LES REACTEURS DE FISSION NATURELS

Comptes rendus de la
réunion d'un Comité technique
tenue à Paris
du 19 au 21 décembre 1977
et organisée par
l'Agence internationale
de l'énergie atomique
en collaboration avec
le Commissariat français à
l'énergie atomique

NATURAL FISSION REACTORS

Proceedings of a
Technical Committee
Meeting
Paris, 19–21 December 1977
organized by the
International
Atomic Energy Agency
in co-operation with the
French Atomic Energy
Commission

AGENCE INTERNATIONALE DE L'ENERGIE ATOMIQUE, VIENNE, 1978
INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, VIENNA, 1978

The cover picture, a micrograph (X 450), shows muscovite and biotite micas with dark areas indicating uraninite and lead sulphide, suggesting temperatures in excess of 400°C; taken from reactor zone 5.
The photograph was provided by courtesy of Dr. Rosemary J. Vidale, University of California, Los Alamos Scientific Laboratory.

LES REACTEURS DE FISSION NATURELS

NATURAL FISSION REACTORS

COLLECTION COMPTES RENDUS DE GROUPES D'ETUDE
PANEL PROCEEDINGS SERIES

LES REACTEURS DE FISSION NATURELS

NATURAL FISSION REACTORS

COMPTES RENDUS D'UNE REUNION DU COMITE TECHNIQUE
SUR LES REACTEURS DE FISSION NATURELS
ORGANISEE PAR
L'AGENCE INTERNATIONALE DE L'ENERGIE ATOMIQUE
EN COLLABORATION AVEC
LE COMMISSARIAT FRANÇAIS A L'ENERGIE ATOMIQUE
ET TENUE A PARIS
DU 19 AU 21 DECEMBRE 1977

PROCEEDINGS OF A MEETING OF THE TECHNICAL COMMITTEE
ON NATURAL FISSION REACTORS
ORGANIZED BY
THE INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY
IN CO-OPERATION WITH
THE FRENCH ATOMIC ENERGY COMMISSION
AND HELD IN PARIS
FROM 19 TO 21 DECEMBER 1977

AGENCE INTERNATIONALE DE L'ENERGIE ATOMIQUE, VIENNE
INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, VIENNA
1978

LES REACTEURS DE FISSION NATURELS
NATURAL FISSION REACTORS
IAEA, VIENNA, 1978
STI/PUB/475
ISBN 92–0–051078–7

Printed by the IAEA in Austria
August 1978

AVANT-PROPOS

C'est en septembre 1972 que la communauté scientifique internationale a été informée de la découverte, faite par des chercheurs du Commissariat français à l'énergie atomique, d'uranium à composition isotopique anormale dans des minerais en provenance du gisement d'Oklo, au Gabon, découverte qui a conduit à penser que ces minerais d'uranium appauvri pouvaient résulter de l'existence, dans un passé très reculé, de réactions de fission en chaîne au sein du gisement.

A l'invitation du gouvernement de la République gabonaise, l'Agence internationale de l'énergie atomique, en collaboration avec le Commissariat français à l'énergie atomique, a organisé en juin 1975, à Libreville (Gabon), un colloque international au cours duquel les trois principaux aspects du phénomène d'Oklo (sciences de la Terre, géochimie isotopique et physique des réacteurs) ont été examinés. Les comptes rendus de cette réunion ont été publiés par l'AIEA en 1975.

Les participants à ce colloque ont recommandé que les recherches se poursuivent dans un cadre international et avec l'assistance de l'AIEA. En 1976 un groupe conseil convoqué par l'Agence a recommandé la création, sous les auspices de l'AIEA, d'un groupe de travail international sur les réacteurs de fission naturels; ce dernier a proposé qu'un comité technique d'experts se réunisse en 1977 pour passer en revue les travaux accomplis depuis 1975 et définir les orientations futures.

A l'invitation du Commissariat français à l'énergie atomique, cette réunion s'est tenue à Paris du 19 au 21 décembre 1977. Soixante-six spécialistes appartenant à douze Etats membres de l'AIEA et une organisation internationale y ont participé. Trente-neuf mémoires ont été présentés; cinq tables rondes ont permis de faire le point et de définir les problèmes qu'il serait souhaitable d'approfondir.

Les travaux du Comité technique ont débuté par une séance sur les différents aspects du phénomène d'Oklo, tels qu'ils sont connus après cinq ans d'exploitation. De nouvelles zones de réaction ont été découvertes et les quantités d'uranium ayant participé à ces réactions ont pu être déterminées, ainsi que la puissance totale dégagée au cours de celles-ci. Une zone de réaction a fait l'objet de travaux de conservation; les autres zones, après avoir été intensivement échantillonnées, ont disparu en raison des travaux d'exploitation du gisement. A proximité des zones de réacteurs d'Oklo, dans le gisement d'uranium d'Okelobondo, des échantillonnages ont révélé l'existence de minerais appauvris. Il semble que l'on se trouve en présence d'un dispositif indépendant des zones de réaction d'Oklo.

Les exposés consacrés aux études pétrologiques ont apporté des éléments nouveaux sur la formation des dépôts d'uranium d'Oklo et ont permis de déterminer les variations successives de pression et de température dues à l'environnement géologique. Dans le domaine de la chimie isotopique, les recherches effectuées à l'aide de différentes techniques sur les rapports $^{235}U/^{238}U$ et les terres rares ont permis de mieux comprendre les processus de remobilisation des terres rares, ouvrant ainsi la voie à de nouvelles études.

L'application au phénomène d'Oklo des connaissances en matière de physique des réacteurs a permis d'avancer des hypothèses sur les origines des réactions de fission, les conditions dans lesquelles les divergences se sont produites et les modalités de propagation des réactions.

