de l'image, il est possible de construire une cartographie du potentiel de surface de l'échantillon analysé.

Le but des mesures KPFM que je présenterai plus loin est d'identifier une différence de potentiel entre des particules de tungstène "neutres" et des particules chargées en tritium. Ces particules seront emprisonnées dans une matrice d'indium lors des mesures. Ainsi, on cherchera une différence de potentiel **relative** entre les particules de tungstène (chargées ou non) et l'indium. La connaissance du travail de sortie de la pointe n'est, dans ce cas-là, pas nécessaire. Je reviendrai sur cet aspect au paragraphe 5.3.1.

5.2.2 Les deux modes de mesures AM et FM

La mise en œuvre pratique des mesures KPFM peut se faire suivant plusieurs approches. Elles utilisent toutes des techniques de détection synchrone qui supposent d'introduire une modulation périodique. Cette modulation périodique peut être appliquée sur une amplitude (mode AM) ou sur une fréquence (mode FM). Chaque méthode a ses forces et ses faiblesses, en terme de sensibilité ou de résolution. Lors d'une mesure KPFM, le système pointe/échantillon est assimilé à un condensateur d'énergie $U = \frac{1}{2}C\Delta V^2$. La force électrostatique F_{el} que l'on souhaite mesurer s'exprime donc comme :

$$F_{el}(z) = -\frac{1}{2}\frac{\partial C(z)}{\partial z}\Delta V^2, \tag{5.4}$$

où z est la direction normale à l'échantillon, ΔV la différence de potentiel entre V_{CPD} et la tension appliquée sur la pointe AFM et $\partial C/\partial z$ le gradient de la capacité entre la pointe et l'échantillon. En effet, lors de la mesure, en plus de compenser V_{CPD} par une tension continue V_{DC}, l'appareil impose une oscillation à la pointe à l'aide d'une tension alternative V_{AC} à une fréquence ω_2. La différence de potentiel ΔV s'exprime alors comme la somme de la V_{CPD}, de la tension continue V_{DC} et de la tension alternative imposée V_{AC} :

$$\Delta V = (V_{\text{DC}} \pm V_{\text{CPD}}) + V_{\text{AC}}\sin(\omega_2 t). \tag{5.5}$$

On notera que le signe $(\pm)$ change selon que V_{DC} est appliquée sur la pointe $(-)$ ou sur l'échantillon $(+)$. En combinant les équations 5.4 et 5.5, on obtient la force électrostatique appliquée sur la pointe AFM :

$$F_{el}(z,t) = -\frac{1}{2}\frac{\partial C(z)}{\partial z}\left[(V_{\text{DC}} \pm V_{\text{CPD}}) + V_{\text{AC}}\sin(\omega_2 t)\right]^2. \tag{5.6}$$

Cette équation montre que l'application d'une tension alternative V_{AC} (typiquement entre 1000 et 3000 mV) à la fréquence ω_2 provoque une modulation de la force électrostatique aux deux fréquences ω_2 et $2\omega_2$ qui peut être mesurée directement via la déflection du levier. Cette équation peut se réécrire comme la somme d'une composante statique F_{DC} et de deux composantes induites par l'oscillation de la pointe F_{ω_2} et $F_{2\omega_2}$:

$$F_{\text{DC}} = -\frac{\partial C(z)}{\partial z}\left[\frac{1}{2}(V_{\text{DC}} \pm V_{\text{CPD}})^2\right] \tag{5.7}$$

$$F_{\omega_2} = -\frac{\partial C(z)}{\partial z}(V_{\text{DC}} \pm V_{\text{CPD}})V_{\text{AC}}\sin(\omega_2 t) \tag{5.8}$$

$$F_{2\omega_2} = \frac{1}{4}\frac{\partial C(z)}{\partial z}V_{\text{AC}}^2\left[cos(2\omega_2 t) - 1\right]. \tag{5.9}$$

La composante F_{ω_2} sert à mesurer la V_{CPD} tandis que F_{DC} contribue au signal de topographie et $F_{2\omega_2}$ est utilisée en microscopie capacitive.

Ainsi, en mode AM (*Amplitude Modulation*) on peut retrouver le potentiel de surface en annulant la force électrostatique F_{ω_2} via une modulation de l'amplitude d'oscillation du levier qui vibre à la fréquence ω_2. Lorsque cette amplitude d'oscillation devient nulle, on obtient $V_{\text{DC}} = \pm V_{\text{CPD}}$.

Dans le mode FM (*Frequency Modulation*), ce n'est plus la force électrostatique qui est mesuré mais son gradient $\partial F_{el}/\partial z$. Dans ce mode, la fréquence d'excitation ω_2 de la tension alternative V_{AC} est faible (quelques kHz) devant la résonance mécanique du levier AFM ce qui engendre l'apparition d'harmoniques autour de la fréquence (ω) d'excitation du levier. La boucle d'asservissement du KPFM va alors ajuster la tension V_{DC} pour faire disparaître ces harmoniques et annuler le décalage en fréquence provoqué par le gradient de force électrostatique entre la pointe et l'échantillon. Ainsi, de manière analogue au mode AM, lorsque V_{DC} compense V_{CPD}, le gradient de force s'annule et le potentiel de surface peut être enregistré. Cette méthode, du fait de sa sensibilité au gradient de la force électrostatique, aura une meilleure résolution sur le potentiel que le AM-KPFM mais sera plus sensible au bruit.

5.2.3 Comparaison des deux modes AM et FM

Pour illustrer les différences entre les deux modes de fonctionnement, j'ai réalisé des mesures sur un échantillon de test fourni par la société *Bruker*. Cet échantillon a été réalisé par lithographie et est composé de motifs où une tranchée de silicium sépare un dépôt d'or du substrat en aluminium. La figure 5.9 présente les résultats des mesures AM-KPFM et FM-KPFM effectuées au dessus de cette tranchée de silicium. Pour chacun des modes je présente les images de topographie et de potentiel obtenues ainsi qu'un profil (en bleu sur l'image de topographie et en orange sur l'image de potentiel) traversant les trois matériaux. Sur ces images nous avons de gauche à droite : l'or, la tranchée de silicium et l'aluminium. On constate que la tranchée de silicium fait environ 10 µm de large pour une profondeur d'environ 50 nm par rapport au substrat en aluminium. Visuellement, on remarque déjà

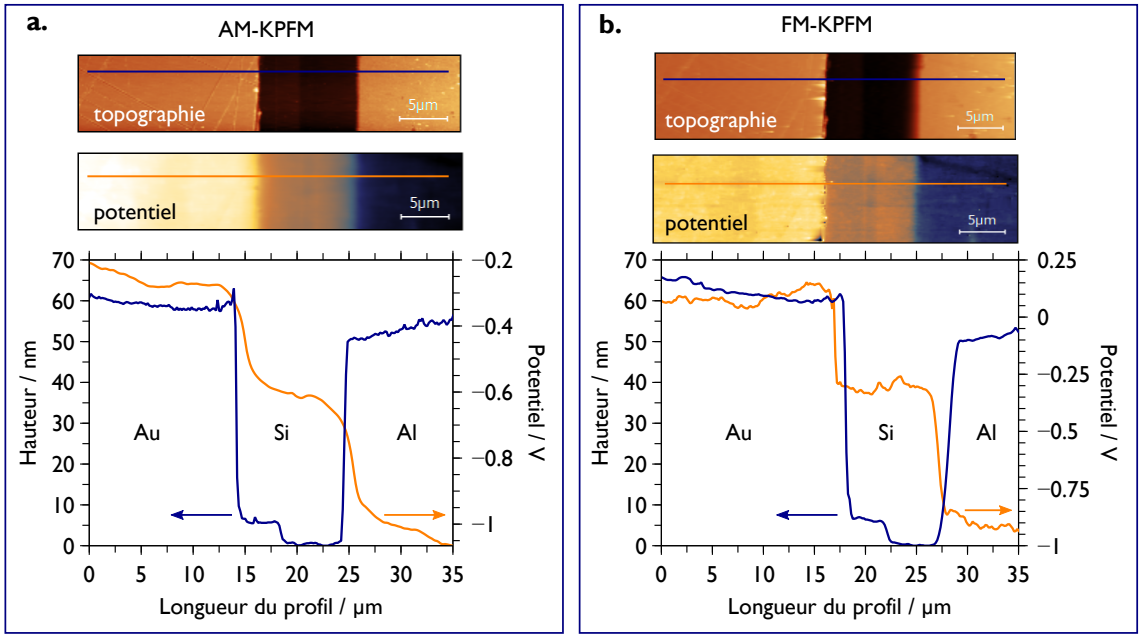

Figure 5.9 – Exemples de mesures du potentiel sur l'échantillon de Bruker avec les deux modes AM-KPFM (**a.**) et FM-KPFM (**b.**).

que l'image de topographie obtenue en AM-KPFM est plus précise et détaillée que celle obtenue avec le mode FM-KPFM. Ceci est confirmé par le profil (bleu) qui montre une tranchée nette avec des pentes presque verticales en mode AM par rapport au mode FM ou la tranchée de silicium est moins bien définie. A l'inverse, l'image de potentiel est moins bonne en mode AM et le profil (orange) en escalier est beaucoup mieux représenté par la mesure en mode FM.

Nous l'avons vu, le potentiel reporté sur ces images est la différence de potentiel de contact qui s'exprime simplement par la différence des travaux de sortie entre la pointe et l'échantillon. Ainsi, grâce à ces mesures effectuées sur des matériaux de référence dont le travail de sortie est connu, il est possible d'en déduire le travail de sortie de la pointe utilisée.

5.2.4 Travaux de sortie

5.2.4.1 Travail de sortie de la pointe AFM

Dans son travail de thèse, Bossard-Giannesini (2018) a montré que le travail de sortie de l'aluminium ne varie pas en fonction de l'humidité relative, contrairement à ceux du silicium et de l'or. On notera cependant qu'à l'air ambiant, l'aluminium est toujours recouvert d'une couche native d'oxyde Al_2O_3 dont le travail de sortie est de 3.9 eV (Yeo et al., 2002). Je prendrai donc le travail de sortie de cette couche d'Al/Al_2O_3 comme référence pour en déduire le travail de sortie de la pointe. L'image de potentiel de la figure 5.9-**b.** donne une V_{CPD} égale à -0.85 ± 0.05 eV pour la partie de l'échantillon correspondant à Al/Al_2O_3. En utilisant l'équation 5.3 on obtient donc un travail de sortie pour la pointe égal à 4.75 ± 0.05 eV. On peut ensuite en déduire le travail de sortie du silicium, ici égal à 4.45 ± 0.05 eV et celui de l'or, égal à 4.85 ± 0.05 eV. Dans la littérature, les valeurs du travail de sortie du silicium peuvent fortement variée en fonction du dopage entre 4.4 eV et 5.1 eV (Novikov, 2010). De même, les données de la littérature sur le travail de sortie de l'or varient de manière importante, entre 4.4 eV et 5.47 eV (Kahn, 2016). Le travail de sortie d'une surface d'or polycristalline à l'air ambiant est souvent pris égale à 4.8 eV (Nordling and Osterman, 2006) soit très proche de la valeur que j'ai trouvé expérimentalement. Le tableau 5.2 rassemble les travaux de sortie de différents métaux et oxydes métalliques d'intérêt pour mes travaux. On remarque que le travail de sortie de l'alliage platinium/iridium (Pt-Ir), utilisé

Tableau 5.2 – Travaux de sortie ϕ pour différents éléments.

Éléments	ϕ (eV)	**réf.**	**Éléments**	ϕ (eV)	**réf.**
Au	4.40 - 5.47	[a]	Fe	4.47	[c]
Be	3.67	[c]	304SS	4.30	[c]
Al	4.06 - 4.26	[b]	Pt-Ir	4.75 - 5.10	[d]
In	4.09	[b]	W	4.55	[b]
Si	4.40 - 5.10	[h]	Al/Al_2O_3	3.90	[f]
In_2O_3	5.10 - 6.90	[e]	WO_3	6.0 - 6.7	[g]

Références utilisées : [a] Kahn (2016), [b] Hölzl and Schulte (1979), [c] Wilson (1966), [d] Celano et al. (2015) ; Kaja et al. (2009), [e] Minibaev et al. (2010) ; Pan and Ma (1980), [f] Yeo et al. (2002), [g] Meyer et al. (2012), [h] Novikov (2010).

comme revêtement conducteur sur les pointes AFM, est référencé entre 4.75 eV et 5.10 eV ce qui correspond très bien avec le résultat obtenu expérimentalement. On constate également que les travaux de sortie de l'indium et du tungstène ont un écart d'environ 0.46 eV. Les valeurs des travaux de sortie de leur oxyde natif sont, elles, beaucoup plus élevées et s'étendent sur des gammes d'énergies assez larges. De la même manière, on notera que la différence de travail de sortie entre l'indium et l'acier inoxydable 304SS est de seulement 0.21 eV. Le travail de sortie du fer est, quant à lui, référencé à 4.47 eV.

5.2.4.2 Travaux de sortie des échantillons

Sur la base des données rassemblées dans le tableau 5.2, j'ai entrepris de vérifier que les travaux de sortie de mes échantillons d'indium contenant les particules de tungstène et d'acier, sont en accord avec ceux référencés dans la littérature. J'ai donc fait des mesures de potentiel de surface en mode FM-KPFM sur une pastille d'indium contenant des particules de tungstène W25 et sur une autre pastille contenant des particules d'acier. Les particules de ces deux échantillons n'ont pas été chargées en tritium. J'ai ensuite corrigé le potentiel mesuré avec le travail de sortie de la pointe que j'ai obtenu précédemment (4.75 eV). Je peux ainsi représenter directement le travail de sortie de la zone scannée. Les résultats de ces mesures sont visibles sur la figure 5.10 ou je représente en trois dimensions la topographie correspondant à la zone scannée sur laquelle est superposée une cartographie du travail de sortie avec son échelle de couleur. Trois particules de tungstène

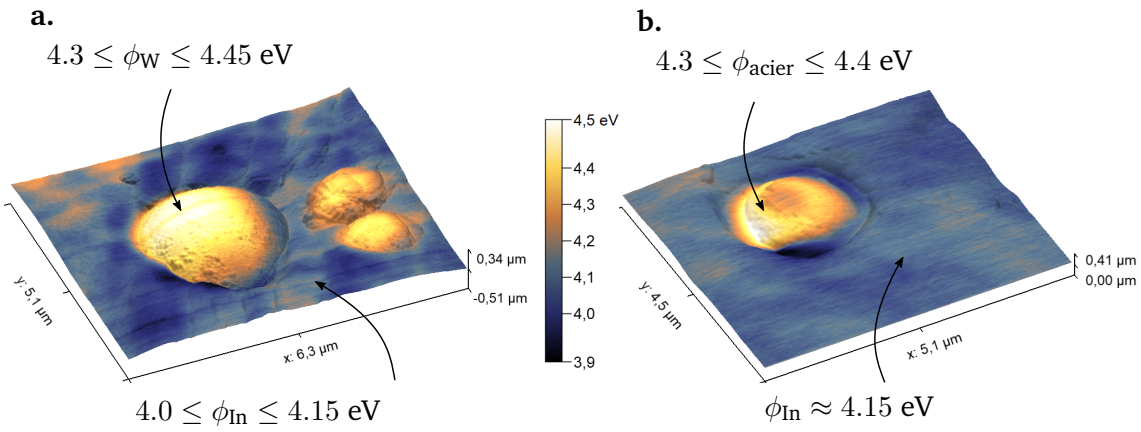

Figure 5.10 – a. Travaux de sortie de l'indium et des particules de tungstène. **b.** Travaux de sortie de l'indium et d'une particule d'acier.

emprisonnées dans la matrice d'indium sont visibles sur la figure 5.10-**a**. Le travail de sortie au sommet de ces particules est relativement homogène avec des valeurs comprises entre 4.3 eV et 4.45 eV. Sur cette zone, le travail de sortie de l'indium est affecté par la topographie et varie entre 4.0 eV et 4.15 eV. On constate que les travaux de sortie mesurés sur cet échantillon sont en très bon accord avec les données du tableau 5.2 pour les travaux de sortie du tungstène et de l'indium métalliques. Je rappelle que ces mesures sont faites dans les conditions ambiantes du laboratoire sans maîtrise de l'humidité relative. Ainsi, la couche d'oxyde natif (quelques nanomètres) sur ces éléments semble trop fine pour participer à une modification du travail de sortie et nous considérerons qu'elle est sans effet (du point de vue potentiel de surface) dans la suite. Sur la figure 5.10-**b** le travail de sortie de l'indium est plus homogène et vaut environ 4.15 eV. La particule d'acier présente un travail de sortie entre 4.3 eV et 4.4 eV tout à fait en accord avec les travaux de sortie de l'acier 304SS et du fer référencés dans le tableau 5.2. Suite à ces vérifications, nous allons voir dans la partie suivante comment mesurer une différence de travail de sortie (équiva-

lente à une différence de potentiel de contact) relative entre des particules ”neutres” et des particules tritiées.

5.3 Mesures de la différence de potentiel de contact (CPD)

Dans cette partie, je vais présenter les mesures KPFM que j'ai effectué sur des échantillons contenant des particules ”neutres” et des particules tritiées. Chaque échantillon est constitué d'une pastille d'indium sur laquelle j'ai intégré des particules de tungstène neutres ou tritiées suivant la procédure détaillée au § 5.1.3. Le même type d'échantillon a été réalisé avec des particules d'acier neutres ou ayant été chargées en tritium. Le but de ces mesures est de déterminer la différence de potentiel de contact relative entre les particules (tungstène ou acier) et l'indium et de comparer cette V_{CPD} relative entre les échantillons neutres et les échantillons tritiés. Nous allons donc considérer que le travail de sortie de l'indium ne varie pas d'un échantillon à l'autre.

Les mesures sont effectuées en mode AM-KPFM avec une méthode de double passage. Ce mode est le plus couramment utilisé et nous renseigne sur la hauteur entre la pointe et l'échantillon lors de la mesure du potentiel (Kaja, 2010). Ce point est particulièrement important car il va nous permettre de calculer la capacité du condensateur formé par la pointe et l'échantillon nous permettant ainsi d'estimer la densité de charges à la surface des particules. Je représente sur la figure 5.11 le principe du double passage en mode AM-KPFM. Le premier passage de la pointe permet de déterminer la topographie de l'échantillon. Ce

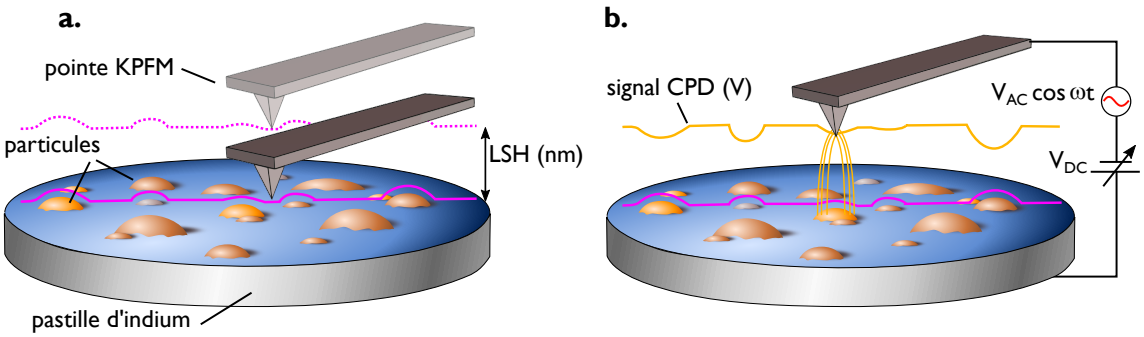

Figure 5.11 – a. Le premier passage de la pointe permet de déterminer la topographie de l'échantillon. Ce passage peut être effectué en mode tapping ou en mode PeakForce. La pointe est ensuite relevée à une hauteur fixe (appelée LHS pour *Lift Scan Height*) qui est généralement entre 30 nm et 120 nm. **b.** Lors du deuxième passage, la pointe suit le profil de topographie précédemment établi pour acquérir le signal correspondant à la V_{CPD}.

passage peut être effectué en mode *tapping* ou en mode *PeakForce*. La pointe est ensuite relevée à une hauteur fixe (appelée LHS pour *Lift Scan Height*) qui est généralement située entre 30 nm et 120 nm.La hauteur LSH est un paramètre qui contrôle la résolution latérale en CPD. Plus il est faible, meilleure est la résolution latérale car la pointe est sensible aux

effets électrostatiques plus locaux sans moyenner sur une large surface. Typiquement la résolution latérale est de l'ordre de grandeur de la hauteur LSH. Lors du deuxième passage (figure 5.11-**b**), la pointe suit le profil de topographie précédemment établi pour acquérir le signal correspondant à la V_{CPD}. Pour cela, le KPFM coupe la fréquence d'excitation du levier qui a servi à la mesure de la topographie (fréquence de résonance du levier en mode *tapping* ou fréquence du *PeakForce*) et fait osciller le levier à une fréquence ω_2 en imposant une variation d'amplitude à l'aide de la tension alternative V_{AC}. Lorsque l'amplitude d'oscillation du levier est perturbée par le potentiel de surface de l'échantillon, la boucle de rétroaction du KPFM corrige cette variation à l'aide de la tension continue V_{DC}. Cette tension continue correspond exactement à l'inverse du potentiel de surface et est enregistrée pour construire l'image de potentiel.

5.3.1 Mesure de la CPD relative sur des particules d'acier

J'ai commencé cette campagne de mesure avec les pastilles d'indium contenant les particules d'acier. Pour chaque échantillon, il faut d'abord repérer les zones où se trouvent des particules en faisant des scans de grandes tailles en mode *tapping* (ou *PeakForce*). Une fois que les particules sont localisées, j'engage le mode double passage et la mesure KPFM en ajustant la hauteur LHS de manière à ce que la pointe n'entre pas en contact avec la surface lors de variations abruptes de la topographie. En effet, nous avons vu précédemment que l'équation de la force électrostatique (5.4) qui s'applique sur la pointe varie en $\frac{\partial C(z)}{\partial z}$, ce qui signifie qu'une forte variation de la topographie entraînera une variation importante de la capacité. Cela se traduira par un sursaut abrupt du potentiel mesuré. Sur mes échantillons, les particules ont des tailles micrométriques ce qui engendre des variations de topographies importantes. Aussi, je vais utiliser systématiquement une LHS supérieure à 100 nm pour ces mesures. Je présente sur la figure 5.12 des exemples de mesures KPFM sur des particules d'acier neutres (**a.** et **b.**) et des particules d'acier chargées en tritium avec une activité spécifique de $1000\,\text{MBq}\,\text{g}^{-1}$ (**c.** et **d.**). Les images de la colonne de gauche sont les images de topographies acquises lors du premier passage de la pointe au dessus des échantillons. Ces images de topographie nous montrent que ces particules font entre 1 µm et 2 µm de diamètre et sont affleurantes à la surface de l'indium. Les images de la colonne de droite correspondent à la mesure de la V_{CPD} lors du deuxième passage de la pointe à une hauteur LHS $= 110$ nm. Sur l'image 5.12-**b.** on constate que la différence de potentiel entre la pointe et l'indium (V_{CPD}) est relativement homogène avec une valeur autour de 10 ± 15 mV. Sur cette même image, j'ai ensuite extrait la V_{CPD} des trois particules d'acier (non chargées en tritium) en moyennant la V_{CPD} mesurée par le KPFM sur les zones en pointillés blanc. Les V_{CPD} des deux plus petites particules valent environ 250 ± 20 mV.

On remarque que sur la plus grande particule ($R_p = 1.6$ µm) la V_{CPD} mesurée n'est pas homogène sur toute la particule. Une zone plus sombre (soit une V_{CPD} plus faible) est visible

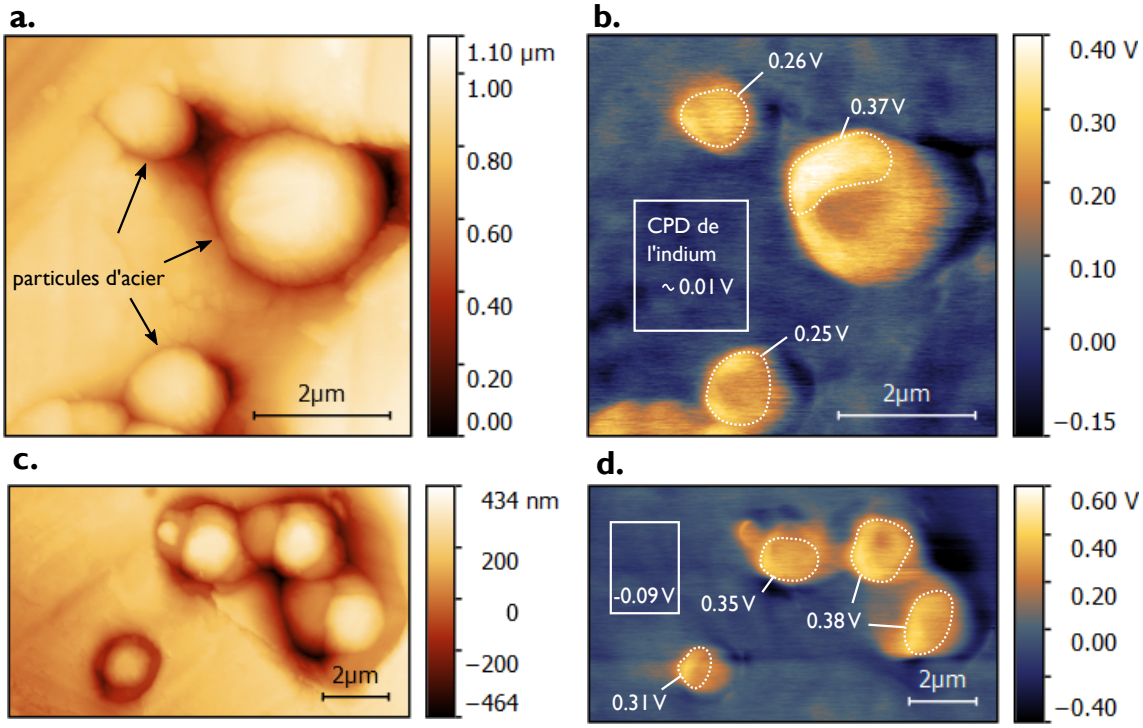

Figure 5.12 – Topographies et images de potentiels pour des particules d'acier neutres (**a.** et **b.**) et des particules d'acier chargées en tritium (**c.** et **d.**).

au centre de la particule. Je ferai remarquer ici que j'ai observé cet artefact sur de nombreuses particules durant mes mesures. Il semble que la méthode de pressage utilisée pour intégrer les particules dans la pastille d'indium (voir § 5.1.3) soit à l'origine de ces zones, au sommet des particules, ou le travail de sortie est plus faible. En effet, il est rapporté dans la littérature que l'action d'une compression mécanique sur des métaux engendre une diminution de leur travail de sortie (Gong et al., 2007 ; Yang et al., 2013). Ainsi, lors du pressage, le sommet des particules en contact avec la presse en inox va subir une déformation plastique induisant des phénomènes de dislocation qui conduisent à la modification du travail de sortie du métal (Li et al., 2006).

Pour la suite de mon travail, je vais donc ignorer ces zones "sombres" au centre des particules et prendrai la moyenne de la V_{CPD} sur la périphérie de la particule comme représentée par la zone en pointillés blanc sur la figure 5.12-**b**. Dans cette zone, la V_{CPD} vaut 370 ± 25 mV. La même méthode d'analyse est répétée sur plusieurs images ce qui me donne des valeurs de V_{CPD} pour dix particules d'acier "neutres" différentes. Ces valeurs sont rassemblées sur l'histogramme **a** de la figure 5.13. Les barres d'erreurs correspondent à la variation de la V_{CPD} sur les zones mesurées comme celles identifiées en pointillés blanc sur l'exemple de la figure 5.12. Je répète ces analyses sur les échantillons contenant les particules d'acier chargées en tritium. Un exemple d'une de ces mesures est visible sur les figures 5.12-(**c.** et **d.**). Au total, j'ai pu mesurer la V_{CPD} de huit particules tritiées. Ces valeurs sont rassemblées dans l'histogramme **b** de la figure 5.13.

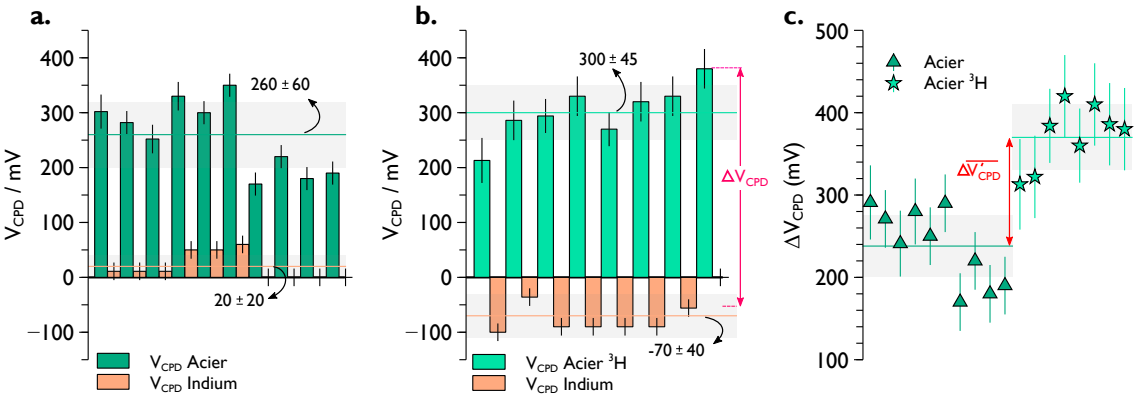

Figure 5.13 – a. Différences de potentiels entre la pointe AFM et les particules d'acier "neutres" (V_{CPD} Acier) et entre la pointe AFM et l'indium (V_{CPD} Indium). **b.** Différences de potentiels entre la pointe AFM et les particules d'acier chargées en tritium (V_{CPD} Acier ^{3}H) et entre la pointe AFM et l'indium. **c.** Différences de potentiels relatives ($\Delta V'_{\text{CPD}}$) pour les particules d'acier "neutres" et les particules d'acier chargées en tritium.

N'ayant pas calibré le travail de sortie de la pointe à chaque mesure, je vais ici utiliser l'écart relatif entre la V_{CPD} mesurée sur l'indium et celle mesurée sur chacune des particules. D'après l'équation 5.1, cette V_{CPD} relative revient à comparer les travaux de sortie des particules et du substrat en indium comme le montre la relation suivante :

$$\begin{aligned}\Delta V_{\text{CPD}} &= V_{\text{CPD}}^{\text{particule}} - V_{\text{CPD}}^{\text{indium}} \\ &= \frac{(\phi_{\text{particule}} - \phi_{\text{pointe}})}{|e|} - \frac{(\phi_{\text{indium}} - \phi_{\text{pointe}})}{|e|} \\ &= \frac{(\phi_{\text{particule}} - \phi_{\text{indium}})}{|e|}.\end{aligned} \tag{5.10}$$

Ces valeurs sont reportées sur le graphique **c.** de la figure 5.13. En faisant l'hypothèse que le travail de sortie de l'indium ne varie pas d'un échantillon à l'autre, on peut directement comparer les travaux de sortie moyens des particules neutres et des particules tritiées suivant la relation :

$$\begin{aligned}\overline{\Delta V'_{\text{CPD}}} &= \overline{\Delta V_{\text{CPD}}^{\text{3H}}} - \overline{\Delta V_{\text{CPD}}^{\text{neutre}}} \\ &= \frac{(\phi_{\text{particule}}^{\text{3H}} - \phi_{\text{indium}})}{|e|} - \frac{(\phi_{\text{particule}}^{\text{neutre}} - \phi_{\text{indium}})}{|e|} \\ &= \frac{(\phi_{\text{particule}}^{\text{3H}} - \phi_{\text{particule}}^{\text{neutre}})}{|e|}.\end{aligned} \tag{5.11}$$

La moyenne $\overline{\Delta V_{\text{CPD}}^{\text{neutre}}}$ pour les dix particules d'acier "neutres" vaut 240 ± 37 mV. Pour les particules d'acier chargées en tritium, la moyenne $\overline{\Delta V_{\text{CPD}}^{\text{3H}}}$ est plus élevée et vaut 370 ± 40 mV. Ainsi, on constate une différence de potentiel relative d'environ 130 ± 77 mV entre les particules d'acier neutres et les particules d'acier tritiées.

