

Bulletin
de
l'A.M.I.S.

Numéro 25
1er trimestre 1998

OKLO: DES REACTEURS NUCLEAIRES FOSSILES.

Conférence de Roger Naudet du 16 juin 1990

Il y a près de deux milliards d'années, des réactions en chaîne de fissions se sont déclenchées spontanément dans de petites portions d'un gisement d'uranium du Gabon. Ce très curieux phénomène a pu être étudié de manière approfondie: il a apporté une moisson de résultats étonnants.

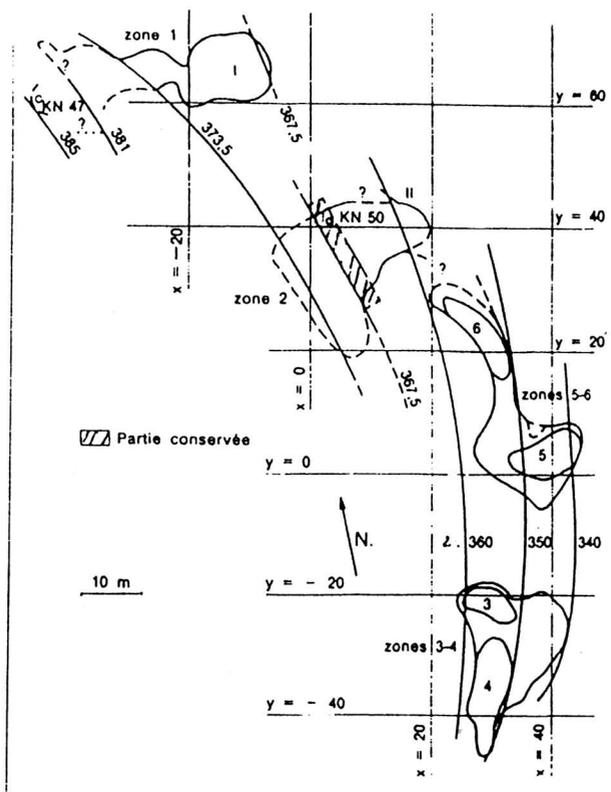
I. UNE EXTRAORDINAIRE DECOUVERTE.

Tout a commencé, il y a un peu plus de vingt ans, lorsqu'on a constaté, dans un échantillon d'uranium naturel entré dans le circuit industriel, une concentration en isotope fissile très légèrement inférieure à la normale. On en a recherché la provenance, ce qui a conduit à remonter la chaîne jusqu'à ce gisement du GABON; des analyses systématiques ont permis alors de trouver des échantillons très fortement anormaux; en effet, outre celle de l'uranium, les réactions nucléaires avaient profondément modifié les compositions isotopiques de nombreux autres éléments dans les terrains. L'origine des anomalies a pu être identifiée, sans aucun doute possible, parce qu'on obtenait très exactement, pour certains d'entre eux, des rapports isotopiques caractéristiques de la fission. Trois mois seulement après l'observation de la première anomalie, deux communications retentissantes à l'Académie des Sciences (Septembre 1972) annonçaient ce résultat presque incroyable à une communauté scientifique qui, il faut bien le dire, resta d'abord sceptique.