Pour faciliter la recherche d'autres gisements où des réactions de fission naturelles pourraient avoir eu lieu on espère pouvoir définir dans un avenir rapproché les critères permettant d'identifier les secteurs les plus prometteurs.

Le fait que les produits de fission résultant des réactions n'ont que très peu migré a été confirmé, et la stabilité de certains éléments support comme l'uraninite et la thorianite laisse à penser que ces matériaux pourraient constituer des matrices adéquates pour le stockage des déchets radioactifs.

Au cours des tables rondes, les discussions ont porté sur cinq sujets; la synthèse des travaux concernant l'histoire géologique et la stabilité géochimique des zones de réaction conduit à penser que les recherches sur les matériaux organiques, les inclusions fluides, les dommages d'irradiation, les aspects minéralogiques doivent être poursuivies et que des études doivent être entreprises dans le domaine de la géochimie.

Les hypothèses sur le déroulement du phénomène d'Oklo pourraient être confirmées par une réorientation des travaux mais la nécessité est apparue de donner à ces derniers un caractère interdisciplinaire dans un cadre international. C'est dans ce domaine que l'AIEA, par l'intermédiaire du groupe de travail international sur les réacteurs de fission naturels, peut jouer pleinement son rôle.

L'Agence remercie les auteurs des mémoires ainsi que les participants qui ont pris part aux discussions. En outre, il convient de souligner le rôle des présidents des séances et des animateurs des tables rondes. Mention spéciale doit être faite de la très importante contribution de M. R. Naudet, l'un des secrétaires scientifiques, à la préparation du programme et au déroulement des tables rondes.

L'Agence tient également à exprimer sa gratitude au gouvernement français et au Commissariat à l'énergie atomique pour leur généreuse contribution à l'organisation de la réunion, pour leur assistance et leur hospitalité.

FOREWORD

It was in September 1972 that the international scientific community learned of the discovery by scientists of the French Atomic Energy Commission of uranium with abnormal isotopic composition in ores from the Oklo deposit in Gabon, a discovery which suggested that these depleted uranium ores might be the result of chain fission reactions in the deposit in the very remote past.

At the invitation of the Government of the Gabonese Republic the International Atomic Energy Agency, in co-operation with the French Atomic Energy Commission, organized in June 1975, at Libreville (Gabon), an international symposium which dealt with the three subjects of principal interest in connection with the Oklo phenomenon (earth sciences, isotopic geochemistry and reactor physics). The proceedings of that symposium were published by the Agency in 1975.

The participants had recommended that the research should be continued in an international context and with the assistance of the Agency. In 1976 an advisory group convened by the Agency recommended the establishment, under Agency auspices, of an international working group on natural fission reactors; this group proposed that a technical committee of experts should meet in 1977 to review the work done since 1975 and to lay down guidelines for the future.

At the invitation of the French Atomic Energy Commission this meeting was held in Paris from 19 to 21 December 1977. Sixty-six specialists from twelve Member States of the Agency and one other international organization participated. Thirty-nine papers were presented and five round-table discussions enabled the present status of the problem to be reviewed and determined what questions should be studied more thoroughly.

The work of the Technical Committee commenced with a meeting on what has been learned about various aspects of the Oklo phenomenon after five years of mining operations. Further reaction zones have been discovered and the amounts of uranium involved in these reactions, as well as the total power yield of the process, have been determined. One reaction zone has been the subject of conservation operations; the others, after having been extensively sampled, have disappeared as a result of mining operations in the deposit. In the uranium deposit of Okelobondo, not far from the Oklo reactor zones, sampling has indicated the presence of depleted ores. It would appear that a system exists here that is independent of the reaction zones of Oklo.

The papers devoted to petrological studies contributed new information about the formation of the Oklo uranium deposits and provided a means of determining the successive variations in pressure and temperature due to the geological

environment. As far as isotope chemistry is concerned, research on $^{235}U/^{238}U$ ratios and rare earths based on the use of various techniques has resulted in a better understanding of rare-earth remobilization processes and has thus opened the way for further studies.

The application of the knowledge of reactor physics to the Oklo phenomenon has provided a basis for advancing theories concerning the origins of fission reactions, the conditions in which criticality was reached and the ways in which the reactions propagated.

To facilitate the research for other deposits where natural fission reactions might have taken place, it is hoped that in the near future criteria can be formulated for identifying the most promising areas.

The fact that there has been only very slight migration of the fission products from the reactions has been confirmed, and the stability of certain support materials such as uraninite and thorianite suggests that these materials might be suitable matrices for the storage of radioactive waste.

The round-table discussions centred on five subjects; the overall impression gained from the studies on the geological history and geochemical stability of the reaction zones is that the research on organic matter, fluid inclusions, irradiation damage and mineralogical aspects should be continued and that studies should be undertaken in the area of geochemistry.

The theories regarding the sequence of developments in the Oklo phenomenon could be confirmed by arranging for studies in new directions, but it has become necessary to ensure that these studies are interdisciplinary in character and that they are carried out in an international framework. It is in this area that the Agency, through the International Working Group on Natural Fission Reactors, can play its role to the full.

The Agency wishes to express its thanks to the authors of the papers and to those who participated in the discussions. An important part was also played by the chairmen of the sessions and the round-table discussion leaders. Special mention should be made of the very important contribution of Mr. R. Naudet, one of the scientific secretaries, to the preparation of the programme and conduct of the round-tables.

The Agency would also like to thank the French Government and the French Atomic Energy Commission for their generous contribution to the organization of the meeting, and for their assistance and hospitality.