5.3.2 Mesure de la CPD relative sur des particules de tungstène

La même procédure de mesure a été effectuée sur un échantillon contenant des particules de tungstène ”neutres” et sur un échantillon contenant des particules de tungstène tritiées. Les particules des ces échantillons proviennent de la poudre de tungstène AF5 dont les distributions granulométriques en masse et en nombre sont données dans les figures 3.15-**b.** et 5.5-**b.**, respectivement. L'activité spécifique en tritium pour cette poudre est de $280\,\mathrm{MBq\,g^{-1}}$. Je présente sur la figure 5.14 des exemples de mesures KPFM sur des particules de tungstène neutres (**a.** et **b.**) et des particules de tungstène chargées en tritium (**c.** et **d.**). Les images de la colonne de gauche sont les images de topographies. Ces images

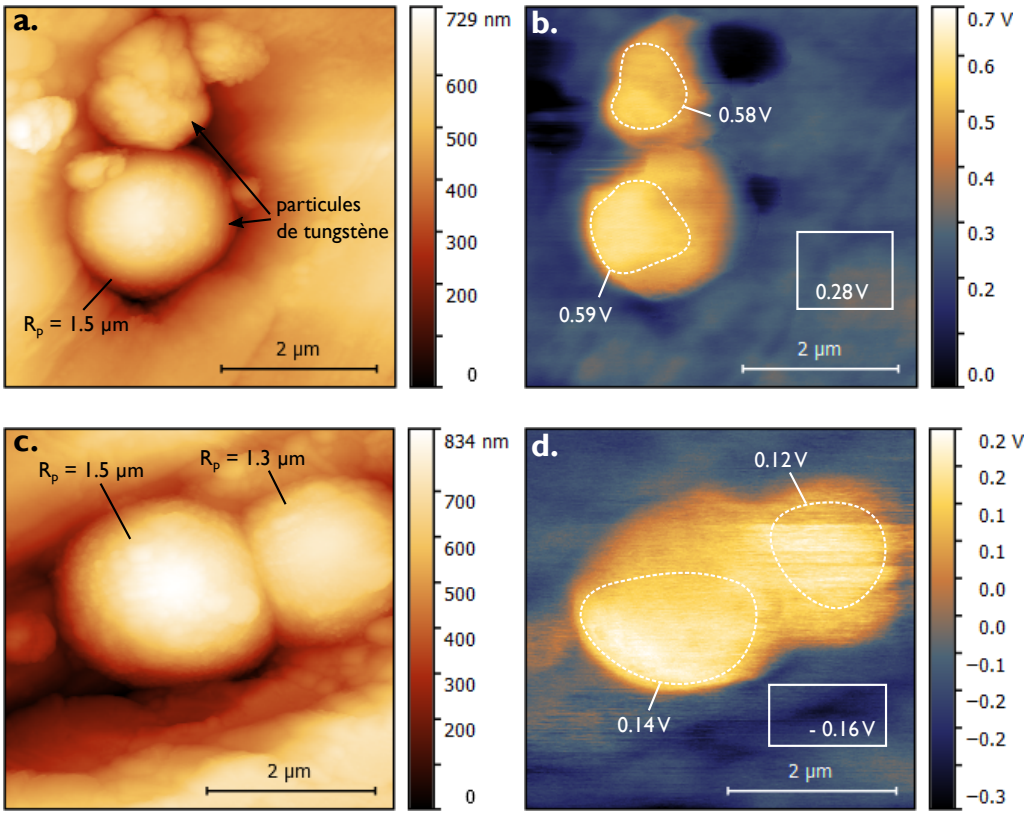

Figure 5.14 – Topographies et images de potentiels pour des particules de tungstène neutres (**a.** et **b.**) et des particules de tungstène chargées en tritium (**c.** et **d.**).

nous montrent que ces particules de tungstène font environ 1.5 µm de rayon. Les images de la colonne de droite correspondent à la mesure de la V_{CPD} lors du deuxième passage de la pointe à une hauteur LHS $= 110$ nm. Au total, j'ai pu analyser 6 particules de tungstène ”neutres” et 7 particules de tungstène tritiées. Les différences de potentiel mesurées pour ces deux échantillons sont données dans les histogrammes **a.** (particules ”neutres”) et **b.** (particules tritiées) de la figure 5.15. La ΔV_{CPD} moyenne pour les particules de tungstène ”neutres” vaut 390 ± 31 mV. Pour les particules de tungstène chargées en tritium, la ΔV_{CPD} moyenne est légèrement plus faible et vaut 338 ± 46 mV. Ainsi, on constate une différence de potentiel relative d'environ -52 ± 77 mV entre les particules de tungstène neutres et les

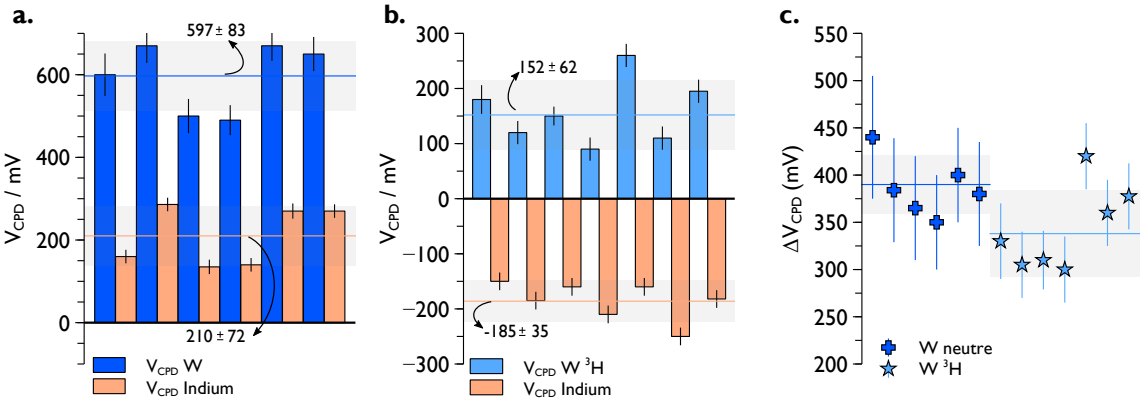

Figure 5.15 – a. Différences de potentiels entre la pointe AFM et les particules de tungstène "neutres" (V_{CPD} AF5) et entre la pointe AFM et l'indium (V_{CPD} Indium). **b.** Différences de potentiels entre la pointe AFM et les particules de tungstène chargées en tritium (V_{CPD} AF5 ^{3}H) et entre la pointe AFM et l'indium. **c.** Différences de potentiels relatives ($\Delta V'_{CPD}$) pour les particules de tungstène "neutres" et les particules de tungstène chargées en tritium.

particules de tungstène tritiées. Dans ce cas, cela signifie que le travail de sortie des particules de tungstène tritiées est légèrement plus faible que celui des particules "neutres". Ce résultat est contraire au résultat obtenu avec les particules d'acier. En effet, une diminution du travail de sortie indique un excès de charges négatives sur la particule ce qui conduit à la diminution de l'énergie nécessaire aux électrons pour sortir du matériau. En revanche, compte tenu de la variabilité des mesures et des marges d'erreurs associées, le faible écart observé entre les mesures sur les particules "neutres" et les particules tritiées ne permet pas de conclure sur un effet du tritium dans ce cas.

5.3.3 Interprétation des résultats

Les résultats des mesures par KPFM obtenus dans les paragraphes précédents nous ont montré qu'une différence de potentiel entre des particules d'acier tritiées dont l'activité spécifique est de 1000 MBq g^{-1} et des particules "neutres" est mesurable et vaut environ 130 ± 77 mV. En revanche, les mesures effectuées sur des particules de tungstène dont l'activité spécifique est de 280 MBq g^{-1} montrent une légère diminution du potentiel qui n'est, compte tenu des incertitudes de mesures, pas significative. L'interprétation que nous proposons dans la suite ne considère donc que le cas des particules d'acier.

5.3.3.1 Cas des particules neutres

Nous avons vu au paragraphe 5.3.1 que la différence de potentiel (CPD) entre les particules d'acier non tritiées et la matrice d'indium vaut en moyenne 240 ± 37 mV, c'est-à-dire qu'elles présentent un potentiel de surface d'environ 240 mV plus élevé que le substrat d'indium

environnant. Vues les conventions de polarisation surface-pointe adoptées par le microscope AFM *Bruker* que j'ai utilisé, on sait (éq. 5.10) que $V_{\text{CPD}} = (\phi_{\text{particule}} - \phi_{\text{indium}})/|e|$. Par conséquent ces mesures KPFM montrent que les particules d'aciers présentent un travail de sortie plus élevé que le substrat d'indium d'environ 240 meV. Cette dissymétrie des travaux de sortie entraine un ré-équilibre des charges tel que le matériau de plus fort travail de sortie se charge négativement. La particule d'acier va donc stocker des électrons du simple fait qu'elle est en contact avec la matrice d'indium. Cette configuration est représentée sur la figure 5.16-**a.** Le calcul du nombre d'électrons stockés par les particules à partir de ces

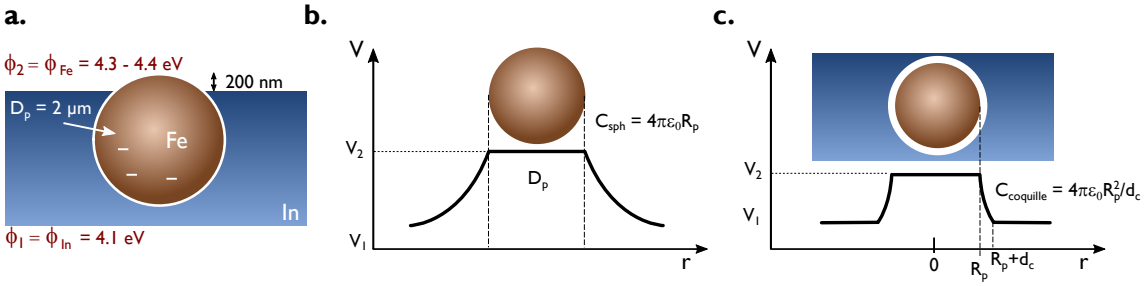

Figure 5.16 – Équilibre des charges pour compenser les écarts de travail de sortie des matériaux : **a.** léger excédent négatif dans la particule d'acier. Illustration des deux cas limites où l'on peut calculer la capacité d'une sphère métallique : **b.** dans le vide où **c.** incrustée dans un métal.

résultats est assez complexe. En effet, cette charge dépend de la capacité de la particule et il est très difficile de la calculer car elle dépend intimement des points de contact entre la particule et la matrice. Cependant, on propose de donner des valeurs d'encadrement pour deux cas limites. Dans le cas d'une sphère métallique de rayon R_p dans le vide et soumise à un potentiel V, la capacité s'écrit : $C_{\text{sph}} = 4\pi\epsilon_0 R_p$. Cette expression n'est valable que si la différence de potentiel s'applique entre la sphère et une distance infinie (figure 5.16-**b.**). Si la particule est à proximité d'un autre conducteur, le champ électrique généré par la particule va avoir tendance à attirer des charges opposées ce qui écrante le champ électrique. Cependant, pour le cas limite d'une sphère de 1 µm de rayon dans le vide et sur laquelle on applique un potentiel de 240 mV, la charge qu'elle acquiert s'écrit :

$$Q = C_{\text{sph}} \cdot V_{\text{CPD}} = 4\pi\epsilon_0 R_p (V_1 - V_2), \tag{5.12}$$

avec $V_1 = e \cdot \phi_{\text{indium}}$ et $V_2 = e \cdot \phi_{\text{particule}}$ les potentiels de l'indium et de la particule respectivement. Pour une différence de potentiel de 240 mV, on obtient $Q = -2,2.10^{-17}$ C, soit un excès de 165 électrons pour une particule de 1 µm de rayon.

Dans mes expériences, les particules sont incrustées dans de l'indium métallique, si bien que la chute de potentiel se produit sur une épaisseur d_c bien plus faible et qui correspond à l'écrantage provoqué par l'environnement métallique d'indium (figure 5.16-**c.**). Cette épaisseur d_c correspond à une couche d'oxyde (où d'atomes de contact) assez mal définie qui est de l'ordre de quelques nanomètres. Dans cette configuration, la capacité correspondante doit être évaluée avec un modèle de condensateur sphérique représenté par une coquille

diélectrique entre deux sphères métalliques concentriques, séparées par une distance d_c. Dans le cas où $d_c \ll R_p$ la capacité s'exprime par :

$$C_{\text{coquille}} = \frac{\epsilon_0 \cdot S}{e} = \frac{4\pi\epsilon_0 R_p^2}{d_c}. \tag{5.13}$$

Si l'on considère une sphère de 1 µm de rayon, et que l'on prend une couche d'oxyde épaisse de $d_c = 5$ nm, la capacité devient 200 fois plus importante et par conséquent la charge résultant de la différence de potentiel est 200 fois plus grande. On s'attend dans ce cas à un excès de charges de 33 078 électrons. On peut regretter qu'il ne soit pas aisé d'évaluer cette quantité. Cependant, la situation d'une particule incrustée dans un métal ne correspond pas aux situations typiques où l'on s'intéresse au détachement des particules déposées sur des parois. Nous n'insisterons donc pas davantage sur cette modélisation.

5.3.3.2 Cas des particules radioactives

Dans le cas des particules d'acier tritiées, les mesures KPFM montrent que leur potentiel de surface est 370 ± 40 mV plus élevé que celui de l'indium environnant. Leur travail de sortie a donc augmenté. On peut comprendre qualitativement cette mesure. En effet, la désintégration β éjecte des électrons de la particule, qui acquiert donc des charges positives. Cette accumulation de charges positives contrecarre la tendance de la particule à stocker des charges négatives comme discuté ci-dessus. Un schéma de cette situation est présenté sur la figure 5.17-**a.** Cependant comme la particule est en contact électrique avec le substrat d'indium, ce déséquilibre de charges est évacué vers le substrat d'indium. On propose ici un modèle électrocinétique pour décrire ces processus, l'objectif étant de déterminer les valeurs des paramètres essentiels pour faire une modélisation réaliste du phénomène. Cette modélisation est présenté sur la figure 5.17-**b.** La source de courant I_0 représente

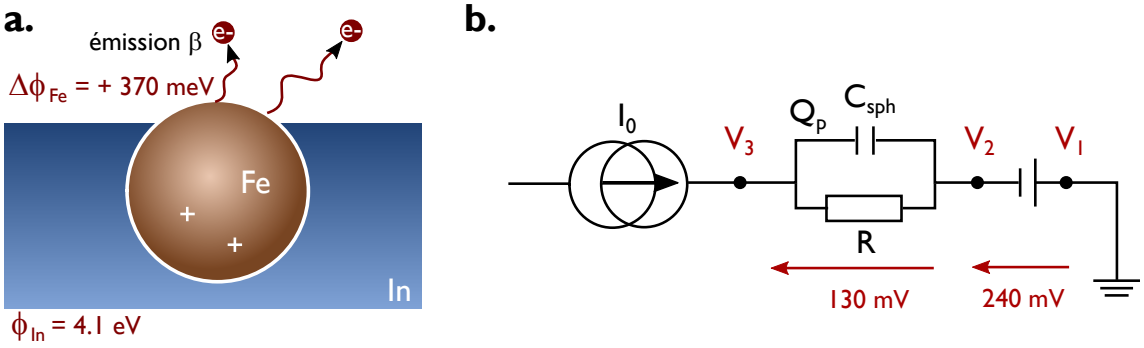

Figure 5.17 – a. Émission continue d'électrons par désintégration β. La particule perd des charges négatives et se charge positivement. Un régime stationnaire s'établit pour atteindre l'équilibre entre la création de charges positives et leur évacuation vers le substrat d'indium. Plus la charge augmente, plus le travail de sortie augmente. **b.** Modèle électrocinétique d'une particule tritiée.

la génération de charges issues des désintégrations β. Ce courant contribue à charger le

condensateur que constitue la particule. Par ailleurs, la particule est connectée au substrat d'indium via une résistance R (assimilable à résistance de fuite) qui s'établie en parallèle de la capacité. La source de courant est une source continue et il faut donc étudier le circuit en régime stationnaire. Dans ces conditions, le courant traversant le condensateur est nul et l'on peut écrire :

$$\begin{aligned} V_3 - V_2 &= RI_0 \\ Q_p &= C_{\text{sph}}(V_3 - V_2). \end{aligned} \tag{5.14}$$

Par ailleurs, la polarisation de la sphère induite par la dissymétrie des travaux de sortie se traduit par une source de tension parfaite de V_2–V_1 qui peut être déterminée par le KPFM. Nous avons vu précédemment que les mesures KPFM permettent d'obtenir les valeurs de V_2–V_1 quand les particules sont non-radioactives (avec une valeur moyenne V_2–$V1 \approx 240$ mV) et de V_3–V_1 quand la source de courant I_0 est activée (valeur moyenne V_3–$V_1 \approx 370$ mV). Lorsqu'on fait le compte des inconnues, on en dénombre quatre : R, I_0, Q_p et C_{sph}. D'un autre côté, on ne dispose que de deux équations, donc le problème n'est pas soluble avec ce jeu de données.

5.3.3.3 Commentaires et perspectives

Les résultats obtenus avec des particules d'acier incrustées dans l'indium montrent que la radioactivité induit une variation de V_{CPD} mesurable. En revanche, remonter à la charge des particules nécessite de connaître la capacité propre de la particule. Ne connaissant pas l'épaisseur de la couche d'oxyde ni la résistance de fuite définie au paragraphe précédent, le calcul de la capacité des particules (tritiées ou "neutres") ne peut être fait qu'en utilisant l'expression classique de la capacité d'une sphère donnée par la relation 5.12. Pour cela, nous pouvons reprendre les mesures KPFM présentées au paragraphe 5.3.1 qui nous ont permis d'obtenir les différences de potentiel ΔV_{CPD} correspondant à $V_2 - V_1$ dans le cas des particules d'acier "neutres" et à $V_3 - V_1$ dans le cas des particules d'acier tritiées. Ces données issues de la figure 5.13-**c.** sont rassemblées dans la figure 5.18-**a.** en fonction du rayon des particules.

Hormis l'écart de 130 ± 77 mV entre les potentiels mesurés sur les particules "neutres" et tritiées, nous constatons sur la figure 5.18-**a.** qu'il n'y a pas d'évolution de la ΔV_{CPD} en fonction de la taille des particules. Cet aspect est attendu pour les particules "neutres" mais pas pour les particules chargées en tritium car pour une activité spécifique constante, le taux d'auto-chargement doit augmenter avec la taille des particules. Un plus grand nombre de mesures sur une gamme de taille plus étendue auraient été ici nécessaire pour conclure sur l'évolution du potentiel des particules en fonction de leur taille. Cependant, en utilisant ces données et la relation 5.12, nous pouvons estimer l'état de charge de ces particules en fonction de leur taille. On rappelle que l'on se place ici dans un cas limite (voir figure 5.16-**b.**)

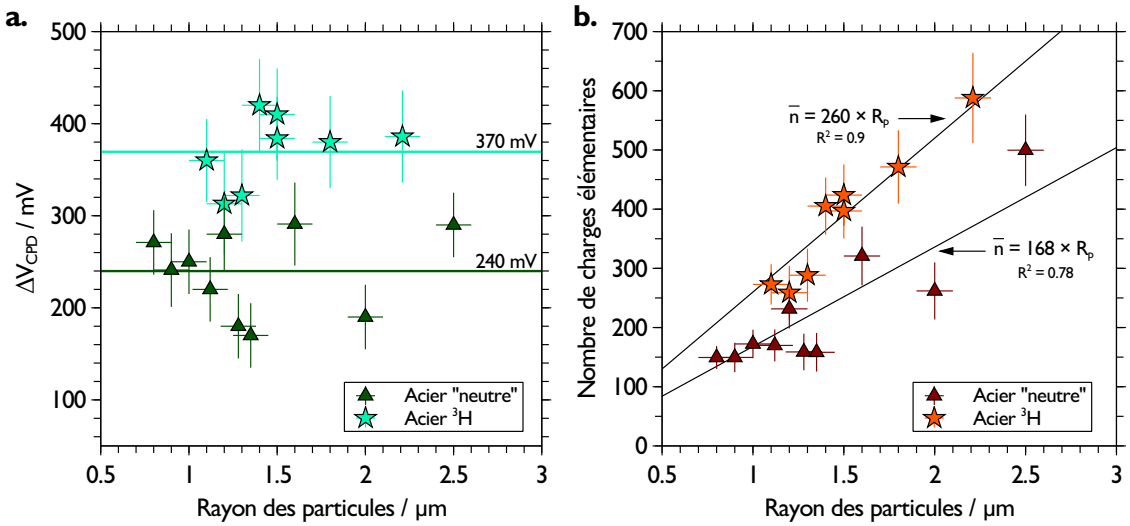

Figure 5.18 – a. Différences de potentiel mesurées par KPFM sur des particules d'acier tritiées et "neutres" en fonction de la taille des particules. **b.** Nombre de charges élémentaires calculé avec la relation 5.12 pour les particules tritiées et "neutres" en fonction de la taille des particules.

où la particule est dans le vide et soumise au potentiel ΔV_{CPD}. Les résultats de ces calculs sont donnés sur la figure 5.18-**b.** Des ajustements linéaires sont également proposés pour les deux familles de particules (tritiées où "neutres"). Pour des particules d'acier "neutres" ayant des rayons compris entre 1 µm et 2.5 µm, nous constatons un nombre de charges élémentaires compris entre 150 et 500 selon la taille des particules. Pour les particules tritiées, le nombres de charges élémentaires est supérieur, entre 250 et 600, en fonction de la taille des particules. Compte tenu des hypothèses faites, ces estimations doivent être considérées comme une limite haute de l'état de charge des particules.

Pour mieux estimer le nombre de charges portées par les particules, il aurait été préférable d'incruster les particules dans un substrat non conducteur de manière à annuler la résistance de fuite. J'avais envisagé de faire ce type d'expériences en utilisant de la résine époxy comme matrice de piégeage mais j'ai manqué de temps pour les réaliser. Dans ce cas là, on aurait pu utiliser la formule de la capacité sphérique dans un milieu diélectrique de permittivité relative ϵ_r qui s'exprime par :

$$C_{\text{sph}} = 4\pi\epsilon_0\epsilon_r R_p. \tag{5.15}$$

Ainsi, des mesures KPFM auraient permis de mesurer la résistance de fuite d'une particule en procédant de la manière suivante : (i) on pose sur la particule la pointe du KPFM préalablement polarisée à une tension V_{pol} ce qui permet de polariser la particule ; (ii) on suit la décroissance de V_{CPD} en fonction du temps ce qui permet d'accéder à la constante RC_{sph} du système. Comme C_{sph} est déjà connue, il est alors possible d'en déduire R. Malheureusement cela nécessite un travail expérimental supplémentaire qu'il n'a pas été possible de réaliser faute de temps.

5.4 Évaluation du taux d'auto-chargement par simulations Monte Carlo

Le taux d'auto-chargement (nombre de charges positives par unité de temps) d'une particule peut se définir comme le produit de la probabilité d'échappement d'un électron émit suite à une désintégration β par l'activité spécifique de la particule. Il est communément admis que pour une particule chargée avec un β-émetteur fort, tel que le césium 137 ou l'iode 131, la probabilité d'échappement de l'électron est proche de 1 et le taux d'auto-chargement est donc égal à l'activité spécifique (Clement and Harrison, 1992 ; Gensdarmes et al., 2001).

Dans le cas du tritium, l'énergie maximale du rayonnement β est de 18.6 keV (Bé et al., 2010) ce qui correspond à un parcours maximum de l'électron de quelques dizaines de nanomètres dans des matériaux denses comme l'acier ou le tungstène (Grisolia et al., 2015). Afin de calculer le taux d'auto-chargement pour des particules microniques, il est donc nécessaire d'estimer la probabilité d'échappement d'un électron ayant une certaine énergie pour sortir de la particule. Ceci est étudié en utilisant la boîte à outils de simulation Geant4 (Allison et al., 2016). Les particules étudiées sont des sphères ayant des rayons allant de 0.1 µm à 50 µm. Les simulations sont réalisées pour des particules de tungstène et des particules d'acier dans un environnement sous vide suivant une méthode de calcul Monte-Carlo développée précédemment (Dougniaux et al., 2019). Pour ces simulations, nous allons considérer que le tritium est distribué de manière homogène dans une couche superficielle de 100 nm d'épaisseur. Le choix d'une telle répartition est étayé par le fait que la présence d'oxygène a été récemment découverte dans les poussières collectées dans le tokamak JET (Otsuka et al., 2018 ; Rubel et al., 2020) renforçant l'hypothèse d'une couche d'oxyde natif (WO_x) sur les particules de tungstène même dans un environnement type tokamak. De plus, Sharpe et al. (2018, 2019) ont récemment montré que la solubilité du tritium dans la couche d'oxyde natif de l'acier est très supérieure à celle de l'acier brut. Après avoir exposé pendant 24 h à température ambiante des échantillons d'acier à une atmosphère de tritium, ils ont mis en évidence que 40 à 50 % de l'inventaire en tritium se trouvait en surface dans une couche de quelques dizaines de nanomètre.

5.4.1 Probabilité d'échappement des électrons

La probabilité d'échappement des électrons est définie pour chaque taille de particule par le rapport du nombre d'électrons qui sortent de la particule sur le nombre total d'électrons générés. Le spectre β du tritium est utilisé pour la distribution d'énergie des électrons et la simulation est exécutée avec environ 20 000 tests d'un million d'électrons chacun. Les

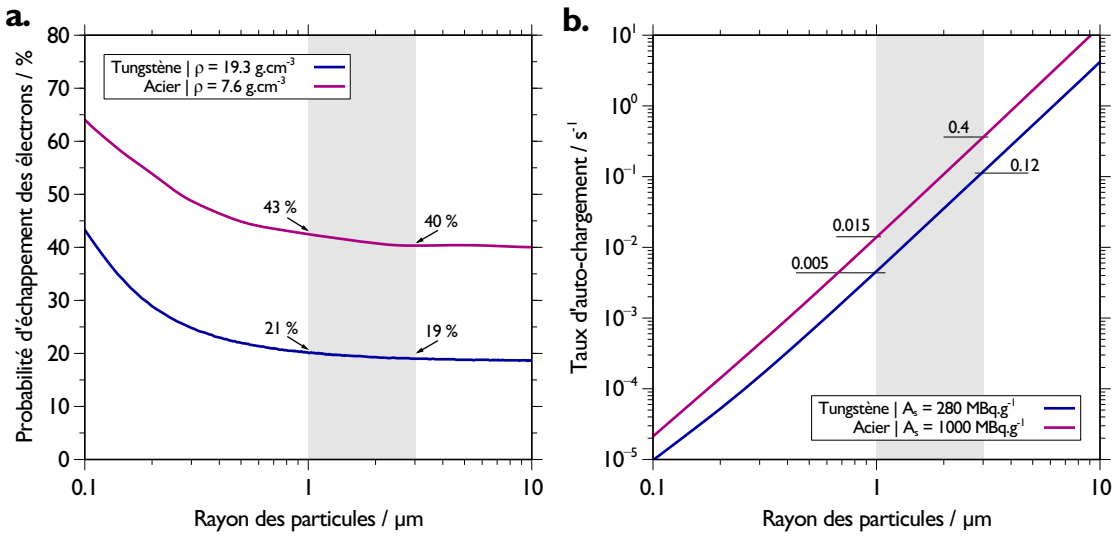

Figure 5.19 – a. Probabilités d'échappement des électrons en fonction du rayon des particules de tungstène ou d'acier. **b.** Taux d'auto-chargement pour les deux matériaux en fonction du rayon des particules.

probabilités d'échappement des électrons pour les deux matériaux étudiés sont présentées dans la figure 5.19-**a**. Dans le cas du tungstène ($\rho = 19.3$ g cm^{-3}), les probabilités d'échappement des électrons sont respectivement de 21 % et 19 % pour des particules dont les rayons sont de 1 µm et 3 µm respectivement. Dans le cas de l'acier ($\rho = 7.6$ g cm^{-3}), les probabilités d'échappement des électrons sont plus élevées du fait de la densité plus faible du matériau. Pour des particules de 1 µm et 3 µm de rayon, elles sont respectivement de 43 % et 40%. Sur la base de ces calculs de probabilités d'échappement des électrons, il est possible de calculer les taux d'auto-chargement des particules en fonction de leur taille pour une activité spécifique définie.

5.4.2 Taux d'auto-chargement des particules

Les activités spécifique en tritium de 280 MBq g^{-1} dans le cas du tungstène (poudre AF5) et de 1000 MBq g^{-1} dans le cas de l'acier (voir § 5.1.2), sont sélectionnées pour ces calculs. Les taux d'auto-chargement obtenus pour ces deux matériaux sont reportés sur la figure 5.19-**b** pour des rayons de particules compris entre 0.1 µm et 10 µm. Les zones grises des figures 5.19-**a** et 5.19-**b** représentent la gamme de taille de particules que j'ai étudié par KPFM à la section précédente. Les taux d'auto-chargement correspondant à ces deux populations de particules sont donnés directement dans la figure 5.19-**b**. Dans le cas du tungstène, les taux d'auto-chargement sont faibles, avec respectivement, 0.005 et 0.12 électrons émis par seconde pour des particules de 1 µm et 3 µm de rayon. Pour des particules d'acier de mêmes tailles, les taux d'auto-chargement sont de 0.015 et 0.4 respectivement. En d'autres termes, toujours en considérant que nous sommes sous vide, une particule de tungstène de

3 µm de rayon va acquérir en moyenne 432 charges élémentaires (positives) par heure. Une particule d'acier de même taille acquerra en moyenne 1440 charges élémentaires par heure. Pour ces états de charge, la force image (éq. 2.44) vaut environ 5 pN pour la particule de tungstène et 30 pN pour la particule d'acier.

5.4.3 Auto-chargement sous vide

Dans le cas où ces particules sont sous vide, leur état de charge est entièrement piloté par le taux d'auto-chargement et elles vont se charger positivement au cours du temps jusqu'à atteindre une charge limite. Cette charge maximale est atteinte lorsque le champ auto-généré à la surface de la particule atteint la valeur requise pour l'émission spontanée de charges positives. Lorsque cette limite est dépassée, la densité de charges à la surface de la particule provoque leur éjection par répulsion mutuelle. Pour une particule sphérique, le nombre limite de charges n_L portées par la particule est donnée par Hinds (1999) :

$$n_L = \frac{R_p^2 E_L}{16 K e} \qquad \text{avec} \qquad K = \frac{1}{4\pi\epsilon_0}, \tag{5.16}$$

où $E_L = 9 \times 10^8$ V m^{-1} est le champ électrique requis pour l'émission spontanée de charges positives depuis la surface de la particule. On remarquera que cette expression ne dépend pas de la nature du matériau constituant la particule. Pour les rayons étudiés (1 µm et 3 µm), le nombre maximal de charges supportées par les particules est respectivement de 39 100 et 351 883 ce qui correspond à une force image de 20 nN pour une particule de 1 µm de rayon et de 1.58 µN pour une particule de 3 µm de rayon. Pour les particules d'acier, ces états de charges seront atteint respectivement au bout de 30 jours et 10 jours. Pour les particules de tungstène, les temps pour arriver à la charge limite sont respectivement de 90 jours et de 34 jours. Les valeurs des forces images calculées pour ces deux exemples sont du même ordre de grandeur ou supérieures aux forces de van der Waals. Dans ces cas là, la force image contribuera de manière importante à l'adhésion des particules sur les surfaces. Il faut toutefois mentionner que nous avons ici négligé tout les phénomènes externes pouvant avoir lieu dans un environnement tokamak (champs électrique, diffusion d'ions, recombinaison, photo-émission, etc.).

5.4.4 Auto-chargement à l'air ambiant

Dans le cas où les particules sont exposées à l'air ambiant, leur charge électrique va dépendre, en plus de l'auto-chargement dû au tritium, des concentrations en ions présents dans l'air. Il va donc y avoir une évolution temporelle de la charge électrique jusqu'à une situation d'équilibre entre la production et la neutralisation de charges sur les particules.