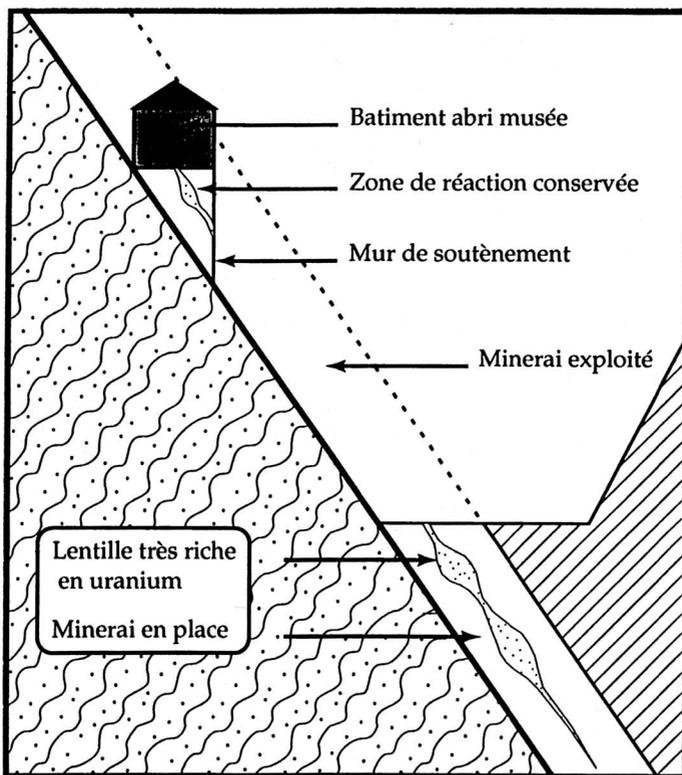
Un peu plus tard, on devait effectivement retrouver dans la partie du gisement non encore exploitée, des portions à haute teneur en uranium qui avaient été le siège de fissions. Ce qui était le plus remarquable était leur état de conservation: il s'avéra en effet non seulement que beaucoup d'éléments issus des réactions étaient restés en place, mais que leurs distributions dans les terrains étaient encore représentatives. On pouvait donc désormais entreprendre une étude minutieuse de cet étonnant phénomène géologique, qui justifiait le terme imagé de "réacteurs nucléaires fossiles".

Ce phénomène n'aurait évidemment pas pu se produire de nos jours. Si des réactions en chaîne ont pu être entretenues, c'est parce que cela s'est passé il y a extrêmement longtemps: 1950 millions d'années; à ce moment l'uranium était plus riche en isotope fissile, puisque la décroissance radioactive du 235 est plus rapide que celle du 238 (la concentration en 235 était de 3,44% au lieu de 0,72% actuellement; c'est en gros celle utilisée par enrichissement dans nos réacteurs industriels). Bien d'autres conditions sont nécessaires: il faut qu'il y ait un volume suffisant de minerai à très haute teneur pour former une "masse critique"; qu'il n'y ait pas trop d'éléments avides de neutrons (avec cependant une quantité convenable de "poisons" pour le contrôle); et surtout qu'il y ait suffisamment d'eau. Mais le plus étonnant n'est pas que ces conditions aient pu être réunies, c'est le fait que, si longtemps après, on ait pu en retrouver la trace. On ne connaît d'ailleurs pas d'autres exemples de ce phénomène dans le monde.

Comment ce "réacteur nucléaire fossile" se présente-t-il dans les terrains? Il ne faut pas penser à un réacteur unique et de forme bien définie; il faut parler plutôt de "zones de réaction", aux limites souvent imprécises, et il y en a un assez grand nombre (on en compte actuellement 16, regroupées en cinq ou six secteurs; on continue d'en trouver).



Réacteurs d'Oklo : zones 1 à 6. Vue en plan.



Coupe de la mine d'uranium d'Oklo

Dans ce gisement de type sédimentaire, les couches de grès uranifère, épaisses de plusieurs mètres, sont inclinées à environ 45° ; les zones de réaction se trouvent dans des amas argileux de minerai extrêmement riche (30 à 50% d'uranium) qui sont comme "enkystés" dans le minerai ordinaire. Ces amas ont la forme de galettes, en général très irrégulières, dont l'épaisseur n'est que de quelques décimètres, mais qui dans les autres dimensions peuvent dépasser les vingt mètres. Bien que ces dimensions soient modestes à l'échelle du gisement, le phénomène a été d'une ampleur considérable: dans le seul secteur des zones 1 à 6, près de 800 tonnes d'uranium ont été affectées par les réactions; environ 6 tonnes de ^{235}U ont été fissionnées, et la production d'énergie a été de l'ordre de 500 millions de mégajoules, soit la chaleur dégagée dans un de nos réacteurs de 1000 MWe pendant environ 8 ans. Mais ici le processus a été très lent, étalé sur plus d'un million d'années.

II. DES INTERPRETATIONS TRES FINES.

Les études ont été pilotées par le Commissariat à l'Energie Atomique, mais de très nombreux laboratoires y ont pris part, dans l'industrie comme dans les Universités, à l'étranger comme en France.