NOTE DE LA REDACTION

Les mémoires et comptes rendus des discussions ont été revus par les rédacteurs-correcteurs de l'Agence internationale de l'énergie atomique, qui les ont adaptés dans la mesure jugée nécessaire pour en faciliter la lecture. Les auteurs des mémoires et les participants aux discussions, dont les noms sont donnés, conservent néanmoins la responsabilité des opinions qu'ils ont exprimées et du mode de présentation qu'ils ont adopté. En outre, ces opinions ne sont pas nécessairement celles des gouvernements des Etats Membres ou des organisations qui les ont désignés.

Dans les cas où l'Agence a incorporé des mémoires aux présents comptes rendus par photocopie directe, elle l'a fait au su des auteurs et de leurs autorités nationales et leur est reconnaissante de leur coopération. Les autres textes ont été reproduits par composition dactylographique et l'ensemble a été imprimé par le procédé photo-offset. Dans les limites imposées par cette méthode, aucun effort n'a été épargné pour assurer la qualité de la publication, notamment pour uniformiser le plus possible les unités et symboles et pour se conformer aux normes recommandées par les organismes internationaux compétents.

L'emploi dans les présents comptes rendus de désignations particulières de pays ou territoires n'implique de la part de l'éditeur – l'AIEA – aucune prise de position quant au statut juridique de ces pays ou territoires, de leurs autorités et institutions, ni quant au tracé de leurs frontières.

La mention de certaines sociétés ou de leurs produits ou de noms commerciaux ne vaut pas approbation ou recommandation de la part de l'AIEA.

Il appartient aux auteurs eux-mêmes d'obtenir l'autorisation de reproduire des documents dont le droit de reproduction est réservé.

EDITORIAL NOTE

The papers and discussions have been edited by the editorial staff of the International Atomic Energy Agency to the extent considered necessary for the reader's assistance. The views expressed and the general style adopted remain, however, the responsibility of the named authors or participants. In addition, the views are not necessarily those of the governments of the nominating Member States or of the nominating organizations.

Where papers have been incorporated into these Proceedings without resetting by the Agency, this has been done with the knowledge of the authors and their government authorities, and their cooperation is gratefully acknowledged. The Proceedings have been printed by composition typing and photo-offset lithography. Within the limitations imposed by this method, every effort has been made to maintain a high editorial standard, in particular to achieve, wherever practicable, consistency of units and symbols and conformity to the standards recommended by competent international bodies.

The use in these Proceedings of particular designations of countries or territories does not imply any judgement by the publisher, the IAEA, as to the legal status of such countries or territories, of their authorities and institutions or of the delimitation of their boundaries.

The mention of specific companies or of their products or brand names does not imply any endorsement or recommendation on the part of the IAEA.

Authors are themselves responsible for obtaining the necessary permission to reproduce copyright material from other sources.

TABLE DES MATIERES
CONTENTS

LE SITE D'OKLO (Séance I)
THE OKLO SITE (Session I)

Les réacteurs d'Oklo: cinq ans d'exploration du site (IAEA-TC-119/1) 3
R. Naudet
Discussion 18
Etude radiochronologique complémentaire de la série du Francevillien et de son environnement (IAEA-TC-119/6) 19
M. Bonhomme, J. Leclerc, F. Weber
Discussion 23
Organisation des gisements d'uranium de la boutonnière de Mounana (Gabon) (IAEA-TC-119/38) 25
M. Ruhland, F. Gauthier-Lafaye
Données nouvelles sur l'environnement géologique des réacteurs naturels (IAEA-TC-119/2) 35
F. Gauthier-Lafaye, Y. Besnus, F. Weber
Discussion 72
Suivi géologique de l'exploitation des réacteurs naturels d'Oklo (IAEA-TC-119/3) 75
F. Gauthier-Lafaye
Nouvelles analyses systématiques de l'uranium des minerais d'Oklo (IAEA-TC-119/4) 131
R. Naudet, C. Renson
Bilan descriptif des réacteurs d'Oklo (IAEA-TC-119/5) 151
R. Naudet, C. Renson
Discussion 186

ETUDES PETROLOGIQUES (Séance II)
PETROLOGICAL STUDIES (Session II)

Etat des études géologiques entreprises en France sur le gîte d'Oklo depuis le Colloque de Libreville (IAEA-TC-119/7) 189
F. Weber

Etudes minéralogiques et pétrographiques effectuées à Strasbourg sur les réacteurs naturels d'Oklo (IAEA-TC-119/8) 199
F. Gauthier-Lafaye, F. Weber
Discussion 225

Uranium solubilities in the Oklo reactor zones (IAEA-TC-119/36) 229
C.J. Duffy
Discussion 233

The highest temperatures recorded by the Oklo mineral phase assemblages and rock textures (IAEA-TC-119/39) 235
Rosemary J. Vidale
Discussion 240

Application of Eh-pH diagrams to problems of retention and/or migration of fissiogenic elements at Oklo (IAEA-TC-119/33) 243
D.G. Brookins
Discussion 264

Phases fluides contemporaines de la diagenèse des grès, des mouvements tectoniques et du fonctionnement des réacteurs nucléaires d'Oklo (Gabon) (IAEA-TC-119/9) 267
R. Openshaw, M. Pagel, B. Poty
Discussion 296

Mineralogical evidence for the mode of deposition and metamorphism of reaction zone samples from Oklo (IAEA-TC-119/28) 297
P.R. Simpson, J.F.W. Bowles
Discussion 304

Etude géochimique de la matière organique insoluble (kérogène) du minerai uranifère d'Oklo et de schistes apparentés du Francevillien (IAEA-TC-119/10) 307
Mireille Vandenbroucke, J.N. Rouzaud, Agnès Oberlin

Etude pétrographique de la matière organique d'Oklo (IAEA-TC-119/11) 333
B. Alpern