Cette situation est plutôt complexe à modéliser, en particulier dans notre cas à cause de la géométrie du problème. L'approche la plus simple pour calculer le nombre de charges n présentes sur une particule, en prenant en compte son taux d'auto-chargement m dû à un émetteur β, consiste à considérer une particule unique en suspension dans l'air et à l'équilibre électrostatique avec son milieu environnant. Cette approche est donnée par Clement and Harrison (1992) et Clement and Harrison (2000) selon la relation :

$$n = \frac{m\epsilon_0}{(e\mu_- N_-)}, \tag{5.17}$$

avec ϵ_0 la permittivité du vide, e la charge élémentaire, $\mu_- = 1.25 \cdot 10^{-4}\ \mathrm{m^2\,V^{-1}\,s^{-1}}$ la mobilité électrique des ions négatifs et N_- la concentration des ions négatifs dans le milieu ambiant. Compte tenu de la faible énergie du rayonnement β du tritium, je ne vais pas considérer ici l'ionisation des molécules de l'air qui entoure les particules, le nombre de paires d'ions créées étant très inférieur à la concentration en ions naturels. L'équation 5.17 ainsi obtenue ne dépend plus que du taux d'auto-chargement m, de la concentration N_- et de la mobilité μ_- des ions négatifs. Grâce aux calculs Monte Carlo réalisés précédemment, nous connaissons les taux d'auto-chargement des particules en fonction de leur activité spécifique en tritium. De plus, la durée de demi-vie du tritium étant de 12.3 ans, nous pouvons considérer que les taux d'auto-chargement des particules sont constants.

Pour la suite des calculs, je vais prendre en compte une concentration en ions négatifs dans l'air du laboratoire entre 100 $\mathrm{cm^{-3}}$ et 300 $\mathrm{cm^{-3}}$ (Ling et al., 2010) et considérer une activité spécifique de 280 $\mathrm{MBq\,g^{-1}}$ pour les particules de tungstène et de 1000 $\mathrm{MBq\,g^{-1}}$ pour les particules d'acier.

Dans ces conditions, il est intéressant de représenter le nombre de charges n pour différentes tailles de particules. Ces données sont présentées sur la figure 5.20 pour des particules ayant des rayons entre 0.5 µm et 5 µm. L'activité spécifique des particules d'acier étant plus élevée que celle des particules de tungstène, on constate logiquement que leurs états de charge à l'équilibre sont plus importants. Par exemple, le nombre de charges portées par une particule d'acier de 2 µm de rayon sera compris entre 165 et 466 charges selon que la concentration en ions dans l'air est de 300 $\mathrm{cm^{-3}}$ ou 100 $\mathrm{cm^{-3}}$. Pour une particule de tungstène de même taille, le nombre de charges portées par la particule sera entre 38 et 114. J'ai reporté sur la figure 5.20 les états de charge obtenus par KPFM sur les particules d'acier chargées en tritium (voir figure 5.18). Ces données correspondent aux états de charge mesurés sur les particules tritiées auxquels j'ai soustrait l'état de charge moyen (donné par l'ajustement linéaire $\overline{n} = 168R_p$) trouvé pour les particules d'acier "neutres". Ils sont compris entre 58 et 219 charges positives par particules. On constate que ces résultats sont du même ordre de grandeur que les calculs effectués avec le modèle de Clement and Harrison (2000) en considérant les taux d'auto-chargement obtenus par méthode Monte Carlo et pour des concentrations en ions négatifs dans l'air entre 100 et 300 $\mathrm{cm^{-3}}$. En-

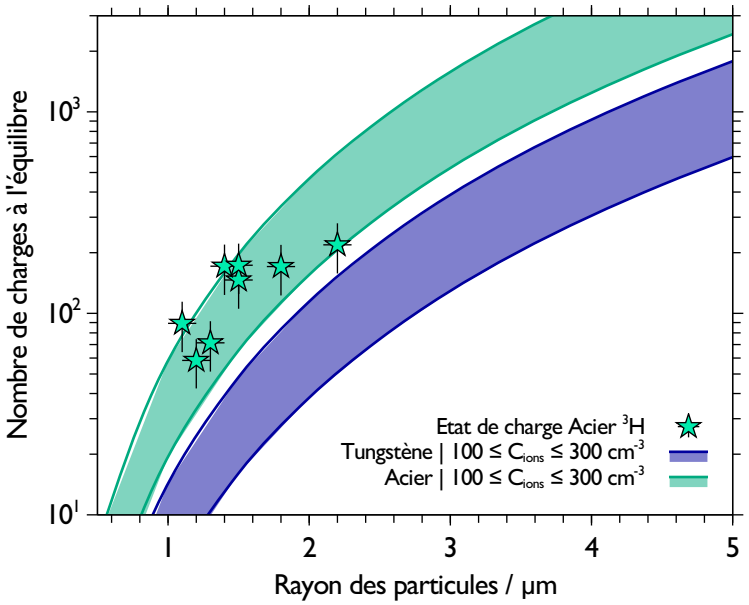

Figure 5.20 – États de charge à l'équilibre des particules d'acier et de tungstène en fonction de la taille des particules pour les deux concentrations en ions négatifs. Les états de charges trouvés par KPFM (figure) pour les particules d'acier tritiées sont représentés par les points étoilés.

core une fois, je rappel que ce calcul constitue une estimation, correspondant à une limite supérieure de l'état de charge, dans le cas idéal où la particule est loin de toute surface et soumise uniquement à un potentiel correspondant à ceux mesurés par KPFM. Pour ces états de charges, la force image est très réduite, entre 0.2 et 2.5 pN, et sa contribution dans l'adhésion devient négligeable.

5.5 Conclusion du chapitre

J'ai montré dans ce chapitre qu'il est possible de mesurer l'état de charge de particules marquées en tritium grâce à la microscopie à sonde de kelvin (KPFM). Dans la première partie, nous avons vu comment charger les particules en tritium et quelles sont les activités spécifiques des poudres de tungstène et d'acier composées de particules sphériques de tailles micrométriques. Nous avons observé que l'activité spécifique des poudres dépend fortement de leur surface spécifique et que, pour des particules micrométriques, ces activités sont relativement faibles. Pour des particules de tungstène de diamètre $D_{50N} = 3.3$ µm, l'activité spécifique en tritium est de 280 MBq g^{-1}. Pour des particules d'acier de diamètre $D_{50N} = 3$ µm, l'activité spécifique est plus élevée et vaut environ 1000 MBq g^{-1}.

J'ai ensuite présenté la procédure expérimentale (fabrication des échantillons, technique KPFM) qui m'a permis de réaliser des mesures de potentiel de surface sur des particules "neutres" et des particules tritiées. La sensibilité de cette technique a permis de mettre en

évidence une différence de potentiel de surface (environ 130 ± 77 mV) entre des particules d'acier "neutres" et des particules d'acier chargées en tritium. Bien que la méthode de mesure du potentiel de surface par KPFM sur des échantillons radioactifs soit déjà connue (Kim et al., 2014), les mesures que j'ai faites sur des particules uniques et radioactives n'ont, à ma connaissance, jamais été réalisées. En revanche, les mesures KPFM effectuées sur les particules de tungstène n'ont pas montré de différence notable du fait de la faible activité spécifique de cette poudre.

Par ailleurs, nous avons vu que la faible énergie du rayonnement β issu de la désintégration du tritium nécessite de calculer le taux d'auto-chargement des particules (en général pris égal à l'activité spécifique) en fonction de la probabilité d'échappement des électrons. Ces calculs de probabilités d'échappement ont été effectués par Grégoire Dougniaux (IRSN) à l'aide d'une méthode Monte Carlo (Dougniaux et al., 2019 ; Peillon et al., 2020) et ont permis de déduire les taux d'auto-chargement pour les deux poudres (acier et tungstène) étudiées dans ce travail. Sur la base de ces simulations, j'ai calculé l'état de charge des particules en prenant en compte la neutralisation par les ions présents dans l'air naturellement. La géométrie particulière du problème nous a poussé à faire des hypothèses importantes sur ces calculs. Cependant, les résultats obtenus sont du même ordre de grandeur que les états de charges obtenus en considérant les potentiels mesurés par KPFM et pour une capacité sphérique dans le vide. En revanche, ces états de charge sont très faibles ce qui rend la contribution des forces électrostatiques dans l'adhésion négligeable par rapport aux forces de van der Waals lorsque ces particules tritiées sont à l'air libre. La situation ou les particules seraient dans un environnement sous vide n'a pas pu être étudiée expérimentalement mais les calculs du § 5.4.3 montrent que les particules pourraient atteindre leur charge de saturation au bout de quelques dizaines de jours seulement.

Chapitre 6

Mesure de l'adhésion de particules radioactives via des écoulements d'air

Sommaire du chapitre

6.1 Étude de l'adhésion par des écoulements d'air 173
6.1.1 Les forces aérodynamiques 173
6.1.2 Modélisation de la mise en suspension 175
6.2 Mise en place des expériences 179
6.2.1 Réalisation des dépôts monocouches 179
6.2.2 Procédure expérimentale 181
6.3 Détermination de la fraction mise en suspension 182
6.3.1 Procédure de comptage 182
6.3.2 Fraction mise en suspension en fonction de la vitesse de frottement 183
6.4 Résultats des expériences de mise en suspension 184
6.4.1 Comparaison avec la littérature 184
6.4.2 Comparaison avec le modèle Rock'n roll 185
6.4.3 Influence de la radioactivité 186
6.4.4 Mesures des forces d'adhésion 187
6.5 Conclusion du chapitre 190

Je vais présenter dans ce dernier chapitre les expériences de mise en suspension par écoulements d'air que j'ai effectuées sur des poudres de tungstène neutres ou chargées en tritium. Je commencerai ce chapitre par un rappel des notions physiques utilisées pour décrire le phénomène de mise en suspension. Nous verrons à cette occasion deux modèles analytiques permettant de décrire les résultats des expériences et d'en déduire les forces d'adhésion des particules via la seule connaissance des forces aérodynamiques. Lorsque les poudres étaient radioactives, les expériences se sont déroulées en boîte à gants au laboratoire tritium de l'institut Joliot du CEA Saclay. Je décrirai le protocole expérimental utilisé ainsi que les différentes étapes, de la fabrication des dépôts de particules à leur analyse par microscopie optique, permettant de mener à bien ces études. Enfin, nous verrons comment obtenir des distributions de forces d'adhésion en fonction de la taille des particules et une comparaison avec la technique AFM utilisée précédemment avec des particules neutres sera donnée en fin de chapitre.

6.1 Étude de l'adhésion par des écoulements d'air

La mise en suspension de particules est le résultat d'une compétition entre différentes forces agissant à l'interface entre la particule et la surface et qui interviennent à différentes échelles physiques. Nous avons vu au début du **chapitre 4** plusieurs techniques pour mesurer l'adhésion des particules sur une surface. La technique AFM m'a servie pour mesurer localement l'adhésion entre une particule de tungstène unique et des substrats en tungstène. Nous avons pu établir l'évolution des forces d'adhésion en fonction de la taille des particules, de la rugosité des substrats et de la nature des matériaux. Cependant, réaliser une telle étude avec des particules radioactives greffées sur les leviers AFM n'a pas été possible car la phase de greffage est réalisée par un sous-traitant ne pouvant pas manipuler des sources radioactives. Ainsi, pour mesurer les forces d'adhésion agissant sur un ensemble de particules tritiées, j'ai choisi d'utiliser une méthode indirecte qui utilise des écoulements d'air pour provoquer le détachement des particules. Cette méthode de mesure des forces d'adhésion par mise en suspension des particules n'est pas nouvelle et la littérature sur le sujet est abondante. Le lecteur intéressé par un historique et un approfondissement du sujet pourra se tourner vers les travaux de Ziskind (2006) et de Henry and Minier (2014) qui offrent des revues exhaustives des études faites sur la mise en suspension de particules. L'utilisation du procédé de mise en suspension par écoulement d'air pour étudier l'adhésion des particules est notamment détaillée par Soltani and Ahmadi (1994) ; Guingo and Minier (2008) ; Ibrahim et al. (2008) ; Fillingham et al. (2019). On pourra également citer Jiang et al. (2008) qui ont étudié l'effet de la rugosité du substrat tandis que Matsusaka et al. (2015) ont étudié, à l'aide d'écoulements d'air calibrés, l'effet de la charge électrique de particules déposées sur des substrats métalliques en présence d'un champ électrique externe.

6.1.1 Les forces aérodynamiques

Une particule déposée sur une surface et exposée à un écoulement d'air va subir des forces de nature attractive (capillaire, électrostatique, van der waals) que nous avons vu en détails dans les **chapitres 2** et **4** ; et des forces de détachement (traînée et portance) issues de son interaction avec le fluide environnant. Ces dernières dépendent des propriétés du fluide (pression absolue, masse volumique, viscosité) et du régime d'écoulement (laminaire, turbulent). La combinaison de ces forces rendent la description du phénomène de mise en suspension relativement complexe et de nombreux modèles physiques ont été proposés. Dans les paragraphes qui suivent, je vais introduire la description des forces aérodynamiques (portance et traînée) agissant sur les particules ainsi que deux modèles dont je me suis servi dans cette étude.

6.1.1.1 La force de portance

La force de portance induite par un écoulement d'air turbulent sur une sphère en contact avec une surface solide plane et placée dans un écoulement cisaillé a été déterminée par Leighton and Acrivos (1985) comme :

$$F_P = 9.22\rho_f \nu_f (Re_p)^4, \tag{6.1}$$

où Re_p est le nombre de Reynolds de la particule ($Re_p = R_p u_\star / \nu_f$), ρ_f la masse volumique du fluide égale à 1.2 kg m^{-3} pour l'air dans les conditions normales de température et de pression (NTP), $u_\star$ la vitesse de frottement et ν_f la viscosité cinématique du fluide égale à $1.51 \cdot 10^{-5}$ m^2 s^{-1} dans les conditions NTP. Pour une particule se trouvant dans la sous-couche visqueuse, la force moyenne de portance peut se réécrire par (Hall, 1988) :

$$\overline{F_P} = 20.9\rho_f \nu_f^2 (Re_p)^{2.31}. \tag{6.2}$$

6.1.1.2 La force de traînée

Pour une particule sphérique déposée sur une surface, la force de traînée est parallèle à la surface. Dans le cas où l'écoulement est visqueux, O'Neill (1968) a déterminé que la force de traînée s'exerçant sur une sphère en contact avec une surface plane peut s'exprimer ainsi :

$$F_T = 6\pi f \mu_f u_\star R_p, \tag{6.3}$$

avec $f = 1.7$ un facteur de correction pour la force de traînée en proche paroi dans le régime de Stokes et μ_f la viscosité dynamique du fluide égale à $1.8 \cdot 10^{-5}$ Pa s dans les conditions NTP. Lorsque la particule est dans la sous-couche visqueuse, la force de traînée moyenne s'exerçant sur la particule est donnée par Ibrahim et al. (2003) et se réécrit :

$$\overline{F_T} = 6f\pi\mu_f u_\star R_p \left[1 + \frac{3}{8}Re_p + \frac{9}{40}Re_p^2 \ln(Re_p) + 0.1879 Re_p^2\right]. \tag{6.4}$$

On notera que les forces de traînée et de portance s'exerçant sur une particule peuvent être décomposées par leur moyenne $\overline{F_P}$ et $\overline{F_T}$ et les fluctuations f_{rms} autour de ces valeurs moyennes. Pour la force de portance, Hall (1988) a montré que le ratio $\frac{f_{\text{rms}}}{\overline{F_P}} \approx 0.2$. Plus récemment, Zhang et al. (2013) ont calculé numériquement que le ratio $f_{\text{rms}}/\overline{F_{\text{aero}}}$ peut atteindre 0.366 pour les deux forces aérodynamiques. Cependant, lors d'une précédente étude sur la mise en suspension de particules dans un tunnel aéraulique situé à Saclay, les mesures par anémométrie haute fréquence que j'avais réalisé montraient des fluctuations de la vitesse de l'écoulement d'air en proche paroi comprises entre 10 % et 20 % autour de

la vitesse moyenne (Peillon et al., 2014). Nous prendrons donc une valeur de 0.2 pour les fluctuations f_{rms} des forces de traînée et de portance dans la suite de cette étude.

6.1.2 Modélisation de la mise en suspension

Les modèles théoriques de mise en suspension de particules ont été, pour la plupart, développés en considérant simplement le cas de particules isolées et déposées en monocouche sur une surface plane. Ils sont en général de deux types : le premier est fondé sur le concept de « bouffées » turbulentes qui traversent la couche limite et inclut, pour qu'il y ait réentraînement, une rupture de l'équilibre entre les forces d'adhésion et les forces aérodynamiques. Ce type de modèle est couramment appelé "modèle de balance de forces" (Braaten et al., 1990 ; Soltani and Ahmadi, 1994 ; Benito et al., 2016) et je décrirait en particulier celui proposé par Ibrahim et al. (2003, 2008) dans le paragraphe 6.1.2.1. Celui-ci me servira à calculer les forces d'adhésion agissant sur les particules en fonction des vitesses des écoulements d'air qui ont servit à les mettre en suspension.

La seconde approche est basée sur le concept de transfert d'énergie turbulente à la particule et un bilan d'énergie potentielle (parfois appelée vibrationelle) acquise par la particule pour se détacher de la surface (Wen and Kasper, 1989 ; Reeks and Hall, 2001 ; Biasi et al., 2001 ; Guingo and Minier, 2008 ; Zhang et al., 2013). Ces modèles sont probabilistes et ont pour but de simuler la fonction de densité de probabilité (PDF) de certaines variables d'intérêt relatives aux particules. Ils présentent une approche cinétique du phénomène de mise en suspension en ce sens qu'ils introduisent le mouvement des particules autour d'un point pivot se trouvant sur la surface. Je présenterai le modèle Rock'n roll de Reeks and Hall (2001) au paragraphe 6.1.2.2. Ce modèle a récemment été adapté par Gelain et al. (2020) dans *Ansys CFX* pour estimer la mise en suspension des poussières dans une géométrie tokamak suite à un LOVA. Il sera utilisé dans la suite pour modéliser les expériences de mise en suspension.

Les résultats des expériences de mise en suspension et leur comparaison avec les modèles sont le plus souvent exprimés par la fraction de particules mises en suspension K_R donnant le rapport entre le nombre de particules mise en suspension, ΔN, sur le nombre de particules initialement déposées sur la surface N_0 tel que :

$$K_R = \frac{\Delta N}{N_0} = \frac{N_0 - N_f}{N_0}, \tag{6.5}$$

ou N_f est le nombre final de particules encore présentes sur la surface après l'exposition du dépôt à l'écoulement d'air.

6.1.2.1 Le modèle de balance de forces

Le modèle proposé par Ibrahim et al. (2003) admet que la particule repose entièrement dans la couche limite de l'écoulement. Elle est alors soumise aux quatre forces suivantes : le couple aérodynamique traînée F_T et portance F_P, la force de gravité $F_g = mg$ et les forces d'adhésion F_{adh}. Cette situation est schématisée sur la figure 6.1. Trois modes de

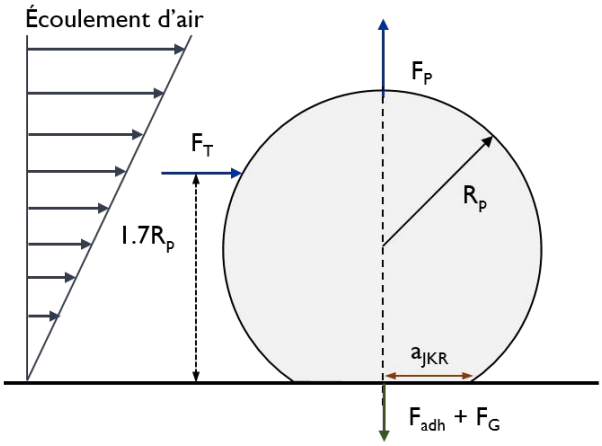

Figure 6.1 – Représentation du modèle de détachement d'Ibrahim et al. (2003).

détachement sont alors envisagés :

— le détachement direct qui implique :

$$F_P > F_{\text{adh}} + mg \tag{6.6}$$

— le glissement de la particule sur la surface :

$$F_T > k_s(F_{\text{adh}} + mg - F_P) \tag{6.7}$$

— ou le roulement qui se traduit par :

$$(1.7R_p)F_T + aF_P > a(F_{\text{adh}} + mg). \tag{6.8}$$

Le coefficient k_s de l'équation 6.7 correspond au coefficient statique de friction entre la particule et la surface. Le facteur 1.7 de la relation 6.8 permet de prendre en compte la présence de la paroi dans le calcul de la force de traînée (O'Neill, 1968) et le paramètre a décrit le rayon de contact de la particule. Ce rayon est généralement pris égal à celui calculé par le modèle JKR (Johnson et al., 1971) que nous avons déjà vu à la section 2.2.3, équation 2.12 du **chapitre 2**. Parmi les trois modes de détachement présentés plus haut, il a été montré (Soltani and Ahmadi, 1994 ; Ibrahim et al., 2008) que le troisième mode dit de "roulement" est majoritairement responsable du détachement des particules. De plus, la force de portance F_P est très inférieure à la force de traînée et, pour les tailles de particules considérées, la force de gravité F_g est négligeable. La relation 6.8 peut donc se réécrire

comme :

$$\left(\frac{1.7R_p}{a}\right) F_T > F_{\text{adh}}. \tag{6.9}$$

Ainsi, pour connaître la force d'adhésion des particules de rayon R_p qui ont été détachées par l'écoulement d'air, nous avons seulement besoin de calculer la force de traînée F_T et le rayon de contact a donné par le modèle JKR et l'équation 2.12.

6.1.2.2 Le modèle Rock'n roll

La figure 6.2 propose une description du mouvement de basculement/roulement (Rock'n roll) d'une particule sphérique isolée en contact avec deux points d'aspérités P et Q d'une surface tel que défini dans le modèle de Reeks and Hall (2001). Les différentes étapes du

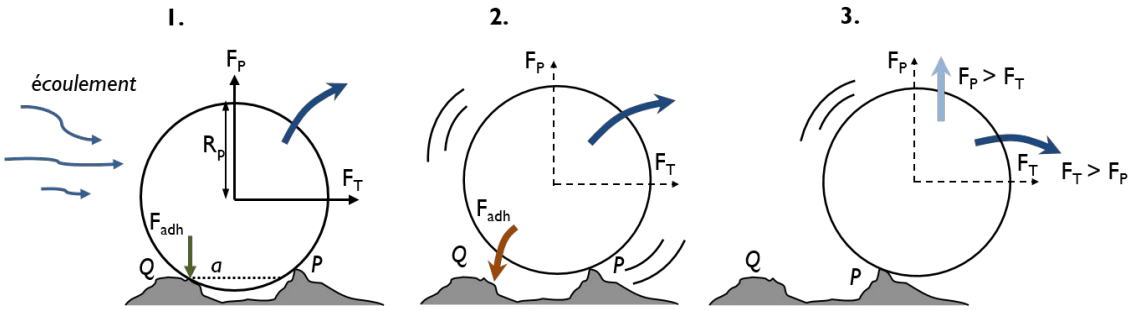

Figure 6.2 – Représentation du mouvement de basculement/roulement considéré par le modèle Rock'n roll.

mouvement peuvent être décomposées comme suit :

1. La particule repose sur les deux aspérités de la surface par l'action des forces d'adhésion.
2. La particule oscille autour du point P sous l'effet du couple traînée – portance qui tend à l'entraîner dans l'écoulement d'air, contrecarré par les forces d'adhésion qui tendent à la maintenir sur la surface.
3. La particule a accumulé suffisamment d'énergie vibrationnelle pour casser le contact avec le point d'aspérité P. Elle peut alors se soulever (si $F_P > F_T$ – peu plausible) ou bien se mettre à rouler (si $F_T > F_P$ – fort probable).

Le modèle Rock'n roll a été validé de nombreuses fois pour des dépôts monocouches et pour de larges gammes de tailles de particules et de vitesses de frottement (Biasi et al., 2001 ; Stempniewicz et al., 2008 ; Chatoutsidou and Lazaridis, 2018 ; Vincent et al., 2019). Les paramètres principaux du modèle sont : la taille des particules R_p (m), la vitesse de frottement $u_\star$ ($\mathrm{m\,s^{-1}}$), la viscosité cinématique du fluide ν_f ($\mathrm{m^2\,s^{-1}}$), la masse volumique du fluide ρ_f ($\mathrm{kg\,m^{-3}}$), l'énergie surfacique d'adhésion $\Delta\gamma$ ($\mathrm{J\,m^{-2}}$) et le temps d'exposition des particules à l'écoulement Δt (s). Pour décrire mathématiquement ce modèle, Reeks

and Hall (2001) supposent une distribution gaussienne des forces aérodynamiques F_R et une distribution lognormale des forces d'adhésion $\varphi\left(f_a'\right)$. Cette dernière s'écrit :

$$\varphi\left(f_a'\right) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}}\left(\frac{1}{f_a' \ln \sigma_a'}\right) \exp\left\{-\frac{1}{2}\left[\frac{\ln\left(f_a'/\overline{f_a'}\right)}{\ln \sigma_a'}\right]^2\right\} \tag{6.10}$$

avec $f_a' = f_a/F_{\text{JKR}}$ la force d'adhésion f_a normalisée par la force d'adhésion du modèle JKR, $\overline{f_a'}$ la moyenne géométrique de la force d'adhésion normalisée et σ_a' l'écart-type géométrique de la distribution des forces d'adhésion normalisées. Les auteurs proposent ensuite une expression du taux de mise en suspension $p(f_a)$ exprimé en s^{-1} pour les particules sujettes à la force d'adhésion f_a :

$$p(f_a) = n_\theta \exp\left[\frac{-\left(f_a - \overline{F_R}\right)^2}{2\sigma_R^2}\right] / \frac{1}{2}\left\{1 + \text{erf}\left[\frac{f_a - \overline{F_R}}{\sqrt{2}\sigma_R}\right]\right\} \tag{6.11}$$

avec $n_\theta = 0.00658\dfrac{u_\star^2}{\nu_f}$ la fréquence de résonance du système particule/surface, $\overline{F_R}$ la moyenne des forces aérodynamiques, et σ_R l'écart-type géométrique de la distribution des forces aérodynamiques. Dans le modèle de Reeks and Hall (2001), la moyenne $\overline{F_R}$ des forces aérodynamiques s'exprime par :

$$\overline{F_R} = 10.45\rho_f\nu_f^2\left[1 + 300(R_p^+)^{-0.31}\right](R_p^+)^{2.31}. \tag{6.12}$$

Le coefficient de mise en suspension K_R est alors donnée par :

$$K_R(\Delta t) = 1 - \int_0^\infty \varphi\left(f_a'\right) \cdot \exp\left[-p\left(f_a\right) \cdot \Delta t\right] \times df_a \tag{6.13}$$

avec Δt le temps d'exposition des particules à l'écoulement d'air. Sur la base de plusieurs expériences de mise en suspension impliquant différentes tailles de particules et différents substrats, Biasi et al. (2001) ont proposé des corrélations semi-empiriques pour la distribution moyenne des forces d'adhésion normalisées et l'écart-type de cette distribution tel que :

$$\overline{f_a'} = 0.016 - 0.0023 \times R_p^{0.545}, \tag{6.14}$$

$$\sigma_a' = 1.8 + 0.136 \times R_p^{1.4}. \tag{6.15}$$

On notera que $\overline{f_a'}$ peut être interprété comme un indicateur de la réduction de l'adhésion provoquée par la rugosité de la surface tandis que σ_a' représente l'étalement de la distribution des forces d'adhésion. Ayant été établie sur un grand nombre d'expériences, cette corrélation est souvent critiquée pour son manque de précision lorsqu'il s'agit de modéliser une situation particulière (Stempniewicz and Komen, 2010 ; Henry and Minier, 2014). Cependant, la large gamme de taille de particules et de vitesses de frottement avec lesquelles elle a été construite en font un outil flexible qui s'avère utile lorsque la forme et les tailles de particules ainsi que la rugosité du substrat ne sont pas maîtrisés. Nous avons ainsi pu tester

cette corrélation à plusieurs reprises sur l'installation expérimentale BISE qui se trouve à Saclay (Peillon et al., 2014 ; Rondeau, 2015 ; Gelain et al., 2020).

6.2 Mise en place des expériences

Pour réaliser des expériences de mise en suspension à l'aide d'écoulements d'air maîtrisés sur des poudres radioactives, il a fallu penser et adapter un protocole expérimental qui puisse être implémenté en boîte à gants. Les contraintes d'espace et de manipulation sont donc fortes et un dispositif miniature pouvant s'opérer facilement est indispensable. Ainsi, j'ai naturellement choisi d'utiliser le dispositif Duster Box qui nous avait servi au **chapitre 3** pour faire des prélèvements de poussières dans le tokamak WEST. Ce dispositif possède un canal aéraulique de 4 cm de long par 2 cm de large que nous avons déjà caractérisé numériquement et expérimentalement à la section 3.1.1. De plus, l'appareil est équipé de filtres THE en aval du canal aéraulique, empêchant ainsi la dispersion de la poudre radioactive dans l'atmosphère de la boîte à gants. Le système permettant de réaliser les dépôts de poudres ainsi que la procédure de mesure de la fraction mise en suspension sont abordés dans les paragraphes suivants.

6.2.1 Réalisation des dépôts monocouches

Pour ces expériences, j'ai utilisé la poudre de tungstène W25 que nous avons déjà présenté à la section 3.3. Cette poudre a été chargée en tritium selon la procédure détaillée au paragraphe 5.1.1. Afin de pouvoir faire un comptage par microscopie optique du nombre de particules détachées par les écoulements d'air, les poudres de tungstène sont dispersées sur des lames de verre standard (26×76 mm^2), sur une zone de 12×40 mm^2 correspondant à la zone balayée par le flux d'air de la Duster Box. A chaque dispersion, quatre dépôts sont donc réalisés en même temps à l'aide d'un porte-lames accueillant quatre lames en verre. Pour ce faire, les lames sont recouvertes par un masque en acier inoxydable visible sur la figure 6.3 possédant des ajournements correspondants aux dimensions des dépôts que l'on souhaite réaliser.

Pour la dispersion de la poudre et la réalisation des dépôts, le porte-lame est placé à l'intérieur d'une cloche de dispersion de 16 cm de diamètre et 18 cm de hauteur. La poudre est injectée à travers un orifice situé en haut de la cloche et est dispersée uniformément sur 201 cm^2 via un pulse d'air comprimée à 2 bars. Au préalable, la cloche est mise en dépression (100 mbar absolu) à l'aide d'une pompe à vide afin de prévenir le soulèvement de la cloche au moment où le pulse d'air comprimé disperse les particules. La surface totale représentée par les quatre dépôts sur chacune des lames de verre équivaut à 19.2 cm^2.

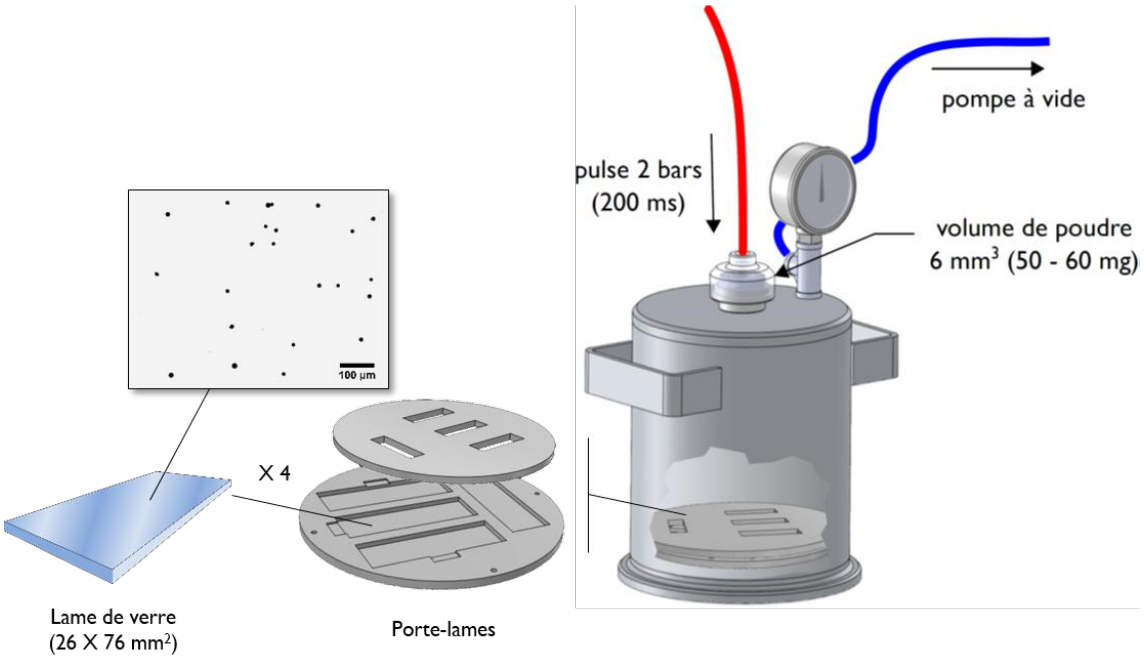

Figure 6.3 – Représentation du porte-lames et du masque permettant le dépôt des particules sur des zones définies et sur quatre lames de verre en même temps. L'image de microscopie optique montre des particules individuelles bien séparées les unes des autres sur la lame de verre.

