

# APPORT DE LA MICROSCOPIE A FORCE ATOMIQUE DANS LES ETUDES SUR LA MISE EN SUSPENSION DE PARTICULES

S. Peillon (1,3)\*, J. Benito (2), T. Gélain (1), F. Gensdarmes (1), O. Pluchery (3) et C. Grisolia (4)

<sup>1</sup>Institut de Radioprotection et de Sûreté Nucléaire (IRSN), 91192 Gif-sur-Yvette, France

<sup>2</sup>INFAP, CONICET, Universidad Nacional de San Luis, Argentina

<sup>3</sup>Sorbonne Universités, UPMC-CNRS, Institut des Nanosciences de Paris, 75252 Paris, France

<sup>4</sup>CEA, IRFM, F-13108 Saint-Paul-lez-Durance, France

\*samuel.peillon@irsn.fr

## TITLE

**Contribution of Atomic force Microscopy to particle resuspension studies**

## RESUME

Ce travail présente des mesures directes de forces d'adhésion entre des particules de tungstène (W) sphériques et une surface en verre à l'aide de la microscopie à force atomique (AFM). Quatre tailles de particules, entre 4 µm et 10 µm de rayon, ont été utilisées pour cette étude. Ces particules ont été greffées sur des leviers AFM sans pointe CP-FM (Colloidal Probe Force Modulation). La rugosité moyenne de la surface du verre a également été déterminée par AFM. Les résultats obtenus sont en accord avec le modèle de Rabinovich *et al.* basé sur les forces de van der Waals et qui intègre les paramètres de rugosité des surfaces en contact. Ce modèle et les distributions de forces d'adhésion obtenues par AFM ont alors été utilisés dans un code numérique Monte-Carlo pour calculer les fractions de mise en suspension d'une poudre de tungstène composée de particules sphériques déposées sur une lame de verre et soumises à un écoulement d'air. Les résultats montrent un bon accord entre les expériences de mise en suspension et le modèle numérique lorsque celui-ci intègre les forces d'adhésion mesurées par AFM.

## ABSTRACT

This work presents direct measurements of adhesion forces between spherical tungsten (W) particles and a glass surface using Atomic Force Microscopy (AFM). Four particle sizes (between 4 µm and 10 µm radius) were used for this study. These particles were grafted to tipless AFM CP-FM (Colloidal Probe Force Modulation) cantilevers. The average roughness of the glass surface was also determined by AFM. The results obtained are in agreement with the model of Rabinovich *et al.* based on van der Waals forces and integrating roughness parameters of the surfaces in contact. This model and the adhesion force distributions obtained by AFM were then used in a Monte Carlo numerical code to calculate the resuspension fractions of a tungsten powder composed of spherical particles deposited on a glass slide and exposed to airflow. The results show a good agreement between the resuspension experiments and the numerical model when it integrates the adhesion forces measured by AFM.

**MOTS-CLES** : Adhésion, mise en suspension, AFM, Monte-Carlo **KEYWORDS**: Adhesion, resuspension, AFM, Monte-Carlo

## 1. INTRODUCTION

Les réacteurs de fusion nucléaire basés sur le confinement magnétique du plasma et la technologie tokamak produisent des poussières métalliques (béryllium et tungstène) toxiques et/ou radioactives du fait des interactions plasmas/parois au sein de la chambre à vide (Sharpe *et al.*, 2002). En plus d'être un facteur de pollution du plasma, ces poussières posent également des problèmes d'exposition des travailleurs et de sûreté en cas d'ouverture de la machine aussi bien pour des raisons de maintenance qu'en situation accidentelle. Il apparaît ainsi nécessaire de connaître les propriétés d'adhésion et de mise en suspension de ces poussières au cours de la vie de ces réacteurs. Pour cela, l'IRSN conduit depuis plusieurs années des recherches de manière à améliorer les connaissances tant sur le terme source que sur la mise en suspension de ces contaminants (Gensdarmes *et al.*, 2013 ; Peillon *et al.*, 2014 ; Rondeau *et al.*, 2015). Afin d'améliorer les prévisions données par les codes de calcul sur la mise en suspension de contaminants particuliers, nous proposons de mesurer directement les forces d'adhésion qui agissent sur des particules de tungstène lorsqu'elles sont déposées sur une surface en verre. Ces mesures sont ensuite utilisées dans un modèle numérique basé sur la méthode Monte-Carlo pour calculer les fractions de ces particules détachées par des écoulements d'air. Nous verrons donc dans une première partie la méthode utilisée pour mesurer directement les forces d'adhésion. Nous décrirons ensuite succinctement les expériences de mise en suspension réalisées. La dernière partie de cet article présentera le modèle Monte-Carlo ainsi que les premiers résultats des calculs numériques par rapport aux expériences.

