

EFFETS DES DÉSINTÉGRATIONS α DANS LES VERRES NUCLÉAIRES ; APPROCHE PAR LA MODÉLISATION ATOMISTIQUE

Dominique GHALEB ¹, Jean-Marc DELAYE ²

¹ DCC/DRRV/SCD C.E.A. Valrho-Marcoule, Bp 171-30207 Bagnols/Cèze Cedex, France

² DTA/DECM/SRMP C.E.A. Saclay, 91191 Gif/Yvette Cedex, France



FR0203187

7MS - FR - 1476

ABSTRACT

In a simplified (SiO_2 , B_2O_3 , Na_2O_3 , Al_2O_3 , ZrO_2) nuclear glass we have simulated, by Molecular Dynamics simulations, the effects of displacement cascades created by the slowing-down of the recoil nucleus. The methodology employed to construct and validate the used Molecular Dynamics model representing the basis matrix of the "light-water" French nuclear glass (R7T7) and the manner which are simulated atomic displacements are described.

Although the energies given to recoil nucleus were relatively low ($\leq 1/10$ of actual energies) the study has yielded a number of interesting results. Notably we have :

- identified the main mechanisms responsible for the depolymerization of the network*
- observed, at the atomic level, the kinetic of the structure evolution*
- detailed the behavior and displacement mechanisms of every atomic species during the cascade sequences*
- made a link with the experimentation through the calculation of some physical properties*

INTRODUCTION

La durée pour laquelle les propriétés des matrices oxydes, développées pour le confinement des déchets de haute activité, doivent conserver un niveau acceptable, est longue et excède les possibilités de l'expérimentation à l'échelle humaine (10000, 100000 ans ?). La connaissance du vieillissement du matériau doit donc être fondée, à la fois sur des méthodes de vieillissement accéléré, des modèles prévisionnels d'évolution et des validations notamment à partir d'analogues naturels.

Les modèles prévisionnels d'évolution, à l'échelle de temps envisagée, ne peuvent en aucun cas être déduits uniquement d'extrapolations issues d'expérimentations à court terme. Ces modèles qui doivent être construits, autant que possible sur la base des mécanismes élémentaires mis en jeu au cours du vieillissement, nécessitent une étude approfondie à l'échelle atomique. C'est dans cette optique que le CEA a mis en place un programme pour étudier, à l'échelle atomique, le comportement sous irradiation des verres envisagés en France pour le confinement des déchets de haute activité issus du retraitement des combustibles irradiés.

Les désintégrations α étant responsables en grande partie des déplacements atomiques générés, par auto-irradiation, dans le verre, nous avons simulé, par Dynamique Moléculaire (DM), les effets balistiques induits par ces désintégrations dans un modèle représentant les verres nucléaires.

MODÉLISATION DU VERRE "EAU LÉGÈRE"

La première étape de notre étude [1,2] a consisté à modéliser la matrice de base du verre utilisé pour confiner les déchets de haute activité issus du retraitement des combustibles de la filière "eau légère" française (verre R7T7).

Pour élaborer ce modèle, nous avons :

- pris en considération les éléments essentiels tels que Si, Na, B, Al, O, Ca, Zr (63.8 % SiO_2 , 17.0 % B_2O_3 , 13.4 % Na_2O , 4.0 % Al_2O_3 , 1.8 % ZrO_2) qui représentent environ 80% du verre, en respectant les rapports de composition existants entre les différents éléments dans le verre nucléaire
- utilisé des potentiels ioniques de paire Born-Mayer-Huggins pour représenter les interactions iono-covalentes
- appliqué aux triplets O-Si-O, Si-O-Si, O-B-O et O-Al-O des termes à trois corps pour tenir compte de leur caractère covalent.

Dans la matrice ainsi représentée, nous avons introduit également, des atomes lourds de masse égale à celle des atomes d'uranium [3]. Pour simuler la dynamique de ces atomes lourds, nous avons utilisé un potentiel inspiré des travaux de Lindan et al. [4] pour les interactions U-O et appliqué uniquement les interactions coulombiennes entre les ions U et les autres cations.

Le modèle a été validé en effectuant une comparaison calcul - mesure [1, 2] :

- à l'échelle atomique sur des données issues de la littérature (distances inter atomiques, nombres de coordination, distributions angulaires)
- à l'échelle macroscopique sur des mesures effectuées au laboratoire (densité, coefficient de dilatation, viscosité) et des données bibliographiques (coefficients de diffusion du sodium)

ETUDE DE L'EFFET DES DÉSINTÉGRATIONS α DANS LE VERRE

Les noyaux de recul étant à l'origine de la plupart des cascades de déplacements atomiques générées dans les verres nucléaires [5, 6], nous nous sommes attachés à modéliser les déplacements atomiques qui accompagnent la décélération d'un noyau de recul dans le verre nucléaire modélisé.

Techniques de simulation

Pour modéliser l'effet balistique des noyaux de recul 2 sortes de simulations ont été entreprises.

◆ Dans un premier temps sur des cellules contenant

- 5184 atomes (200 - 800 eV)
- 41472 atomes (1 et 1.5 KeV)

nous avons simulé les cascades secondaires engendrées par les premiers atomes déplacés lors du choc avec le noyau de recul.

◆ Dans un deuxième temps nous avons directement modélisé, dans des cellules comportant 82944 atomes, la trajectoire d'un noyau de recul en donnant une impulsion d'énergie (4KeV, 6KeV et 7KeV) à l'un des atomes d'uranium introduits dans notre modèle.