Un volume calibré de poudre (généralement 6 mm^3) est utilisé pour chaque procédure de dispersion. Avec la poudre W25, ce volume correspond à environ 50 mg de poudre de tungstène (pour une compacité de 0.5) ce qui donne une masse de poudre par unité de surface d'environ 0.2 $mg\,cm^{-2}$ soit environ 3.8 mg de poudre par lame de verre.

En considérant une activité spécifique de 110 $MBq\,g^{-1}$ pour cette poudre W25, l'activité sur une lame de verre peut être estimée à 400 kBq soit une activité totale d'environ 1.6 MBq sur les quatre lames. On notera que cette activité est très inférieure à la limite autorisée par l'ADR (1 GBq) pour l'exemption d'une source de tritium. En revanche, les particules étant simplement déposées sur les lames de verre, ces échantillons sont considérés comme des sources non scellées. De plus, le microscope optique servant à faire les comptages de particules est situé en dehors de la boîte à gants, dans un autre bâtiment sur le centre du CEA Saclay. Il a donc fallu réaliser un support étanche, adapté à la platine du microscope et permettant d'accueillir les quatre lames de verre. Ce support est composé d'un cadre en aluminium sur lequel viennent se positionner les lames et qui est pris en sandwich par des vitres transparentes afin de pouvoir compter les particules. Des joints viennent sceller ces vitres sur le support en aluminium au moyen de vis réparties autour du support.

6.2.2 Procédure expérimentale

Une fois les dépôts effectués, les quatre lames de verre sont installées, toujours en boîte à gants, dans le support en aluminium. Celui-ci est ensuite scellé et un contrôle radiologique sur ses surfaces externes est effectué par le SPR du CEA pour autoriser sa sortie de la boîte à gants et son transport vers le bâtiment de l'IRSN où se trouve le microscope. Le microscope utilisé pour effectuer le comptage des particules est un microscope optique Morphologi G3 *Malvern*. Cet appareil peut fonctionner en lumière incidente ou réfléchie et dispose d'un logiciel de traitement d'image permettant d'appliquer des filtres lors du comptage des particules. Ainsi, lors de mes mesures, un filtre de circularité (> 0.97) est systématiquement appliqué pour ne compter que les particules sphériques. De même, les particules d'un diamètre supérieur à 18 µm et inférieur à 10 µm sont éliminées du dénombrement.

Une fois ce décompte initial effectué, le support en aluminium contenant les quatre échantillons retourne dans la boîte à gants nucléarisée du laboratoire tritium du CEA. Les quatre échantillons sont alors successivement placé dans un support réalisé sur mesure qui permet d'accueillir une seule lame de verre. La Duster Box est ensuite positionnée dans ce support recouvrant ainsi la lame de verre. Le débit d'air de fonctionnement de la Duster Box (70 ou 110 $\mathrm{L\,min^{-1}}$) doit être réglé avant l'expérience. Le temps d'exposition du dépôt de particules au flux d'air est de 10 secondes. Les quatre dépôts sont exposés de la même manière pour chaque configuration de débit (70 ou 110 $\mathrm{L\,min^{-1}}$). Ils sont ensuite repositionnés dans le support en aluminium qui est à nouveau scellé et contrôlé avant son retour au bâtiment de l'IRSN. Les particules restantes sur les lames de verre sont recomptées en utilisant les mêmes filtres (tailles et circularité) qu'auparavant.

L'ensemble de cette procédure (dépôt des particules, contrôles, transferts, comptages, mise en suspension) demande entre 3 et 4 jours de travail et mobilise au minimum 4 personnes à chaque fois. L'utilisation de la Duster Box, combinée aux capacités d'analyses du Morphologi G3, s'avère ici très pratique car nous obtenons, pour une seule série d'expériences (ce qui correspond à exposer les quatre lames au même écoulement d'air), les fractions de mise en suspension pour plusieurs tailles de particules et pour différentes vitesses de frottement. L'obtention de ces fractions de mise en suspension est détaillée ci-après.

6.3 Détermination de la fraction mise en suspension

6.3.1 Procédure de comptage

Je vais prendre ici pour exemple une série d'expériences réalisées avec un échantillon de la poudre W25 qui n'a pas été chargé en tritium. Les quatre dépôts de particules sont comptés avant et après avoir été exposés aux écoulements d'air issus de la Duster Box. Le débit d'air utilisé est ici de $70\,\mathrm{L\,min^{-1}}$. Le dépôt de particules est divisé en dix segments de 4 mm de hauteur par 12 mm de largeur. Chacun de ces segments correspond aux dix zones du canal de la Duster Box que nous avons caractérisées en terme de vitesses de frottement au § 3.1.2 du **chapitre 3**. Cette procédure est schématisée sur la figure 6.4-**a**. Les fractions mise en suspension obtenues en fonction de la position le long du canal de la Duster Box sont présentées sur la figure 6.4-**b** pour quatre classes de tailles allant de 10 µm à 18 µm de diamètre. Chaque point représente la moyenne et l'écart-type de la fraction mise en suspension obtenue pour quatre répétitions de la même expérience pour une classe de taille de particules et une position donnée. En effectuant les comptages sur les dix segments du canal de la Duster Box, on constate que la fraction mise en suspension varie considérablement selon la région analysée. Pour une même classe de taille, cette efficacité

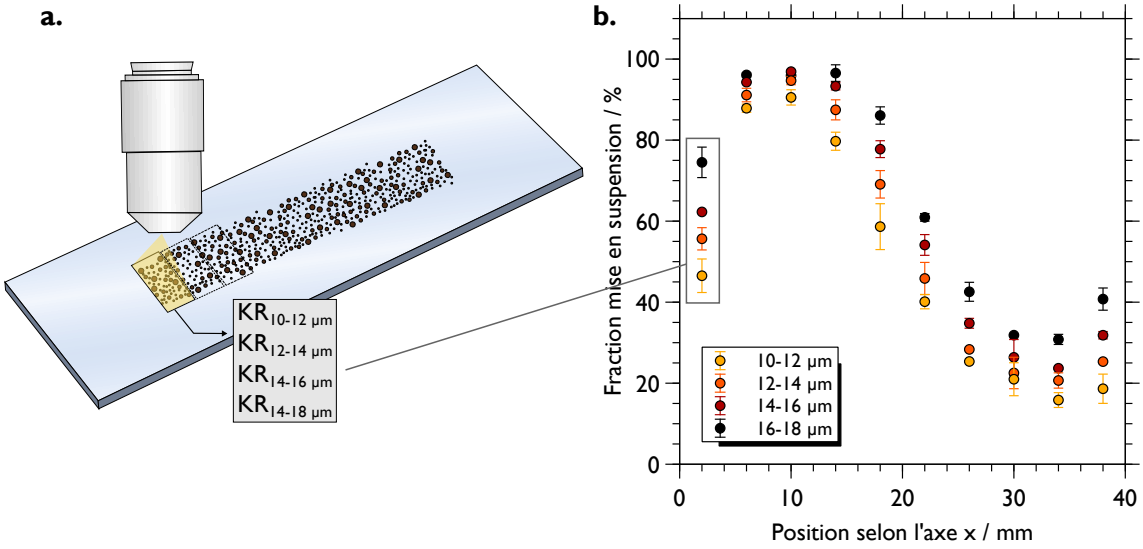

Figure 6.4 – a. Schéma de la procédure de comptage avec le microscope sur les dix segments de 4×12 mm^2 le long du dépôt. **b.** Fractions mise en suspension obtenue pour quatre classes de tailles avec la poudre W25 pour un débit d'air de $70\,\mathrm{L\,min^{-1}}$ dans la Duster Box.

peut varier de 20 % à 90 %, par exemple pour des particules de la classe 10-12 µm. On peut également noter que la fraction de mise en suspension est systématiquement plus élevée, en tout point du canal, pour les particules de plus grands diamètres. Les expériences de mise en suspension avec la Duster Box et les particules sphériques de tungstène montrent ici une bonne répétabilité et le débit d'air utilisé permet de couvrir de 20 % à 100 % d'efficacité

de détachement des particules sphériques de tungstène ayant un diamètre compris entre 10 µm et 18 µm.

6.3.2 Fraction mise en suspension en fonction de la vitesse de frottement

Compte tenu des cartographies de vitesse de frottement établies par simulations numériques à l'aide d'*Ansys CFX* au **chapitre 3** (§ 3.1.2, figure 3.6), on peut associer à chacun des dix segments de 4×12 mm^2 une vitesse de frottement moyenne. Il est ainsi possible de corréler la fraction mise en suspension mesurée dans une zone particulière le long du canal de la Duster Box à la vitesse de frottement moyenne spécifique à cette zone. Ces transformations sont données sur la figure 6.5 où j'ai représenté la fraction de mise en suspension moyennée (avec les écart-types correspondants) sur quatre tests en fonction de la vitesse de frottement moyenne pour les quatre classes de tailles étudiées ici. Certains points intéressants peuvent être extraits de ces graphiques. Les débits d'air utilisés permettent d'obtenir une remise en suspension complète des particules de tungstène mais également de produire une large gamme de vitesses de frottement entre 0.5 m s^{-1} et 3.5 m s^{-1} donnant l'opportunité de couvrir une large gamme de fractions de mise en suspension. Ces expériences nous permettent également d'identifier les seuils de vitesse de frottement, c'est-à-dire la vitesse

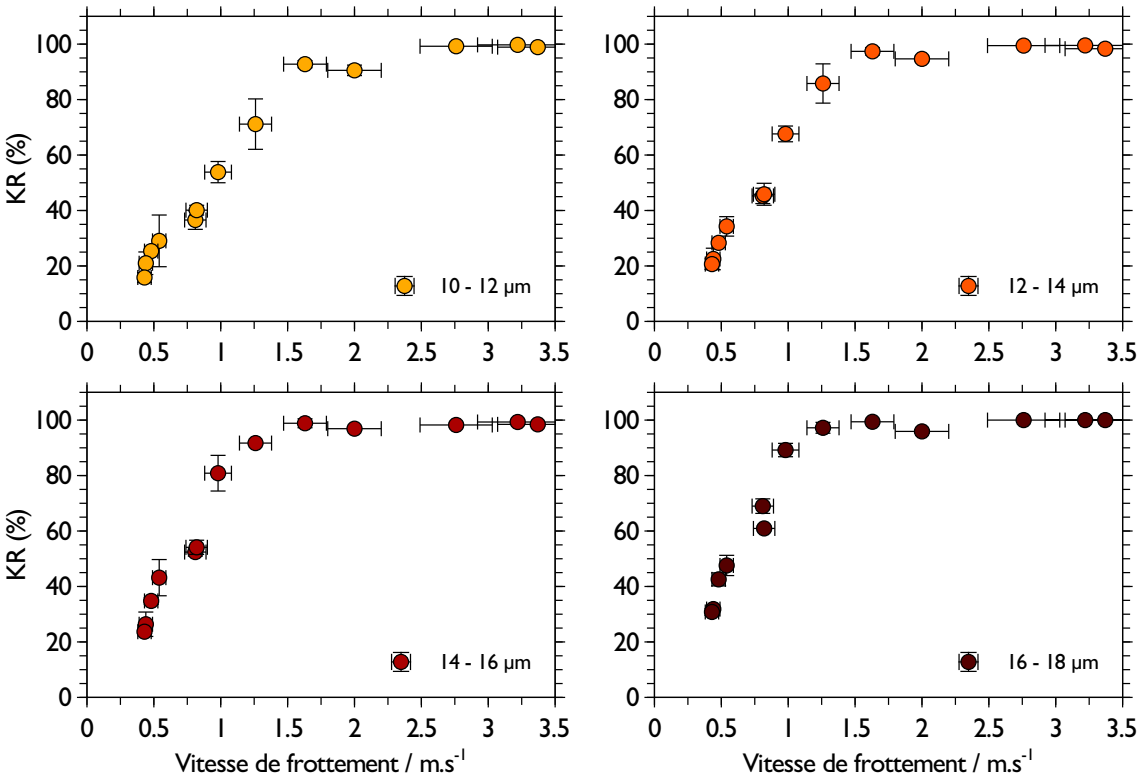

Figure 6.5 – Fractions mise en suspension en fonction de la vitesse de frottement pour la poudre W25 neutre pour chacune des quatre classes de tailles.

de frottement pour laquelle 50 % des particules sont détachées, pour chaque classe de taille de particules. Ces seuils de vitesse de frottement sont égaux à 0.87 m s^{-1}, 0.76 m s^{-1}, 0.71 m s^{-1} et 0.65 m s^{-1} pour les classes de tailles de 10-12 µm, 12-14 µm, 14-16 µm et 16-18 µm respectivement.

6.4 Résultats des expériences de mise en suspension

6.4.1 Comparaison avec la littérature

Les résultats obtenus au paragraphe précédent peuvent être comparés à d'autres expériences de mise en suspension issues de la littérature dont les paramètres (vitesses de frottement, matériau du substrat, taille et forme des particules) sont similaires. Les trois études que j'ai retenu pour cette comparaison ont toutes été faites avec des particules sphériques déposées sur des substrats en verre. Par exemple, Reeks and Hall (2001) ont validé leur modèle avec deux poudres d'alumine (Al_2O_3, $\rho = 3.9$ g cm^{-3}) dont les diamètres géométriques médian sont respectivement de 12 µm et 23 µm. De même, Barth et al. (2014) ont réalisé leurs expériences avec des particules de titanate de baryum ($\rho = 4.1$ g cm^{-3}) dont le diamètre géométrique médian est de 25 µm. Enfin, Ibrahim et al. (2003) ont utilisé des billes de verre (SiO_2, $\rho = 2.3$ g cm^{-3}) de 30 µm de diamètre. Les fractions de mise en suspension obtenues par ces différentes études sont comparées avec les données obtenues avec la poudre de tungstène W25 ($\rho = 18.3$ g cm^{-3}) sur la figure 6.6. Afin de faciliter la lecture, je représente uniquement les moyennes des fractions mise en suspension. L'ensemble de ces

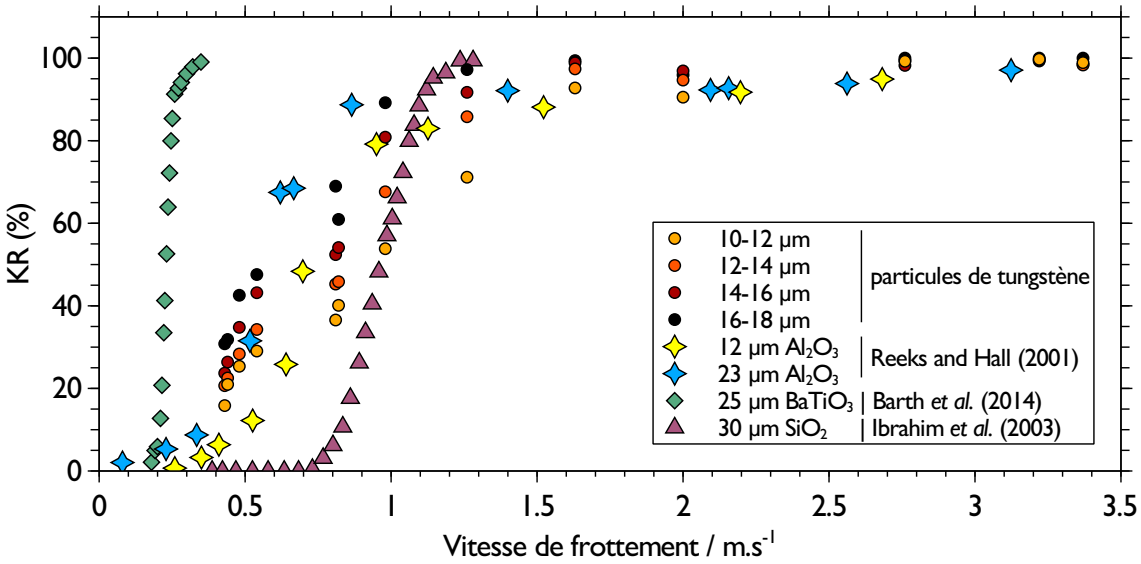

Figure 6.6 – Fractions de mise en suspension en fonction de la vitesse de frottement pour les particules de tungstène W25, des particules d'alumine (Reeks and Hall, 2001), de titanate de baryum (Barth et al., 2014) et de verre (Ibrahim et al., 2003).

études étant effectuées dans des conditions aérodynamiques similaires (écoulements d'air turbulents et gammes de vitesses égales), on constate que la taille des particules ainsi que les matériaux dont elles sont constituées influencent fortement leur mise en suspension. De plus, les vitesses de frottement utilisées étant semblables, les différences observées peuvent s'expliquer essentiellement par une modification des forces d'adhésion entre les particules et les substrats. Or, les substrats sont tous des surfaces en verre et seule l'énergie d'adhésion (ou la constante de Hamaker) des matériaux constituant les particules est modifiée. On notera cependant que la rugosité des surfaces n'est généralement pas donnée dans ces études. Il ressort de cette comparaison que les choix des paramètres décrivant l'adhésion des particules sur les surfaces vont avoir un rôle prépondérant pour modéliser la mise en suspension. Je propose dans le prochain paragraphe d'utiliser le modèle Rock'n roll de Reeks and Hall (2001) pour décrire le comportement des particules de tungstène.

6.4.2 Comparaison avec le modèle Rock'n roll

Nous avons vu au paragraphe 6.1.2.2 que la prise en compte des forces d'adhésion dans le modèle Rock'n roll se fait en normalisant une distribution log-normale par la force d'adhésion donnée par le modèle JKR (éq. 2.16, § 2.2.3.1). Outre la taille de la particule, ce modèle est dépendant de l'énergie surfacique d'adhésion $\Delta\gamma$ qui se calcule comme la somme des énergies d'adhésion des matériaux en contact. Dans le cadre de la théorie de Hamaker, nous avons vu au paragraphe 2.2.2 que l'énergie d'adhésion γ peut se calculer suivant la relation 2.11 que je rappelle ici :

$$\gamma = \frac{A}{24\pi(0.128\text{nm})^2} \tag{6.16}$$

où A est la constante de Hamaker du matériau considéré. J'ai montré au **chapitre 4** que la constante de Hamaker du tungstène est d'environ 450 zJ. La constante de Hamaker du SiO_2 est référencée dans la littérature autour de 66 zJ dans les NTP (Das et al., 2007). En utilisant la relation 6.16, on obtient donc des énergies d'adhésion de $0.36\,\text{J}\,\text{m}^{-2}$ et $0.05\,\text{J}\,\text{m}^{-2}$ pour le tungstène et le dioxyde de silicium respectivement. Ainsi, l'énergie surfacique d'adhésion a considérer dans mes expériences est $\Delta\gamma = 0.41\ \text{J}\,\text{m}^{-2}$. La figure 6.7 donne les calculs effectués avec le modèle Rock'n roll que j'ai introduit en début de chapitre (§ 6.1.2), en considérant l'énergie surfacique d'adhésion que nous venons de déterminer et la corrélation semi-emprique de Biasi et al. (2001). On constate que les résultats expérimentaux sont très bien décrits par le modèle pour cette énergie surfacique d'adhésion. De plus, la corrélation de Biasi et al. (2001) s'applique bien dans notre cas où la rugosité de la surface est faible (surface en verre) et les particules sont sphériques.

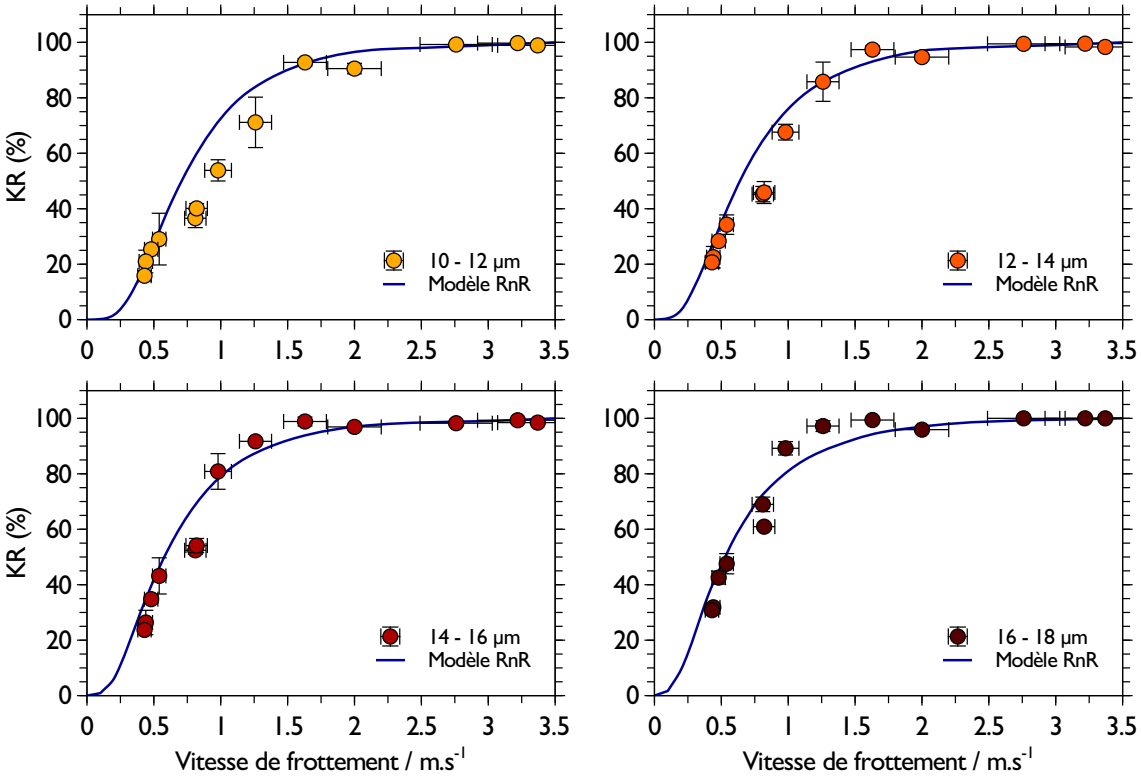

Figure 6.7 – Fractions de mise en suspension en fonction de la vitesse de frottement pour les particules de tungstène W25 neutres. Comparaison avec le modèle de Reeks and Hall (2001) pour une énergie surfacique d'adhésion $\Delta\gamma = 0.41\ \mathrm{J\,m^{-2}}$.

6.4.3 Influence de la radioactivité

La même méthodologie a été suivie avec de la poudre W25 chargée en tritium. Les données obtenues avec cette poudre tritiée, dont l'activité spécifique est de $110\ \mathrm{MBq\,g^{-1}}$, sont représentées sur la figure 6.8. Les données précédemment obtenues avec la poudre "neutre" sont également reportées à des fins de comparaison. Compte tenu des écart-types trouvés pour ces mesures, nous pouvons considérer que les fractions de mise en suspension entre les particules tritiées et non tritiées sont équivalentes. De même, les seuils de vitesse de frottement correspondant aux vitesses pour lesquelles 50 % des particules sont mises en suspension, sont identiques au cas précédent avec les particules neutres. Ce résultat n'est pas surprenant étant donné la faible activité spécifique de ces particules de tungstène micrométriques (voir § 5.1.2). En effet, nous avons vu au **chapitre 5** (§ 5.4) que les taux d'auto-chargement imputables à l'activité spécifique des particules de tungstène sont très faibles. Cette caractéristique a été confirmée par les mesures KPFM (§ 5.3.2) qui n'ont pas mis en évidence une différence de potentiel de surface entre ces particules tritiées et les particules neutres. J'ajouterai que les lames de verre utilisées dans ces expériences de mise en suspension sont des substrats diélectriques (la permittivité relative du verre est $\kappa \approx 5$) ce qui aura pour effet de réduire l'influence de la force image par rapport au cas d'un substrat

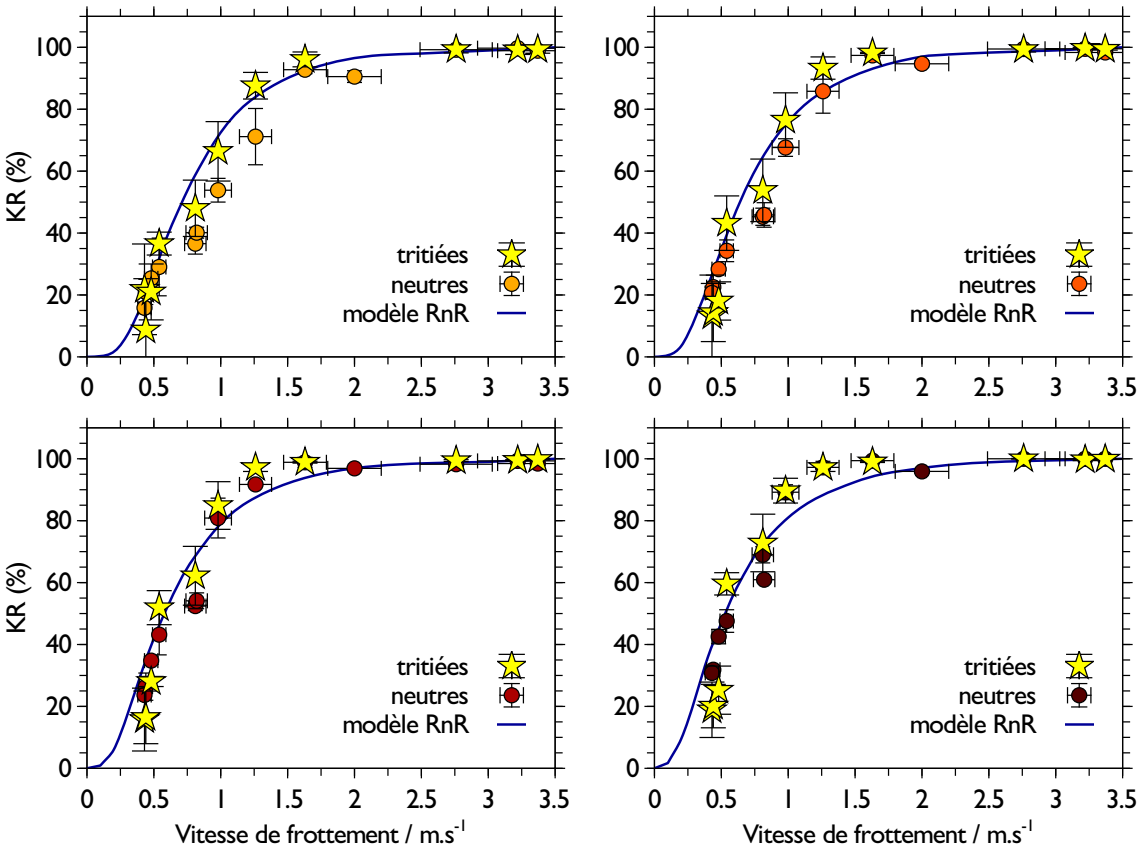

Figure 6.8 – Fractions de mise en suspension en fonction de la vitesse de frottement pour les particules de tungstène W25 neutres et chargées en tritium.

conducteur, la charge image Q' étant égale à $Q(\frac{\kappa_{\text{verre}}-\kappa_m}{\kappa_{\text{verre}}+\kappa_m})$ avec κ_m la permittivité relative du milieu environnant (pour l'air, $\kappa_m \approx 1$ soit $Q' \approx \frac{2}{3}Q$).

6.4.4 Mesures des forces d'adhésion

A partir du modèle proposé par Ibrahim et al. (2003) et détaillé au paragraphe 6.1.2.1, il est possible d'utiliser les résultats des expériences de mise en suspension avec les particules de tungstène (figure 6.8) pour calculer les forces d'adhésion pour lesquelles il y a un équilibre des forces lorsque KR $= 50\%$ pour une taille de particule donnée. Cette approche a été récemment utilisée par Fillingham et al. (2019) avec des particules de silice déposées sur une surface en verre. Dans notre cas, les forces d'adhésion sont calculées à partir de la relation 6.9. Pour ce faire, nous avons besoin de calculer la force de traînée F_T exprimée par l'équation 6.4 dont les variables sont le rayon R_p des particules et la vitesse de frottement $u_\star$. Afin de simplifier les calculs, je vais représenter les classes de tailles de particules par leurs diamètres médians, soit 11 µm, 13 µm, 15 µm et 17 µm. Nous avons également besoin de calculer le rayon de contact a en fonction des propriétés élastiques des matériaux (module de Young E_i et coefficient de Poisson ν_i), de l'énergie surfacique

d'adhésion $\Delta\gamma = 0.4$ J m^{-2} et de la taille des particules. Les modules de Young du verre et du tungstène sont respectivement de 69 GPa et 406 GPa. Leurs coefficients de Poisson sont de 0.25 et 0.28. En utilisant l'équation 2.14 pour calculer le critère d'élasticité K, nous obtenons une valeur de 84.1 GPa dans le cas d'une interaction tungstène/verre. Pour les tailles de particules considérées ici, nous obtenons alors des rayons de contact compris entre 140 nm et 186 nm.

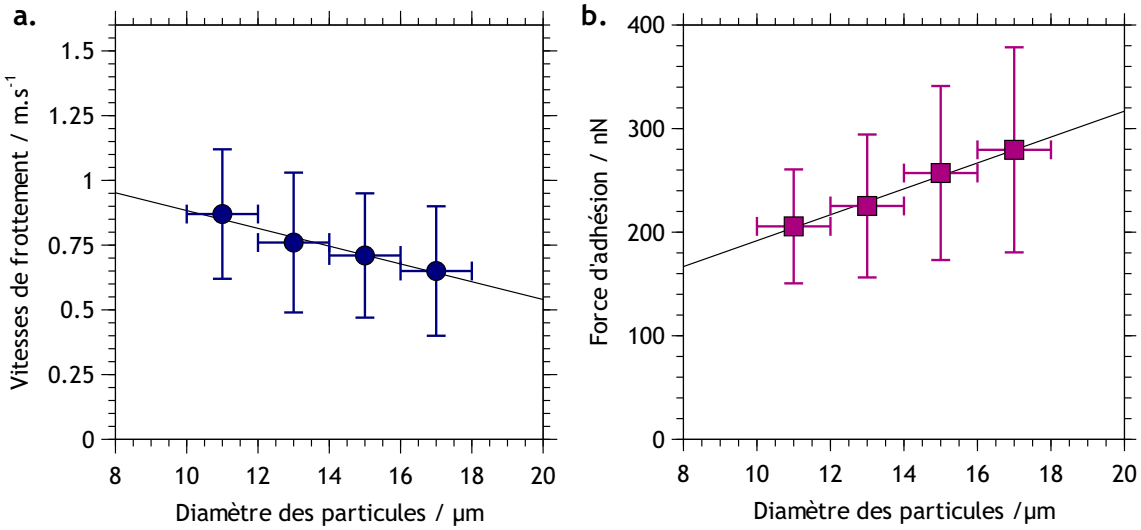

Figure 6.9 – a. Vitesses de frottement seuils obtenues pour le détachement de 50 % des particules de tungstène en fonction de leur taille. **b.** Forces d'adhésion correspondantes calculées avec le modèle d'Ibrahim et al. (2003).