Discussion 351

Thermoluminescence and electron-spin resonance studies of the Oklo natural-fission reactor materials (IAEA-TC-119/29) 353
S.A. Durrani, K.A.R. Khazal, G.L. Hendry, S. Arafa
Discussion 373

Contribution of radiation damage studies to the understanding of the Oklo phenomenon (IAEA-TC-119/12) 375
J.C. Dran, J.P. Duraud, Y. Langevin, M. Maurette, J.C. Petit
Discussion 388

CHIMIE ISOTOPIQUE (Séance III et Séance IV, première partie)
ISOTOPIC CHEMISTRY (Session III and Session IV, first part)

A non-destructive field measurement of the $^{235}U/^{238}U$ ratio in depleted to moderately enriched uranium (IAEA-TC-119/34) 391
J.P. Balagna, C.A. Cowan
Discussion 396
Etude locale par analyse ionique de nouveaux échantillons d'Oklo (IAEA-TC-119/13) 397
Andrée Havette, R. Naudet
Discussion 405
Déterminations des sections de capture neutronique d'isotopes intervenant dans le phénomène d'Oklo par irradiation dans le réacteur Triton (IAEA-TC-119/14) 407
Monique Lucas, R. Hagemann, R. Naudet, C. Renson, C. Chevalier
Discussion 432
Nouvelles mesures de distribution des fluences dans les réacteurs d'Oklo par analyse isotopique des terres rares (IAEA-TC-119/15) 433
Michèle Neuilly, J.F. Dozol, R. Naudet
Les réacteurs naturels d'Oklo: Etude des migrations de l'uranium et des terres rares sur une carotte de sondage et application à la détermination de la date des réactions nucléaires (IAEA-TC-119/16) 441
J.C. Ruffenach
Nouvelles analyses des terres rares dans des échantillons d'Oklo (IAEA-TC-119/17) 473
J. Cesario, D. Poupard, R. Naudet
Discussion 493
Contribution du plomb et du thorium à l'histoire des réacteurs d'Oklo (IAEA-TC-119/18) 495
C. Devillers, J. Ménès
Discussion 509
U-Pb age (2.05×10^9 years) of the Oklo uranium deposit (IAEA-TC-119/40) 513
A.J. Gancarz
Discussion 520
The measurement of ruthenium in uranium ores and ^{238}U spontaneous fission yields (IAEA-TC-119/35) 521
W.J. Maeck, J.E. Delmore, R.L. Eggleston, F.W. Spraktes
A possible uranium-ruthenium method for the measurement of ore age (IAEA-TC-119/32) 535
W.J. Maeck, K.E. Apt, G.A. Cowan
Discussion 541

Interprétation des analyses chimiques et isotopiques du ruthénium effectuées sur des échantillons d'Oklo et sur des échantillons d'origines géologiques variées (IAEA-TC-119/19) 543
R. Hagemann, C. Devillers, T. Lecomte
Discussion 552
Evaluation des températures neutroniques dans les zones de réaction d'Oklo par l'étude des rapports isotopiques $^{176}Lu/^{175}Lu$ et $^{156}Gd/^{155}Gd$ (IAEA-TC-119/20) 553
P. Holliger, C. Devillers, G. Retali

PHYSIQUE DES REACTEURS (Séance IV, deuxième partie)
REACTOR PHYSICS (Session IV, second part)

Etudes neutroniques complémentaires sur le phénomène d'Oklo (IAEA-TC-119/21) 569
R. Naudet
Etude paramétrique de la criticité des réacteurs naturels (IAEA-TC-119/22) 589
R. Naudet
Prise en compte des effets thermiques dans l'étude du contrôle et de la propagation des réactions nucléaires (IAEA-TC-119/23) 601
R. Naudet
Discussion 619

TABLES RONDES – (Séances V et VI)
ROUND TABLES – (Sessions V and VI)

Histoire géologique des zones de réaction
Geological history of the reactor zones

Eléments pour une synthèse des résultats obtenus dans le domaine de la géologie sur les réacteurs naturels d'Oklo et leur environnement (IAEA-TC-119/24) 623
F. Weber
Discussion générale 630

Stabilité géochimique des réacteurs
Geochemical stability of the reactors

Synthèse des données concernant la stabilité et les remobilisations de l'uranium et des terres rares (IAEA-TC-119/25) 643
R. Naudet
Discussion générale 673

Recherche d'autres sites
Search for other sites

Search for other natural fission reactors (IAEA-TC-119/37) 677
K.E. Apt, J.P. Balagna, E.A. Bryant, G.A. Cowan, W.R. Daniels, Rosemary J. Vidale, D.G. Brookins
Discussion générale 690

Application au stockage des déchets radioactifs
Application to radioactive waste storage

Migration paths for Oklo reactor products and applications to the problem of geological storage of nuclear wastes (IAEA-TC-119/26) 693
G.A. Cowan
Relevance of natural retention experience to nuclear waste management (IAEA-TC-119/30) 700
R.B. Leachman, W.P. Bishop
Discussion générale 707

Conclusions sur le déroulement du phénomène
Conclusions on the unfolding of the phenomenon

Problèmes posés par le déroulement du phénomène d'Oklo: tentative d'interprétation globale (IAEA-TC-119/27) 715
R. Naudet
Discussion générale 734

Présidents, animateurs et secrétariat 741
Liste des participants 743
Index des auteurs 751
Index des numéros des mémoires 753

LE SITE D'OKLO
(Séance I)

THE OKLO SITE
(Session I)

Président (Chairman): G.A. COWAN

LES REACTEURS D'OKLO : CINQ ANS D'EXPLORATION DU SITE

R. NAUDET
Projet Franceville,
CEA, Centre d'études nucléaires de Saclay,
Gif-sur-Yvette, France

Résumé–Abstract

LES REACTEURS D'OKLO: CINQ ANS D'EXPLORATION DU SITE.