## 2. MESURES DE FORCES D'ADHESION

Les mesures de forces d'adhésion ont été réalisées avec un AFM multimode 8 (Bruker) en mode PeakForce (PF-QNM) dans les conditions normales. Les mesures ont été réalisées entre des particules de tungstène sphériques de différentes tailles greffées sur des leviers CP-FM (sonde colloïdale pour la modulation de force) et une surface de verre. Pour chaque configuration particule/surface, une image topographique AFM d'une taille minimale de  $10 \times 10 \mu\text{m}^2$  composée d'une matrice de  $128 \times 128$  points avec une fréquence de balayage de 0,1 Hz a été réalisée. Une courbe force/distance 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 approximée avec une distribution log-normale. Pour la plupart des systèmes particule/substrat, au moins trois régions différentes du substrat ont été balayées, donnant ainsi trois distributions log-normales des forces d'adhésion. La moyenne et la dispersion de ces distributions de forces d'adhésion sont ensuite comparées à un modèle de force d'adhésion intégrant la rugosité des surfaces. 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.

### 2.1. Fabrication des leviers fonctionnalisés

Les particules de tungstène sphériques ont été greffées sur des leviers AFM sans pointe en utilisant un microscope optique, un micromanipulateur et de l'époxy selon la méthode introduite par Ducker *et al.* (1991) et bien détaillée par Gan (2007). Les leviers ainsi fonctionnalisés ont été vérifiés au MEB avant et après les expériences afin de mesurer le rayon des particules et de vérifier l'absence de contamination sur les particules. La Figure 1a) montre des micrographies au MEB de ces particules une fois fixées sur les leviers AFM. Quatre rayons ont été étudiés : 3,6  $\mu\text{m}$ , 5,5  $\mu\text{m}$ , 7,5  $\mu\text{m}$  et 10,5  $\mu\text{m}$ . L'analyse MEB a également souligné qu'aucune déformation plastique n'était visible après les expériences.

### 2.2. Caractérisation du substrat

Une mesure de la topographie de la lame de verre a été effectuée avec l'AFM en mode ScanAsyst (Bruker). Le scan ainsi obtenu a une taille de  $5 \times 5 \mu\text{m}^2$  avec une résolution de  $1024 \times 1024$  points, comme représenté sur la Figure 1b). La distribution des hauteurs des aspérités du substrat est également représentée sur la Figure 1c) avec un ajustement gaussien qui permet de calculer les paramètres de rugosité du substrat. On trouve une rugosité quadratique moyenne *rms* (aussi appelée  $R_q$ ) de 2,25 nm.

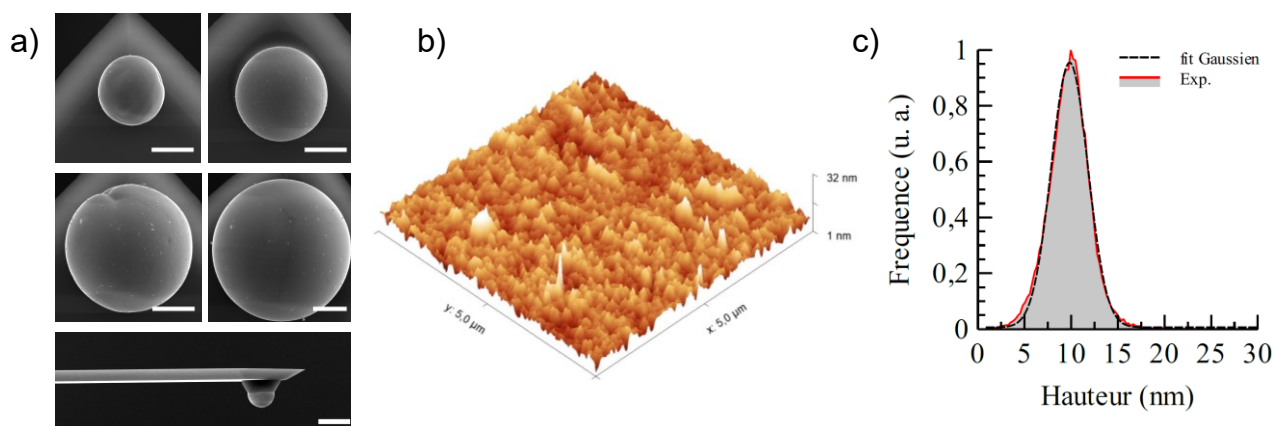


Figure 1 – Micrographies MEB des particules de tungstène greffées sur les leviers AFM (échelle 5  $\mu\text{m}$ ). Cartographie 3D de la surface en verre obtenue par AFM et histogramme des hauteurs des aspérités accompagné d'un ajustement gaussien