Les vitesses de frottement seuils et les calculs des forces d'adhésion sont représentés sur la figure 6.9 pour chaque diamètre médian. Par exemple, pour des particules de 11 µm de diamètre, nous avons constater une vitesse de frottement seuil de 0.87 ± 0.25 m s^{-1} ce qui correspond à une force d'adhésion de 206 ± 55 nN. Ce raisonnement est répété pour chaque diamètre médian étudié dans ces expériences. On observe alors que la vitesse de frottement seuil diminue lorsque le diamètre des particules augmente tandis que la force d'adhésion calculée à partir de la vitesse de frottement et du rayon de contact particule/surface augmente. Pour la gamme de taille de particules utilisées ici, il est possible de décrire l'évolution de la vitesse de frottement seuil et de la force d'adhésion en fonction du diamètre des particules (en µm) avec les relations :

$$u_\star = 1.23 - 0.03 \times D_p, \tag{6.17}$$

$$Fa = 66.75 + 12.50 \times D_p. \tag{6.18}$$

Nous pouvons également comparer ces résultats aux mesures de forces d'adhésion effectuées par microscopie à force atomique (AFM) et présentées au **chapitre 4** (§ 4.5.1, figure 4.23). En effet, le système particule/substrat (particules de tungstène W25 sur une surface en verre) est identique dans ces deux expériences. Cette comparaison est donnée dans la figure 6.10 où j'ai reporté les forces d'adhésion déduites des expériences avec la Duster

Box pour chaque classe de taille ainsi que les forces d'adhésion obtenues en utilisant la corrélation de Biasi et al. (2001) avec une énergie surfacique d'adhésion de $0.4\,\mathrm{J\,m^{-2}}$. Le modèle de Rabinovich et al. (2000b) tel que calculé au **chapitre 4** pour ce système particule/surface (soit une constante de Hamaker de 163 zJ et un intervalle de confiance de 10 %) est également reporté sur le graphique. Pour la gamme de taille de particules étu-

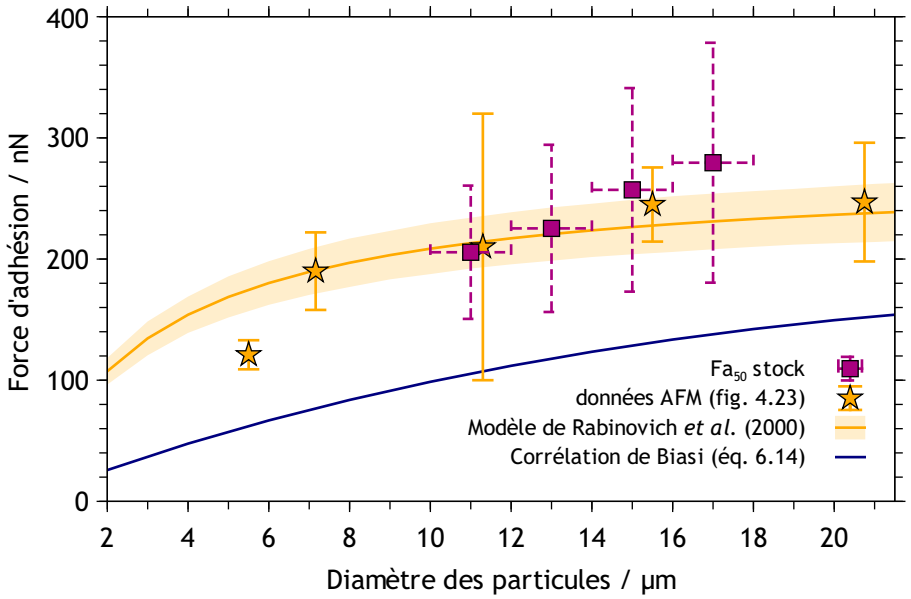

Figure 6.10 – Comparaison entre les forces d'adhésion mesurées par AFM et celles obtenues avec la Duster Box pour des particules de tungstène W25 déposées sur un substrat en verre.

diées ici, on constate que les forces d'adhésion obtenues par la méthode développée avec la Duster Box sont tout à fait en accord avec les mesures AFM effectuées avec des particules uniques de tungstène de tailles similaires. Par exemple, la moyenne de la force d'adhésion obtenue par AFM pour une particule de 15.5 µm de diamètre est de 245 ± 30 nN tandis que les données obtenues avec la Duster Box montrent que des particules de 15 µm de diamètre constituant les dépôts ont une force d'adhésion égale à 257 ± 84 nN. L'augmentation des forces d'adhésion avec la taille des particules est également en accord avec les calculs issus du modèle de Rabinovich et al. (2000b), apportant une preuve supplémentaire de la pertinence de ce modèle pour représenter les forces d'adhésion d'un ensemble de particules déposées sur une surface dont la rugosité est connue. De plus, l'accord entre les deux techniques de mesures met une nouvelle fois en évidence la pertinence du mode PF-QNM utilisé au **chapitre 4** pour effectuer les mesures de forces. En effet, dans le cadre d'études sur la mise en suspension, on constate ici que faire des mesures de forces avec une seule particule mais répétées des milliers de fois sur une zone relativement grande de la surface offre une statistique suffisante pour rendre compte du comportement d'un dépôt de poudre composé de milliers de particules de différentes tailles et réparties aléatoirement sur la surface. Enfin, on constate que les forces d'adhésion calculées avec la théorie JKR (Johnson et al., 1971) et la corrélation de Biasi et al. (2001) sont inférieures aux forces obtenues à partir des résultats expérimentaux. Je rappel ici que cette corrélation a été établie sur un

grand nombre d'expériences de mise en suspension comportant des substrats rugueux et des particules non-sphériques. A l'inverse, dans mes expériences, le substrat en verre possède une très faible rugosité et les particules sont sphériques. La corrélation de Biasi *et al.* est donc utilisée ici en dehors de sont domaine de validité et ces différences de rugosité du substrat et de forme des particules expliquent les écarts observés.

6.5 Conclusion du chapitre

Nous avons vu dans ce chapitre que l'étude de l'adhésion de particules via leur mise en suspension par des écoulements d'air nécessite une bonne connaissance des forces aérodynamiques qui agissent sur les particules. Profitant de la caractérisation aéraulique du dispositif Duster Box effectuée précédemment au **chapitre 3**, j'ai montré que son utilisation permet d'obtenir les forces d'adhésion agissant sur un ensemble de particules déposées en monocouche sur une surface. De surcroît, le protocole expérimental que j'ai présenté permet, de part le faible encombrement du dispositif Duster Box, de réaliser des expériences de mise en suspension et de déterminer l'adhésion de particules radioactives.

En utilisant le modèle de balance de forces proposé par Ibrahim et al. (2003), j'ai ainsi pu calculer des valeurs de forces d'adhésion pour des particules de tungstène neutres ou chargées en tritium. Nous avons vu que les forces ainsi trouvées sont identiques à celles acquises avec des particules de tungstène neutres. Ce résultat confirme que l'activité spécifique de ces poudres tritiées est trop faible pour provoquer la charge électrostatique des particules et induire une augmentation de l'adhésion via la force image. Compte tenu des résultats trouvés au **chapitre 5** sur les états de charge des particules d'acier, il serait intéressant de répéter les expériences de mise en suspension avec les poudres d'acier tritiées et sur une plus grande gamme de taille. En revanche, l'accord entre ces différentes expériences de mise en suspension avec la poudre de tungstène montre la bonne répétabilité et la précision du protocole de mesure que nous avons développé. Ceci est à nouveau confirmé par la comparaison faite avec les mesures de forces d'adhésion obtenues par AFM.

J'ai également montré que ces expériences de mise en suspension sont très bien décrites par le modèle de Reeks and Hall (2001) lorsque l'énergie surfacique d'adhésion du système particule/surface est calculée dans le cadre de la théorie de Hamaker. Pour le couple tungstène/verre, une énergie surfacique d'adhésion égale à $0.4\,\mathrm{J\,m^{-2}}$ a été obtenue et vient remettre en question la valeur, dix fois supérieure, de $4.4\,\mathrm{J\,m^{-2}}$ qui est généralement utilisée dans les études qui concernent la mise en suspension de particules de tungstène (Gélain et al., 2015 ; Riva et al., 2017 ; Feuillebois et al., 2020). Ce point est particulièrement intéressant car il souligne l'importance de mes travaux sur la constante de Hamaker du tungstène que nous avons vu au **chapitre 4** et montre que l'omniprésence de la rugosité

sur les surfaces favorise une description de l'adhésion basée sur les forces de van der Waals plutôt qu'une description purement thermodynamique telle que proposée par les modèles JKR et DMT.

Chapitre 7

Conclusions générales et perspectives

L'assemblage du tokamak d'ITER a débuté en mai 2020 par l'installation de la base du cryostat, élément le plus volumineux et le plus lourd du tokamak. En juillet 2020, l'agence ITER estime ainsi que le projet est finalisé à hauteur de 63 % et devrait être complété en 2025, date à laquelle un premier plasma doit voir le jour. Les plasmas "nucléaires", générateurs d'énergie, devront attendre encore 10 ans avant de brûler au cœur de la machine. Ces dix années de qualifications et de tests avec des plasmas d'hydrogène, d'hélium et de deutérium, serviront à ajuster les innombrables paramètres de la machine, apprendre à piloter le plasma et former les personnels. Cette longue phase permettra également un retour d'expérience indispensable sur le comportement du tokamak et l'usure de ses composants. Car les défis technologiques et scientifiques d'ITER pour démontrer la faisabilité de la production d'électricité via la fusion nucléaire sont très nombreux. Parmi ces défis, la gestion des poussières produites à l'intérieur de la machine et la prévention des risques qui leur sont associés, devront être abordés. En effet, nous avons vu au **chapitre 1** que les interactions plasma/paroi qui ont lieu dans un tokamak peuvent produire de grandes quantités de poussières. La connaissance des caractéristiques physico-chimiques de ces particules est un pré-requis pour leur gestion et pour les études de sûreté du réacteur. En particulier, nous avons vu que la mise en suspension et la transformation de ces poussières en aérosol est un mécanisme critique pour la sûreté de l'installation qu'il faut pouvoir étudier et anticiper. Ce phénomène de mise en suspension est notamment gouverné par les forces d'adhésion qui agissent entre les particules et les surfaces sur lesquelles elles sont déposées. La compréhension et l'évaluation de ces forces d'adhésion, notamment lorsque les particules sont chargées en tritium, ont constitué le cœur de mon travail de thèse.

Ainsi, j'ai rappelé au **chapitre 2** que les forces contribuant à l'adhésion sont essentiellement gouvernées par trois familles de forces : les forces de van der Waals, les forces capillaires et les forces électrostatiques. Les forces de van der Waals sont omniprésentes aux contacts entre des objets microscopiques mais peuvent être considérablement réduites lorsque la rugosité des surfaces est grande. Lorsque le système particule/surface est soumis aux conditions de l'air ambiant, nous avons vu que les forces capillaires, provoquées par l'apparition

d'un ménisque liquide à l'interface entre les objets, peuvent devenir importantes. Nous avons ensuite abordé le rôle des forces électrostatiques pour différents cas. En effet, les différentes composantes de la force électrostatique (force de Coulomb, force image et force diélectrophorétique) seront affectées par les propriétés diélectriques des particules. De plus, lorsque le substrat est radioactif, nous avons observé que la force image favorise l'adhésion et peut, dans ce cas, être du même ordre de grandeur que la force capillaire ou les forces de van der Waals.

J'ai ensuite montré au **chapitre 3** les différentes méthodes de collectes disponibles pour faire des prélèvements de poussières dans un tokamak. J'y ai présenté le dispositif Duster Box que nous avons construit et son originalité par rapport aux autres méthodes couramment utilisées. Grâce à ce dispositif, nous avons pu collecter un certain nombre de poussières dans le tokamak WEST du CEA. Ces prélèvements de poussières sont en effet indispensables pour comprendre les mécanismes dominant la formation de ces particules dans les tokamaks équipés de parois en tungstène. Le développement du système de collecte et la méthodologie expérimentale associée doivent être poursuivis. L'analyse des caractéristiques physiques (tailles et formes) et chimiques (compositions) des particules prélevées à différents endroits de la chambre à vide de WEST a montrée des particules métalliques de grandes tailles ($> 10\,\mu m$), certaines ayant une forme sphérique. Ces analyses m'ont permis de sélectionner, pour mon travail en laboratoire, des poudres de tungstène simulantes composées de particules sphériques dans la gamme de taille 1 - 20 µm. Je les ai notamment utilisées pour mesurer leurs forces d'adhésion lorsqu'elles sont en contact avec des substrats de différentes natures et présentant différentes rugosités.

Ces mesures de forces ont été effectuées à l'aide d'un microscope à force atomique (AFM) dont j'ai présenté le fonctionnement au **chapitre 4**. Grâce à cet instrument, j'ai pu déterminer les constantes de Hamaker pour des particules de tungstène en contact avec une surface en verre (160 ± 10 zJ) ou avec un surface en tungstène (454 ± 47 zJ). Ces valeurs sont en très bon accord avec les valeurs théoriques issues de la littérature (Tolias, 2018, 2020) et la méthode expérimentale que j'ai suivie pourra servir à évaluer la constante de Hamaker d'autres couples particule/substrat composés de matériaux différents (par exemple le béryllium qui est un matériau d'intérêt pour ITER). De plus, les mesures de forces d'adhésion effectuées en mode PF-QNM ont montrées une diminution d'un ordre de grandeur des forces de van der Waals par rapport à leur valeur théorique lorsque le substrat présente une rugosité nanométrique. Avec des rugosités de surface semblables à celles des CFP en tungstène installés dans un tokamak ($rms > 100$ nm), nous avons constaté une diminution supplémentaire de deux ordres de grandeur de l'adhésion des particules de tungstène par rapport à une surface lisse. Ce dernier point renforce donc l'hypothèse d'une mise en suspension importante en cas de LOVA et dans le cas où les particules sont simplement déposées sur les surfaces. Ceci est étayé par le bon accord entre les expériences de mise en suspension effectuées au **chapitre 6** et le modèle de Reeks and Hall (2001) lorsque

l'énergie surfacique d'adhésion du système particule/surface est calculée dans le cadre de la théorie de Hamaker. Pour le couple tungstène/verre, une énergie surfacique d'adhésion égale à $0.4\,\mathrm{J\,m^{-2}}$ a été obtenue et vient remettre en question la valeur, dix fois supérieure, de $4.4\,\mathrm{J\,m^{-2}}$ qui est généralement utilisée dans les études qui concernent la mise en suspension de particules de tungstène (Gélain et al., 2015 ; Riva et al., 2017 ; Feuillebois et al., 2020 ; Gelain et al., 2020). Dans le cadre d'études sur la mise en suspension de particules, le recours aux mesures de forces d'adhésion (et de topographie des surfaces) par AFM mérite d'être systématique. L'adaptation des modèles de mise en suspension et d'une méthodologie expérimentale appropriée constituent des perspectives importantes à ce travail de thèse.

Pour poursuivre l'étude de l'adhésion des particules présentes dans un tokamak, j'ai montré au **chapitre 5** qu'il est possible de mesurer l'état de charge de particules marquées en tritium grâce à la microscopie à sonde de kelvin (KPFM). A cette occasion, nous avons vu le protocole expérimental permettant de charger les particules en tritium. Nous avons alors observé que l'activité spécifique des poudres dépend fortement de leur surface spécifique et que, pour des particules micrométriques, ces activités sont relativement faibles. Cependant, la sensibilité de la technique KPFM m'a permis de mettre en évidence une différence de potentiel de surface (environ 130 ± 77 mV) entre des particules d'acier "neutres" et des particules d'acier chargées en tritium. Bien que la méthode de mesure du potentiel de surface par KPFM sur des échantillons radioactifs soit déjà connue (Kim et al., 2014), les mesures que j'ai faites sur des particules uniques et radioactives n'ont, à ma connaissance, jamais été réalisées. Il serait intéressant de poursuivre ce type d'étude en réalisant un plus grand nombre de mesures afin d'avoir une meilleure représentation statistique de l'état de charge des particules en fonction de leur taille et de leur activité. Sur ce point, nous avons observé que les mesures effectuées sur les particules de tungstène n'ont pas montré de différences notables du fait de la faible activité spécifique de cette poudre. En effet, la faible rétention du tritium par le tungstène ainsi que la très faible surface spécifique des particules microniques indiquent que l'inventaire en tritium dans les poussières de tokamak sera essentiellement supporté par les fines particules ($< 1\,\mu\mathrm{m}$) des éléments plus légers tel que le béryllium ou les aciers. Reproduire les expériences de marquage en tritium et de mesure du potentiel de surface par KPFM sur des particules d'aluminium ou de magnésium [1] de faible taille constitue, à mon sens, un axe de recherche intéressant.

Par ailleurs, nous avons vu que la faible énergie du rayonnement β issu de la désintégration du tritium nécessite de calculer le taux d'auto-chargement des particules (en général pris égal à l'activité spécifique) en tenant compte de la probabilité d'échappement des électrons. Ces calculs de probabilités d'échappement ont été effectués par méthode Monte Carlo (Dougniaux et al., 2019 ; Peillon et al., 2020) et ont permis de déduire les taux d'auto-chargement pour les deux poudres (acier et tungstène) étudiées dans ce travail. Sur

1. ces éléments sont proches, chimiquement, du béryllium et sont parfois utilisés comme simulant.

la base de ces simulations, j'ai calculé l'état de charge des particules en prenant en compte la neutralisation par les ions présent naturellement dans l'air. La géométrie particulière du problème nous a poussé à faire des hypothèses importantes sur ces calculs. Cependant, les résultats obtenus sont du même ordre de grandeur que les états de charges obtenus en considérant les potentiels mesurés par KPFM et pour une capacité sphérique dans le vide. En revanche, ces états de charge sont très faibles ce qui rend la contribution des forces électrostatiques dans l'adhésion négligeable par rapport aux forces de van der Waals lorsque ces particules tritiées sont à l'air libre. La situation ou les particules seraient dans un environnement sous vide n'a pas pu être étudiée expérimentalement mais les calculs montrent que les particules pourraient atteindre leur charge de saturation au bout de quelques dizaines de jours seulement. Il apparaît ainsi que la maîtrise de la concentration en ions dans l'air lors des mesures KPFM pourrait bénéficier à la précision des mesures de l'état de charge des particules. Une solution qui peut être envisager est de disposer un ioniseur d'air, produisant une quantité égale en ions positifs et négatifs, à proximité de l'échantillon juste avant la mesure KPFM. Cela permettrait de neutraliser la surface de l'échantillon et des particules à un temps t_0 pour ensuite observer l'augmentation du potentiel de surface des particules dû à leur auto-chargement.

Ces résultats sont confirmés par les expériences de mise en suspension que j'ai présenté au **chapitre 6**. Profitant de la caractérisation aéraulique du dispositif Duster Box effectuée précédemment, j'ai montré que son utilisation permet de déterminer les forces d'adhésion agissant sur un ensemble de particules déposées en monocouche sur une surface. De surcroît, le protocole expérimental permet de part le faible encombrement du dispositif, de réaliser des expériences de mise en suspension avec des particules radioactives en boîte à gants. En utilisant le modèle de balance de forces proposé par Ibrahim et al. (2003), j'ai ainsi pu estimer les forces d'adhésion agissant sur des particules de tungstène chargées en tritium. Nous avons vu que les forces ainsi trouvées sont identiques à celles acquises avec des particules de tungstène neutres. En revanche, l'accord entre ces différentes expériences de mise en suspension montre la bonne répétabilité et la précision du protocole de mesure que nous avons développé. Ce type d'étude pourra être reproduite en utilisant un substrat conducteur, par exemple, en déposant un revêtement par PVD (*Physical Vapor Deposition*) de quelques dizaines de nanomètres d'épaisseur laissant ainsi le substrat transparent pour une analyse optique par transmission. Dans le cas où les particules sont suffisamment grandes ($> 5\,\mu m$), il est également possible de remplacer la lame de verre par une plaque métallique, ayant toutefois les mêmes dimensions, et de réaliser l'analyse optique par réflexion.

Ce travail de thèse a montré l'importance de la mesure des forces d'adhésion dans l'évaluation des quantités de poussières pouvant être mise en suspension pour un scénario donné. A travers les différentes approches expérimentales développées, j'ai montré comment mesurer ces forces et quels sont les paramètres (forme des objets, nature et rugosité des ma-

tériaux, charge électrique) à maîtriser pour mener à bien ce type d'étude. Dans le cas des poussières de tungstène, les données d'adhésion et de mise en suspension obtenues pourront servir à valider l'implémentation de modèles de mise en suspension dans les codes de calcul utilisés pour l'analyse de sûreté d'ITER. D'autre part, les techniques expérimentales utilisées dans mon travail de thèse peuvent être transposées à d'autres domaines de recherches, que ce soit pour le spatiale (maîtrise des poussières lunaires ou martiennes), l'industrie (micro-électronique, pharmaceutique, agroalimentaire, etc.), la santé (contamination des surfaces et remise en suspension d'agents pathogènes) où l'environnement (formation de l'aérosol naturel par les vents, déposition et remise en suspension de contaminations anthropiques).

Annexe A

1 La microscopie à force atomique (AFM)

L'AFM est une technique de microscopie à sonde locale qui permet d'étudier les propriétés physiques des matériaux à l'échelle nanométrique voir sub-nanométrique. Cette technique a été inventé par Binnig (1988) quelques années après l'invention de la microscopie à effet tunnel (STM). l'AFM est une technique bien plus flexible que le STM et permet d'imager des échantillons conducteurs ou non, dans les conditions ambiantes de températures et de pression. L'AFM est constitué de quatre éléments principaux qui sont visibles sur la figure 1 : la pointe et son levier (aussi appelé cantilever), le tube piezoélectrique, le laser et la photodiode. La pointe et le levier sont généralement en nitrure de silicium et un revêtement en

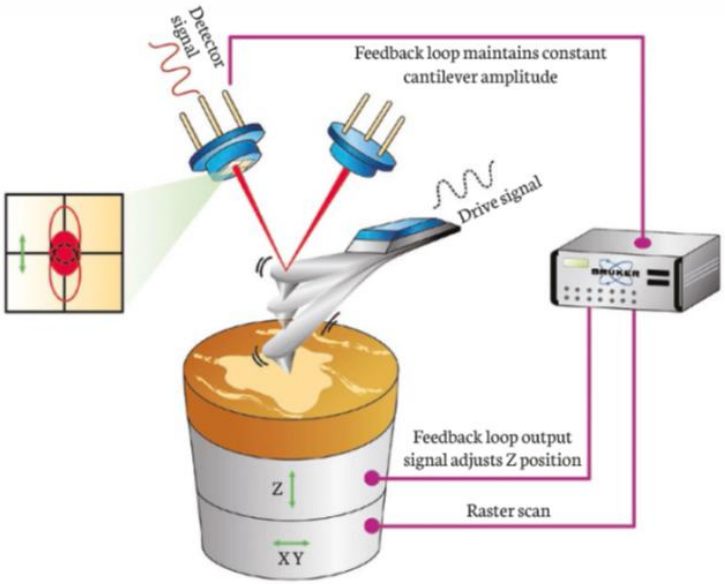

Figure 1 – Principe de fonctionnement de l'AFM d'après Bruker (2017).

aluminium sur la partie supérieure du levier permet de réfléchir le faisceau laser. La déformation du levier engendrée par les forces agissant entre la pointe et l'échantillon provoque ainsi une déflexion du faisceau laser qui est enregistrée par la photodiode. La position de la pointe est contrôlée dans les trois directions par le tube piézoélectrique. Lors d'une mesure, la pointe scanne la surface de l'échantillon ligne après ligne, le nombre de points par ligne

ainsi que le nombre de lignes par image sont renseignés par l'utilisateur. A chaque point, une grandeur dépendante du type d'interaction pointe/surface (électrostatique, van der Waals, capillaire, etc.) est enregistrée puis la position de la pointe est ajustée par rapport à une valeur consigne grâce à une boucle d'asservissement (ou *lock-in*).

1.1 Mode contact

Le mode contact est le plus intuitif et le premier mode à avoir été développé en AFM (Binnig et al., 1986). Il consiste à approcher de la surface le cantilever au bout duquel on fixe soit une pointe soit une particule. Ce mode permet de déterminer directement la force d'adhésion entre la pointe (ou une particule, alors greffée à la place de la pointe) et la surface. La relation entre la force d'adhésion et la déformation du levier étant linéaire, ce mode d'imagerie fonctionne à force constante. L'asservissement de l'AFM corrige la hauteur du levier de manière à garder la force constante en chaque point (iso-force). On obtient ainsi une image topographique de la surface. L'inconvénient de ce mode d'utilisation est l'apparition de forces latérales et de frottements relativement importantes qui peuvent entraîner la détérioration de la pointe ainsi que de l'échantillon. Une solution à ce problème est de faire osciller le cantilever pendant la mesure. C'est le principe de base des modes dynamiques.

1.2 Modes dynamiques

Les modes dynamiques sont essentiellement de deux types, le mode non-contact et le mode contact intermittent ou *tapping*. Dans le mode non-contact, le levier est mis en vibration à sa fréquence de résonance à quelques dizaines de nanomètres au-dessus de la surface. L'amplitude d'oscillation du levier est fixée et constante lorsque le levier est loin de la surface. Quand il est rapproché de l'échantillon, les interactions avec celui-ci vont modifier l'amplitude de vibration. Pour maintenir celle-ci constante, l'asservissement de l'AFM va à nouveau éloigner le levier de la surface proportionnellement au décalage sur l'amplitude d'oscillation. Ce mode à l'avantage de limiter les contacts entre la pointe et l'échantillon, améliorant la durée de vie des pointes sans endommager les surfaces sondées. Il est également sensible aux forces de plus longue portée comme les forces électrostatiques qui interviennent jusqu'à plusieurs dizaines de nanomètres au-dessus de la surface. On rappelle dans la figure 2 les distances d'interactions caractéristiques des forces entrant en jeux dans ce type de mesures.

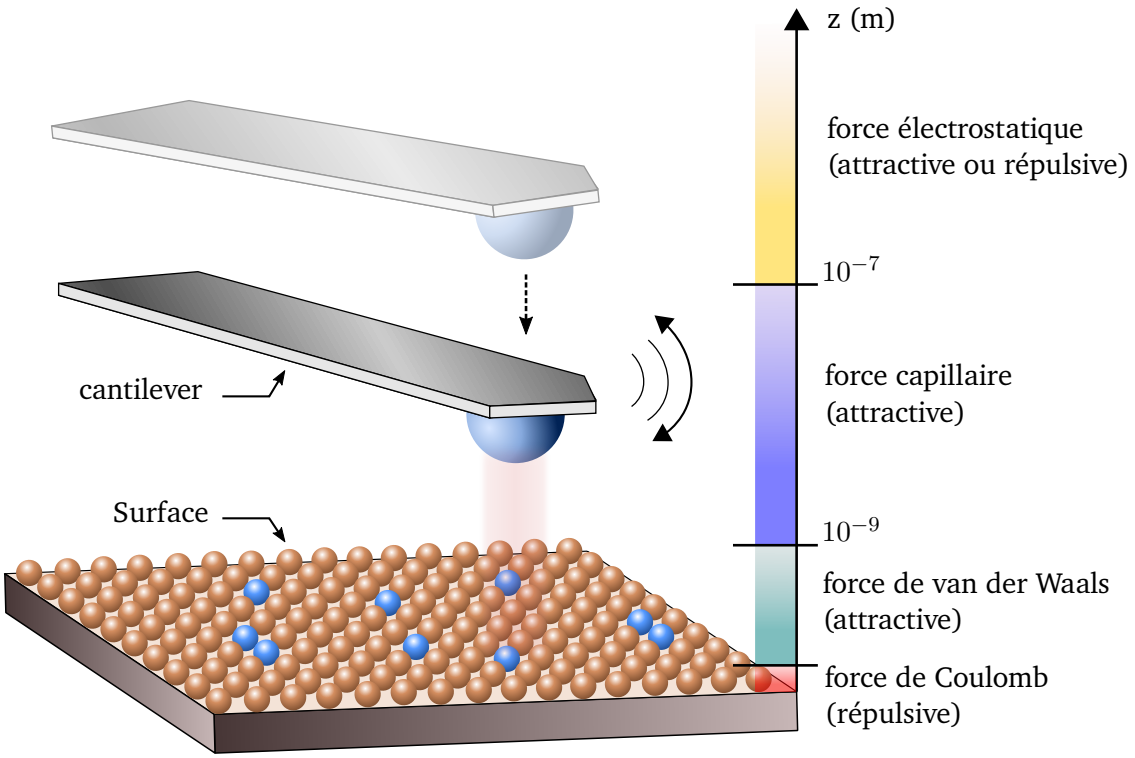

Figure 2 – Distances caractéristiques des forces d'interactions entre une particule greffée sur le levier AFM et la surface.

1.3 Tapping mode

La solution permettant d'éviter des forces de frottement importantes entre la pointe et la surface mais en maintenant une résolution latérale élevée est de faire toucher la pointe et la surface pendant un temps très court et de manière répétée. En mode *Tapping*, le levier est mis en vibration autour de sa fréquence de résonance au-dessus de la surface. L'amplitude d'oscillation typique est la dizaine de nanomètre, très inférieure à la longueur du levier. En supposant que l'amortissement de l'air est le facteur dominant loin de la surface, le mouvement du cantilever peut être décrit en utilisant le modèle de l'oscillateur harmonique amorti (sinusoïdal) :

$$m^\star \frac{\partial z}{\partial t^2} + b\frac{\partial z}{\partial t} + K = F_0 \tag{1}$$

avec $m^\star$ la masse du levier, z le déplacement du levier, b le coefficient d'amortissement, K la constante de raideur et F_0 la force imposée par le système. Avec la fréquence de résonance ω_0 qui s'exprime :

$$\omega_0 = \sqrt{\frac{k}{m^\star}} \qquad \text{et le temps de relaxation} \qquad \tau_0 = \frac{m^\star}{b}\ , \tag{2}$$

on peut écrire l'amplitude d'oscillation du levier comme :

$$A(\omega_e) = \frac{A_0}{\sqrt{\left(1 - (\frac{\omega_d}{\omega_0})^2\right) + \frac{1}{(\omega_0\tau)^2}\left(\frac{\omega_d}{\omega_0}\right)^2}}. \tag{3}$$

Un paramètre important à considérer est le facteur de qualité Q du système harmonique. Il représente l'énergie stockée par le système oscillant divisé par l'énergie perdue à chaque cycle. Dans l'hypothèse d'un système faiblement amorti, le facteur Q peut s'écrire comme $Q = \omega_0\tau$. L'amplitude maximale atteinte à la fréquence de résonance devient alors $A_r = A_0 Q$. La figure 3-(a) représente une courbe de réponse typique d'un levier AFM lors-

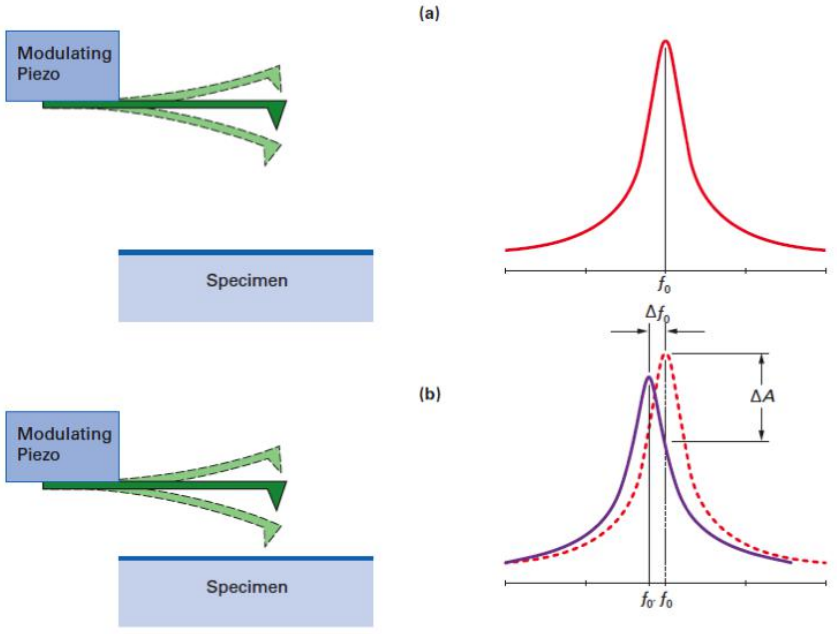

Figure 3 – Courbes de résonances d'un levier AFM en mode *Tapping* loin de la surface (a) et à proximité de la surface (b). Lorsque le levier est proche de la surface, la résonance se décale vers des fréquences plus basses et l'amplitude diminue (Bruker, 2017).

qu'il est excité à sa fréquence de résonance loin de la surface. Lorsqu'il est approché d'une surface, la fréquence de résonance du levier ainsi que son amplitude d'oscillation vont être modifiées à cause des forces d'interaction entre la pointe et le substrat. Lorsqu'on travaille en mode *Tapping*, la boucle d'asservissement du tube piezoélectrique en z est verrouillée sur le décalage de l'amplitude que le système cherche à maintenir constante. Quand celle-ci diminue, par exemple lorsque la pointe se rapproche de la surface comme sur la figure 3-(b), la distance entre la pointe et la surface est modifiée par le système pour maintenir l'amplitude préalablement définie. Ainsi, en traçant le mouvement du tube piezo en z en fonction de la position de la pointe dans le plan xy, on obtient la topographie de l'échantillon. Il faut souligner ici que le mode *Tapping* ne permet pas la mesure de forces comme avec le mode contact ou le mode *PeakForce*. Dans ce mode, la réponse du système est une moyenne des nombreuses interactions qu'a eue la pointe oscillante avec la surface

et non une mesure ponctuelle de l'interaction. Cela n'a pas de conséquence sur l'obtention de la topographie de l'échantillon mais on ne peut pas extraire les propriétés physiques et mécaniques qui étaient accessibles avec le mode contact ou le mode *PeakForce*.