Dans tous les cas pour ne pas créer de phénomènes de recouvrement perturbateurs nous avons limité l'énergie d'impulsion donnée à l'atome accéléré de façon à ce que les cascades engendrées aient un volume d'expansion inférieur à la taille du système simulé. Pour prendre en compte de manière réaliste les interactions à courte portée ($<1\text{\AA}$) susceptibles de se produire au cours de la séquence des chocs balistiques, des potentiels de Ziegler ont été utilisés [7]. Le raccord avec les potentiels de BMH est fait grâce à une expression polynomiale à l'ordre 5, différente pour chaque type d'interaction. Ainsi, la continuité des énergies, des forces, et des dérivées des forces a été assurée.

Pour dissiper l'onde thermique qui se propage au cours de la séquence de collisions, nous avons contrôlé la couche externe (d'une épaisseur de 3.5\AA) de la boîte modélisée en la maintenant à température ambiante. Ainsi, l'onde thermique est absorbée quand elle arrive sur la couche externe.

ETUDE PHÉNOMÉNOLOGIQUE DES CASCADES DE DÉPLACEMENTS

L'énergie des cascades modélisées n'ayant pas dépassé le 1/10 des énergies rencontrées dans les verres nucléaires réels, c'est plus sur le plan qualitatif que quantitatif que nous avons abordé l'étude phénoménologique des cascades de déplacements induites par les désintégrations α .

Morphologie des cascades

Le type de morphologie de la zone endommagée obtenue à l'issue des deux types de cascades est représenté sur la *Figure 1* (cascade secondaire) et la *Figure 2* (cascade générée par la décélération d'un noyau de recul). Seuls les atomes déplacés d'une

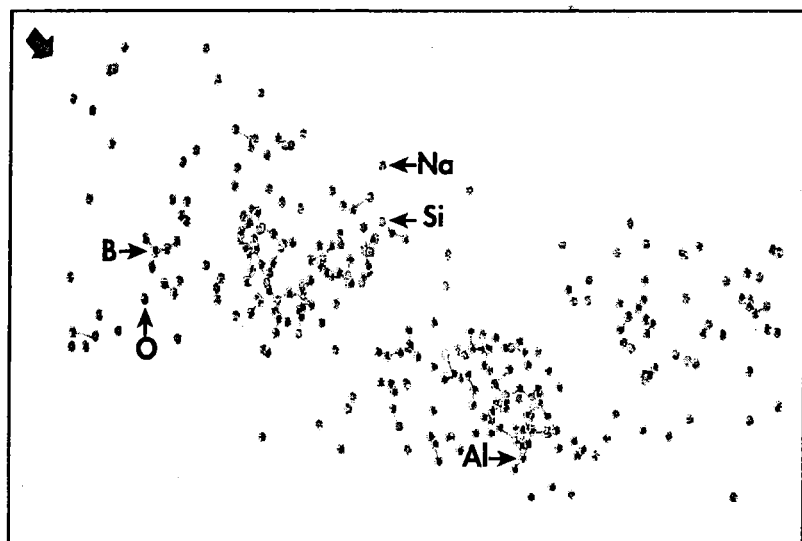


Figure 1 : Morphologie d'une zone endommagée lors d'une cascade secondaire (atome initial accéléré à 1.5 KeV dans une cellule de 41472 atomes)

distance supérieure à 1Å ont été représentés. Cette distance correspond à la distance minimale nécessaire à l'atome de Si pour effectuer un saut individuel [8].

D'une façon générale, on peut observer que la zone endommagée se sépare en plusieurs régions distinctes contenant de nombreux atomes déplacés et réparties le long de la trajectoire de l'atome accéléré. Entre ces régions, des domaines plus petits, pratiquement vierges de tout atome déplacé, s'intercalent.

Mobilité des atomes

Deux constatations ont pu être faites à l'issue de l'analyse des résultats :

- les atomes d'oxygène et de sodium sont les atomes qui subissent les déplacements les plus nombreux
- les atomes de Na ont la particularité de se déplacer en retard par rapport aux autres espèces et leurs positions finales entourent la zone endommagée.

La première constatation est explicite sur la Figure 3 qui décrit le type d'évolution obtenue quand on représente, au cours d'une cascade, le nombre d'atomes déplacés par espèce en fonction du temps. La deuxième constatation est clairement mise en évidence sur la série de figures qui suit :

La Figure 4 qui représente le nombre d'atomes déplacés en fonction du temps en distinguant entre les atomes de Na et les autres atomes,

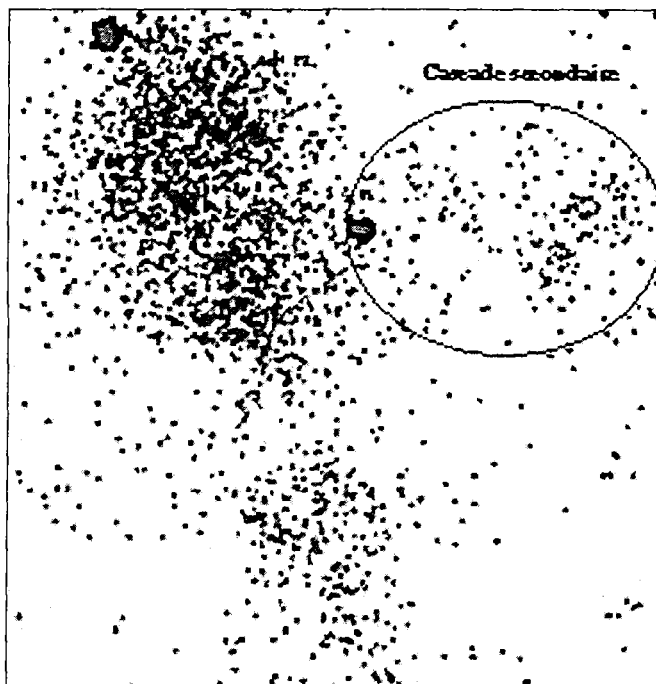


Figure 2 : Morphologie d'une cascade issue de la décélération d'un noyau de recul (atome initial accéléré à 4 KeV dans une cellule de 82944 atomes)