### 2.3. Résultats des mesures de forces

Les résultats de ces mesures de forces pour les quatre tailles de particules sont présentés sur la Figure 2 sous forme de boîte à moustache permettant de représenter la médiane, la moyenne, l'écart interquartile et les valeurs extrêmes. Nous représentons également sur ce graphique le modèle de Rabinovich *et al.* (2000) qui exprime la force d'adhésion  $F_a$  de la manière suivante :

$$F_a = \frac{A \cdot R_p}{6 \cdot z_0^2} \left[ \frac{1}{1 + 58 \frac{rms_2 R_p}{\lambda_2^2}} + \frac{1}{\left(1 + 58 \frac{rms_1 R_p}{\lambda_1^2}\right) \left(1 + 1.82 \frac{rms_2}{z_0}\right)^2} \right],$$

avec  $A$  la constante de Hamaker du système ( $W/SiO_2$ ),  $R_p$  le rayon de la particule,  $z_0$  la distance minimale entre la particule et la surface,  $\lambda_i$  et  $rms_i$  les longueurs d'onde et les rugosités quadratiques moyennes des deux échelles de rugosité (micrométrique et nanométrique) de la surface en verre. La constante de Hamaker pour ce système a été mesurée à l'aide de l'AFM en effectuant plusieurs courbes de forces à différents endroits de la surface avec un levier AFM sur lequel est collée une particule de tungstène de  $1,5 \mu m$  de rayon. Nous trouvons une valeur de  $1,6 \cdot 10^{-19} J$  dans ce cas. La distance minimale d'approche  $z_0$  est ici prise égale à  $0,4 nm$  (Israelachvili, 2001). Les paramètres de longueur d'onde et de rugosité quadratique moyenne ont été obtenus en analysant l'image de topographie présentée sur la Figure 1b).

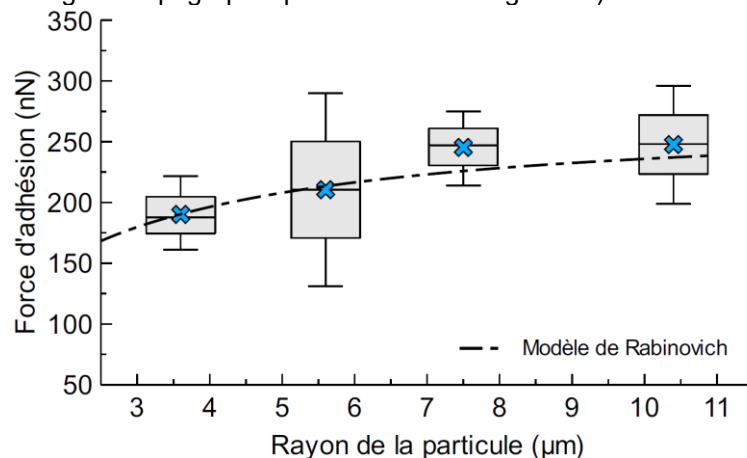


Figure 2 - Forces d'adhésion obtenues avec l'AFM pour les quatre tailles de particules

Les forces d'adhésion mesurées pour ces quatre tailles de particules de tungstène sur du verre varient entre 125 nN et 300 nN. Nous constatons une légère augmentation des forces d'adhésion avec la taille des particules. Le modèle de Rabinovich est en bon accord avec les mesures expérimentales et confirme la pertinence de l'utilisation des paramètres de rugosité des surfaces pour le calcul des forces d'adhésion. Nous allons voir dans le paragraphe suivant l'utilisation de ce modèle pour calculer les fractions de mise en suspension à l'aide d'un code numérique Monte-Carlo.