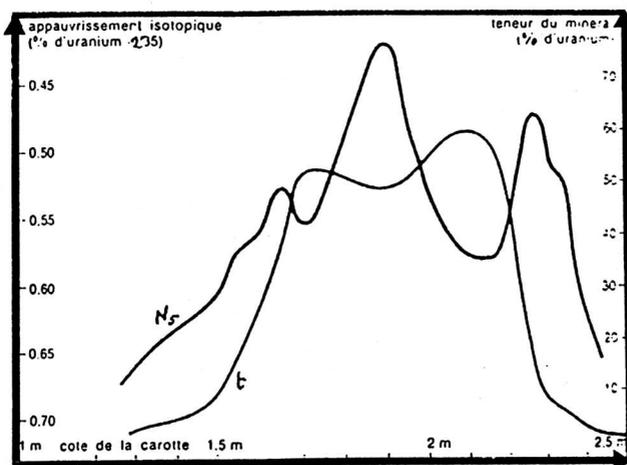
La phase principale des recherches, destinées à décrire et comprendre le déroulement du phénomène, a duré huit ans, jusqu'en 1980, ponctuée par deux colloques, à Libreville et à Paris, sous les auspices de l'Agence Internationale de l'Energie Atomique. Les études n'ont jamais cessé, d'autant qu'à plusieurs reprises de nouvelles zones ont été découvertes, relançant l'intérêt des chercheurs; c'est ainsi qu'on a continué sur le terrain à s'intéresser au contexte géologique du phénomène et qu'on a effectué une étude approfondie de sa physique.

Il y a quelques années un nouveau programme a été lancé, plus particulièrement orienté sur l'aspect "analogue naturel" du stockage des déchets radioactifs, et faisant l'objet d'un contrat avec la Commission des Communautés Européennes; cette fois encore, des laboratoires étrangers y participent, notamment en dehors de l'Europe, aux Etats Unis, au Canada et au Japon. Il a fallu faire évidemment des investigations très détaillées sur le terrain: plusieurs centaines de sondages ont été forés et on a prélevé des milliers d'échantillons; on a fait des coupes très fines comme sur un site archéologique, avec parfois des prélèvements centimétriques: et bien sûr on a fait systématiquement des levés géologiques sur toutes les parties affleurantes au cours de l'exploitation du minerai (seules de petites portions ont été conservées). Un grand nombre de techniques relevant des Sciences de la Terre ont été mises à profit pour étudier les prélèvements.

Nd	Echantillon	Contribution de l'élément naturel	Contribution de la fission	Transferts par capture neutronique
142	1.68 ± 0.02	1.44	-	+0.28 -0.04
143	22.25 ± 0.04	0.65	27.18	+0.04 -5.62
144	31.69 ± 0.06	1.26	24.81	+ 5.62
145	17.49 ± 0.03	0.44	17.93	- 0.88
146	15.49 ± 0.03	0.91	13.70	+ 0.88
148	7.99 ± 0.02	0.31	7.68	
150	3.41 ± 0.02	0.30	3.11	
Total	100.00	5.31	94.41	0.28

Interprétation d'une analyse isotopique de néodyme (les transferts résultent des réactions $^{141}\text{Pr} \rightarrow ^{142}\text{Nd} \rightarrow ^{143}\text{Nd} \rightarrow ^{144}\text{Nd}$ et $^{145}\text{Nd} \rightarrow ^{146}\text{Nd}$).

Ce sont surtout les analyses isotopiques qui ont apporté des informations sur le déroulement du phénomène; on en a fait des milliers. On peut en effet, par recoupement entre les différents éléments, en tirer une foule de renseignements: en chaque point on détermine la "fluence" un indice caractérisant le "spectre" de neutrons, les proportions des différentes fissions, le coefficient de "restitution" du plutonium (qui a décré en uranium fissile), ainsi que des indications sur la température, la durée et l'âge des réactions. Particulièrement intéressantes sont les coupes à travers les réacteurs; on en a fait systématiquement: la plus ou moins bonne cohérence entre tous les résultats le long d'une coupe permet de mettre en évidence les inévitables remobilisations géochimiques de certains éléments, et leur confrontation apporte d'autres renseignements.



Corrélation, le long d'un sondage, entre la teneur de l'uranium dans le minéral et son appauvrissement isotopique.