Annexe B : Techniques et appareils de mesure

1 Le granulomètre Aerosizer PSD 3603

La technique de mesure utilisée par ce granulomètre repose sur la détermination de la vitesse des particules dans un écoulement d'air accéléré à partir de la mesure du temps qu'elles mettent pour parcourir une distance fixée par l'écart entre deux faisceaux laser parallèles (Time of Flight, TOF). Pour cela, l'échantillon de poudre à analyser est placé dans une capsule et dispersé sous la forme d'un aérosol dans un flux d'air cisaillé qui permet de désagglomérer les particules. Ensuite, le flux d'air transportant les particules est accéléré avant d'arriver au niveau du système de détection optique permettant de déterminer la vitesse relative des particules par rapport à l'air dans lequel elles se trouvent (figure 1). Les vitesses mesurées permettent de déterminer le diamètre aérodynamique des particules

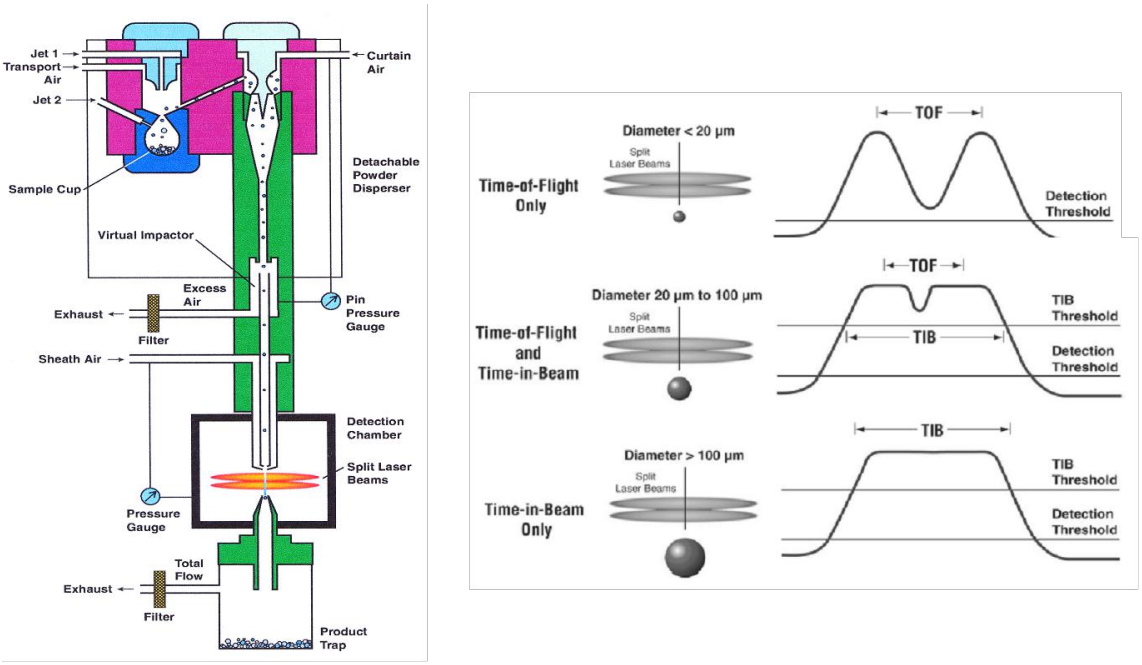

Figure 1 – Système de dispersion (à gauche) et de détection des particules (à droite) de l'AEROSIZER PSD 3603 TSI®

par mesure du temps de vol (TOF) et/ou du temps de résidence (Time in Beam, TIB) entre les deux faisceaux laser en fonction de la taille des particules de l'échantillon. Ce diamètre aérodynamique peut être ensuite converti en diamètre géométrique par le logiciel de l'appareil. Les particules de diamètre inférieur à 20 µm sont détectées par une mesure du temps de vol (TOF). Les particules de diamètres compris entre 20 µm et 100 µm sont analysées en combinant une mesure du temps de vol (TOF) et du temps de résidence (TIB). Les particules de diamètre supérieur à 100 µm traversent simultanément les deux faisceaux laser et leur mesure est réalisée par la détermination de leur temps de résidence (TIB) entre les faisceaux.

2 Mesure de la surface spécifique selon la méthode BET

La méthode BET (Brunauer, Emmet et Teller) développée en 1938 est basée sur l'adsorption de molécules de gaz à la surface d'un solide. Cette méthode constitue aujourd'hui la référence pour la caractérisation de la surface spécifique des poudres. L'adsorption est un phénomène qui se produit chaque fois qu'un gaz ou un liquide entre en contact avec un solide ; celui-ci est retenu par les atomes superficiels du solide et se concentre à sa surface. La désorption, qui correspond au mécanisme inverse, est la libération des gaz ou vapeurs retenus par adsorption à la surface du solide. L'énergie décroissant avec la distance entre une molécule et un solide, celle-ci va spontanément s'en rapprocher et se stabiliser à une distance correspondant à un minimum d'énergie, où elle se trouve à l'état physisorbé. A une température donnée, l'ensemble des états d'équilibre correspondant à des pressions P comprises entre 0 et la pression de vapeur saturante P_0 du gaz adsorbable est appelée isotherme d'adsorption : elle est caractéristique du couple adsorbant/adsorbât étudié. Les isothermes expérimentales de physisorption traduisent la quantité de molécules adsorbées sur le solide en fonction de leur quantité disponible, exprimée en termes de pression. Ainsi, celles-ci peuvent être tracées jusqu'à la la pression limite de vapeur saturante P_0 à laquelle apparaît la condensation. La technique volumétrique de tracé d'isothermes qui est la plus couramment employée consiste à mesurer le volume du gaz adsorbé par l'échantillon. Le schéma d'un tel dispositif est présenté sur la figure 2. L'échantillon solide est placé dans une enceinte de volume connu et à température constante dans un bain d'azote liquide ($T = 77.4$ K). Le gaz à adsorbé (N_2 ou He) est admis par ajouts successifs et la pression P_2 est suivie au cours du temps. Ainsi, l'isotherme est tracée point par point pour différentes pressions relatives de gaz à adsorber. Après équilibre de la pression P_2, la pression P_{eq} est lue et la quantité de gaz adsorbé q_{ads} est obtenue par différence entre la quantité totale admise dans l'enceinte et celle présente en phase gazeuse suivant :

$$q_{ads} = \alpha \Delta P = \alpha (P_{eq} - P_{init}), \tag{1}$$

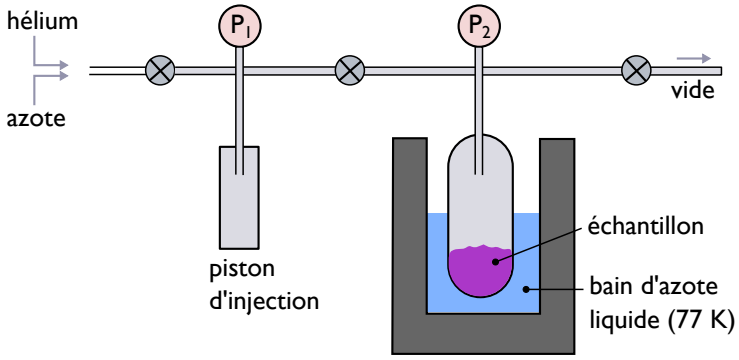

Figure 2 – Schéma de montage d'un analyseur BET volumétrique d'après Bau (2008).

avec α qui dépend du volume de l'enceinte, de la température ainsi que de la masse de l'échantillon. L'isotherme ainsi obtenue peut être décrite par différents processus apparaissant successivement et dont on donne la description dans la figure 3. Dans un premier

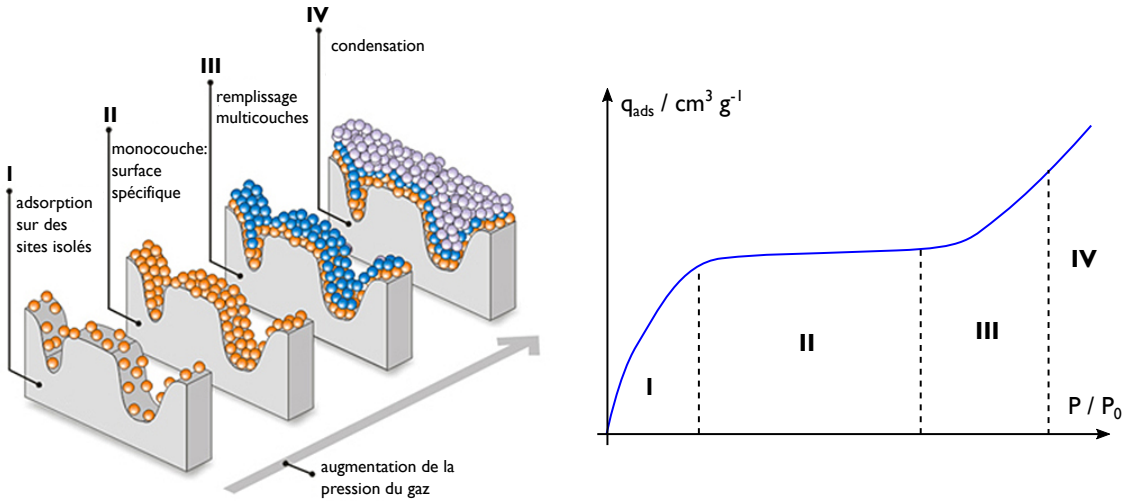

Figure 3 – Mise en évidence des différentes étapes de l'adsorption et isotherme de type IV.

temps, pour des faibles pressions d'azote, il se forme une monocouche sur la surface du solide. Les molécules adsorbées dans une couche sont supposées constituer des sites d'adsorption pour une nouvelle couche. L'addition de molécules de gaz conduit ensuite à la formation de multicouches d'adsorption, stade précurseur de la dernière étape qui est la condensation. En faisant l'hypothèse que l'adsorption sur la couche 1 et les suivantes est identique à la condensation, et réversiblement que la désorption est identique à l'évaporation, on obtient, lorsque le nombre de couches adsorbées tend vers l'infini :

$$\frac{q_{ads}}{q_{mono}^{ads}} = \frac{C \cdot x}{(1-x)(1-x+Cx)}, \tag{2}$$

avec q_{mono}^{ads} la quantité de molécule de gaz nécessaire pour recouvrir la surface du solide d'une couche monomoléculaire, $x = \frac{P}{P_0}$ la pression relative et C une constante qui dicte la forme de l'isotherme. Ainsi, la mesure de pression P au cours du temps permet de calculer

la quantité adsorbée q_{ads}. L'équation 2 représente généralement de façon satisfaisante les isothermes pour de pression relatives x comprises entre 0.05 et 0.35. La surface spécifique se calcule alors comme :

$$SSA = q_{mono}^{ads} \times N_A \times \sigma, \tag{3}$$

où N_A est le nombre d'Avogadro et σ l'aire occupée par une molécule adsorbée à la surface du solide.

3 Mesure de la composition chimique des poudres par XPS

La technique XPS (*X-ray Photoelectron Spectroscopy*) est une technique d'analyse d'extrême surface (10 nm en profondeur maximum) qui permet d'obtenir une analyse élémentaire de la surface et également une information sur la spéciation des éléments présents. Le principe à la base de la spectroscopie XPS est l'effet photoélectrique, un des processus de l'interaction des photons avec les électrons atomiques. L'XPS mesure ainsi l'énergie cinétique des photo-électrons éjectés de l'échantillon sous l'impact de rayons X d'énergie $h\nu$ connue et de l'ordre du keV. Le spectre en énergie des photo-électrons comporte des raies dont l'interprétation permet une analyse chimique de l'échantillon.

Dans le domaine d'énergie $h\nu$ considéré en XPS, les photons interagissent essentiellement avec les électrons du cortège électronique des atomes en subissant : — une diffusion inélastique avec les électrons de valence : c'est la diffusion Compton ; — une absorption par effet photoélectrique au cours de laquelle le photon interagit avec un électron atomique et disparaît en cédant la totalité de son énergie à l'électron qui est éjecté de son orbitale. Le principe de la conservation de l'énergie de l'effet photoélectrique stipule que l'énergie $h\nu$ des photons incidents se répartit entre E_i, l'énergie d'ionisation correspondant à l'éjection d'un électron d'une orbitale de cœur de l'atome et E_{cin}, l'énergie cinétique communiquée au photo-électron émis par la relation $h\nu = E_i + E_{\text{cin}}$. L'énergie d'excitation $h\nu$ étant connue, la mesure de l'énergie cinétique E_{cin} des photo-électrons permet de déterminer E_i qui est caractéristique de l'atome et de l'orbitale de cœur concernés. L'énergie d'ionisation E_i peut aussi être appelée énergie de liaison E_L de l'électron. Elle est caractéristique des différentes orbitales de chaque élément et varie en fonction de l'état chimique de l'élément (par exemple l'état d'oxydation, le type de fonctions chimiques). Le spéciation des éléments peut donc être obtenue à l'aide d'une recomposition théorique des pics expérimentaux.

Les mesures faites sur les poudres de tungstène ont été effectuées à l'aide d'un appareil ThermoFisher ESCALAB 250xi équipé d'une source de rayon X monochromatique Al–Kα de 1486.6 eV. Ces mesures ont été faites par Frédéric Miserque du Service de la Corrosion et du Comportement des Matériaux dans leur Environnement (CEA/DEN/SCCME) à Saclay. Une énergie de balayage de 20 eV a été utilisée pour une acquisition haute résolution des

niveaux de cœur de la région W – 4 f dont les composants spin-orbite sont bien séparés. L'ajustement du spectre XPS est réalisé avec le logiciel commercial Avantage®.

4 Mesure de la densité des poudres par pycnométrie hélium

Les mesures de densité des poudres de tungstène ont été réalisées par des collègues de l'IRSN au laboratoire PSE/ENV/SEDRE/LELI. Je remercie en particulier Cyrielle Jardin et Charles Wittebroodt pour leur disponibilité. Le dispositif de pycnométrie hélium permet de mesurer la masse volumique d'un échantillon. Il comporte deux chambres dont les volumes sont connus. L'échantillon, placé dans la première, est mis en contact avec un gaz inerte, l'hélium, à pression et température ambiante connues. La seconde chambre (dite chambre d'expansion) est aussi sous atmosphère hélium, à pression et température ambiante connues. Après ouverture de la vanne reliant les deux chambres, l'hélium contenu dans la première chambre se détend afin d'occuper la totalité du volume disponible.

Conformément à la loi des gaz parfaits, la mesure de la pression avant et après l'ouverture de la vanne permet de déduire le volume réel d'un échantillon (hors porosité fermée non accessible à l'hélium) et donc sa masse volumique (connaissant la masse de l'échantillon analysé). La particularité de l'appareil disponible au laboratoire (AccuPyc II 1340 - MICROMERITICS 2008) est de disposer de trois cellules de mesure permettant d'analyser des échantillons de 1 à 100 cm^3. (Source IRSN : https://www.irsn.fr/dechets/recherche/outils/LUTECE/Pages/moyens-analytiques-experimentaux.aspx)

Liste des figures

1 Logo du projet STANDS. xiii
2 Organisation du projet STANDS xv

1.1 Représentation 3D de la chambre à vide d'ITER avec un plasma. Les bobines de champ poloïdal sont colorées en orange. Sources : `www.iter.org`. 2
1.2 Schéma de la réaction de fusion entre un atome de tritium et un atome de deutérium. 4
1.3 Sections efficaces des réactions Deutérium-Deutérium et Deutérium-Tritium d'après Bonnaud and Rax (2015). 5
1.4 Paramètres principaux du tokamak ITER. 7
1.5 La chambre à vide d'ITER. 8
1.6 Exemple d'une disruption dans le tokamak JET. 17
1.7 Principaux mécanismes de production de poussières par interactions plasma/paroi d'après Wirth et al. (2015) et Ouaras (2016). 18
1.8 Taux de pulvérisation du tungstène par des ions de deutérium et de tritium. 19
1.9 Formation de cloques et de nanoparticules par implantation d'ions dans le tungstène. 21
1.10 Exemples de particules métalliques sphériques collectées dans TEXTOR-94 et ASDEX-Upgrade. 22
1.11 Exemples de particules métalliques collectées dans JET 24
1.12 Exemples de particules de tungstène collectées dans JET 25
1.13 Exemples de particules de béryllium collectées dans JET 26
1.14 Processus d'auto-chargement d'une particule incluant un radioélément. . . . 29
1.15 Lévitation de particules de graphite chargées en tritium. 30
1.16 schéma de principe et vue en fonctionnement du *plasma vacuum cleaner* . . 31

2.1 Exemple montrant l'action des forces de van der Waals. 34
2.2 Force de van der Waals et potentiel de Lenard-Jones. 38
2.3 Méthode de sommation des énergies par Hamaker. 39
2.4 Géométries du contact dans les modèles de Hertz et JKR. 42
2.5 Géométrie du contact dans le modèle DMT. 44
2.6 Rayons de contact donnés par les modèles JKR et DMT. 45
2.7 Géométrie considérée par le modèle de Rumpf. 46

2.8 Force d'adhésion calculée avec le modèle de Rumpf. 47
2.9 Géométrie de la rugosité de surface proposée par le modèle de Rabinovich. . 49
2.10 Forces d'adhésion calculées avec le modèle de Rabinovich pour trois tailles de particules. 49
2.11 Forces de van der Waals calculées avec la théorie de Hamaker et le modèle de Rabinovich en fonction de la distance entre une particule de tungstène de 5 µm de rayon et une surface rugueuse. 50
2.12 Condensation capillaire et géométrie du ménisque. 52
2.13 Taille du rayon de Kelvin en fonction de l'humidité relative. 52
2.14 Évolution des forces capillaires normalisées en fonction de l'humidité relative mesurées par AFM dans plusieurs études pour des billes de verre sur du SiO_2. 54
2.15 Évolution des forces capillaires en fonction de l'humidité relative mesurées par AFM dans plusieurs études pour des pointes AFM sur du SiO_2. 56
2.16 Évolution des forces d'adhésion en fonction du potentiel électrique et de l'humidité relative. 57
2.17 Évolution des forces capillaires et des forces de van der Waals en fonction de la distance entre une particule de tungstène de 5 µm de rayon et une surface rugueuse. L'humidité relative est ici fixée à 40 %. 58
2.18 Décomposition schématique des différentes contributions de la force électrostatique agissant sur une particule diélectrique déposée sur une surface conductrice. 60
2.19 Cas d'une particule conductrice recouverte d'une couche diélectrique. 62
2.20 Évaluation des différentes composantes de la force électrostatiques sur une particule de tungstène diélectrique. 63
2.21 Évolution des forces électrostatiques, capillaires et de van der Waals en fonction de la distance entre une particule de tungstène de 5 µm de rayon et une surface rugueuse. L'humidité relative est ici fixée à 40 % et le potentiel du substrat à 2 V. 64
2.22 Schéma du dispositif et résultats obtenus par Walker et al. (2010). Les forces d'adhésion augmentent avec le débit de dose de la surface activée. 65
2.23 Potentiel de surface d'un substrat radioactif en or. 66
2.24 Évolution de la force d'adhésion en fonction de l'activité radioactive du substrat. 67

3.1 Présentation de l'appareil Duster Box. 74
3.2 Cartographies 2D obtenues avec *Ansys CFX* pour différents débits d'air dans la Duster Box. 76
3.3 Procédure de callibration de la Duster Box. 77
3.4 (à gauche) Étalonnage de la vitesse de l'écoulement dans l'installation BISE. (à droite) Étalonnage de la sonde 55R45 avec l'installation BISE. 78

3.5 Vue supérieure des positions de mesure avec la sonde 55R45 dans le canal de la Duster Box. Pour chaque configuration de flux d'air, 30 mesures sont réalisées à travers le canal. 79
3.6 Cartographies 3D des mesures de vitesses de frottement dans la Duster Box effectuées avec l'anémométrie à fil chaud pour les 6 débits d'air testés. . . . 80
3.7 Comparaison entre les vitesses de frottement obtenues numériquement avec *Ansys CFX* et les mesures expérimentales (moyenne des 3 positions sur l'axe y) obtenues avec l'anémométrie à fil chaud. 81
3.8 Image montrant l'intérieur de la chambre à vide du tokamak WEST (Crédits CEA/IRFM). 82
3.9 **a.** Photographie du LPA après la campagne C2 montrant les dégâts causés par les impacts d'électrons découplés. **b.** Image vidéo d'un impact sur le LPA. **c.** Photographie des aiguilles *ITER-like* du divertor de WEST. (Crédits photo CEA/IRFM) 83
3.10 Nombre de particules par cm^3 prélevées par le compteur optique dans le hall de WEST et à l'intérieur du tore juste après la remontée en pression dans la chambre à vide. 84
3.11 Vue de dessus de la chambre à vide de WEST avec les principaux secteurs et composants installés dans la machine. 85
3.12 Photographies des systèmes de prélèvement de poussières utilisés dans WEST. 85
3.13 Micrographies MEB et analyses EDS (**a.** - **c.**) de particules collectées avec la Duster Box dans le tokamak WEST. 87
3.14 Micrographies MEB et analyses EDS d'une particule d'acier inoxydable recouverte d'argent (**a.**) et de particules de tungstène (**b.** - **d.**) collectées avec la Duster Box dans le tokamak WEST. 88
3.15 Distributions granulométriques en volume des poudres W25 et AF5. 91
3.16 Analyse XPS de la poudre de tungstène W25. 93
3.17 Micrographie MEB de la surface de tungstène exposée à un plasma d'hélium et photographies du procédé d'érosion par plasma d'hélium. 95

4.1 Micrographies MEB avec un angle de 85° de particules de tungstène déposées sur des surfaces en tungstène polie miroir (haut), de rugosité intermédiaire (centre) et rugueuse (bas). 98
4.2 Méthode de détachement par la force centrifuge. 101
4.3 Principe de la mesure des forces d'adhésion par détachement électrostatique par Hu et al. (2008). 102
4.4 Profil aléatoire d'une surface montrant les différents paramètres utilisés pour décrire la rugosité. 104
4.5 Topographies 3D et distributions des hauteurs pour les trois surfaces de tungstène étudiées. 106
4.6 Exemple de la procédure utilisée pour extraire les paramètres de rugosité de la surface de tungstène de rugosité intermédiaire. 108

4.7 Schéma de principe de la mesure PF-QNM. 110
4.8 Procédure pour le greffage d'une particule sur un levier AFM. 111
4.9 Micrographies MEB des particules de tungstène sphériques greffées sur les leviers AFM. 112
4.10 Calibration de la déformation du levier en fonction de la sensibilité de la photodiode. 113
4.11 Exemples de distributions de forces d'adhésion obtenues avec le substrat en tungstène poli miroir et des particules de tungstène. 115
4.12 Exemples de topographies AFM et de cartographies d'adhésion sur une surface en tungstène. 116
4.13 Exemple montrant une impureté collectée par la pointe au cours d'un scan en mode PF-QNM. 117
4.14 Photographie montrant l'AFM multimode 8 à l'intérieur de l'enceinte en verre alimentée en azote. 118
4.15 Exemple montrant l'influence de l'humidité sur la mesure des forces d'adhésion. 119
4.16 Courbe d'approche/retrait réalisée avec une particule de tungstène de 1 µm de rayon sur une surface en verre pour une humidité relative de HR $= 53$ %. 120
4.17 Séquences d'approche/retrait du levier AFM en cas d'humidité relative élevée pour des matériaux hydrophiles. 120
4.18 Exemple montrant l'influence de l'humidité sur la mesure des forces d'adhésion pour un scan réalisé sur le substrat en tungstène poli miroir. 121
4.19 Exemple de mesure de la constante de Hamaker en utilisant la méthode du "saut au contact". 123
4.20 Exemples de courbes de phase/distance pour deux tailles de particules de tungstène interagissant avec la surface en tungstène poli miroir. 125
4.21 Topographie d'une particule de 10.5 µm de rayon. 127
4.22 Constantes de Hamaker obtenues pour la surface en tungstène poli miroir et la surface en verre en utilisant différentes tailles de particules. 128
4.23 Forces d'adhésion moyenne en fonction du rayon des particules de tungstène pour une surface en verre. 130
4.24 Forces d'adhésion moyenne en fonction du rayon des particules de tungstène pour une surface de tungstène poli miroir. 132
4.25 Micrographie MEB de la particule de 3.9 µm de rayon et cartographie AFM du sommet de la particule avec un profil de hauteur extrait de l'image AFM. 133
4.26 Force d'adhésion moyenne en fonction du rayon des particules de tungstène pour une surface de tungstène de rugosité intermédiaire (**a.**) et rugueuse (**b.**).134

5.1 Exemple d'une mesure KPFM sur des particules de tungstène piégées dans une matrice d'indium. 138

5.2 Boîte à gants utilisée pour le chargement des poudres en tritium et schéma montrant le trajet du gaz pour la mesure du tritium désorbé à l'aide du barboteur MARC 7000. 141
5.3 Activités spécifiques désorbées et piégées dans les poudres de tungstène W25 (**a.**) et AF5 (**b.**). 142
5.4 Activité des poudres de tungstène chargées en tritium à l'institut Joliot en fonction de leur surface spécifique. 144
5.5 **a.** Distributions granulométriques en nombre et en volume pour la poudre d'acier. **b.** Distributions granulométriques normalisées en nombre pour les poudres AF5 et W25. 145
5.6 Fabrication des échantillons de particules tritiées utilisés pour les mesures KPFM. 146
5.7 Micrographies MEB montrant la répartition des particules sur la pastille d'indium. 147
5.8 Diagrammes énergétiques de la pointe et de l'échantillon lors d'une mesure KPFM. 149
5.9 Exemples de mesures du potentiel sur l'échantillon de Bruker avec les deux modes AM-KPFM (**a.**) et FM-KPFM (**b.**). 152
5.10 Travaux de sortie de l'indium et des particules de tungstène et d'acier. 154
5.11 Principe de fonctionnement du mode AM-KPFM avec la méthode de double passage. 155
5.12 Exemples de mesures du potentiel de surface sur des particules d'acier neutres et chargées en tritium. 157
5.13 Différences de potentiels mesurées par KPFM entre des particules d'acier neutres et des particules d'acier chargées en tritium. 158
5.14 Exemples de mesures du potentiel de surface sur des particules de tungstène neutres et chargées en tritium. 159
5.15 Différences de potentiels mesurées par KPFM entre des particules de tungstène neutres et des particules de tungstène chargées en tritium. 160
5.16 Modèle considéré pour le calcul de la capacité d'une sphère métallique dans le vide où dans une matrice conductrice. 161
5.17 Modèle considéré pour le calcul de la capacité d'une sphère métallique radioactive dans une matrice conductrice. 162
5.18 **a.** Différences de potentiel mesurées par KPFM sur des particules d'acier tritiées et "neutres" en fonction de la taille des particules. **b.** Nombre de charges élémentaires calculé avec la relation 5.12 pour les particules tritiées et "neutres" en fonction de la taille des particules. 164
5.19 Probabilités d'échappement des électrons et taux d'auto-chargement pour des particules de tungstène et d'acier. 166
5.20 Évolution des états de charge des particules de tungstène et d'acier en fonction de leurs activités spécifiques. 169

6.1 Représentation du modèle de détachement d'Ibrahim et al. (2003). 176
6.2 Représentation du mouvement de basculement/roulement considéré par le modèle Rock'n roll. 177
6.3 Système de dépôt des particules sur les lames de microscopie. 180
6.4 Procédure de comptage des particules avec le microscope *Morphologi G3*. . . 182
6.5 Fractions mise en suspension en fonction de la vitesse de frottement pour la poudre W25 neutre. 183
6.6 Fractions de mise en suspension en fonction de la vitesse de frottement pour différents types de particules. 184
6.7 Comparaison des fractions de mises en suspension obtenues expérimentalement avec le modèle Rock'n roll. 186
6.8 Fractions de mise en suspension en fonction de la vitesse de frottement pour des particules de tungstène tritiées. 187
6.9 Vitesses de frottement seuils obtenues pour le détachement des particules de tungstène et forces d'adhésion correspondantes. 188
6.10 Comparaison entre les forces d'adhésion mesurées par AFM et celles obtenues avec la Duster Box. 189

1 Principe de fonctionnement de l'AFM d'après Bruker (2017). 199
2 Distances caractéristiques des forces d'interactions entre une particule greffée sur le levier AFM et la surface. 201
3 Courbes de résonances d'un levier AFM en mode *Tapping* loin de la surface (a) et à proximité de la surface (b). Lorsque le levier est proche de la surface, la résonance se décale vers des fréquences plus basses et l'amplitude diminue (Bruker, 2017). 202

1 Système de dispersion (à gauche) et de détection des particules (à droite) de l'AEROSIZER PSD 3603 TSI® 205
2 Schéma de montage d'un analyseur BET volumétrique d'après Bau (2008). . 207
3 Mise en évidence des différentes étapes de l'adsorption et isotherme de type IV. 207

Liste des tableaux

4.1 Paramètres de rugosité des surfaces (en nm) utilisés avec le modèle de Rabinovich 109
4.2 Rayons des particules de tungstène greffées sur les leviers AFM mesurés au MEB. Sensibilité de la déformation et constantes de raideur des leviers avec les particules attachées. 114
4.3 Constantes de Hamaker obtenues avec les différentes méthodes pour plusieurs tailles de particules de tungstène et pour une surface en tungstène poli miroir et une surface en verre. 128

5.1 Caractéristiques des différentes poudres de tungstène chargées en tritium à l'Institut Joliot (CEA Saclay). 143
5.2 Travaux de sortie ϕ pour différents éléments. 153

Liste des publications et communications

Publications

S. Peillon, G. Dougniaux, M. Payet, E. Bernard, G. Pieters, S. Feuillastre Ressources, S. Garcia-Argote, F. Gensdarmes, C. Arnas, F. Miserque, N. Herlin-Boime, C. Grisolia, O. Pluchery. Dust sampling in WEST and tritium retention in tokamak-relevant tungsten particles, *Nucl. Mater. Energy*. (2020) 100781. https://doi.org/10.1016/j.nme.2020.100781.

T. Gelain, F. Gensdarmes, **S. Peillon**, L. Ricciardi. CFD modelling of particle resuspension in a toroidal geometry resulting from airflows during a loss of vacuum accident (LOVA), *Fusion Eng. Des.* 151 (2020) 111386. https://doi.org/10.1016/j.fusengdes.2019.111386.

S. Peillon, A. Autricque, M. Redolfi, C. Stancu, F. Gensdarmes, C. Grisolia, O. Pluchery. Adhesion of tungsten particles on rough tungsten surfaces using Atomic Force Microscopy, *J. Aerosol Sci.* 137 (2019) 105431. https://doi.org/10.1016/j.jaerosci.2019.105431.

G. Dougniaux, M. Sow, **S. Peillon**, C. Grisolia, F. Gensdarmes. Monte-Carlo simulations of electrostatic self-charging of tritiated tungsten and beryllium particles, *J. Phys. Conf. Ser.* 1322 (2019) 012027. https://doi.org/10.1088/1742-6596/1322/1/012027.

C. Grisolia, F. Gensdarmes, **S. Peillon**, G. Dougniaux, E. Bernard, A. Autricque, G. Pieters, B. Rousseau, S. Feuillastre, S. Garcia-Argote, O. Carvalho, V. Malard, I. George, L. Lebaron-Jacobs, T. Orsiere, C. Uboldi, J. Rose, M. Sanles Sobrido, D. Lambertin, D. Vrel, C. Decanis, K. Liger, T. Acsente, G. Dinescu. Current investigations on tritiated dust and its impact on tokamak safety, *Nucl. Fusion.* 59 (2019) 086061. https://doi.org/10.1088/1741-4326/ab1a76.

E. Bernard, F. Jambon, I. Georges, M. Sanles Sobrido, J. Rose, N. Herlin-Boime, F. Miserque, P. Beaunier, D. Vrel, S. Dine, E. Hodille, J. Chêne, S. Garcia-Argote, G. Pieters, **S. Peillon**, F. Gensdarmes, G. Dinescu, T. Acsente, C. Uboldi, T. Orsiere, V. Malard, B. Rousseau, Ph. Delaporte, C. Grisolia. Design of model tokamak particles for future toxicity

studies : Morphology and physical characterization, *Fusion Eng. Des.* 145 (2019) 60–65. https://doi.org/10.1016/j.fusengdes.2019.05.037.