On retrace brièvement les principales phases de l'exploration du site d'Oklo depuis la découverte du phénomène «réacteur». Plus de 180 sondages de prise d'échantillons ont été forés pendant l'interruption des travaux miniers dans le secteur concerné. Plusieurs zones nouvelles ont été trouvées. La reprise de l'exploitation, au cours du deuxième semestre 1975, a donné lieu à un suivi géologique très fructueux: on a pu acquérir une connaissance plus précise de la morphologie des réacteurs, et on a procédé à un échantillonnage complémentaire très abondant. Le traitement en usine et l'analyse systématique des lots ont permis d'établir un bilan de l'uranium-235 manquant. Une petite portion comportant des foyers de réactions intenses a été conservée, accrochée en surplomb au parement de la carrière. L'exploitation de ce secteur est maintenant terminée, mais de nouveaux indices de fissions ont été trouvés, notamment dans le secteur Okelobondo.

THE OKLO REACTORS: FIVE YEARS OF EXPLORATION OF THE SITE.

The main phases of the exploration of the Oklo site since the discovery of the "reactor" phenomenon are outlined briefly. Over 180 sampling holes were drilled during the interruption of the mining activities in the sector concerned. Several new zones have been found. Mining was resumed in the second half of 1975, providing an opportunity for highly fruitful geological follow-up work: more precise knowledge was gained of the morphology of the reactors, and very many additional samples were taken. Plant treatment of the ore and the systematic analysis of batches have made it possible to establish a balance of missing uranium-235. A small portion containing sites of intense reaction has been preserved by being anchored to the quarry wall. Mining in this sector has now finished, but new indications of fission have been found, especially in the Okelobondo sector.

Au moment de la découverte du phénomène d'Oklo, il a été décidé que le maximum d'efforts seraient consacrés à l'investigation scientifique de ce site exceptionnel, sans pour autant porter gravement atteinte aux intérêts économiques mis en jeu. Il n'était pas possible de renoncer à l'exploitation du gisement d'uranium mais puisqu'il était nécessaire en tout état de cause de localiser le minerai anormal, on a décidé d'interrompre l'exploitation dans le secteur concerné, pendant un temps suffisant pour délimiter les zones de réaction et en faire, notamment au moyen de sondages, un échantillonnage très serré. Lorsque l'exploitation a repris, on a pu faire de nombreuses observations géologiques, au fur et à mesure de la progression, et de nouveaux échantillonnages.

Actuellement la totalité de l'uranium ayant participé aux réactions dans ce secteur a été enlevée à l'exception d'une petite portion qui a été maintenue en place, accrochée au parement de la carrière. Il est certes extrêmement dommage qu'on n'ait pas pu conserver l'environnement géologique de ce phénomène unique. Mais, outre le témoin conservé, on dispose d'une masse énorme d'échantillons et d'observations.

On a déjà décrit dans [1] les travaux menés sur le site jusqu'au colloque de Libreville. On en résume ici les principales étapes, pour enchaîner jusqu'à la situation actuelle,et présenter ainsi un bilan de ces cinq ans de travaux. Rappelons que cette exploration a été menée en étroite collaboration par le Commissariat à l'Energie Atomique, la Compagnie des Mines d'Uranium de Franceville (COMUF) et l'Institut de Géologie de Strasbourg.

Résumé chronologique

- Juin 1972 : une anomalie de teneur isotopique déclenche une enquête qui va conduire à la découverte du phénomène [2]. Il apparaît que du minerai anormal a été extrait au Gabon; l'enquête montre ensuite que tout l'uranium sorti de l'usine de concentration de la COMUF entre décembre 1970 et mai 1972 avait une teneur en isotope 235 trop basse, et que le minerai incriminé provenait du secteur nord de la carrière d'Oklo.

Des échantillons provenant de ce secteur permettent une recherche analytique, et dès le mois d'août, le phénomène est identifié. Début septembre une mission française à haut niveau informe le gouvernement gabonais de la découverte. La décision est prise d'interrompre l'exploitation pendant deux ans pour permettre l'étude scientifique du phénomène. La découverte est rendue publique le 25 septembre 1972.

En novembre est créé,au Commissariat à l'Energie Atomique, le "projet Franceville" ; les crédits sont alloués au titre de la mission "Recherche Fondamentale".

- Il n'était pas possible d'entreprendre immédiatement le déblaiement permettant des investigations sur le terrain. Ce délai de quelques mois est mis à profit, d'abord pour étudier en détail les documents relatifs à l'exploitation au cours des deux années précédentes; il s'avère que le minerai anormal extrait au cours de cette période était concentré dans deux amas distincts, relativement bien localisés, et qui étaient susceptibles d'avoir des prolongements dans la partie non encore exploitée du gisement. D'autre part un appareillage de mesure de la teneur isotopique de l'uranium adapté aux conditions locales est mis au point ("Oklomètre"), et un laboratoire est installé à Mounana. Pendant ce temps l'étude scientifique se poursuit par des analyses systématiques des débris du sondage KN 50.

- En mars 1973, les travaux commencent sur le terrain. Grâce à l'étude préalable, les tâtonnements sont réduits au minimum, et dès la première analyse le minerai anormal est retrouvé. Les affleurements des deux amas à haute teneur (zones n° 1 et 2) sont étudiés en détail, l'Oklomètre rendant possible des analyses systématiques immédiates. Une campagne de sondages percutants permet de reconnaître les prolongements vers l'aval des deux amas ; ceux-ci apparaissent fort étendus ; une première délimitation en est faite. L'échantillonnage sur les affleurements (coupe 2 L notamment) permet de relancer les études analytiques sur de meilleures bases.