La physique neutronique permet ensuite d'interpréter les résultats en remontant aux conditions dans lesquelles les réacteurs ont fonctionné; c'est ainsi par exemple qu'on peut calculer les quantités d'eau ou les diluants présents à l'époque des réactions. Dans certains cas, on a pu aller très loin dans ces interprétations, justifier les caractéristiques observées avec une excellente cohérence, et reconstituer en détail le fonctionnement dans l'espace et dans le temps. Il faut dire qu'on a eu la chance de commencer les études par une petite portion où les conditions étaient exceptionnellement favorables. Il est en tout cas très remarquable que, pour comprendre ce qui s'est passé dans un gisement d'uranium il y a deux milliards d'années, on ait pu utiliser avec profit des outils de calcul conçus pour des réacteurs industriels.

III. LA DESILICIFICATION DES ZONES DE REACTION.

Avant de parler du "fonctionnement" de ces réacteurs inusuels, il faut mentionner un autre résultat très important. Il était clair dès le départ que le phénomène nucléaire s'était inséré à l'intérieur d'un épisode géologique, puisqu'il avait bien fallu concentrer l'uranium et fracturer les terrains pour y faire entrer de l'eau; mais on pouvait espérer qu'à partir de là les réactions s'étaient déroulées dans un milieu relativement stable; c'est du moins ce qu'avaient semblé prouver les premières études. La suite devait prouver qu'il n'en était rien, et que les réactions elles-mêmes avaient contribué à modifier complètement leur environnement.

Les géologues s'étaient longuement interrogés sur l'origine des lentilles argileuses très chargées en uranium dans lesquelles les réactions s'étaient développées. Ils ont fini par comprendre que ce n'était pas du tout l'état primitif du minerai: au départ celui-ci était constitué par des grès avec des teneurs exceptionnellement élevées (de l'ordre de 5 à 12%), comme on en trouve d'ailleurs dans le gisement. Les courants de

convection gènes par le dégagement de chaleur avaient ensuite dissous tous les quartz, ne laissant subsister que le ciment argileux: d'où, après compaction sous la pression des terrains, la formation de ces lentilles très riches.

La découverte d'un bouleversement aussi important allait à l'encontre des idées admises à ce moment, mais elle éclairait bien des aspects du phénomène. Il apparut que l'ensemble n'avait pas forcément fonctionné en synchronisme: puisque les réactions nucléaires avait produit des courants d'eau chaudes susceptibles de désilicifier l'environnement, on pouvait imaginer que les réactions, une fois déclenchées en un point favorable, s'étaient ensuite propagées avec un certain décalage, dans un milieu progressivement transformé. En particulier cela n'excluait pas que dans certains cas les réactions se soient développées dans un milieu préalablement désilicifié et stabilisé.

Jusqu'alors, on ne comprenait pas pourquoi les réactions s'étaient étendues sur d'aussi grandes distances sans solution de continuité, comme si la criticité avait été réalisée simultanément partout: d'autant qu'on avait écarté l'idée selon laquelle l'uranium aurait continué à se mettre en place pendant les réactions (car cet apport aurait créé des hétérogénéités de composition isotopique que l'on n'observait pas). La désilicification apportait la clé du mystère: il s'avérait que les réacteurs s'étaient pour ainsi dire "fabriqués" eux-mêmes en concentrant l'uranium de proche en proche, et en faisant rentrer l'eau.

A ce sujet justement, les études avaient montré qu'il y avait eu pendant les réactions de très grandes quantités d'eau: il fallait supposer une porosité de 30 à 40%: or, même en faisant appel à des réactions tectoniques, de tels chiffres paraissaient difficiles à admettre. Ils s'expliquaient par contre s'ils s'agissaient de matériaux venant de perdre une grande partie de leur substance et dont le reliquat n'était pas encore parfaitement compacté. En outre, puisque la quantité d'eau était réglée par le rythme de la compaction qui suivait la désilicification, on comprend que le comportement des terrains ait joué un rôle tout à fait essentiel dans le contrôle des réactions nucléaires, comme on va le voir maintenant.

IV. LES MECANISMES DE CONTROLE DES REACTEURS.

Pour qu'il y ait réaction en chaîne entretenue, il faut qu'il y ait à la fois des mécanismes de stabilisation, qui empêchent les réactions de s'emballer ou au contraire de s'étouffer, et des mécanismes de compensation à long terme, qui permettent aux réactions de se poursuivre malgré les modifications irréversibles du milieu, en particulier la diminution du nombre de noyaux fissiles et l'accumulation de produits de fission. Dans les réacteurs fabriqués de main d'homme, ils sont mis en place délibérément; à Oklo les mécanismes ont dû s'exercer de manière naturelle et automatique, ce qui peut paraître très étonnant. Les principes sont cependant assez simples.