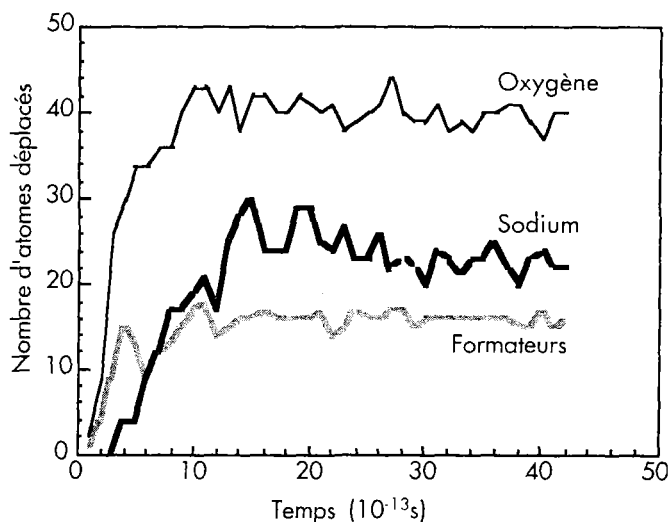


Figure 3 : Type d'évolution du nombre de déplacements au cours du temps.

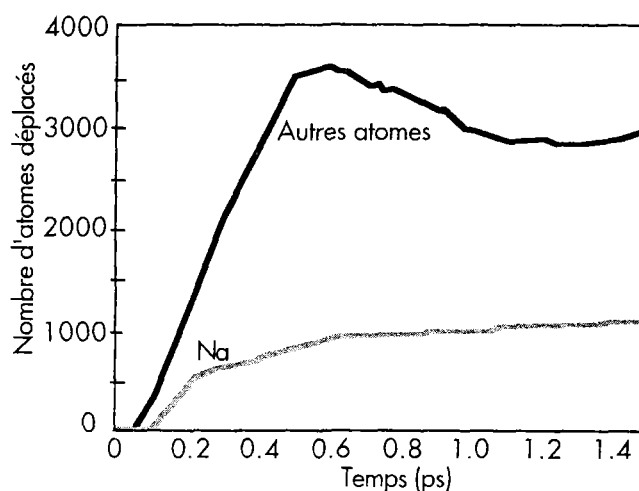


Figure 4 : Nombre d'atomes déplacés en fonction du temps

fait apparaître clairement le décalage (~ 0.1 ps) entre le moment où les formateurs et les oxygènes se mettent en mouvement et le moment où les sodiums se mettent à se déplacer.

La Figure 5 sur laquelle est tracée la distribution des distances des différentes espèces atomiques déplacées au barycentre de la zone perturbée (en distinguant le Na des autres espèces) montre explicitement un décalage pour la distribution des Na par rapport à celle des autres atomes. Ce qui signifie que les atomes de Na déplacés semblent en majorité se retrouver à la périphérie de la zone endommagée

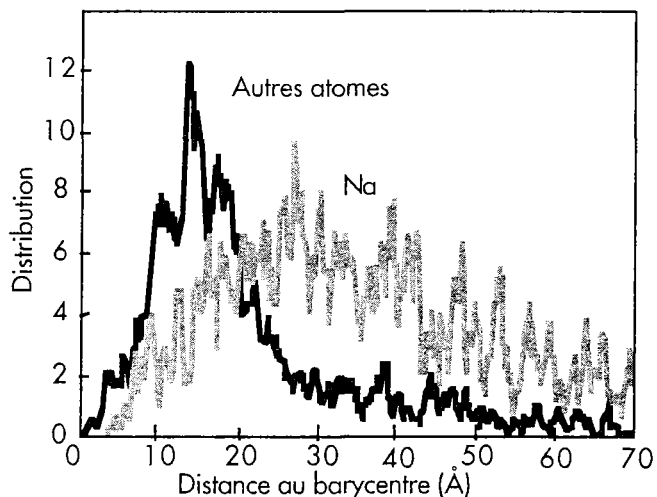


Figure 5 : Distribution des distances entre les atomes déplacés et le barycentre de la zone endommagée

La Figure 6 qui représente l'ensemble des atomes déplacés, pris à plusieurs instants successifs au cours d'une cascade confirme visuellement le comportement particulier des atomes de Na. On voit nettement que les atomes de sodium (cercles blancs) apparaissent en retard par rapport aux autres atomes, et plutôt vers la périphérie de la zone endommagée.

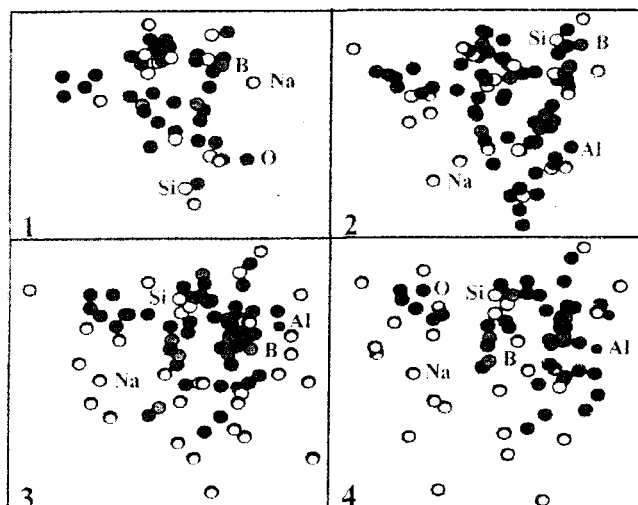


Figure 6 : Position des atomes déplacés à quatre instants successifs au cours d'une cascade (1 : 0.1ps, 2 : 0.16ps, 3 : 0.68ps, vue 4 : 3.38ps)

La Figure 7 sur laquelle on peut observer que les distributions (non normalisées) des distances parcourues par les différents types d'atomes (oxygènes, sodiums et formateurs) sont très comparables, laisse supposer par contre qu'aucune des espèces atomiques ne se déplace sur une distance nettement plus importante que les autres. Donc, le déplacement des atomes de sodium en périphérie ne reste qu'un déplacement local.