- D'avril à juillet, une vingtaine de sondages carottés sont forés ; ils vont permettre de vérifier que tout l'uranium des amas à haute teneur a participé aux réactions. Les carottages sont de mauvaise qualité : des efforts sont tentés dans plusieurs directions pour les améliorer. Les plateformes sont agrandies en juillet pour pouvoir poursuivre l'investigation.

- En septembre a lieu une mission géologique ; un levé des affleurements est effectué et les premières conclusions apparaissent sur la génèse du phénomène. En même temps, profitant de la saison sèche, un échantillonnage extrêmement détaillé est fait sur l'affleurement n° 2, les analyses ayant montré l'intérêt d'étudier les distributions de taux de réaction à une échelle presque centimétrique : plus de 700 échantillons sont recueillis, d'où une nouvelle phase des études analytiques.

Une campagne de sondages percutants, plus au sud, conduit à la découverte de la zone n° 3 ; en effet on trouve de l'uranium légèrement appauvri dans les "cuttings" d'un sondage laissant pressentir qu'on se trouve dans "l'auréole de contamination" d'une nouvelle zone ; celle-ci est effectivement mise en évidence à quelques mètres du sondage suspect.

L'emploi d'un carottier triple (HQ 3) et la technique du paraffinage permettent enfin l'obtention de carottes ayant une bonne intégrité et susceptibles d'être transportées sans dommage et découpées avec précision. Un programme d'échantillonnage systématique par sondages est défini.

- En mars 1974 a lieu la mission d'un expert en mécanique des sols pour étudier une solution de maintien en place d'une petite portion de la zone de réaction n° 2 ; l'accrochage paraît techniquement possible, mais une incertitude subsiste sur sa réalisation, compte tenu d'une flexuration de la couche à l'aval qui pourrait entraîner une reprise du mur. Parallèlement est étudié un projet de découpage de la carrière permettant de conserver une partie de la zone n° 1 en place ; celui-ci a l'inconvénient de stériliser un petit tonnage d'uranium normal.

La COMUF ayant modifié son programme, la reprise de l'exploitation initialement prévue pour l'été 1974 est repoussée jusqu'à la fin de l'année.

- Le programme de sondages se déroule néanmoins au rythme prévu ; il est achevé en août 1974. A cette date 108 sondages carottés ont été forés (39 en zone 1, 61 en zone 2 et 8 en zone 3), dont 83 ont bénéficié de la technique du paraffinage.

Toute une activité de gestion d'échantillons a été mise en place à Saclay ; des carottes y sont régulièrement envoyées ; elles font l'objet de radiométrie γ, de découpages et analyses systématiques.

- En septembre 1974 a lieu une nouvelle mission géologique ; l'accent est mis sur les aspects tectoniques (étude du front de la "minipile"). Un géologue de l'Institut de Strasbourg travaille désormais à plein temps sur le site et son environnement.

- En septembre 1974, une série de sondages de la COMUF destinée à reconnaître la flexuration de la couche dans la région y = - 40 qui pose des problèmes d'exploitation, rencontre du minerai riche à teneur isotopique inférieure à la normale : c'est la zone n° 4. Un programme de reconnaissance par sondages de tout le secteur situé au nord de y = - 60 est alors décidé ;