Le minerai contenait des "poisons" neutroniques, c'est à dire des nucléides ayant des sections de capture beaucoup plus grandes que l'uranium 235: c'est le cas de certains isotopes du samarium, du gadolinium et surtout du bore élément très répandu. Au départ, la criticité a dû être réalisée malgré ces captures importantes, mais les poisons se détruisant plus rapidement que l'uranium, la réactivité commençait par croître malgré l'usure du combustible. Dans ces conditions, les réactions se seraient emballées si un autre mécanisme n'était immédiatement intervenu pour s'opposer à la prolifération des neutrons: c'est le très grand dégagement de chaleur provoquant une élévation de température; or, celle-ci a des conséquences défavorables sur le bilan neutronique, l'effet principal étant d'abaisser la densité de l'eau.

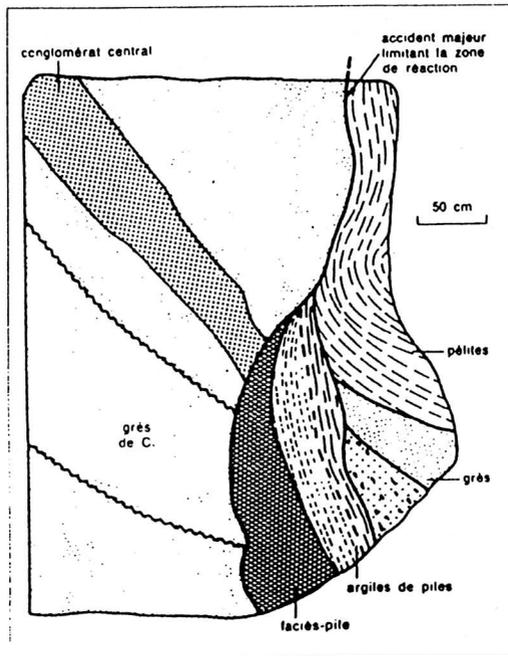
Le flux de neutrons se trouvait donc stabilisé à un niveau qui compte tenu des conditions d'évacuation de la chaleur, conduisait à des températures assurant exactement la criticité. La chaleur s'évacuait mal, car les réactions se déroulaient dans un milieu confiné sous un fort recouvrement de terrains, et c'est pourquoi les réactions se sont déroulées très lentement. Au fur et à mesure que les poisons se détruisaient, la température s'élevait (les zones de réaction 1 à 6, ont fonctionné sous un recouvrement de 2 à 3 km, donc sous une pression élevée: les températures ont dû monter jusqu'à près de 400° C pour assurer la compensation; pour d'autres zones, il semble que le recouvrement ait été plus faible et les élévations de température plus réduite; il a pu y avoir, à certains moments, vaporisation partielle de l'eau, ce qui était une autre façon d'abaisser la densité). Il se constituait ainsi une réserve de réactivité permettant aux réactions de continuer même lorsque l'usure du combustible était devenue prépondérante. Les réactions s'arrêtaient lorsqu'il n'y avait plus de réserve.

Ce schéma simple doit être adapté pour tenir compte de ce qu'en général, à cause de la désilicification, le milieu n'était pas stabilisé pendant le déroulement des réactions. Ce qui contrôlait les réactions était la quantité d'eau présente: si donc le volume occupé par cette eau variait, la température "critique" devait en tenir compte. Par exemple, s'il y avait retard à la compaction, les températures s'élevaient davantage; si au contraire, il y avait rattrapage de ce retard par effondrement, il pouvait y avoir une forte baisse de température ou même arrêt prématuré des réactions. C'est dire que le contrôle dépendait de la chronologie entre désilicification et réactions, et du comportement des terrains encaissants. Il faisait intervenir de nombreux couplages, à la fois neutroniques, thermiques, géochimiques et tectoniques.