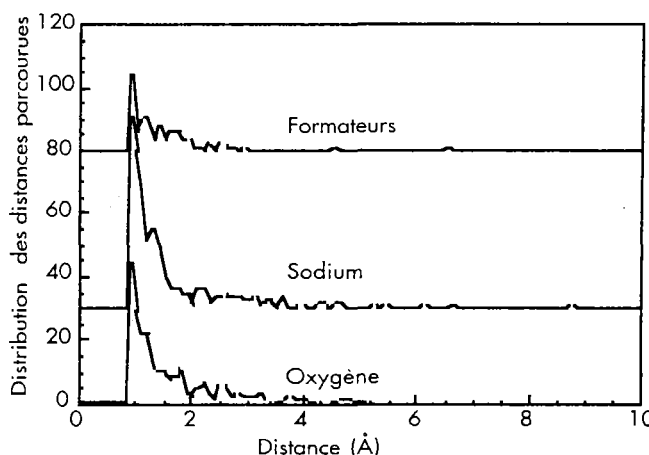


Figure 7 : Exemple de distribution des distances parcourues par les différentes espèces d'atomes

Mécanismes de déplacement

La morphologie des cascades faisant très nettement apparaître le déplacement de portions entières de squelette vitreux, nous avons cherché à savoir si le déplacement de ces portions était le résultat d'un ensemble de déplacements individuels ou d'un mouvement collectif d'atomes.

La Figure 8, sur laquelle sont représentés, en fonction du temps, les déplacements des atomes d'un même groupement lors d'une cascade secondaire, fait clairement apparaître, pour l'ensemble de la portion de réseau choisi, un déplacement simultané des atomes que l'on peut qualifier de collectif.

Pour aller plus loin dans cette analyse, nous nous sommes intéressés, dans les cascades issues de la décélération des noyaux de recul, aux atomes changeant d'environnement local.

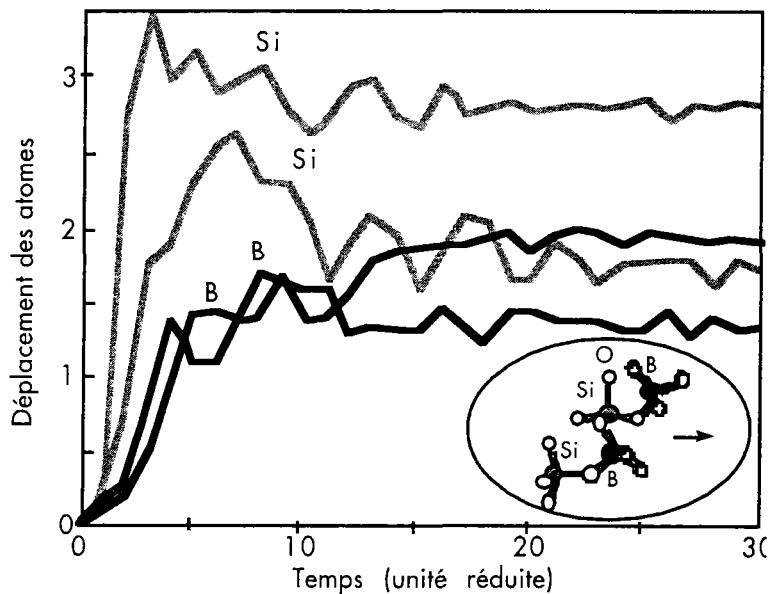


Figure 8 : Déplacements en fonction du temps, des atomes d'un même groupement

Le Tableau 1 présente le nombre de Si déplacés ayant changé d'environnement en distinguant entre les atomes dont les quatre plus proches voisins ont été modifiés, jusqu'aux atomes n'ayant pas changé de voisins.

Nombre de voisins modifiés	0	1	2	3	4
% de Si déplacés	33.1%	39.3%	17.6%	6.7%	3.3%

Tableau 1 : Nombre de voisins modifiés autour des Si déplacés

On constate que 72% des atomes de Si déplacés n'ont eu, au plus, qu'un seul de leurs voisins modifié. Il est logique de considérer que ces atomes participent à un déplacement collectif, déplacements collectifs qui semblent énergétiquement favorisés comme le montrent les calculs. En effet, pour extraire un atome de Si de son environnement tétraédrique nous avons calculé qu'il faut fournir au minimum une énergie de l'ordre 17eV [9] alors que la barrière d'énergie potentielle moyenne franchie par l'atome de Si au cours d'un déplacement collectif est d'environ 7eV [8].

Modification de structure

A l'intérieur des zones endommagées, nous avons cherché à caractériser les modifications de structure en évaluant les changements de coordinence des éléments constitutifs du réseau. Les changements d'ordre local autour des atomes de bore et d'oxygène étant les deux phénomènes les plus fréquents, pour l'ensemble des cascades secondaires nous avons effectué un bilan des conversions :

- $B_{\text{coordinence4}} (B4) \rightarrow B_{\text{coordinence3}} (B3)$
 - $O_{\text{pontant}} (O2) \rightarrow O_{\text{non pontant}} (O1)$
- et des conversions inverses (Figure 9).