### 3. EXPERIENCES DE MISE EN SUSPENSION

#### 3.1. Les expériences avec le dispositif DUSTER BOX

Le dispositif utilisé pour réaliser les expériences de mise en suspension est le dispositif nommé *DUSTER-BOX* qui a été présenté dans une communication précédente (voir Peillon *et al.*, 2019). L'appareil fonctionne avec de l'air comprimé propre et sec 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. Les débits d'air pouvant être utilisés vont de 50 L/min à 130 L/min. La poudre utilisée pour les expériences de mise en suspension avec la *DUSTER-BOX* est une poudre de tungstène composée de particules sphériques. Cette poudre possède un diamètre géométrique médian en volume de  $14 \mu m$  avec un écart-type géométrique de 1,52. Elle est dispersée sur 4 lames de microscope en verre sur une zone de  $12 \times 40 mm^2$  sur chacune des lames. Cette zone correspond à la surface balayée par l'écoulement d'air de la *DUSTER-BOX*. Une fois les dépôts réalisés, les 4 échantillons sont analysés (comptage initial des particules par classe de taille) avec un microscope optique (*Morphologi-G3 Malvern*). Seules les particules ayant un indice de circularité  $> 0,97$  sont dénombrées. Par ailleurs, on ne dénombre que les particules sphériques dont le diamètre est compris entre  $10 \mu m$  et  $18 \mu m$ . Une fois le comptage initial effectué, les 4 lames sont placées successivement sur un support qui permet d'exposer le dépôt à l'écoulement d'air de la *DUSTER-BOX*. Le débit d'air dans la *DUSTER-BOX* est fixé à 70 L/min préalablement à l'essai et le temps d'exposition du dépôt de particules à l'écoulement d'air est de 10 secondes. Les 4 dépôts sont exposés de la même manière pour chaque d'essai. Les particules restantes sur les lames de verre sont ensuite dénombrées avec les mêmes filtres (taille et circularité) que pour la mesure initiale. Nous présentons sur la Figure 3 les résultats de ces expériences pour la classe de taille  $16-18 \mu m$  de diamètre en fonction de la position le long du canal de la *DUSTER-BOX* puis en fonction de la vitesse de frottement de l'écoulement d'air.

#### 3.2. Les simulations numériques Monte-Carlo

Dans le modèle Monte-Carlo présenté ici, la probabilité de détachement des particules est calculée en comparant les moments des forces aérodynamiques et d'adhésion qui agissent sur chaque particule (Benito *et al.*, 2016). La moyenne des forces de traînée est calculée à partir des vitesses de frottement présentes dans

la *DUSTER-BOX* et précédemment obtenues par calculs CFD (Peillon *et al.*, 2019). La distribution des forces de traînée est considérée gaussienne avec un écart-type égal à 10 % de la moyenne. De la même manière, les forces d'adhésion sont représentées par une distribution log-normale dont la moyenne est donnée par le modèle de Rabinovich avec les paramètres de rugosité vus au paragraphe 2. La dispersion de cette distribution (écart-type géométrique) reste un paramètre d'ajustement et est prise égale à 1,5. Nous présentons sur la Figure 3 les résultats de ces calculs de mise en suspension pour des particules de diamètres compris entre 16  $\mu\text{m}$  et 18  $\mu\text{m}$  le long du canal de la *DUSTER-BOX*.