V. DIVERSITE DES CONDITIONS DE FONCTIONNEMENT

Comme on l'a dit, il y a à Oklo un assez grand nombre de zones de réactions. Les caractéristiques de la minéralisation, le pendage, la nature de l'encaissant, l'environnement, la tectonique, ne sont évidemment pas les mêmes partout; dans certaines zones on trouve des matières organiques qui étaient actives à l'époque des réactions, dans d'autres non; il semble qu'il y ait eu en outre, entre les secteurs, des

décalages dans le temps. Il en résulte que les conditions de démarrage et de contrôle des réacteurs ont souvent été largement différentes. On a pu non seulement mettre en évidence ces différences, mais aussi les expliquer, et cela a été un aspect tout à fait passionnant des études.



Front 119 (limite amont de la zone 5). Le réajustement tectonique consécutif à la désilicification est ici particulièrement net.

Ce qui a joué un rôle essentiel dans le fonctionnement est le caractère plus ou moins immédiat ou discontinu de la compaction. Dans la zone 2, où on a eu la chance de faire les premières études, la portion à haute teneur de la couche minéralisée était recouverte directement par un mètre de pélites; la compaction des terrains en cours de désilicification se faisait pour l'essentiel sans retard, car les grès sus-jacents déjà décrochés à l'amont exerçaient une forte pression par l'intermédiaire de ces pélites, qui formaient une sorte de joint plastique, et venaient se tasser en glissant vers l'aval. En revanche, la progression des réacteurs était retardée par le jeu combiné des poisons neutroniques et des effets de température, de sorte que le milieu était déjà pratiquement stabilisé lorsque le flux neutronique y était devenu significatif. Et c'est pourquoi les interprétations ont été plus aisées.

Au contraire, dans d'autres zones, les fracturations qui ont servi de drains aux circulations dans la phase de surconcentration de l'uranium n'ont affecté qu'une partie de la couche minéralisée; la passe riche était donc plus étroite, et il est resté de part et d'autre du réacteur des grès intacts. Ces épontes rigides ont transmis de manière moins immédiate que les pélites la pression des terrains sus-jacents pendant la compaction des portions désilicifiées: le suivi géologique montre qu'elles

ont décroché par petits blocs, à l'échelle métrique, provoquant des discontinuités dans l'évolution de la porosité. Dans ces conditions, les réactions ont démarré et se sont propagées dans des terrains incomplètement désilicifiés; les remobilisations géochimiques et en particulier les déplacements d'uranium ont été plus importants; quant au contrôle des réactions, il a été beaucoup plus simple, puisque le volume laissé pour l'eau pouvait varier largement et de façon aléatoire.

VI. LES REACTEURS D'OKLO COMME ANALOGUES NATURELS.

L'objectif principal des études en cours est la recherche d'informations sur le comportement des éléments issus des réactions qui soient applicables au stockage des déchets radioactifs. La radioactivité a naturellement disparu, mais les éléments sont identifiables par leur composition isotopique particulière.

Il faut cependant être bien conscient des difficultés. Notons d'abord que les réactions se sont déroulées dans un milieu déstructuré, qui avait perdu les quatre cinquièmes de sa substance, dont le reliquat était incomplètement compacté, qui était à température élevée et parcouru par des courants de convection; en outre, les minéraux étaient amorphisés par les radiations, ce qui favorisait les échanges ioniques avec les solutions. Ces conditions très sévères ont été maintenues pendant plusieurs centaines de milliers d'années. Le moins que l'on puisse dire est que ce milieu n'a pas constitué un excellent confinement, et qu'en tout cas il est bien différent de ce que l'on envisage pour stocker des déchets. D'ailleurs une ancienneté de deux milliards d'années est sans commune mesure avec ce dont on a besoin.

En outre, on n'est pas en mesure de reconstituer en détail les circulations pendant cette longue période de fonctionnement, puisque le milieu était en pleine évolution. On ne peut d'ailleurs identifier les éléments migrants que s'ils ne sont pas trop dilués, donc si on les trouve à proximité immédiate des réacteurs, et dans ce cas on ne sait pas si une fraction importante ne s'est pas dispersée davantage. Il faut souligner que seuls un petit nombre d'éléments sont restés en quantités significatives, et la vraie question consiste plutôt à se demander pourquoi, en dépit de ces conditions peu favorables, ceux-là sont restés. Deux processus notamment ont été identifiés: d'une part le maintien de quelques éléments dans le réseau de l'uranium (dans la mesure où celui-ci a été conservé), et d'autre part la formation d'inclusions métalliques regroupant un certain nombre d'autres éléments.