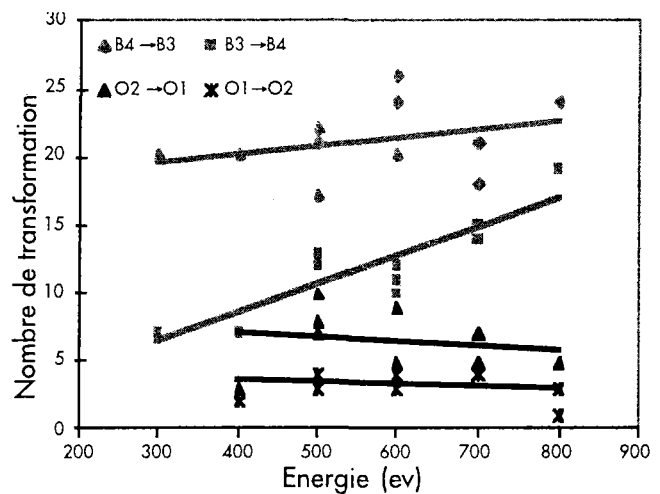


Figure 9 : Nombre de conversions $B3 \rightarrow B4$, $O2 \rightarrow O1$, $B4 \rightarrow B3$ et $O1 \rightarrow O2$

Ce bilan met en évidence une diminution globale de la connectivité du réseau suite aux cascades. En effet, quelque soit l'énergie, le nombre de conversions $B4 \rightarrow B3$ et $O2 \rightarrow O1$ est systématiquement supérieur au nombre de conversions inverses. La Figure 10 explicite, sur une série de 6 vues, le type de mécanisme responsable en grande partie de la dépolymérisation du réseau. La vue n°1 représente l'étape initiale. Avant le choc, l'atome de B qui se trouve au centre de la vue est en coordinence 4. La vue n°2 montre la rupture des 4 liaisons autour du B juste après le passage de l'atome accéléré. La vue n°3 montre la reconstruction des liaisons autour du B central.

Seules trois des quatre liaisons initiales se reforment et cet état perdure jusqu'à la configuration finale (vue n°6). Parallèlement, la modification de la coordinence de

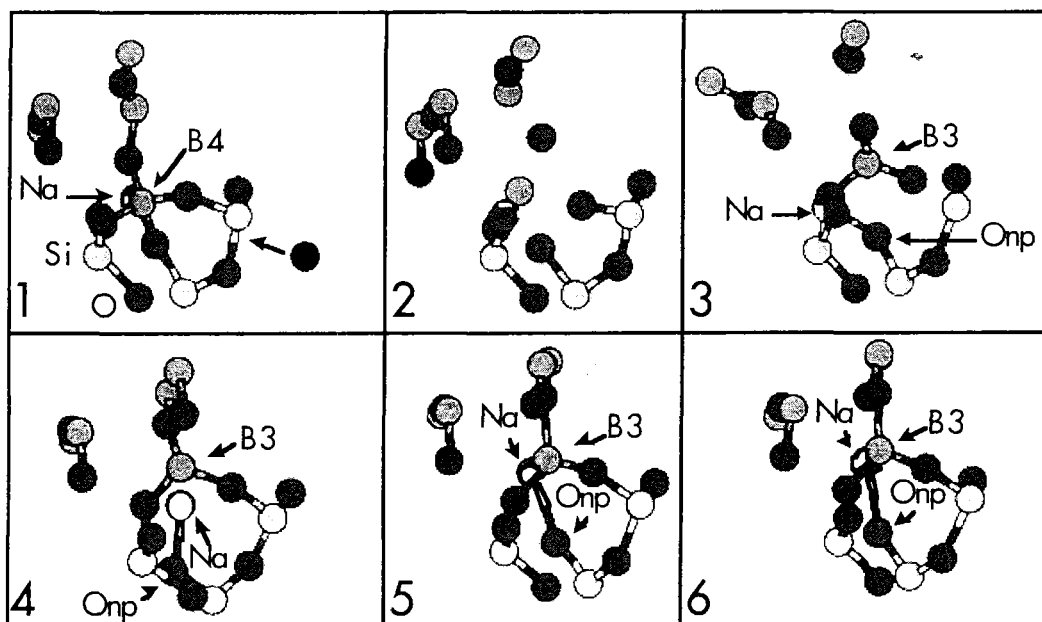


Figure 10 : Exemple de conversion $B_{\text{coordinence4}} (B4) \rightarrow B_{\text{coordinence3}} (B3)$ avec formation d'un oxygène non pontant (Onp)

l'atome de bore entraîne la transformation d'un oxygène pontant en un oxygène non-pontant. En effet, l'oxygène initialement rattaché au bore, en fin de simulation se retrouve en liaison avec un Si et le Na libéré. De pontant, cet oxygène est devenu non-pontant.

Dans les cascades issues de la décélération des noyaux de recul, pour aborder le problème plus généralement, nous avons évalué, au cours des séquences de collision, le taux global de dépolymérisation du réseau. Par dépolymérisation, nous entendons ici : bilan de la coordinence moyenne de l'ensemble des atomes constituant le réseau (Si, B, O, Al, Zr).

$$\sum N(i \rightarrow i-1) - \sum N(i \rightarrow i+1)$$

où N = Si, O, B, Al, Zr

Pour les cascades de 4keV et 6keV étudiées (Figure 11), un pic de dépolymérisation maximum apparaît nettement en début de séquence (≤ 1 ps). Au delà, un processus de repolymérisation démarre et conduit, en fin de cascade, à une dépolymérisation résiduelle faible voire nulle.