A. Autricque, F. Gensdarmes, **S. Peillon**, M. Sow, C. Grisolia. Adhesion force of W dust on tokamak W plasma-facing surfaces : The importance of the impact velocity, *Nucl. Mater. Energy.* 18 (2019) 345–349. https://doi.org/10.1016/j.nme.2019.02.001.

A. Autricque, **S. Peillon**, F. Gensdarmes, M. Sow, N. Fedorczak, H. Roche, O. Pluchery, C. Grisolia. Dust remobilization from rough planar surfaces in tokamak steady-state plasmas, *Nucl. Mater. Energy.* 17 (2018) 284–288. https://doi.org/10.1016/j.nme.2018.11.013.

*E. Porcheron, **S. Peillon**, T. Gelain, C. Chagnot, C. Journeau, D. Roulet. Analysis of aerosol emission and dispersion during the laser cutting of Fukushima fuel debris simulants (2018) *International Conference on Nuclear Engineering*, Proceedings, ICONE, 7.

S. Peillon, M. Sow, C. Grisolia, F. Miserque, F. Gensdarmes. Mobilization of tungsten dust by electric forces and its bearing on tritiated particles in the ITER tokamak, *J. Electrost.* 88 (2017) 111–115. https://doi.org/10.1016/j.elstat.2017.01.020.

**Non related to the thesis work*

Communications

Peillon S., Benito, J., Gélain, T., Gensdarmes F., Pluchery O. et Grisolia C. Apport de la microscopie à force atomique dans les études sur la mise en suspension de particules. *33ème Congrès Français sur les Aérosols*, Janvier 2020, Paris.

Peillon S., Gensdarmes F., Grisolia C. and Pluchery O. Study of adhesion of spherical tungsten particles on rough tungsten surfaces with the atomic force microscopy technique. *European Aerosol Conference*, Göteborg, 25-30 August 2019.

Peillon S., Gensdarmes F., Grisolia C., Cruguel, H. et Pluchery O. Etude de l'adhésion de particules de tungstène sphériques sur des surfaces de tungstène rugueuses par AFM. *22ème Forum des Microscopies à Sondes Locales*, 19-22 mars 2019, Carry-le-Rouet.

Peillon S., Gélain, T., Gensdarmes F., Grisolia C. et Pluchery O. Qualification d'un dispositif aéraulique pour l'étude de l'adhésion et de la mise en suspension de particules. *32ème Congrès Français sur les Aérosols*, 22-23 janvier 2019, Paris.

Posters

*__Peillon S.__, Gélain, T., Gensdarmes F., Grisolia C. and Pluchery O. From plasma facing components to airborne radioactive dust : A study on the behavior of tritiated dust in fusion reactors. *Doctoral School Days*, ED397, October 2019, Paris.

__Peillon S.__, Gélain, T., Gensdarmes F., Grisolia C. and Pluchery O. Determination of particles adhesion on surfaces using calibrated airflows : comparison with the Atomic Force Microscopy technique. *European Aerosol Conference*, Göteborg, 25-30 August 2019.

**Best poster Award*

Bibliographie

Acsente, T., Negrea, R. F., Nistor, L. C., Logofatu, C., Matei, E., Birjega, R., Grisolia, C., and Dinescu, G. (2015). Synthesis of flower-like tungsten nanoparticles by magnetron sputtering combined with gas aggregation. *The European Physical Journal D*, 69(6).

AGIR (2007). Review of Risks from Tritium. Report of the Independent Advisory Group on Ionising Radiation, Health Protection Agency (HPA). ISBN 978-0-85951-610-5.

Allison, J., Amako, K., Apostolakis, J., Arce, P., Asai, M., Aso, T., Bagli, E., Bagulya, A., Banerjee, S., Barrand, G., Beck, B., Bogdanov, A., Brandt, D., Brown, J., Burkhardt, H., Canal, P., Cano-Ott, D., Chauvie, S., Cho, K., Cirrone, G., Cooperman, G., Cortés-Giraldo, M., Cosmo, G., Cuttone, G., Depaola, G., Desorgher, L., Dong, X., Dotti, A., Elvira, V., Folger, G., Francis, Z., Galoyan, A., Garnier, L., Gayer, M., Genser, K., Grichine, V., Guatelli, S., Guèye, P., Gumplinger, P., Howard, A., Hřivnáčová, I., Hwang, S., Incerti, S., Ivanchenko, A., Ivanchenko, V., Jones, F., Jun, S., Kaitaniemi, P., Karakatsanis, N., Karamitros, M., Kelsey, M., Kimura, A., Koi, T., Kurashige, H., Lechner, A., Lee, S., Longo, F., Maire, M., Mancusi, D., Mantero, A., Mendoza, E., Morgan, B., Murakami, K., Nikitina, T., Pandola, L., Paprocki, P., Perl, J., Petrović, I., Pia, M., Pokorski, W., Quesada, J., Raine, M., Reis, M., Ribon, A., Ristić Fira, A., Romano, F., Russo, G., Santin, G., Sasaki, T., Sawkey, D., Shin, J., Strakovsky, I., Taborda, A., Tanaka, S., Tomé, B., Toshito, T., Tran, H., Truscott, P., Urban, L., Uzhinsky, V., Verbeke, J., Verderi, M., Wendt, B., Wenzel, H., Wright, D., Wright, D., Yamashita, T., Yarba, J., and Yoshida, H. (2016). Recent developments in Geant4. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section A : Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, 835 :186–225.

Alvo, S. (2012). *Etude, modélisation et mesure des forces d'adhésion à l'échelle microscopique*. PhD thesis, Université Pierre et Marie Curie, Paris VI.

Arnas, C., Pardanaud, C., Martin, C., Roubin, P., De Temmerman, G., and Counsell, G. (2010). Analyses of dust samples collected in the MAST tokamak. *Journal of Nuclear Materials*, 401(1-3) :130–137.

Ashikawa, N., Torikai, Y., Asakura, N., Otsuka, T., Widdowson, A., Rubel, M., Oyaizu, M., Hara, M., Masuzaki, S., Isobe, K., Hatano, Y., Heinola, K., Baron-Wiechec, A., Jachmich,

S., and Hayashi, T. (2020). Determination of retained tritium from ILW dust particles in JET. *Nuclear Materials and Energy*, 22 :100673.

ASN (2018). Le livre blanc du tritium & bilan des rejets de tritium pour les INB. Technical report, Autorité de Sûreté Nucléaire.

Autricque, A., Peillon, S., Gensdarmes, F., Sow, M., Fedorczak, N., Roche, H., Pluchery, O., and Grisolia, C. (2018). Dust remobilization from rough planar surfaces in tokamak steady-state plasmas. *Nuclear Materials and Energy*, 17 :284–288.

Bé, M.-M., Chisté, V., Dulieu, C., Mougeot, X., Browne, E., and Chechev, V. (2010). *Table of radionuclides (Comments on evaluation)*, volume 1-5 of *Monographie BIPM-5*. Bureau International des Poids et Mesures, Sèvres.

Balden, M., Endstrasser, N., Humrickhouse, P., Rohde, V., Rasinski, M., von Toussaint, U., Elgeti, S., Neu, R., and the ASDEX Upgrade Team (2014). Collection strategy, inner morphology, and size distribution of dust particles in ASDEX Upgrade. *Nuclear Fusion*, 54(7) :073010.

Baron, P. A., Kulkarni, P., and Willeke, K., editors (2011). *Aerosol measurement : principles, techniques, and applications*. Wiley, Hoboken, N.J, 3rd ed edition.

Baron-Wiechec, A., Fortuna-Zaleśna, E., Grzonka, J., Rubel, M., Widdowson, A., Ayres, C., Coad, J. P., Hardie, C., Heinola, K., and Matthews, G. F. (2015). First dust study in JET with the ITER-like wall : sampling, analysis and classification. *Nuclear Fusion*, 55(11) :113033.

Bartels, H.-W., Poucet, A., Cambi, G., Gordon, C., Gaeta, M., Gulden, W., Honda, T., Iseli, M., Jahn, H., Koonce, J., Kveton, O., Merrill, B., Mitchell, N., Moore, R., Petti, D., Polkinghorne, S., Porfiri, M., Raeder, J., Saji, G., Stubbe, E., Piet, S., Topilski, L., Uckan, N., and VanHove, W. (1998). ITER reference accidents. *Fusion Engineering and Design*, 42(1-4) :13–19.

Barth, T., Preuß, J., Müller, G., and Hampel, U. (2014). Single particle resuspension experiments in turbulent channel flows. *Journal of Aerosol Science*, 71 :40–51.

Barth, T., Reiche, M., Banowski, M., Oppermann, M., and Hampel, U. (2013). Experimental investigation of multilayer particle deposition and resuspension between periodic steps in turbulent flows. *Journal of Aerosol Science*, 64 :111–124.

Basdevant, J.-L., Rich, J., and Spiro, M. (2002). *Énergie nucléaire*. Editions Ecole Polytechnique.

Batsanov, S. S. (2001). Van der Waals Radii of Elements. *Inorganic Materials*, 37(9) :871–885.

Bau, S. (2008). *Etude des moyens de mesure de la surface des aérosols ultrafins pour l'évaluation de l'exposition professionnelle*. Génie des procédés et des produits, Institut National Polytechnique de Lorraine.

Beach, E., Tormoen, G., Drelich, J., and Han, R. (2002). Pull-off Force Measurements between Rough Surfaces by Atomic Force Microscopy. *Journal of Colloid and Interface Science*, 247(1) :84–99.

Behrisch, R. (2002). Contribution of the Different Erosion Processes to Material Release from the Vessel Walls of Fusion Devices during Plasma Operation. *Contributions to Plasma Physics*, 42(2-4) :431–444.

Belot, Y., Roy, M., and Métivier, H. (1997). *Le tritium de l'environnement à l'homme*. EDP sciences, Les Ulis (Essonne).

Benito, J., Aracena, K., Uñac, R., Vidales, A., and Ippolito, I. (2015). Monte Carlo modelling of particle resuspension on a flat surface. *Journal of Aerosol Science*, 79 :126–139.

Benito, J., Uñac, R., Vidales, A., and Ippolito, I. (2016). Validation of the Monte Carlo model for resuspension phenomena. *Journal of Aerosol Science*, 100 :26–37.

Bernard, E., Delaporte, P., Jambon, F., Rousseau, B., Grisolia, C., Chaudanson, D., and Nitsche, S. (2016). Tungsten dust in fusion tokamaks : relevant dust laser production, characterization and behaviour under tritium loading. *Physica Scripta*, T167 :014071.

Bernard, E., Jambon, F., Georges, I., Sanles Sobrido, M., Rose, J., Herlin-Boime, N., Miserque, F., Beaunier, P., Vrel, D., Dine, S., Hodille, E., Chêne, J., Garcia-Argote, S., Pieters, G., Peillon, S., Gensdarmes, F., Dinescu, G., Acsente, T., Uboldi, C., Orsiere, T., Malard, V., Rousseau, B., Delaporte, P., and Grisolia, C. (2019a). Design of model tokamak particles for future toxicity studies : Morphology and physical characterization. *Fusion Engineering and Design*, 145 :60–65.

Bernard, E., Sakamoto, R., Hodille, E., Kreter, A., Autissier, E., Barthe, M.-F., Desgardin, P., Schwarz-Selinger, T., Burwitz, V., Feuillastre, S., Garcia-Argote, S., Pieters, G., Rousseau, B., Ialovega, M., Bisson, R., Ghiorghiu, F., Corr, C., Thompson, M., Doerner, R., Markelj, S., Yamada, H., Yoshida, N., and Grisolia, C. (2019b). Tritium retention in W plasma-facing materials : Impact of the material structure and helium irradiation. *Nuclear Materials and Energy*, 19 :403–410.

Biasi, L., de los Reyes, A., Reeks, M., and de Santi, G. (2001). Use of a simple model for the

interpretation of experimental data on particle resuspension in turbulent flows. *Aerosol Science*, pages 1175–1200.

Binnig, G. (1988). Atomic force microscope and method for imaging surfaces with atomic resolution.

Binnig, G., Quate, C. F., and Gerber, C. (1986). Atomic Force Microscope. *Physical Review Letters*, 56(9) :5.

Bonnaud, G. and Rax, J.-M. (2015). Fusion thermonucléaire : fondamentaux, réalisations et perspectives. *Techniques de l'ingénieur*, (af3683).

Boor, B. E., Siegel, J. A., and Novoselac, A. (2013). Monolayer and Multilayer Particle Deposits on Hard Surfaces : Literature Review and Implications for Particle Resuspension in the Indoor Environment. *Aerosol Science and Technology*, 47(8) :831–847.

Bossard-Giannesini, L. (2018). *Mesures et modélisation du travail de sortie de nanoparticules d'or fonctionnalisées et supportées*. PhD Thesis, Sorbonne Université, Institut des Nanosciences de Paris.

Braaten, D., Paw U, K., and Shaw, R. (1990). Particle resuspension in a turbulent boundary layer-observed and modeled. *Journal of Aerosol Science*, 21(5) :613–628.

Braaten, D. A. (1994). Wind Tunnel Experiments of Large Particle Reentrainment-Deposition and Development of Large Particle Scaling Parameters. *Aerosol Science and Technology*, 21(2) :157–169.

Brambilla, S., Speckart, S., Rush, M. N., Montano, G. A., and Brown, M. J. (2018). Glass particle resuspension from a contaminated (dirty) glass surface. *Journal of Aerosol Science*, 123 :122–130.

Bruker (2017). *Atomic force microscopy for materials*. Essential Knowledge Briefings. John wiley & sons edition.

Butt, H.-J., Cappella, B., and Kappl, M. (2005). Force measurements with the atomic force microscope : Technique, interpretation and applications. *Surface Science Reports*, 59(1-6) :1–152.

Carmack, W. J., McCarthy, K. A., Petti, D. A., Kellman, A. G., and Wong, C. P. (1998). Collection and analysis of particulate from the DIII-D Tokamak. *Fusion Engineering and Design*, 39-40 :477–483.

Caruso, G., Nobili, M., and Ferroni, L. (2015). Modelling of Dust Resuspension in Tokamak Devices During an Air Inflow Event. *Journal of Fusion Energy*, 34(5) :1039–1050.

Celano, U., Hantschel, T., Giammaria, G., Chintala, R. C., Conard, T., Bender, H., and Vandervorst, W. (2015). Evaluation of the electrical contact area in contact-mode scanning probe microscopy. *Journal of Applied Physics*, 117(21) :214305.

Chatoutsidou, S. E. and Lazaridis, M. (2018). Evaluation of Particle Resuspension and Single-layer Rates with Exposure Time and Friction Velocity for Multilayer Deposits in a Turbulent Boundary Layer. *Aerosol and Air Quality Research*, 18(8) :2108–2120.

Chen, S. C. and Lin, J. F. (2008). Detailed modeling of the adhesion force between an AFM tip and a smooth flat surface under different humidity levels. *Journal of Micromechanics and Microengineering*, 18(11) :115006.

Cho, A. Y. H. (1964). Contact Charging of Micron-Sized Particles in Intense Electric Fields. *Journal of Applied Physics*, 35(9) :2561–2564.

Cleaver, J. and Tyrrell, J. (2004). The Influence of Relative Humidity on Particle Adhesion – a Review of Previous Work and the Anomalous Behaviour of Soda-lime Glass. *KONA Powder and Particle Journal*, 22(0) :9–22.

Clement, C. and Harrison, R. (1992). The charging of radioactive aerosols. *Journal of Aerosol Science*, 23(5) :481–504.

Clement, C. and Harrison, R. (2000). Enhanced localized charging of radioactive aerosols. *Journal of Aerosol Science*, 31(3) :363–378.

Cooper, D. W., Wolfe, H. L., and Miller, R. J. (1988). Electrostatic Rremoval of particles from surfaces. In *Particles on Surfaces 1*, Plenum Press, page 11. K. L. Mittal (éd.), New York.

Danzi, E. and Marmo, L. (2019). Dust explosion risk in metal workings. *Journal of Loss Prevention in the Process Industries*, 61 :195 – 205.

Das, S., Sreeram, P. A., and Raychaudhuri, A. K. (2007). A method to quantitatively evaluate the Hamaker constant using the jump-into-contact effect in atomic force microscopy. *Nanotechnology*, 18(3) :035501.

de Vries, P. C., Baruzzo, M., Hogeweij, G. M. D., Jachmich, S., Joffrin, E., Lomas, P. J., Matthews, G. F., Murari, A., Nunes, I., Pütterich, T., Reux, C., Vega, J., and JET-EFDA Contributors (2014). The influence of an ITER-like wall on disruptions at JET. *Physics of Plasmas*, 21(5) :056101.

Dejeu, J., Bechelany, M., Philippe, L., Rougeot, P., Michler, J., and Gauthier, M. (2010). Reducing the Adhesion between Surfaces Using Surface Structuring with PS Latex Particle. *ACS Applied Materials & Interfaces*, 2(6) :1630–1636.

Denkevits, A. (2010). Hydrogen/dust explosion hazard in ITER : Effect of nitrogen dilution on explosion behavior of hydrogen/tungsten dust/air mixtures. *Fusion Engineering and Design*, 85(7-9) :1059–1063.

Denkevits, A. and Dorofeev, S. (2006). Explosibility of fine graphite and tungsten dusts and their mixtures. *Journal of Loss Prevention in the Process Industries*, 19(2-3) :174–180.

Derjaguin, B., Muller, V., and Toporov, Y. (1975). Effect of contact deformations on the adhesion of particles. *Journal of Colloid and Interface Science*, 53(2) :314–326.

Dougniaux, G., Sow, M., Peillon, S., Grisolia, C., and Gensdarmes, F. (2019). Monte-Carlo simulations of electrostatic self-charging of tritiated tungsten and beryllium particles. *Journal of Physics : Conference Series*, 1322 :012027.

Ducker, W. A., Senden, T. J., and Pashley, R. M. (1991). Direct measurement of colloidal forces using an atomic force microscope. *Nature*, 353 :239–241.

Eckstein, W., Garcia-Rosales, C., Roth, J., and Ottenberger, W. (1993). Sputtering data. Technical Report IPP 9/82, Garching : Max-Plank-Institut für Plasmaphysik.

El-Kharbachi, A., Chêne, J., Garcia-Argote, S., Marchetti, L., Martin, F., Miserque, F., Vrel, D., Redolfi, M., Malard, V., Grisolia, C., and Rousseau, B. (2014). Tritium absorption/desorption in ITER-like tungsten particles. *International Journal of Hydrogen Energy*, 39(20) :10525–10536.

Endstrasser, N., Rohde, V., Balden, M., Humrickhouse, P., Toussaint, U. v., Braams, B. J., Chung, H.-K., and and, R. N. (2011). Comparative study of the dust particle population sampled during four consecutive campaigns in full-tungsten ASDEX Upgrade. *Physica Scripta*, T145 :014021.

Federici, G., Biel, W., Gilbert, M., Kemp, R., Taylor, N., and Wenninger, R. (2017). European DEMO design strategy and consequences for materials. *Nuclear Fusion*, 57(9) :092002.

Feuillebois, F., Gensdarmes, F., and Gelain, T. (2020). Particle behavior close to the lower wall of a tokamak type geometry during a loss of vacuum accident. *Fusion Engineering and Design*, 153 :111500.

Fillingham, P., Kottapalli, K., Zhan, X., and Novosselov, I. V. (2019). Characterization of

adhesion force in aerodynamic particle resuspension. *Journal of Aerosol Science*, 128 :89–98.

Firdaouss, M., Desgranges, C., Hernandez, C., Richou, M., Greuner, H., Böswirth, B., Zacharie-Aubrun, I., Blay, T., Bucalossi, J., Missirlian, M., Samaille, F., and Tsitrone, E. (2017). Overview of the different processes of tungsten coating implemented into WEST tokamak. *Fusion Engineering and Design*, 124 :207–210.

Flanagan, J. C., Sertoli, M., Bacharis, M., Matthews, G. F., de Vries, P. C., Widdowson, A., Coffey, I. H., Arnoux, G., Sieglin, B., Brezinsek, S., Coenen, J. W., Marsen, S., Craciunescu, T., Murari, A., Harting, D., Cackett, A., and Hodille, E. (2015). Characterising dust in JET with the new ITER-like wall. *Plasma Physics and Controlled Fusion*, 57(1) :014037.

Flanagan, T. M. and Goree, J. (2006). Dust release from surfaces exposed to plasma. *Physics of Plasmas*, 13(12) :123504.

Fortuna-Zaleśna, E., Grzonka, J., Moon, S., Rubel, M., Petersson, P., Widdowson, A., and JET Contributors (2017). Fine metal dust particles on the wall probes from JET-ILW. *Physica Scripta*, T170 :014038.

Fortuna-Zalesna, E., Grzonka, J., Rasinski, M., Balden, M., Rohde, V., Kurzydlowski, K. J., and the ASDEX Upgrade Team (2014). Characterization of dust collected after plasma operation of all-tungsten ASDEX Upgrade. *Physica Scripta*, T159 :014066.

Fritzsche, J. and Peuker, U. A. (2016). Modeling adhesive force distributions on highly rough surfaces. *Powder Technology*, 289 :88–94.

Fronczak, S. G., Dong, J., Browne, C. A., Krenek, E. C., Franses, E. I., Beaudoin, S. P., and Corti, D. S. (2017). A New “Quasi-Dynamic” Method for Determining the Hamaker Constant of Solids Using an Atomic Force Microscope. *Langmuir*, 33(3) :714–725.

Fukunishi, A. and Mori, Y. (2006). Adhesion force between particles and substrate in a humid atmosphere studied by atomic force microscopy. *Advanced Powder Technology*, 17(5) :567–580.

Gan, Y. (2007). Invited Review Article : A review of techniques for attaching micro- and nanoparticles to a probe’s tip for surface force and near-field optical measurements. *Review of Scientific Instruments*, 78(8) :081101.

García-Cascales, J., Vera-García, F., Zueco-Jordán, J., Bentaib, A., Meynet, N., Vendel, J., and Perrault, D. (2010). Development of a IRSN code for dust mobilisation problems in ITER. *Fusion Engineering and Design*, 85(10-12) :2274–2281.

Gauthier, E., Brosset, C., Roche, H., Tsitrone, E., Pégourié, B., Martinez, A., Languille, P., Courtois, X., Lallier, Y., and Salami, M. (2013). Confocal microscopy : A new tool for erosion measurements on large scale plasma facing components in tokamaks. *Journal of Nuclear Materials*, 438 :S1216–S1220.

Gay, J., Marbach, G., and Gulden, W. (1998). Response of ITER to loss of vacuum accidents. *Fusion Engineering and Design*, 42(1-4) :89–93.

Gelain, T., Gensdarmes, F., Peillon, S., and Ricciardi, L. (2020). CFD modelling of particle resuspension in a toroidal geometry resulting from airflows during a loss of vacuum accident (LOVA). *Fusion Engineering and Design*, 151 :111386.

Gensdarmes, F., Boulaud, D., and Renoux, A. (2001). Electrical charging of radioactive aerosols—comparison of the Clement–Harrison models with new experiments. *Journal of Aerosol Science*, 32(12) :1437–1458.

Gensdarmes, F., Grisolia, C., Roynette, A., Peillon, S., Gelain, T., Poli, S., and Gargiulo, L. (2013). Tore Supra carbon dust resuspension studies. *Fusion Engineering and Design*, 88(9-10) :2684–2687.

George, I., Uboldi, C., Bernard, E., Sobrido, M., Dine, S., Hagège, A., Vrel, D., Herlin, N., Rose, J., Orsière, T., Grisolia, C., Rousseau, B., and Malard, V. (2019). Toxicological Assessment of ITER-Like Tungsten Nanoparticles Using an In Vitro 3D Human Airway Epithelium Model. *Nanomaterials*, 9(10) :1374.

Gélain, T., Rondeau, A., Peillon, S., Sabroux, J., and Gensdarmes, F. (2015). CFD modelling of the wall friction velocity field in the ITER tokamak resulting from airflow during a loss of vacuum accident—Consequences for particle resuspension. *Fusion Engineering and Design*, 100 :87–99.

Gong, H. R., Nishi, Y., and Cho, K. (2007). Effects of strain and interface on work function of a Nb–W metal gate system. *Applied Physics Letters*, 91(24) :242105.

Gouveia, R. F., Costa, C. A. R., and Galembeck, F. (2008). Water Vapor Adsorption Effect on Silica Surface Electrostatic Patterning. *The Journal of Physical Chemistry C*, 112(44) :17193–17199.

Grisolia, C., Gensdarmes, F., Peillon, S., Dougniaux, G., Bernard, E., Autricque, A., Pieters, G., Rousseau, B., Feuillastre, S., Garcia-Argote, S., Carvalho, O., Malard, V., George, I., Lebaron-Jacobs, L., Orsiere, T., Uboldi, C., Rose, J., Sanles Sobrido, M., Lambertin, D., Vrel, D., Decanis, C., Liger, K., Acsente, T., and Dinescu, G. (2019). Current investigations on tritiated dust and its impact on tokamak safety. *Nuclear Fusion*, 59(8) :086061.

Grisolia, C., Hodille, E., Chene, J., Garcia-Argote, S., Pieters, G., El-Kharbachi, A., Marchetti, L., Martin, F., Miserque, F., Vrel, D., Redolfi, M., Malard, V., Dinescu, G., Acsente, T., Gensdarmes, F., Peillon, S., Pegourié, B., and Rousseau, B. (2015). Tritium absorption and desorption in ITER relevant materials : comparative study of tungsten dust and massive samples. *Journal of Nuclear Materials*, 463 :885–888.

Grisolia, C., Rosanvallon, S., Loarte, A., Sharpe, P., and Arnas, C. (2009). From eroded material to dust : An experimental evaluation of the mobilised dust production in Tore Supra. *Journal of Nuclear Materials*, 390-391 :53–56.

Grosse, A. V., Johnston, W. M., Wolfgang, R. L., and Libby, W. F. (1951). Tritium in Nature. *Science*, 113(2923) :1.

Götzinger, M. and Peukert, W. (2003). Dispersive forces of particle–surface interactions : direct AFM measurements and modelling. *Powder Technology*, 130(1-3) :102–109.

Götzinger, M. and Peukert, W. (2004). Particle Adhesion Force Distributions on Rough Surfaces. *Langmuir*, 20(13) :5298–5303.

Guingo, M. and Minier, J.-P. (2008). A new model for the simulation of particle resuspension by turbulent flows based on a stochastic description of wall roughness and adhesion forces. *Journal of Aerosol Science*, 39(11) :957–973.

Hall, D. (1988). Measurements of the mean force on a particle near a boundary in turbulent flow. *Journal of Fluid Mechanics*, 187(-1) :451.

Hamaker, H. (1937). The London—van der Waals attraction between spherical particles. *Physica*, 4(10) :1058–1072.

Henry, C. and Minier, J.-P. (2014). Progress in particle resuspension from rough surfaces by turbulent flows. *Progress in Energy and Combustion Science*, 45 :1–53.

Henry, C. and Minier, J.-P. (2018). Colloidal particle resuspension : On the need for refined characterisation of surface roughness. *Journal of Aerosol Science*, 118 :1–13.

Hinds, W. C. (1999). *Aerosol technology : properties, behavior, and measurement of airborne particles*. New York (N.Y.) : Wiley, 2nd ed. edition.

Hirai, T., Panayotis, S., Barabash, V., Amzallag, C., Escourbiac, F., Durocher, A., Merola, M., Linke, J., Loewenhoff, T., Pintsuk, G., Wirtz, M., and Uytdenhouwen, I. (2016). Use of tungsten material for the ITER divertor. *Nuclear Materials and Energy*, 9 :616–622.

Hölzl, J. and Schulte, F. K. (1979). Work function of metals. In Hölzl, J., Schulte, F. K.,

and Wagner, H., editors, *Solid Surface Physics*, Springer Tracts in Modern Physics, pages 1–150. Springer, Berlin, Heidelberg.

Hodille, E. A., Bernard, E., Markelj, S., Mougenot, J., Becquart, C. S., Bisson, R., and Grisolia, C. (2017). Estimation of the tritium retention in ITER tungsten divertor target using macroscopic rate equations simulations. *Physica Scripta*, T170 :014033.

Honda, T. and Okazaki, T. (2000). Analyses of loss of vacuum accident (LOVA) in ITER. *Fusion Engineering and Design*, 47 :361–375.

Hong, S.-H., Grisolia, C., and Monier-Gabet, P. (2009). Investigation of temporal evolution and spatial distribution of dust creation events in DITS campaign using visible CCD cameras in Tore Supra. *Journal of Nuclear Materials*, 390-391 :100–102.

Hu, B., Freihaut, J. D., Bahnfleth, W. P., and Thran, B. (2008). Measurements and Factorial Analysis of Micron-Sized Particle Adhesion Force to Indoor Flooring Materials by Electrostatic Detachment Method. *Aerosol Science and Technology*, 42(7) :513–520.

Hudlet, S., Saint Jean, M., Guthmann, C., and Berger, J. (1998). Evaluation of the capacitive force between an atomic force microscopy tip and a metallic surface. *The European Physical Journal B*, 2(1) :5–10.

Humrickhouse, P. and Sharpe, J. (2008). Dust mobilization and transport modeling for loss of vacuum accidents. *Fusion Engineering and Design*, 83(10-12) :1721–1724.

IAEA (2002). ITER Technical Basis. Technical Report 24, International Atomic Energy Agency, Vienna.

Ibrahim, A., Dunn, P., and Brach, R. (2003). Microparticle detachment from surfaces exposed to turbulent air flow : controlled experiments and modeling. *Journal of Aerosol Science*, 34(6) :765–782.

Ibrahim, A., Dunn, P., and Qazi, M. (2008). Experiments and validation of a model for microparticle detachment from a surface by turbulent air flow. *Journal of Aerosol Science*, 39(8) :645–656.

ICRP (1991). *1990 Recommandations of the International Commission on radiological Protection*, volume 21(1-3) of *ICRP Publication 60*. Pergamon Press, Oxford.

Ikeda, K. (2010). ITER on the road to fusion energy. *Nuclear Fusion*, 50(1) :014002.

Intra, P. and Tippayawong, N. (2009). Progress in unipolar corona discharger designs for airborne particle charging : A literature review. *Journal of Electrostatics*, 67(4) :605–615.

Israelachvili, J. N. (2011). *Intermolecular and Surface Forces*. Academic Press. Elsevier.

Ivanova, D., Rubel, M., Philipps, V., Freisinger, M., Huang, Z., Penkalla, H., Schweer, B., Sergienko, G., Sundelin, P., and Wessel, E. (2009). Survey of dust formed in the TEXTOR tokamak : structure and fuel retention. *Physica Scripta*, T138 :014025.

Jacobs, T. D. B., Ryan, K. E., Keating, P. L., Grierson, D. S., Lefever, J. A., Turner, K. T., Harrison, J. A., and Carpick, R. W. (2013). The Effect of Atomic-Scale Roughness on the Adhesion of Nanoscale Asperities : A Combined Simulation and Experimental Investigation. *Tribology Letters*, 50(1) :81–93.

Jiang, X.-L. and Boulos, M. (2006). Induction plasma spheroidization of tungsten and molybdenum powders. *Transactions of Nonferrous Metals Society of China*, 16(1) :13–17.

Jiang, Y., Matsusaka, S., Masuda, H., and Qian, Y. (2008). Characterizing the effect of substrate surface roughness on particle–wall interaction with the airflow method. *Powder Technology*, 186(3) :199–205.

John, W. and Reischl, G. (1978). Measurements of the filtration efficiencies of selected filter types. *Atmospheric Environment*, 12(10) :2015–2019.

Johnson, D. F. and Carter, E. A. (2010). Hydrogen in tungsten : Absorption, diffusion, vacancy trapping, and decohesion. *Journal of Materials Research*, 25(02) :315–327.

Johnson, J. R., Myers, D. K., Jackson, J. S., Dunford, D. W., Gragtmans, N. J., Wyatt, H. M., Jones, A. R., and Percy, D. H. (1995). Relative Biological Effectiveness of Tritium for Induction of Myeloid Leukemia in CBA/H Mice. *Radiation Research*, 144(1) :82–89.

Johnson, K. L., Kendall, K., and Roberts, A. D. (1971). Surface energy and the contact of elastic solids. *Proceedings of the Royal Society A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 324 :301–313.