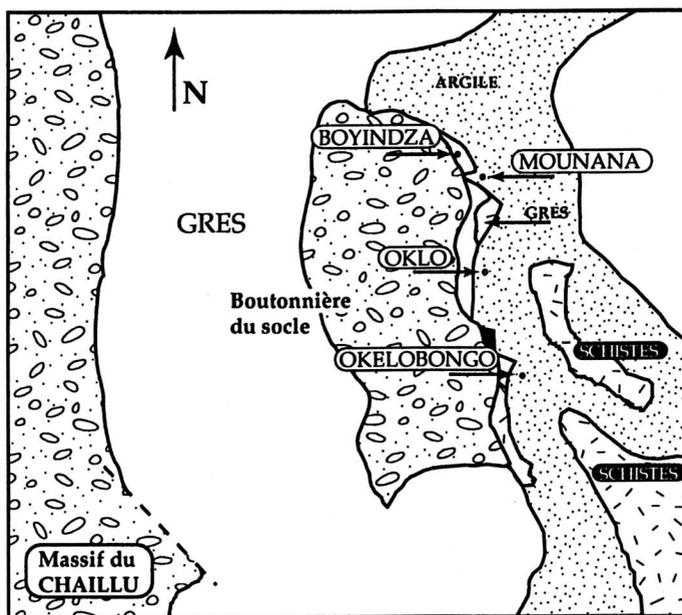
Il ne faut donc pas attendre du phénomène d'Oklo des recettes miracles pour le stockage des déchets radioactifs. Par contre il peut être mis à profit pour étudier les mécanismes élémentaires de migration ou de piègeage: rôle des fissurations, de l'environnement, de la température, des caractéristiques des fluides, des phases minéralogiques, etc. Le fait que que les réactions nucléaires aient placé dans les terrains une foule de "marqueurs", et qu'on en retrouve la trace si longtemps après, est un atout précieux qu'il serait dommage de négliger. Oklo a certainement encore beaucoup à nous apprendre.

Le Gabon est devenu familier aux minéralogistes depuis la découverte en 1956 du célèbre gisement d'uranium de Mounana qui devait fournir huit nouvelles espèces minérales, principalement des vanadates d'uranium, ainsi que de nombreuses espèces rares: vanadates de plomb, de plomb et de fer, etc.

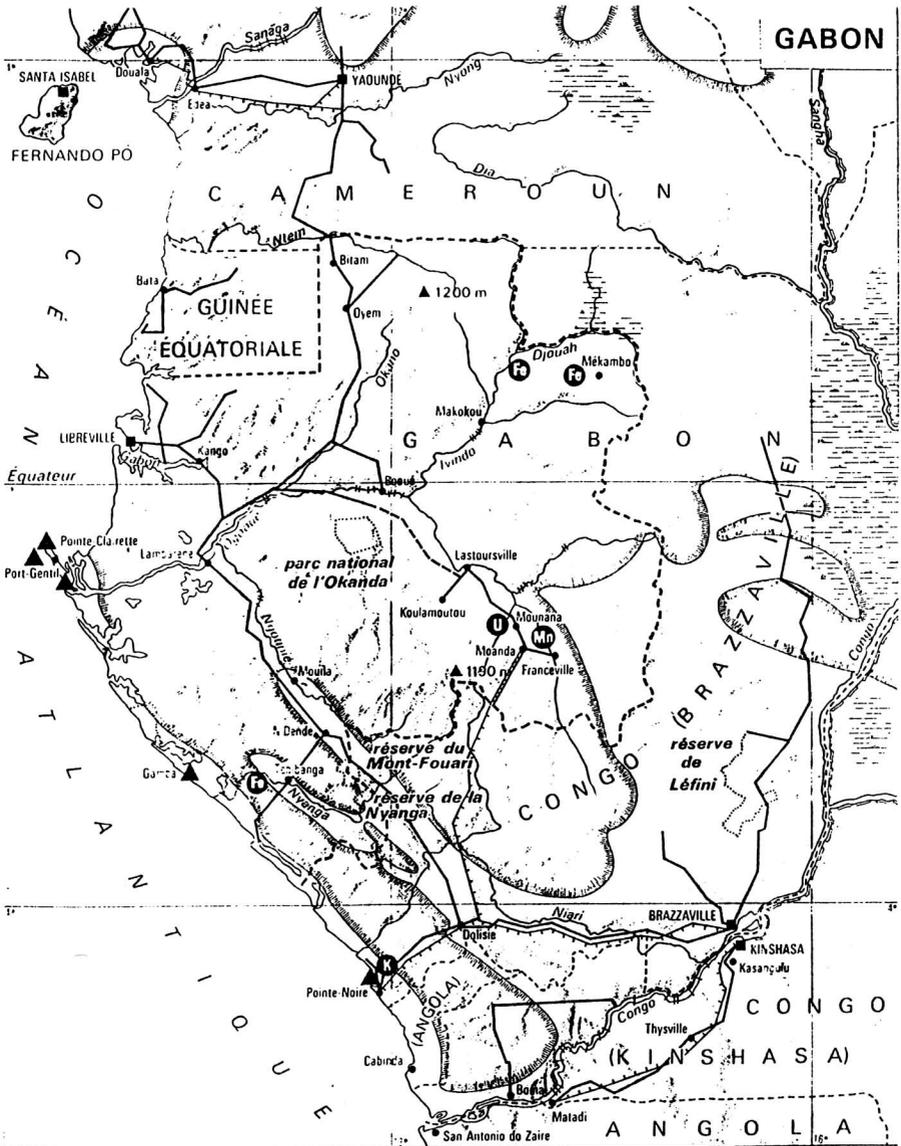
Gisement unique aussi sur le plan géologique, différent des gisements du plateau du Colorado.