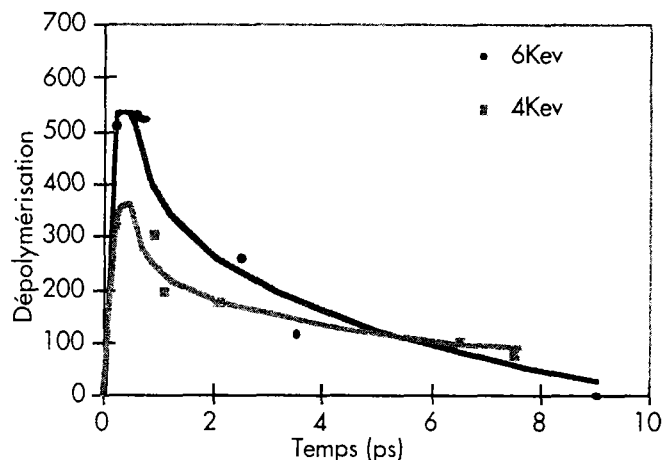


Figure 11 : Evolution, au cours du temps de la dépolymérisation du réseau ; cascades 4 et 6 KeV

Calcul des grandeurs physiques macroscopiques

La distance parcourue par le projectile (noyau de recul) est respectivement de 82 Å dans la cascade à 4 KeV, de 106 Å dans la cascade à 6 KeV et de 91 Å dans la cascade de 7KeV.

Les valeurs d'énergie stockée obtenues en effectuant la différence d'énergie totale du système avant cascade et après cascade sont égales à 492 eV pour la cascade à 4KeV, 710 eV pour la cascade à 6 KeV et 55 eV pour la cascade à 7KeV.

DISCUSSION

Représentativité des simulations

Le premier sujet de discussion concerne la validité des résultats présentés, étant donné que les potentiels que nous utilisons sont, comme tous les potentiels empiriques, des représentations très simplifiées des interactions atomiques réelles. Néanmoins, il ressort que ces potentiels permettent de restituer correctement la structure de notre verre, en faisant la distinction entre les formateurs de réseau ayant un ordre local fort, et les modificateurs de réseau, ayant un ordre local faible [1, 2].

De plus, constatant expérimentalement que l'essentiel de la dissipation de l'énergie du projectile (environ 80%) s'effectue par transfert d'énergie cinétique à d'autres atomes à la suite de chocs de forte énergie, il est donc raisonnable de dire, bien que les processus d'excitations électroniques ne soient pas introduits dans les simulations à l'heure actuelle, que les phénomènes observés dans nos calculs sont physiquement représentatifs et témoignent des comportements différents des formateurs et des modificateurs.

Par contre un des points les plus gênant dans ce type de simulation est l'incapacité des potentiels utilisés à stabiliser les défauts structuraux des oxydes, à savoir les centres E' (un silicium entouré par trois oxygènes et une lacune d'oxygène), et les liaisons O-O qui pourraient apparaître au cours de la séquence de collision. La structure du coeur de la cascade pourrait être fortement enrichie en ces défauts sans que les simulations par dynamique moléculaire puissent le prédire.

Morphologie des cascades

Le morcellement des trajectoires est, semble-t-il, dû au comportement différent des formateurs et des modificateurs [10] au cours des séquences de collisions.

La Figure 12 montre l'évolution au cours du temps des distances entre un oxygène et le projectile ($d_{O\text{-projectile}}$) et entre un sodium et le projectile ($d_{Na\text{-projectile}}$). Le point le plus bas des courbes correspond à l'apsis (distance minimale au moment du choc).

Après confirmation sur une statistique plus large, il apparaît que l'apsis moyen des formateurs est plus petit que celui des modificateurs. Les courbes indiquant les déplacements de l'oxygène (dO) et du sodium (dNa) font clairement apparaître un changement de pente abrupt pour O, beaucoup plus doux pour Na.

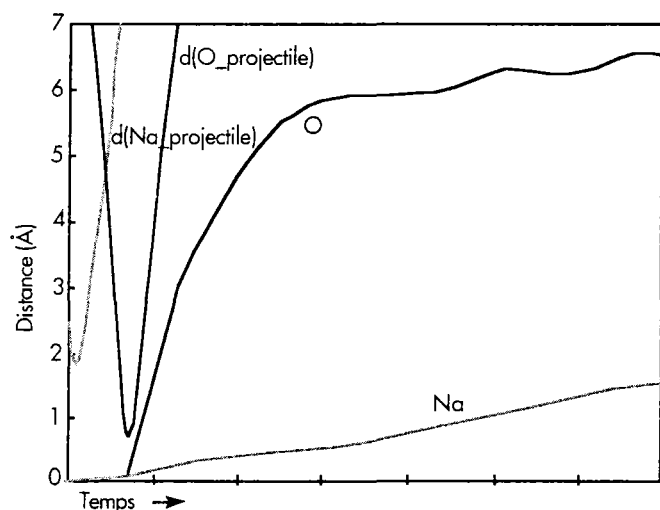


Figure 12 : Représentation de la distance entre le projectile et les atomes d'oxygène et de sodium au moment de la cascade

Les pentes correspondent aux vitesses des atomes, et la différence des pentes indique un transfert d'énergie cinétique plus important vers O que vers Na. Les Figure 13 et Figure 14 illustrent le comportement différent des formateurs et des modificateurs. On s'aperçoit que le projectile traverse facilement et avec un faible ralentissement les zones dépolymérisées plus riches en alcalins alors que les zones polymérisées plus riches en formateurs sont le siège de collisions frontales.