Jones, R., Pollock, H. M., Cleaver, J. A. S., and Hodges, C. S. (2002). Adhesion Forces between Glass and Silicon Surfaces in Air Studied by AFM : Effects of Relative Humidity, Particle Size, Roughness, and Surface Treatment. *Langmuir*, 18(21) :8045–8055.

Jones, T. B. (1995). *Electromechanics of particles*. Cambridge Univ. Press, Cambridge. OCLC : 31291292.

Kahn, A. (2016). Fermi level, work function and vacuum level. *Materials Horizons*, 3(1) :7–10.

Kaja, K. (2010). *Développement de techniques nano-sondes pour la mesure du travail de sortie*

et application aux matériaux en microélectronique. PhD Thesis, Université de Grenoble, CEA-LETI-MINATEC.

Kaja, K., Chevalier, N., Mariolle, D., Bertin, F., Feuillet, G., Chabli, A., Secula, E. M., Seiler, D. G., Khosla, R. P., Herr, D., Michael Garner, C., McDonald, R., and Diebold, A. C. (2009). Effects of Experimental Parameters on the Work Function Measurement : A Kelvin Force Microscopy Study. In *AIP Conference Proceedings*, pages 224–228, Albany (New York). AIP.

Kajita, S., Sakaguchi, W., Ohno, N., Yoshida, N., and Saeki, T. (2009). Formation process of tungsten nanostructure by the exposure to helium plasma under fusion relevant plasma conditions. *Nuclear Fusion*, 49(9) :095005.

Kaufman, S. and Libby, W. F. (1954). The Natural Distribution of Tritium. *Phys. Rev.*, 93(6) :1337–1344. Publisher : American Physical Society.

Kim, Y.-h., Yiacoumi, S., Lee, I., McFarlane, J., and Tsouris, C. (2014). Influence of Radioactivity on Surface Charging and Aggregation Kinetics of Particles in the Atmosphere. *Environmental Science & Technology*, 48(1) :182–189.

Klimov, N., Podkovyrov, V., Zhitlukhin, A., Kovalenko, D., Linke, J., Pintsuk, G., Landman, I., Pestchanyi, S., Bazylev, B., Janeschitz, G., Loarte, A., Merola, M., Hirai, T., Federici, G., Riccardi, B., Mazul, I., Giniyatulin, R., Khimchenko, L., and Koidan, V. (2011). Experimental study of PFCs erosion and eroded material deposition under ITER-like transient loads at the plasma gun facility QSPA-T. *Journal of Nuclear Materials*, 415(1) :S59–S64.

Kok, J. F. and Renno, N. O. (2008). Electrostatics in Wind-Blown Sand. *Physical Review Letters*, 100(1).

Krishnaji, Kant, P., and Srivastava, R. (1975). Dielectric properties of vacuum-evaporated films of tungsten oxide. *Thin Solid Films*, 30(2) :319–323.

Krupp, H. (1967). Particle adhesion : theory and experiment. *Adv. Colloid Interface Sci.*, 1 :111–239.

Kumar, A., Staedler, T., and Jiang, X. (2013). Role of relative size of asperities and adhering particles on the adhesion force. *Journal of Colloid and Interface Science*, 409 :211–218.

Kweon, H., Yiacoumi, S., Lee, I., McFarlane, J., and Tsouris, C. (2013). Influence of Surface Potential on the Adhesive Force of Radioactive Gold Surfaces. *Langmuir*, 29(38) :11876–11883.

Kweon, H., Yiacoumi, S., and Tsouris, C. (2015). The role of electrostatic charge in the

adhesion of spherical particles onto planar surfaces in atmospheric systems. *Colloids and Surfaces A : Physicochemical and Engineering Aspects*, 481 :583–590.

Kweon, H. J. (2013). *Adhesion and friction forces of colloidal particles in atmospheric systems*. PhD thesis, Georgia Institute of Technology.

Lackowski, M., Krupa, A., and Jaworek, A. (2010). Corona discharge ion sources for fine particle charging. *The European Physical Journal D*, 56(3) :377–382.

Laitinen, O., Bauer, K., Niinimäki, J., and Peuker, U. (2013). Validity of the Rumpf and the Rabinovich adhesion force models for alumina substrates with nanoscale roughness. *Powder Technology*, 246 :545–552.

LaMarche, C. Q., Leadley, S., Liu, P., Kellogg, K. M., and Hrenya, C. M. (2017). Method of quantifying surface roughness for accurate adhesive force predictions. *Chemical Engineering Science*, 158 :140–153.

Le Guern, F., Gulden, W., Ciattaglia, S., Counsell, G., Bengaouer, A., Brinster, J., Dabbene, F., Denkevitz, A., Jordan, T., Kuznetsov, M., Porfiri, M., Redlinger, R., Roblin, P., Roth, J., Segré, J., Sugiyama, K., Tkatschenko, I., and Xu, Z. (2011). F4E R&D programme and results on in-vessel dust and tritium. *Fusion Engineering and Design*, 86(9-11) :2753–2757.

Leighton, D. and Acrivos, A. (1985). The lift on a small sphere touching a plane in the presence of a simple shear flow. *Zeitschrift für angewandte Mathematik und Physik ZAMP*, 36(1) :174–178.

Leite, F. L., Bueno, C. C., Da Róz, A. L., Ziemath, E. C., and Oliveira, O. N. (2012). Theoretical Models for Surface Forces and Adhesion and Their Measurement Using Atomic Force Microscopy. *International Journal of Molecular Sciences*, 13(12) :12773–12856.

Li, W., Cai, M., Wang, Y., and Yu, S. (2006). Influences of tensile strain and strain rate on the electron work function of metals and alloys. *Scripta Materialia*, 54(5) :921–924.

Liger, K., Grisolia, C., Cristescu, I., Moreno, C., Malard, V., Coombs, D., and Markelj, S. (2018). Overview of the TRANSAT (TRANSversal Actions for Tritium) project. *Fusion Engineering and Design*, 136 :168–172.

Ling, X., Jayaratne, R., and Morawska, L. (2010). Air ion concentrations in various urban outdoor environments. *Atmospheric Environment*, 44(18) :2186–2193.

London, F. (1937). The general theory of molecular forces. *Trans. Faraday Soc.*, 33(0) :8b–26. Publisher : The Royal Society of Chemistry.

Marin, J. (2020). Voyage au centre de l'Iter. Library Catalog : www.latribune.fr.

Masuda, H., Gotoh, K., Fukada, H., and Banba, Y. (1994). The removal of particles from flat surfaces using a high-speed air jet. *Advanced Powder Technology*, 5(2) :205–217.

Matsusaka, S., Maruyama, H., Matsuyama, T., and Ghadiri, M. (2010). Triboelectric charging of powders : A review. *Chemical Engineering Science*, 65(22) :5781–5807.

Matsusaka, S. and Masuda, H. (1996). Particle Reentrainment from a Fine Powder Layer in a Turbulent Air Flow. *Aerosol Science and Technology*, 24(2) :69–84.

Matsusaka, S., Wei, D., Yasuda, M., and Sasabe, S. (2015). Adhesive strength distribution of charged particles on metal substrate in external electric field. *Advanced Powder Technology*, 26(1) :149–155.

Maugis, D. (1992). Adhesion of spheres : The JKR-DMT transition using a dugdale model. *Journal of Colloid and Interface Science*, 150(1) :243–269.

Melitz, W., Shen, J., Kummel, A. C., and Lee, S. (2011). Kelvin probe force microscopy and its application. *Surface Science Reports*, 66(1) :1–27.

Merola, M., Loesser, D., Martin, A., Chappuis, P., Mitteau, R., Komarov, V., Pitts, R., Gicquel, S., Barabash, V., Giancarli, L., Palmer, J., Nakahira, M., Loarte, A., Campbell, D., Eaton, R., Kukushkin, A., Sugihara, M., Zhang, F., Kim, C., Raffray, R., Ferrand, L., Yao, D., Sadakov, S., Furmanek, A., Rozov, V., Hirai, T., Escourbiac, F., Jokinen, T., Calcagno, B., and Mori, S. (2010). ITER plasma-facing components. *Fusion Engineering and Design*, 85(10-12) :2312–2322.

Meyer, J., Hamwi, S., Kröger, M., Kowalsky, W., Riedl, T., and Kahn, A. (2012). Transition Metal Oxides for Organic Electronics : Energetics, Device Physics and Applications. *Advanced Materials*, 24(40) :5408–5427.

Minibaev, R. F., Bagatur'yants, A. A., Bazhanov, D. I., Knizhnik, A. A., and Alfimov, M. V. (2010). First-principles investigation of the electron work function for the (001) surface of indium oxide In2O3 and indium tin oxide (ITO) as a function of the surface oxidation level. *Nanotechnologies in Russia*, 5(3-4) :185–190.

Mizes, H., Ott, M., Eklund, E., and Hays, D. (2000). Small particle adhesion : measurement and control. *Colloids and Surfaces A : Physicochemical and Engineering Aspects*, 165(1-3) :11–23.

Moon, S. B., Lim, S. M., and Bang, I. C. (2018). Analysis of hydrogen and dust explosion

after vacuum vessel rupture : Preliminary safety analysis of Korean fusion demonstration reactor using MELCOR. *International Journal of Energy Research*, 42(1) :104–116.

Nakahira, M., Koizumi, K., Oka, K., Itou, Y., Takahashi, H., Tada, E., Ioki, K., Johnson, G., Onozuka, M., Utin, Y., Sannazzaro, G., Takahashi, K., Nelson, B., Maslakowski, J., Krylov, V., and Kuzmin, E. (1999). Integration test of ITER full-scale vacuum vessel sector.

Nonnenmacher, M., O'Boyle, M. P., and Wickramasinghe, H. K. (1991). Kelvin probe force microscopy. *Applied Physics Letters*, 58(25) :2921–2923.

Nordling, C. and Osterman, J. (2006). *Physics handbook for Science and Engineering*. Studentlitteratur AB, eigth edition edition.

Novikov, A. (2010). Experimental measurement of work function in doped silicon surfaces. *Solid-State Electronics*, 54(1) :8–13.

O'Neill, M. (1968). A sphere in contact with a plane wall in a slow linear shear flow. *Chemical Engineering Science*, 23(11) :1293–1298.

Otsuka, T. and Hatano, Y. (2016). Tritium retention in individual metallic dust particles examined by a tritium imaging plate technique. *Physica Scripta*, T167 :014010.

Otsuka, T., Masuzaki, S., Ashikawa, N., Hatano, Y., Asakura, Y., Suzuki, T., Suzuki, T., Isobe, K., Hayashi, T., Tokitani, M., Oya, Y., Hamaguchi, D., Kurotaki, H., Sakamoto, R., Tanigawa, H., Nakamichi, M., Widdowson, A., and Rubel, M. (2018). Tritium retention characteristics in dust particles in JET with ITER-like wall. *Nuclear Materials and Energy*, 17 :279–283.

Ouaras, K. (2016). *Mécanismes de formation et dynamique du transport des poussières de carbone et de tungstène dans un plasma Micro-Onde magnétisé et non-magnétisé*. Génie des procédés, Université Sorbonne Paris Cité.

Ouaras, K., Hassouni, K., Delacqua, L. C., Lombardi, G., Vrel, D., and Bonnin, X. (2015). Tungsten dust nanoparticles generation from blistering bursts under hydrogen environment in microwave ECR discharge. *Journal of Nuclear Materials*, 466 :65–68.

Oudayer, P., Matéo-Vélez, J.-C., Roussel, J.-F., Peillon, S., Gensdarmes, F., and Grisolia, C. (2019). Experimental determination of adhesion force of lunar dust simulants using centrifugal force. volume LPI Contrib. No. 2132, page 2446.

Pakarinen, O. H., Foster, A. S., Paajanen, M., Kalinainen, T., Katainen, J., Makkonen, I., Lahtinen, J., and Nieminen, R. M. (2005). Towards an accurate description of the ca-

pillary force in nanoparticle-surface interactions. *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering*, 13(7) :1175–1186.

Pan, C. A. and Ma, T. P. (1980). Work function of In2O3 film as determined from internal photoemission. *Applied Physics Letters*, 37(8) :714–716.

Parsegian, V. A. (2005). *Van der Waals Forces : A Handbook for Biologists, Chemists, Engineers, and Physicists*. Cambridge University Press, Cambridge.

Pauthenier, M. (1932). La charge des particules sphériques dans un champ ionisé. *Journal de Physique et du Radium*, 3(12) :590–613.

Peillon, S., Autricque, A., Redolfi, M., Stancu, C., Gensdarmes, F., Grisolia, C., and Pluchery, O. (2019). Adhesion of tungsten particles on rough tungsten surfaces using Atomic Force Microscopy. *Journal of Aerosol Science*, 137 :105431.

Peillon, S., Dougniaux, G., Payet, M., Bernard, E., Pieters, G., Feuillastre Ressources, S., Garcia-Argote, S., Gensdarmes, F., Arnas, C., Miserque, F., Herlin-Boime, N., Grisolia, C., and Pluchery, O. (2020). Dust sampling in WEST and tritium retention in tokamak-relevant tungsten particles. *Nuclear Materials and Energy*, page 100781.

Peillon, S., Roynette, A., Grisolia, C., and Gensdarmes, F. (2014). Resuspension of carbon dust collected in Tore Supra and exposed to turbulent airflow : Controlled experiments and comparison with model. *Fusion Engineering and Design*, 89(11) :2789–2796.

Peillon, S., Sow, M., Grisolia, C., Miserque, F., and Gensdarmes, F. (2017). Mobilization of tungsten dust by electric forces and its bearing on tritiated particles in the ITER tokamak. *Journal of Electrostatics*, 88 :111–115.

Perrault, D. (2017). Réacteurs nucléaires de fusion. Technical Report IRSN 2017/199, Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire, Fontenay-aux-Roses.

Prokopovich, P. and Starov, V. (2011). Adhesion models : From single to multiple asperity contacts. *Advances in Colloid and Interface Science*, 168(1-2) :210–222.

Rabinovich, Y. I., Adler, J. J., Ata, A., Singh, R. K., and Moudgil, B. M. (2000a). Adhesion between Nanoscale Rough Surfaces : measurements and comparison with theory. *Journal of Colloid and Interface Science*, 232(1) :17–24.

Rabinovich, Y. I., Adler, J. J., Ata, A., Singh, R. K., and Moudgil, B. M. (2000b). Adhesion between Nanoscale Rough Surfaces : Role of asperity geometry. *Journal of Colloid and Interface Science*, 232(1) :10–16.

Rabinovich, Y. I., Adler, J. J., Esayanur, M. S., Ata, A., Singh, R. K., and Moudgil, B. M. (2002). Capillary forces between surfaces with nanoscale roughness. *Advances in Colloid and Interface Science*, 96(1-3) :213–230.

Raffray, A., Federici, G., Barabash, V., Pacher, H., Bartels, H., Cardella, A., Jakeman, R., Ioki, K., Janeschitz, G., Parker, R., Tivey, R., and Wu, C. (1997). Beryllium application in ITER plasma facing components. *Fusion Engineering and Design*, 37(2) :261–286.

Reeks, M. W. and Hall, D. (2001). Kinetic models for particle resuspension in turbulent flows : theory and measurement. *Aerosol Science*, pages 1–31.

Reux, C. (2010). *Etude d'une méthode d'amortissement des disruptions d'un plasma de tokamak*. Physique des plasmas, Ecole Polytechnique X.

Ripperger, S. and Hein, K. (2004). Measurement of Adhesion Forces between Particles and Rough Substrates in Air with the Vibration Method. *KONA Powder and Particle Journal*, 22(0) :121–133.

Riva, G., Tolias, P., Ratynskaia, S., Daminelli, G., Donde, R., De Angeli, M., Vassallo, E., and Pedroni, M. (2017). Adhesion measurements for tungsten dust deposited on tungsten surfaces. *Nuclear Materials and Energy*, 12 :593–598.

Rodriguez, R. D., Lacaze, E., and Jupille, J. (2012). Probing the probe : AFM tip-profiling via nanotemplates to determine Hamaker constants from phase–distance curves. *Ultramicroscopy*, 121 :25–30.

Rohde, V., Balden, M., Lunt, T., and Upgrade Team, t. A. (2009). Dust investigations at ASDEX Upgrade. *Physica Scripta*, T138 :014024.

Rohde, V., Endstrasser, N., Toussaint, U., Balden, M., Lunt, T., Neu, R., Hakola, A., and Bucalossi, J. (2011). Tungsten erosion by arcs in ASDEX upgrade. *Journal of Nuclear Materials*, 415(1) :S46–S50.

Rondeau, A. (2015). *Etude de la mise en suspension aéraulique appliquée à la problématique des poussières dans le futur tokamak ITER*. PhD thesis, Université Paris-Saclay, Saclay.

Rondeau, A., Peillon, S., Roynette, A., Sabroux, J.-C., Gelain, T., Gensdarmes, F., Rohde, V., Grisolia, C., and Chassefière, E. (2015). Characterization of dust particles produced in an all-tungsten wall tokamak and potentially mobilized by airflow. *Journal of Nuclear Materials*, 463 :873–876.

Rubel, M., Widdowson, A., Fortuna-Zaleśna, E., Ayres, C., Berry, M., Burford, M., Collins, S., and and, P. M. (2020). Search for mobilised dust during operations with equipment for

remote handling in JET with ITER-like wall. *Physica Scripta*, T171 :014048. Publisher : IOP Publishing.

Rubel, M., Widdowson, A., Grzonka, J., Fortuna-Zalesna, E., Moon, S., Petersson, P., Ashikawa, N., Asakura, N., Hamaguchi, D., Hatano, Y., Isobe, K., Masuzaki, S., Kurotaki, H., Oya, Y., Oyaidzu, M., and Tokitani, M. (2018). Dust generation in tokamaks : Overview of beryllium and tungsten dust characterisation in JET with the ITER-like wall. *Fusion Engineering and Design*, 136 :579–586.

Rumpf, H. (1990). *Particle technology*. Chapman and Hall, London. OCLC : 472909018.

Salazar-Banda, G., Felicetti, M., Gonçalves, J., Coury, J., and Aguiar, M. (2007). Determination of the adhesion force between particles and a flat surface, using the centrifuge technique. *Powder Technology*, 173(2) :107–117.

Sedin, D. L. and Rowlen, K. L. (2000). Adhesion Forces Measured by Atomic Force Microscopy in Humid Air. *Analytical Chemistry*, 72(10) :2183–2189.

Sharpe, J. P. and Petti, D. A. (2002). A review of dust in fusion devices : Implications for safety and operational performance. *Fusion Engineering and Design*, 63-64 :153–163.

Sharpe, M., Fagan, C., Shmayda, W., and Schröder, W. (2018). Partitioning of tritium between surface and bulk of 316 stainless steel at room temperature. *Fusion Engineering and Design*, 130 :76–79.

Sharpe, M., Fagan, C., and Shmayda, W. T. (2019). Distribution of Tritium in the Near Surface of Type 316 Stainless Steel. *Fusion Science and Technology*, 75(8) :1053–1057.

Sickafoose, A. A., Colwell, J. E., Horányi, M., and Robertson, S. (2000). Photoelectric Charging of Dust Particles in Vacuum. *Physical Review Letters*, 84(26) :6034–6037.

Skinner, C., Gentile, C., Ciebiera, L., and Langish, S. (2003). Tritiated dust levitation by beta induced static charge. Technical Report PPPL-3818, U.S. Department of Energy, Princeton University, New Jersey.

Skinner, C. H., Campos, A., Kugel, H., Leisure, J., Roquemore, A. L., and Wagner, S. (2008). Electrostatic Dust Detection and Removal for ITER. Technical Report IT/P6-26, Princeton Plasma Physics Laboratory.

Soltani, M. and Ahmadi, G. (1994). On particle adhesion and removal mechanisms in turbulent flows. *Journal of Adhesion Science and Technology*, 8(7) :763–785.

Soo, J.-C., Monaghan, K., Lee, T., Kashon, M., and Harper, M. (2016). Air sampling filtration

media : Collection efficiency for respirable size-selective sampling. *Aerosol Science and Technology*, 50(1) :76–87.

Stancu, C., Stokker-Cheregi, F., Moldovan, A., Dinescu, M., Grisolia, C., and Dinescu, G. (2017). Modification of W surfaces by exposure to hollow cathode plasmas. *Applied Physics A*, 123(10).

Stempniewicz, M. and Komen, E. (2010). Comparison of several resuspension models against measured data. *Nuclear Engineering and Design*, 240(6) :1657–1670.

Stempniewicz, M., Komen, E., and de With, A. (2008). Model of particle resuspension in turbulent flows. *Nuclear Engineering and Design*, 238(11) :2943–2959.

Sugiyama, K., Schmid, K., and Jacob, W. (2016). Sputtering of iron, chromium and tungsten by energetic deuterium ion bombardment. *Nuclear Materials and Energy*, 8 :1–7.

Szarek, T. R. and Dunn, P. F. (2007). An Apparatus to Determine the Pull-Off Force of a Conducting Microparticle from a Charged Surface. *Aerosol Science and Technology*, 41(1) :43–50.

Taboada-Serrano, P., Vithayaveroj, V., Yiacoumi, S., and Tsouris, C. (2005). Surface Charge Heterogeneities Measured by Atomic Force Microscopy. *Environmental Science & Technology*, 39(17) :6352–6360.

Tabor, D. (1977). Surface forces and surface interactions. *Journal of Colloid and Interface Science*, 58(1) :2–13.

Takeuchi, M. (2006). Adhesion forces of charged particles. *Chemical Engineering Science*, 61(7) :2279–2289.

Taylor, N., Ciattaglia, S., Cortes, P., Iseli, M., Rosanvallon, S., and Topilski, L. (2012). ITER safety and licensing update. *Fusion Engineering and Design*, 87(5-6) :476–481.

Taylor, N. and Cortes, P. (2014). Lessons learnt from ITER safety & licensing for DEMO and future nuclear fusion facilities. *Fusion Engineering and Design*, 89(9-10) :1995–2000.

Tolias, P. (2018). Lifshitz calculations of Hamaker constants for fusion relevant materials. *Fusion Engineering and Design*, 133 :110–116.

Tolias, P. (2020). Non-retarded room temperature Hamaker constants between elemental metals. *Surface Science*, 700 :121652.

Tolias, P., De Angeli, M., Riva, G., Ratynskaia, S., Daminelli, G., Laguardia, L., Pedroni, M.,

Ripamonti, D., Uccello, A., and Vassallo, E. (2019). The adhesion of tungsten dust on plasma-exposed tungsten surfaces. *Nuclear Materials and Energy*, 18 :18–22.

Tolias, P., Riva, G., De Angeli, M., Ratynskaia, S., Daminelli, G., Lungu, C., and Porosnicu, C. (2018). Adhesive force distributions for tungsten dust deposited on bulk tungsten and beryllium-coated tungsten surfaces. *Nuclear Materials and Energy*, 15 :55–63.

Tyson, W. and Miller, W. (1977). Surface free energies of solid metals : Estimation from liquid surface tension measurements. *Surface Science*, 62(1) :267–276.

Uboldi, C., Sanles Sobrido, M., Bernard, E., Tassistro, V., Herlin-Boime, N., Vrel, D., Garcia-Argote, S., Roche, S., Magdinier, F., Dinescu, G., Malard, V., Lebaron-Jacobs, L., Rose, J., Rousseau, B., Delaporte, P., Grisolia, C., and Orsière, T. (2019). In Vitro Analysis of the Effects of ITER-Like Tungsten Nanoparticles : Cytotoxicity and Epigenotoxicity in BEAS-2B Cells. *Nanomaterials*, 9(9) :1233.

Vincent, J. C., Hill, J., Walker, M. D., Smith, S. A., Smith, S. E., and Cant, N. E. (2019). Towards a predictive capability for the resuspension of particles through extension and experimental validation of the Biasi implementation of the “Rock’n’Roll” model. *Journal of Aerosol Science*, 137 :105435.

Vitos, L., Ruban, A., Skriver, H., and Kollár, J. (1998). The surface energy of metals. *Surface Science*, 411(1-2) :186–202.

Walker, M., McFarlane, J., Glasgow, D., Chung, E., Taboada-Serrano, P., Yiacoumi, S., and Tsouris, C. (2010). Influence of radioactivity on surface interaction forces. *Journal of Colloid and Interface Science*, 350(2) :595–598.

Walton, O. R. (2008). Review of Adhesion Fundamentals for Micron-Scale Particles. *KONA Powder and Particle Journal*, 26(0) :129–141.

Wanka, S., Kappl, M., Wolkenhauer, M., and Butt, H.-J. (2013). Measuring Adhesion Forces in Powder Collectives by Inertial Detachment. *Langmuir*, 29(52) :16075–16083.

Weckmann, A. (2017). *Material migration in tokamaks : Erosion-deposition patterns and transport processes*. PhD Thesis, KTH, Stockholm.

Wen, H. and Kasper, G. (1989). On the kinetics of particle reentrainment from surfaces. *Journal of Aerosol Science*, 20(4) :483–498.

Widdowson, A., Ayres, C., Booth, S., Coad, J., Hakola, A., Heinola, K., Ivanova, D., Koivuranta, S., Likonen, J., Mayer, M., and Stamp, M. (2013). Comparison of JET main cham-

ber erosion with dust collected in the divertor. *Journal of Nuclear Materials*, 438 :S827–S832.

Wilson, R. G. (1966). Vacuum Thermionic Work Functions of Polycrystalline Be, Ti, Cr, Fe, Ni, Cu, Pt, and Type 304 Stainless Steel. *Journal of Applied Physics*, 37(6) :2261–2267.

Winter, J. (1998). Dust in fusion devices - experimental evidence, possible sources and consequences. *Plasma Physics and Controlled Fusion*, 40(6) :1201–1210.

Winter, J. (2004). Dust in fusion devices—a multi-faceted problem connecting high- and low-temperature plasma physics. *Plasma Physics and Controlled Fusion*, 46(12B) :B583–B592.

Winter, J., Fortov, V., and Nefedov, A. (2001). Radioactive dust levitation and its consequences for fusion devices. *Journal of Nuclear Materials*, 290-293 :509–512.

Wirth, B. D., Hammond, K., Krasheninnikov, S., and Maroudas, D. (2015). Challenges and opportunities of modeling plasma–surface interactions in tungsten using high-performance computing. *Journal of Nuclear Materials*, 463 :30–38.

Wu, Y., Castle, G., Inculet, I., Petigny, S., and Swei, G. (2004). The Effect of Electric Field Strength on the Induction Charge of Freely Levitating Particles. *IEEE Transactions on Industry Applications*, 40(6) :1498–1503.

Yamamoto, O., Seyama, T., Jo, T., Terato, H., Saito, T., and Kinomura, A. (1995). Oral Administration of Tritiated Water (HTO) in Mouse. II. Tumour Development. *International Journal of Radiation Biology*, 68(1) :47–54. Publisher : Taylor & Francis.

Yang, X., Chu, M., Huang, A., and Thompson, S. (2013). Effects of mechanical-bending and process-induced stresses on metal effective work function. *Solid-State Electronics*, 79 :142–146.

Yeh, H., Newton, G., Raabe, O., and Boor, D. (1976). Self-charging of 198 Au-labeled monodisperse gold aerosols studied with a miniature electrical mobility spectrometer. *Journal of Aerosol Science*, 7(3) :245–253.

Yeo, Y.-C., King, T.-J., and Hu, C. (2002). Metal-dielectric band alignment and its implications for metal gate complementary metal-oxide-semiconductor technology. *Journal of Applied Physics*, 92(12) :7266–7271.

Zhang, F., Reeks, M., and Kissane, M. (2013). Particle resuspension in turbulent boundary layers and the influence of non-Gaussian removal forces. *Journal of Aerosol Science*, 58 :103–128.

Zhou, H., Götzinger, M., and Peukert, W. (2003). The influence of particle charge and roughness on particle–substrate adhesion. *Powder Technology*, 135-136 :82–91.

Ziskind, G. (2006). Particle resuspension from surfaces - Revisited and re-evaluated. *Reviews in Chemical Engineering*, 22(1-2).

Zíková, N., Ondráček, J., and Ždímal, V. (2015). Size-Resolved Penetration Through High-Efficiency Filter Media Typically Used for Aerosol Sampling. *Aerosol Science and Technology*, 49(4) :239–249.

Titre : Influence des effets électrostatiques liés à la radioactivité sur les forces d'adhésion et sur la mise en suspension de particules métalliques

La mobilité et le confinement des poussières radioactives produites par les interactions plasma/paroi ayant lieu au cœur d'un tokamak sont devenues, au fil des années, des sujets majeurs pour l'évaluation de sûreté de l'installation ITER. En conditions de fonctionnement normal, ce réacteur pourra accumuler plusieurs centaines de kilogrammes de poussières métalliques (issues des matériaux face au plasma) qui peuvent être radioactives, présenter une toxicité chimique aiguë ou encore constituer, avec l'air et la vapeur d'eau, un mélange potentiellement explosif. Pour répondre à ces problématiques de sûreté, j'ai adopté au cours de ma thèse des approches complémentaires basées sur des travaux expérimentaux et numériques. Dans un premier temps, un dispositif de prélèvement de poussières a été conçu et fabriqué afin de collecter des poussières déposées sur les parois d'un réacteur de fusion. La campagne de prélèvements *in situ* réalisée avec ce dispositif dans le tokamak WEST (CEA/IRFM) a permis d'identifier des particules de tungstène de forme sphérique et de taille micrométrique. Grâce à ces échantillons, j'ai pu réaliser une étude paramétrique approfondie sur les forces d'adhésion à l'aide d'un microscope à force atomique (AFM). Des distributions de forces d'adhésion pour différents systèmes particule/surface ont ainsi été obtenues. Les résultats de cette étude sont en très bon accord avec un modèle analytique qui permet de décrire les forces d'adhésion en fonction de la taille des particules et de la rugosité des surfaces. J'ai poursuivi l'étude en réalisant des mesures du potentiel électrique des particules lorsqu'elles sont marquées en tritium grâce à la microscopie à sonde de kelvin (KPFM). La sensibilité de cette technique m'a permis de mettre en évidence une différence de potentiel de surface entre des particules d'acier "neutres" et des particules d'acier marquées en tritium. L'état de charge de ces particules a pu être expliqué grâce à un modèle d'auto-chargement et des simulations Monte Carlo. Enfin, des expériences de mise en suspension avec des particules de tungstène chargées en tritium ont été réalisées. Les résultats de ces expériences sont en accord avec un modèle de mise en suspension dans le cas où les distributions de forces d'adhésion obtenues précédemment par AFM sont prises en compte. Ces résultats, combinés à la validation d'un modèle de mise en suspension de particules, fournissent des données robustes pour la gestion des poussières, les analyses de sûreté et la définition des plans de radioprotection relatifs aux futures installations de fusion nucléaire.

Mots clés : Adhésion; mise en suspension; AFM ; KPFM ; tritium; tungstène

Title: Influence of electrostatic effects due to radioactivity on the adhesion forces and resuspension of metallic particles

The mobility and containment of radioactive dust produced by plasma/wall interactions taking place in the heart of a tokamak have become, over the years, major topics for the safety assessment of the ITER installation. Under normal operating conditions, this reactor will accumulate several hundred kilograms of metal dust (from materials facing the plasma) which may be radioactive, exhibit acute chemical toxicity or even form, with air and water vapor, a potentially explosive mixture. To answer these safety issues, I have adopted complementary approaches based on experimental and numerical work. First, a dust sampling device was designed and manufactured in order to collect dust deposited on the walls of a fusion reactor. The *in situ* sampling campaign carried out with this device in the WEST tokamak (CEA/IRFM) made it possible to identify tungsten particles of spherical shape and micrometric size. With these samples, I was able to perform a parametric in-depth study on adhesion forces using an atomic force microscope (AFM). Distributions of adhesion forces for different particle/surface systems were thus obtained. The results of this study are in very good agreement with an analytical model which makes it possible to describe the adhesion forces according to the size of the particles and the roughness of the surfaces. I continued the study by performing measurements of the electric potential of particles when labeled with tritium using Kelvin Probe Microscopy (KPFM). The sensitivity of this technique allowed me to demonstrate a difference in surface potential between "neutral" steel particles and steel particles marked with tritium. The electric charge of these particles could be explained using a self-charging model and Monte Carlo simulations. Finally, resuspension experiments with tungsten particles loaded with tritium were carried out. The results of these experiments are in agreement with a resuspension model in the case where the adhesive force distributions obtained previously by AFM are taken into account. These results, combined with the validation of a particle resuspension model, provide robust data for dust management, safety analysis and definition of radiation protection plans for future nuclear fusion facilities.

Keywords: Adhesion; resuspension; AFM; KPFM; tritium; tungsten