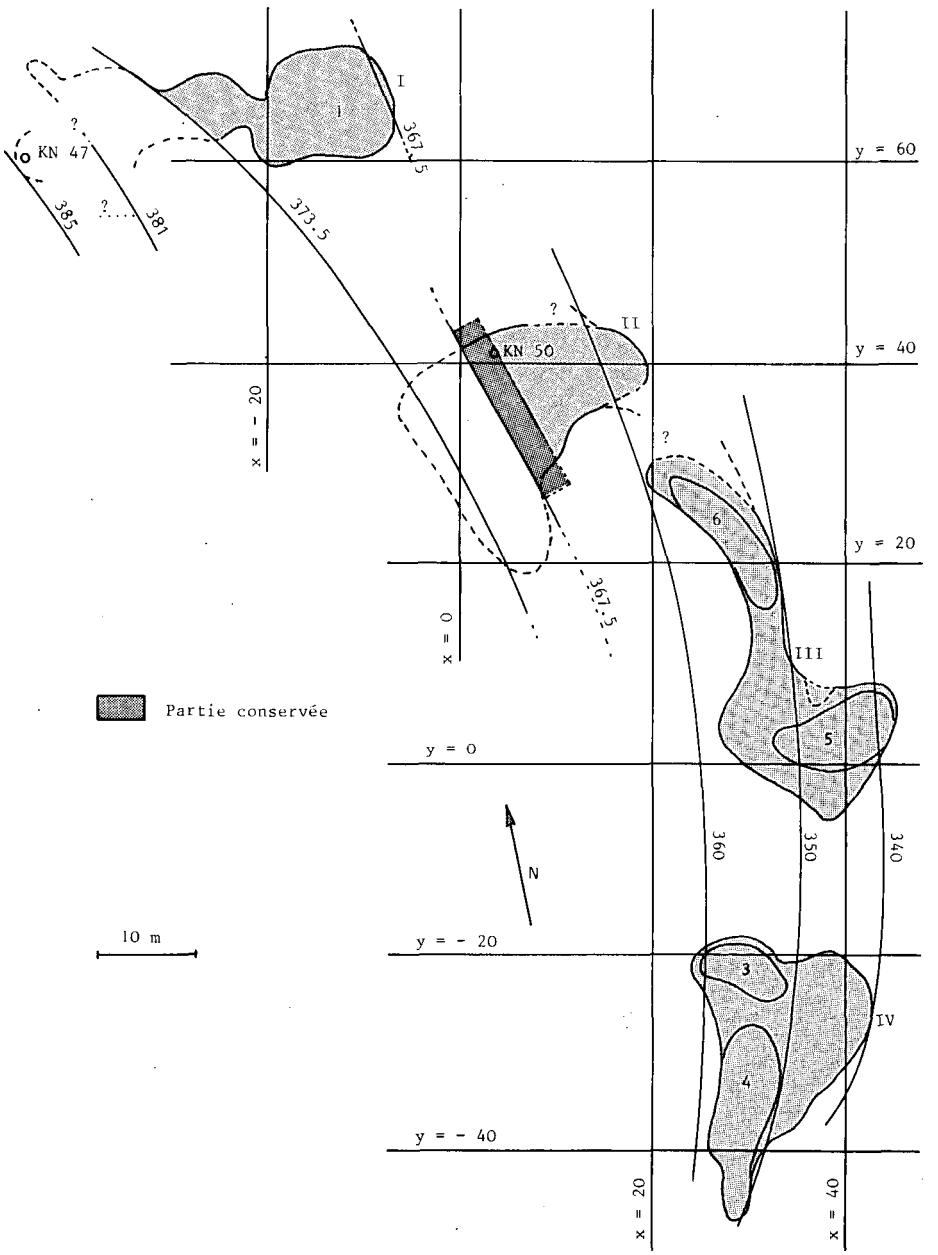


FIG.1. Les réacteurs d'Oklo.

54 sondages ont été réalisés au titre de ce programme jusqu'en décembre. Il en résulte non seulement une délimitation de la zone 4, mais la découverte de deux nouvelles zones de réaction, n° 5 et 6 (voir figure 1).

Ces sondages KN ayant été forés dans un but d'exploration, les carottages sont de mauvaise qualité, mais ils ont le très grand intérêt de fournir un échantillonnage systématique de l'environnement des zones de piles.

Compte tenu de ce fait nouveau, la reprise de l'exploitation est reportée à l'été 1975.

- En janvier 1975 a eu lieu une mission du Directeur Général de l'AIEA pour préparer le colloque international de Libreville, et en juin 1975, à l'occasion de ce colloque, le site qui a "fait toilette" pour la circonstance reçoit la visite de tous les participants, et plus particulièrement d'un certain nombre de géologues.

Quelques échantillonnages supplémentaires sur les affleurements, et quatre nouveaux sondages sont réalisés en zones 1 et 2 avant la reprise de l'exploitation.

- Les participants au colloque ont émis le voeu que soit conservé le maximum de ce site exceptionnel et en particulier de son environnement géologique. Mais aucune décision n'est prise à aucun niveau, ni aucune négociation sérieusement engagée, en ce qui concerne la conservation d'un minimum d'environnement géologique de la zone 1, qui aurait été techniquement possible. Par contre le maintien d'une petite portion de zone 2 par accrochage au parement est décidé, les incertitudes concernant ce projet ayant été levées. La réalisation sera prise en charge financièrement par le CEA.

Dès le mois de juillet les travaux préparatoires à la reprise de l'exploitation commencent.

- L'enlèvement du minerai des zones de réaction a lieu effectivement à partir de septembre 1975, en commençant par le nord où la cote est la plus élevée : 373.5, c'est-à-dire la zone 1. On a renoncé à faire du tri entre plusieurs catégories de minerai, comme cela avait été envisagé au départ, car la découverte des nouvelles zones a montré qu'il y avait du minerai anormal dans la presque totalité du secteur et le tri aurait posé des problèmes trop difficiles. L'exploitation est menée tambour battant, car l'usine doit être alimentée uniquement par du minerai venant de ce secteur. Il avait été envisagé de faire une première tranche jusqu'à la cote 360, mais l'exploitation se poursuit sans interruption jusqu'à une cote voisine de 350 en zone 5 et 348 en zone 3-4. Il ne reste plus que de modestes portions à l'aval de ces cotes. L'usine est alimentée pendant sept mois par ce minerai, jusqu'en mars 1976, et produit sept cents tonnes d'uranium à teneur isotopique inférieure à la normale.

- Au cours de cette phase d'exploitation, la petite portion de zone 2 conservée est dégagée avec précaution ; on s'abstient de faire des tirs dans le voisinage immédiat, et on réduit la charge un peu plus loin. Le dégagement est fait en trois tranches successives, d'environ 1.50 m de hauteur ; à chaque étape sont réalisés les sondages d'ancrage et le soudage des fers et des tôles.

Ce travail est fait pour l'essentiel en novembre et décembre 1975. Une nouvelle mission de l'expert a lieu à ce moment pour contrôler techniquement les opérations.

- Un suivi géologique de l'exploitation est réalisé tout au long de cette période. On essaie de faire en sorte que les extrémités des tirs se trouvent dans des portions intéressantes, de manière à pouvoir examiner les "fronts" correspondants : cela oblige l'exploitant à faire des tirs souvent plus courts qu'il ne le souhaiterait. Il n'est cependant en général pas possible de "nettoyer" correctement les fronts qui sont simplement dégagés au bull-dozer, et le suivi s'effectue dans des conditions difficiles : le géologue dispose de très peu de temps pour faire ses observations, dessiner un levé, prendre les photos, et faire un échantillonnage détaillé et approprié. Au cours de cette période 24 fronts ont pu être étudiés, 4 en zone 1, 8 en zone 2, 4 en zone 3-4, 3 en zone 5-6, et 5 en dehors des zones de piles. En outre des échantillonnages ont été réalisés sur 3 affleurements ; ce sont de simples jalonnements, mais très utiles, pour reconnaître les liaisons entre zones de pile (GL 1 de la zone 2 à la zone 6, GL 2 en zone 5, GL 3 de la zone 3 à la zone 4).