La morphologie de la structure explique également pourquoi les apsis sont plus grands pour les alcalins. En effet, la présence des alcalins crée des régions moins denses, de ce

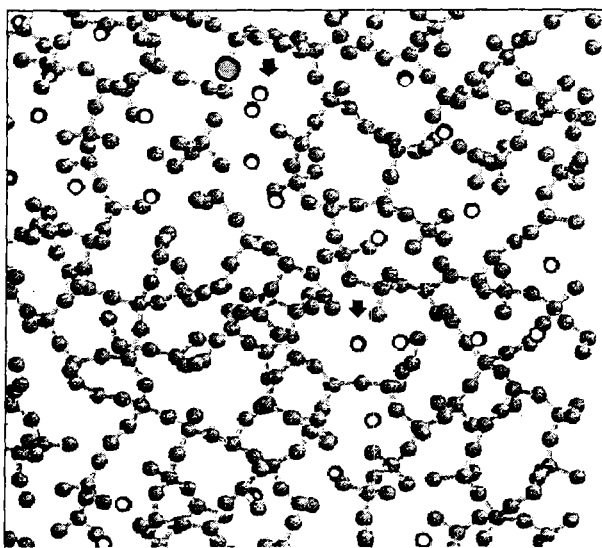


Figure 13 : Représentation d'une tranche de verre. Les flèches indiquent la position d'un canal créé par les Na (représentés par des cercles blancs). La sphère de rayon plus important (grise) représente la position initiale du projectile accéléré.

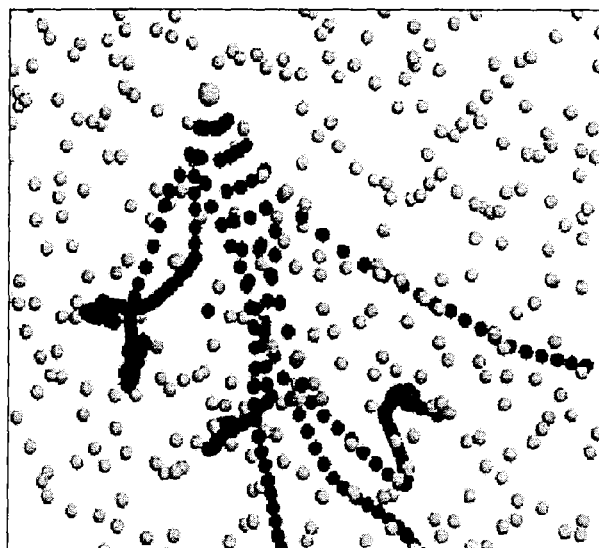


Figure 14 : Représentation des différentes trajectoires du projectile selon l'angle initial d'accélération. Les trajectoires sont tracées par rapport à la structure figée dans son état initial.

fait, l'apsis moyen est plus élevé. Par contre, dans les zones fortement polymérisées dans lesquelles l'apsis moyen diminue on assiste à un ralentissement plus important du projectile.

Mobilité des atomes

Deux facteurs peuvent expliquer le fait que ce soient les atomes d'oxygène et de sodium qui soient les atomes les plus déplacés au cours d'une cascade.

- ◆ Le premier est énergétique. Les énergies de cohésion de ces atomes sont plus faibles que celles des autres atomes.
- ◆ Le second est stérique. Les atomes de Na ont un volume "libre" important autour d'eux, (distances de premier voisin Na-O $\sim 2.5\text{\AA}$), ce qui peut faciliter leurs déplacements.. De même, les atomes d'O, attachés généralement aux formateurs par 2 voire 1 liaison(s) ont plus de facilité à se mouvoir que les formateurs eux-mêmes, entourés par 3 ou 4 atomes d'oxygène formant une cage autour d'eux.

Nous avons pu observer qu'il existe deux types de déplacements à l'intérieur de la matrice vitreuse, d'une part les déplacements directs issus des chocs entre les atomes, et d'autre part les déplacements induits par la modification du champ électrique vu par certains atomes [11].

Les formateurs placés dans les zones les plus polymérisées, ayant des paramètres d'impact moyens plus faibles, sont déplacés en grande partie par chocs balistiques alors que les modificateurs situés dans les zones les moins denses, ayant des paramètres d'impact moyens plus fort, sont peu déplacés par chocs balistiques. Ils sont déplacés ultérieurement pour relaxer le réseau suite aux modifications du champ coulombien induit

par la perturbation créée. Si la majorité des atomes d'oxygènes sont donc déplacés au cours des chocs balistiques ce n'est pas le cas des atomes de sodium qui se déplacent en majorité après les autres et qu'on retrouve généralement en périphérie de la cascade.

Mécanismes de déplacement

Les codes basés sur des approximations en collisions binaires [5, 6] (codes BCA) habituellement utilisés prédisent un nombre de déplacements de l'ordre de 2000 atomes dans un verre nucléaire réel à chaque émission d'un noyau de recul d'énergie comprise entre 60 et 100 KeV, alors que nos calculs font état d'un nombre total d'atomes déplacés d'environ 6000 atomes pour la cascade à 6KeV. Les mouvements collectifs des formateurs et le nombre important de déplacements des modificateurs produits pour relaxer le réseau [11] sont très vraisemblablement à l'origine des différences observées sur le nombre total de déplacements obtenus. En effet, ces mécanismes qui représentent 4 fois plus de déplacements que les chocs balistiques directs (déplacements individuels) ne sont pas pris en compte par les codes BCA.

Modification de structure

Le phénomène de dépolymérisation - repolymérisation observé lors de la simulation de cascades générées par la décélération d'un noyau de recul semble directement lié de façon antagoniste à l'énergie du projectile et à la modification de température due à la séquence de collisions. En effet, plus l'énergie de la cascade simulée est importante :

- plus la séquence de collision est violente et plus le niveau de dépolymérisation intermédiaire augmente (Figure 11 ; cascade 6KeV > cascade 4 KeV)
- plus le pic de température à l'intérieur de la zone endommagée est élevé et plus la repolymérisation est efficace (Figure 11 ; cascade 6 KeV > cascade 4 KeV).