L'énorme gisement de manganèse de Moanda situé à proximité est riche en rhodochrosites scalénoédriques, malheureusement les cristaux n'ont ni la qualité ni la dimension des gisements de manganèse du kalahari. Par ailleurs le fantastique développement de la recherche pétrolière laisse augurer d'un grand avenir pour le pays.

N'oublions pas pour terminer les riches gisements alluvionnaires d'or de la région de N'Dangui, dont une énorme masse de quartz de quatre kilogrammes, contenant plus de deux kilos d'or se trouve dans la Collection



Esquisse géologique des environs de Mounana; les gisements uranifères de Boyinda, Oklo, et Okelobongo sont alignés en bordure d'une boutonnière granitique qui est avant-poste du massif du Chaillu.



- | | | | |
|--|-------------------------------------|--|---------------------------------|
| | limites de la forêt: cense continue | | transporteur de minéral potasse |
| | zones inondables | | fer |
| | chutes et rapides | | manganèse |
| | voies navigables | | uranium |
| | voies ferrées | | gisements exploités de pétrole |
| | routes et pistes principales | | |

échelle : 1/8 000 000

0 50 100 150 200 km

VIE DE LA COLLECTION

Cette année encore, malgré l'absence de nouveautés, malgré des prix déments qui vont conduire à l'effondrement des bourses de minéraux, Tucson nous a quand même apporté quelques belles acquisitions:

- une superbe tanzanite de Merclani, Tanzanie.
- le plus bel échantillon connu de szenicsite, rare molybdate de cuivre en provenance du Chili.
- un groupe de cristaux d'or de Mockingbird Mine, dans le Comté de Mariposa en Californie.
- un rare cristal de fluorite de Naica, maclé spinelle.
- un joli groupe d'apophyllite des Indes.
- un énorme cristal d'hématite en rose (plus de 10 kg.) de la carrière de topaze de Dom Bosco près d'Ouro Preto au Brésil. Sans doute le plus beau connu.

A la Bourse de Paris-Sofitel fin 1997, quelques belles trouvailles, en particulier:

- un cristal parfait d'andalousite de deux centimètres, provenant de la région d'Espirito Santo au Brésil.
- un fragment d'aigüe marine corrodé de Pedra Azul au Brésil.
- un beau cristal de quartz enfumé du Brésil.

P.Bariand

A.M.I.S

**Association des Amis
de la Collection de Minéraux de la Sorbonne**

**Tour 25 - Rez-de-Chaussée
4, place Jussieu
75252 PARIS Cedex 05**