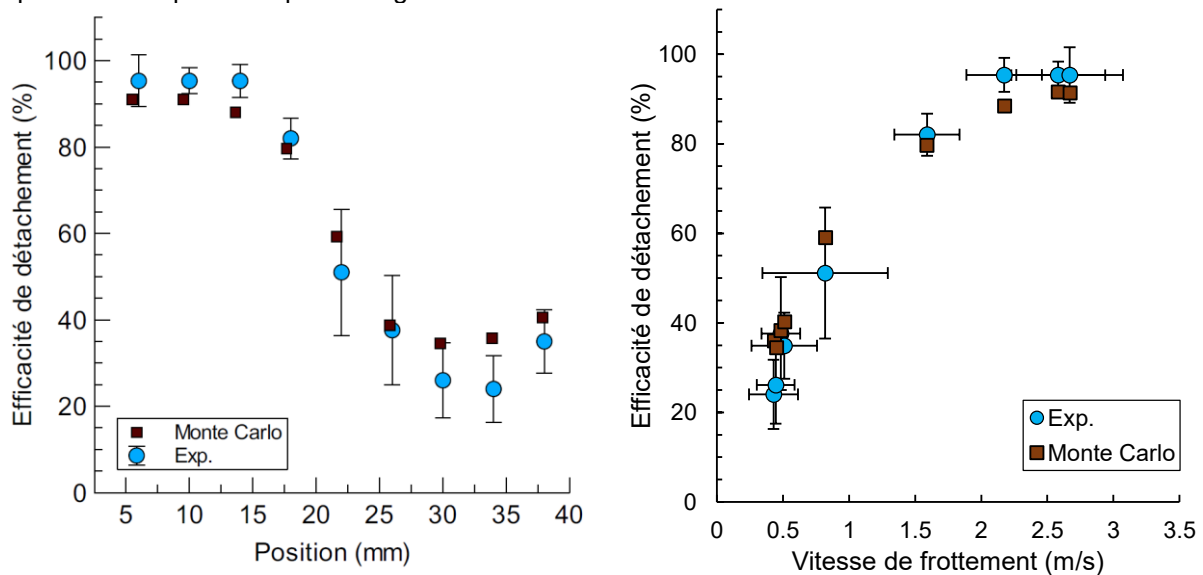


Figure 3 – (Gauche) Efficacités de détachement obtenues pour des particules de 16-18  $\mu\text{m}$  de diamètre le long du canal de la *DUSTER-BOX* et calculs Monte-Carlo correspondants. (Droite) Efficacités de détachement expérimentales et calculs Monte-Carlo en fonction de la vitesse de frottement.

Nous constatons un bon accord entre le modèle numérique et les expériences lorsque nous considérons une valeur d'énergie surfacique entre la particule de tungstène et le substrat en verre égale à 0,78  $\text{J}/\text{m}^2$  donnée par l'équation suivante (Cheng *et al.*, 2003) :  $\gamma = \left(\frac{E}{y_0}\right) \left(\frac{a_0}{\pi}\right)^2$ , avec E le module de Young du verre égal à 90 GPa,  $y_0$  la distance entre les plans cristallographiques (2 Å) et  $a_0$  le rayon atomique des atomes du plan de clivage (1,3 Å).

## CONCLUSION

Nous avons vu que l'utilisation de la microscopie à force atomique permet d'obtenir directement les forces d'adhésion pour le système particule/surface étudié. L'originalité de cette approche réside dans le fait de ne pas contraindre les paramètres du modèle qui concernent l'adhésion, paramètres qui sont classiquement décrits soit par des corrélations semi-empiriques (Biasi *et al.* 2001), soit par une distribution log-normale dont la moyenne est donnée par le modèle mécanique de JKR (Johnson, Kendall & Roberts, 1976), l'écart-type étant généralement une variable d'ajustement. Nous avons également observé que, dans le cas réel où les surfaces en contact sont rugueuses, ces forces d'adhésion sont correctement décrites par le modèle de Rabinovich *et al.* qui peut être utilisé dans un code numérique Monte-Carlo pour calculer des fractions de mise en suspension. Les résultats obtenus montrent un bon accord entre les expériences de mise en suspension et le modèle numérique lorsque celui-ci intègre les forces d'adhésion mesurées expérimentalement par AFM.

## BIBLIOGRAPHIE

- Sharpe, J. P., Petti, D.A., Bartels, H.-W. (2002) *Fusion Eng. Des.*, 63-64, 153-163.  
 Gensdarmes, F., Grisolia, C., Roynette, A., Peillon, S., Gelain, T., Poli, S., Gargiulo, L. (2013) *Fusion Eng. Des.*, 88, 2684-2687.  
 Peillon, S., Roynette, A., Grisolia, C., Gensdarmes, F. (2014) *Fusion Eng. Des.*, 89, 2789-2796.  
 Rondeau, A., Merrison, J., Iversen, J.J., Peillon, S., Sabroux, J.-C., Lemaitre, P., Gensdarmes, F., Chassefière, E. (2015) *J. Nucl. Mater.*, 463, 873-876.  
 Biasi, L., de los Reyes, A., Reeks, M.W., de Santi, G.F. (2001) *J. Aero. Sci.*, 32, 1175-1200.  
 Johnson, K.L., Kendall, K. and Roberts, A.D. (1971) *Proc. R. Soc. Lond. A.*, 324, 301-313.  
 Ducker, W.A., Senden, T.J. and Pashley, R.M. (1991) *Nature*, 353, 239-241.  
 Gan, Y. (2007) *Rev. Sci. Instrum.*, 78, 081101.  
 Israelchvili, J.N. *Intermolecular and surface forces*. Academic Press, 2011.  
 Peillon, S., et al. (2019) Congrès Français sur les Aérosols, Paris.  
 Benito, J. G., Uñac, R.O., Vidales, A.M., Ippolito, I. (2016) *J. Aero. Sci.*, 100, 26-37.  
 Cheng, W., Dunn, P.F., Brach, R.M. (2003) *The Journal of Adhesion*, 79, 749-776.