

LES DÉFAUTS D'IRRADIATION PARAMAGNÉTIQUES DES ARGILES : NATURE, STABILITÉ ET APPLICATIONS EN SCIENCES DE LA TERRE

T. Allard, M. Mathian, Ö. Ataytür, E. Balan

Institut de Minéralogie, de Physique des Matériaux et de Cosmochimie, Sorbonne Université, Paris (France)

Les argiles sont des silicates en feuillets finement divisés qui sont ubiquistes à la surface de la Terre, que ce soit dans les sols, les sédiments ou les systèmes hydrothermaux. Un nombre croissant mais encore modeste d'études depuis les années 70 a permis de révéler des défauts ponctuels paramagnétiques produits par irradiation naturelle ou artificielle dans plusieurs types d'argiles (kaolinite, smectite, illite, sudoite). Il s'agit principalement de trous électroniques localisés sur des ions d'oxygène (défauts O[•]) de la structure des argiles. Dans la kaolinite, argile simple et commune, plusieurs défauts sont maintenant connus dont l'un, nommé centre A, est stable à température ambiante à l'échelle des temps géologiques. Pour ces raisons, un protocole a été développé pour déterminer la dose de rayonnements reçue dans des échantillons naturels à partir de la mesure de la concentration en défauts par spectroscopie de résonance paramagnétique électronique puis d'un étalonnage par irradiation artificielle. Ces irradiations ont été effectuées avec des ions He⁺ de 1,5 MeV sur ARAMIS (IJCLab, Orsay) pour simuler l'action des rayonnements alpha issus des chaînes de désintégration de l'uranium et du thorium, principales sources de radioactivité dans de nombreux géosystèmes avec parfois le ⁴⁰K. En effet, dans ces chaînes de désintégration, les rayonnements alpha (d'une énergie moyenne de 5 MeV) correspondent à 90 % du débit de dose naturel. De plus, des irradiations avec des rayonnements gamma du ⁶⁰Co (CENG, Grenoble) et des faisceaux d'électrons sur l'accélérateur Van de Graaf du LSI, (Palaiseau) ont aussi été effectuées et montrent des efficacités de production de défauts comparables, si bien que les irradiations aux He⁺ sont maintenant utilisées pour simuler l'action de tous les rayonnements ionisants naturels.

On montrera dans un premier temps les résultats d'études de stabilité thermique (via des recuits isothermes) des centres A produits naturellement ou artificiellement. Un formalisme classique permet de montrer que les cinétiques de guérison sont du deuxième ordre, et de déterminer l'énergie d'activation (2,0 – 2,6 eV) ainsi que d'extrapoler la demi-vie des défauts à 300 K, qui est supérieure à 10¹² ans pour les centres A quel que soit leur mode de production. Les défauts artificiels sont similaires aux naturels, et ces derniers sont donc stables tant que l'argile est stable, ce qui renforce le protocole utilisé dans les applications en sciences de la Terre. Les demi-vies de défauts d'irradiation extrapolées à température ambiante sont moindres dans les illites (entre 1,9 x 10⁹ et 29 x 10⁹ ans) et plus faibles dans les smectites (de l'ordre de 3000 ans) étudiées.

Deux applications majeures ont été développées dans notre laboratoire depuis les années 90, lesquelles reposent en grande partie sur des irradiations aux He⁺. Un exemple dans chacune des deux applications sera détaillé.

L'étude des défauts d'irradiation dans le cadre du stockage de déchets nucléaires à haute activité en milieu argileux. Il s'agit là de déterminer l'endommagement des argiles sous rayonnement, ou encore de visualiser des migrations de radioéléments enregistrées par les argiles dans des analogues naturels de sites de stockage. L'exemple choisi montre que la dose enregistrée par les kaolinites dans l'analogue naturel de Nopal au Mexique (gisement d'uranium) permet de révéler un bilan de migrations de radioéléments qui n'étaient pas perçues par des analyses géochimiques ou minéralogiques classiques.

La datation de kaolinites dans des profils de latérites ou des sédiments en Inde, Brésil (Amazonie), et Australie pour mieux comprendre l'évolution des surfaces continentales. La méthodologie de datation par RPE a pu être calibrée récemment en comparant des âges « RPE » et des âges obtenus avec des méthodes indépendantes sur une large gamme de temps, avec des argiles formées entre le Quaternaire et le Protérozoïque il y a 1,3 milliards d'années. Par ailleurs, la datation de profils latéritiques montre que la formation des kaolinites peut remonter à plusieurs millions, voire plusieurs dizaines de millions d'années. Des phases discrètes d'altération sont révélées, que l'on tente de mettre en relation avec des épisodes paléoclimatiques ou géodynamiques globaux ou régionaux (mise en place d'un régime de mousson en Inde, phases de surrection des Andes...).