

Titre : Simulation expérimentale et modélisation par faisceaux d'ions de l'endommagement induit par la désintégration alpha dans l'apatite – Applications en thermochronologie et en sciences nucléaires pour l'énergie

Mots clés : apatite ; désintégration alpha ; dégâts d'irradiation ; canalisation d'ions ; thermochronologie ; matrice de confinement

Résumé : L'apatite est un minéral aux nombreuses applications dans les domaines des sciences de la Terre et de l'énergie nucléaire. Le minéral peut être utilisé pour prédire l'histoire thermique de roches et de processus géologiques. Les apatites de synthèse sont envisagées comme matrice de confinement des actinides présents dans les combustibles irradiés. En sciences de la Terre, un âge hélium mesuré dans l'apatite, correspondant à l'âge apparent d'un minéral, peut être déterminé en mesurant les concentrations de U, Th, Sm et He. La quantité d'hélium mesurée résulte d'un équilibre entre : (1) la production de He par les chaînes de désintégrations de U et de Th et la désintégration de Sm ; (2) sa perte du fait de sa diffusion hors du cristal à haute température. La dépendance du coefficient de diffusion de He en fonction de la température est modélisée par une loi d'Arrhenius mais des études récentes suggèrent que l'endommagement consécutif à l'irradiation, essentiellement produit par les collisions atomiques produites par le ralentissement des noyaux de recul alpha, modifie également sa valeur et en conséquence la quantité d'hélium retenue dans le cristal. La prise en compte de l'endommagement de l'apatite est ainsi fondamentale afin d'estimer précisément l'âge He et la modélisation de l'histoire thermique des roches. Pour des applications nucléaires, la matrice d'apatite est soumise des doses de désintégration alpha considérablement supérieures à celles des cristaux naturels. A forte fluence, une amorphisation totale du solide est envisageable, ainsi que la nucléation et la croissance de bulles de He : les deux phénomènes sont susceptibles de diminuer les performances attendues de la matrice vis-à-vis du confinement des déchets nucléaires. Si les mécanismes d'amorphisation ont été étudiés par le passé, la déstabilisation induite par les bulles reste très mal connue.

Le but de cette thèse est l'étude fondamentale, à l'aide de l'implantation ionique conduite in et hors situ, de la spectrométrie de rétrodiffusion Rutherford en géométrie de canalisation, du code de simulation McChasy et de la microscopie électronique en transmission, de : (1) l'évolution de l'endommagement induit séparément dans l'apatite par les noyaux de recul alpha et les particules alpha ; (2) l'effet du recuit athermique, induit par l'excitation électronique des particules alpha, sur les défauts préexistants. Les cinétiques d'endommagement ont été enregistrées pour une large gamme de fluence afin de reproduire des défauts représentatifs des apatites naturelles et de synthèse. Plusieurs températures d'intérêt ont été définies lors des irradiations (comprises dans la gamme 293-393 K). Les expériences de recuits induits par l'ionisation ont été poursuivies avec l'objectif de déterminer la dépendance de la cinétique de recuit à la nature et à la quantité de défauts présents dans les cristaux d'apatite.

Les résultats expérimentaux et issus des simulations montrent que les cinétiques d'endommagement imputables aux noyaux de recul alpha et aux particules alpha comportent deux étapes, chaque étape étant caractérisée par un type de défaut principal et spécifique induit par l'irradiation. En outre, le recuit induit par la particule alpha n'est efficace que sur certains types de défauts particulier, les régions amorphisées. La prise en compte nouvelle des cinétiques d'endommagement et de recuit ont permis d'améliorer significativement l'évolution microstructurale à long terme de l'apatite comme matrice de confinement ainsi que la modélisation de l'histoire thermiques des roches.