Cet antagonisme met très nettement en évidence la différence dans l'échelle de temps entre :

- d'une part la propagation de la cascade du point de vue balistique,
- d'autre part, la propagation de l'onde thermique qui accompagne la séquence de collisions.

La multiplication des chocs balistiques est endommageante, car elle crée beaucoup de défauts, mais elle précède la propagation de l'onde thermique. De ce fait, l'onde thermique a un rôle guérisseur vis à vis des défauts créés par la séquence des chocs. Dans un verre réel, le problème est probablement de cerner l'influence de la composition du verre (relaxation du réseau) en fonction des énergies et des densités d'irradiation présentes.

Calcul des grandeurs physiques macroscopiques

Pour la longueur des trajectoires les valeurs obtenues (~10 nm pour quelques KeV) sont représentatives des valeurs attendues dans les verres réels (~ 30nm pour 70 à 100 KeV).

En ce qui concerne le calcul de l'énergie stockée dans les cascades les plus énergétiques, les énergies calculées affichent un écart type important. Cet écart type important a très certainement deux origines.

- La première est statistique. Pour évaluer ce type de grandeur macroscopique il est nécessaire de disposer d'un nombre non négligeable de simulations dans lesquelles les cascades seront orientées de façon isotrope.
- La deuxième concerne l'état de relaxation final du système. Compte tenu de la période de temps relativement courte (~ 10 ps) représentée dans nos simulations, la valeur que nous calculons dépend de l'état de relaxation plus ou moins avancé dans lequel se trouve le système en fin de simulation. L'importante fluctuation des valeurs d'énergie stockée obtenues montre que la relaxation simulée pourrait ne pas être toujours complète.

Cependant, si l'on considère la moyenne des valeurs correspondant aux cascades de quelques KeV simulées, cette valeur, ramenée à l'unité de masse, est représentative des grandeurs expérimentales disponibles dans la littérature (*Tableau II*).

	Simulation $\sim 3 \cdot 10^{17}$ désintégrations α/g	Expérience $\sim 10^{17}$ à 10^{18} désintégrations α/g	
		précurseur R7T7 [12]	Val. Max. [13]
4 à 7 Kev KeV	$\sim 29J/g$	/	
60 à 100 KeV	/	75J/g	150 J/g

Tableau II : Energie stockée ; comparaison calcul - mesure

CONCLUSION

Par Dynamique Moléculaire, dans des verres oxydes à 5 composants reprenant les éléments principaux des verres nucléaires français de la filière "eau légère" nous avons simulé des cascades de déplacements engendrées lors des désintégrations α .

L'analyse des résultats fait apparaître le long des trajectoires des zones fortement perturbées entrecoupées de zones faiblement perturbées (fractionnement de la zone endommagée en zones plus petites) ; phénomène qui a été attribué aux comportements différents des formateurs et des modificateurs au cours de la cascade.

Un phénomène de dépolymérisation - repolymérisation a pu être observé. Ce phénomène, qui est directement lié et ce de façon antagoniste à l'énergie de la particule accélérée et à la modification de température issue de la séquence de collisions, met très nettement en évidence la différence dans l'échelle de temps entre d'une part la propagation de la cascade du point de vue balistique d'autre part, la propagation de l'onde thermique qui accompagne la séquence de collisions.

Sur le plan atomique, au cours de la cascade, aux mouvements individuels consécutifs aux chocs balistiques viennent s'ajouter des mouvements collectifs de formateurs et un nombre non négligeable de déplacements de modificateurs pour relaxer le réseau perturbé.

Enfin, sur le plan macroscopique les valeurs obtenues pour les longueurs de trajectoire (noyaux de recul) et l'énergie stockée sont compatibles avec les mesures disponibles sur les verres nucléaires réels.

REMERCIEMENTS

Les auteurs remercient Y. Limoge pour les discussions constructives sur le sujet et la COGEMA pour son soutien financier.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] J.M. DELAYE, D. GHALEB, *J. Non-Cryst. Sol.*, 195, (1996) 239
- [2] J.M. DELAYE, D. GHALEB, *Mat. Sc. & Ing.*, B37 (1996) 232
- [3] J.M. DELAYE, D. GHALEB, *Proc. of Scientific Basis for Nuclear Waste Management, XX, Mat. Rec. Soc. Symp.*, Vol 465, p 633 (1996)
- [4] P.J.D. LINDAN, M.J. GILLAN, *J. Phys. Condens. Mat.*, 3 (1991) 3929
- [5] W. J. WEBER, F. ROBERTS, *Nucl. Tech.*, 60 (2) (1983), 178.
- [6] M.T. ROBINSON, *J. Nucl. Mat.*, 216 (1994) 1
- [7] D.J. O'CONNOR, J.P. BIRSACK, *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res.*, B15 (1986) 14.
- [8] J.M. DELAYE, D. GHALEB, *Radiation Effects and Defects in Solids*, Vol 141 (1-4), p 471 (1996)
- [9] J.M. DELAYE, D. GHALEB, *J. Nucl. Mat.* 244 (1997) 22
- [10] J.M. DELAYE, D. GHALEB, *Proc of ICACS17 (17th International Conference on Atomic Collisions in Solids)*, Beijing 1997, to be published
- [11] J.M. DELAYE, D. GHALEB, *Proc. of MRS 97 Symp (Material Research Society)*, Davos 1997, to be published
- [12] G. MALOW, J. A. C. MARPLES, C. SOMBRET, *Radioactive Waste Management and Disposal*, p341, R. SIMON and S. ORLOWSKI Eds. Harwood Academic Publishers, Switzerland (1980)
- [13] W. J. WEBER *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res.* B32 (1988), 471