Ce suivi géologique s'est révélé d'un intérêt fondamental : c'est lui seul qui a permis de comprendre la morphologie des zones de pile et leur tectonique ; il a permis de réaliser un échantillonnage géologique de grande valeur [3].

- En mars et avril 1976, bien que la "campagne d'appauvris" soit terminée, et qu'on ait tout nettoyé, l'usine produit une dizaine de lots d'uranates à teneur isotopique légèrement inférieure à la normale. L'origine du minerai est à l'aval de la zone 1, dans un secteur où on n'a pas repéré de réacteurs ; il semble qu'il s'agisse d'une contamination géochimique en provenance des zones de réaction. A partir de mai, les lots produits sont normaux. Le contrôle isotopique de tous les lots est néanmoins poursuivi ; à deux ou trois reprise on trouvera des valeurs très légèrement basses.

- Pendant l'été 1976, la COMUF fore 5 sondages KN supplémentaires de contrôle à l'aval des zones de réaction. On profite également du répit pour forer 9 sondages SC en supplément, 6 en zone 5 et 3 à l'aval de la zone 3 (il n'était pas possible de le faire plus tôt, car il fallait d'abord élargir la carrière). Malheureusement les carottages sont de très mauvaise qualité.

- En septembre 1976 commence la deuxième campagne d'exploitation du secteur des piles. Il reste à prendre ce qui se trouve entre les cotes 348 et 341 en zone 3-4, et entre les cotes 350 et 340 en zone 5 (plus un petit morceau de zone 6 et une marge de sécurité vers l'aval). Le rythme est très différent de celui de la première campagne ; en effet le minerai correspondant est stocké pendant que l'usine est alimentée en minerai normal. Les tirs ont donc lieu à des intervalles irréguliers, et la cote 340 n'est atteinte qu'à la fin de janvier 1977.

- Ce rythme est bénéfique pour le suivi géologique qui, bien entendu, est assuré à nouveau : on dispose de beaucoup plus de temps pour étudier les fronts et affleurements. Durant cette période, quatre fronts sont levés, deux en zone 3-4 et deux en zone 5-6, et quatre affleurements, également deux dans chaque zone, sont étudiés avec beaucoup de détails ; c'est ainsi que 250 échantillons sont prélevés sur le seul affleurement GL 5. Toutefois ce rythme irrégulier a une contrepartie fâcheuse : le rendez-vous est manqué pour l'observation des fermetures aval des deux zones ; le tir 192 du 25 janvier enlève les dernières portions de réacteur, et on peut seulement échantillonner un affleurement situé un ou deux mètres plus bas (GL 8).

- En novembre et décembre 1976, alors que l'usine traite du minerai du sud de la carrière, apparaissent à nouveau des teneurs isotopiques trop basses. Une trentaine de lots, représentant plus de 200 tonnes d'uranium, ont des teneurs comprises entre 0.7194 et 0.7142 %. Bien que l'hypothèse d'un foyer de réaction isolé non détecté ne puisse être éliminée d'une manière absolue, l'hypothèse la plus probable est celle d'une contamination géochimique analogue à celle déjà observée à l'aval de la zone 1. Le minerai en question se trouve en effet un peu en contrebas, et d'autre part le relief comporte une pente vers le sud. Cette contamination semble d'un type tout à fait différent de celle observée à proximité immédiate des zones de réaction qui disparaît au bout de 1 à 2 mètres.

- Le minerai appauvri provenant de la deuxième tranche d'exploitation est traité en usine de janvier à avril 1977 ; 360 tonnes d'uranium sont produites (avec un appauvrissement isotopique moyen beaucoup plus faible que pour la première campagne).

- En avril 1977, un échantillon en provenance du gisement voisin Okelobondo, en cours de prospection, donne lieu à une analyse isotopique fortement anormale ; les études montrent que ce gisement comporte presque sûrement lui aussi des foyers de réaction (voir plus loin).

- Tout l'uranium traité en usine à partir de mai 1977 est désormais à composition isotopique normale.

Durant l'été 1977 les derniers aménagements (accès, toiture), de la portion conservée de zone 2, qui avaient été différés à cause des travaux dans la carrière, sont achevés.

Bilan de l'exploitation

La figure 1 représente en plan l'ensemble des zones de réaction y compris la position probable des portions des zones 1 et 2 exploitées avant la découverte du phénomène. Le suivi géologique a montré que les zones 3 et 4 devaient être intégrées à un ensemble plus vaste, et de même que les zones 5 et 6 devaient être raccordées. Un doute subsiste d'ailleurs sur une possible interconnexion entre la zone 6 et la zone 2. Dans l'état de nos connaissances, on distingue donc quatre grandes zones ; l'ensemble du secteur s'étend sur environ 150 mètres.

Sur cette figure 1 on a indiqué de manière approximative les lignes de niveau, ce qui permet de se rendre compte de l'étagement des zones de réaction : elles vont en s'approfondissant du nord vers le sud ; il y a au moins quarante-cinq mètres de dénivelée entre les portions les plus hautes et les plus basses.

Les zones de réaction sont décrites en détail dans [3] et [4]. En particulier dans [4], on rassemble les données relatives à chaque secteur, et on discute les problèmes posés par la délimitation et le raccordement éventuel des différentes zones ; on décrit d'autre part l'ensemble de l'échantillonnage disponible, qui est considérable.

Les figures 2, 3 et 4 représentent les zones de réaction en coordonnées y, z, ce qui permet de voir comment elles ont été exploitées (dans cette représentation la zone 1 paraît petite, car elle est allongée dans le sens des x, et le pendage est faible). On a porté l'implantation des

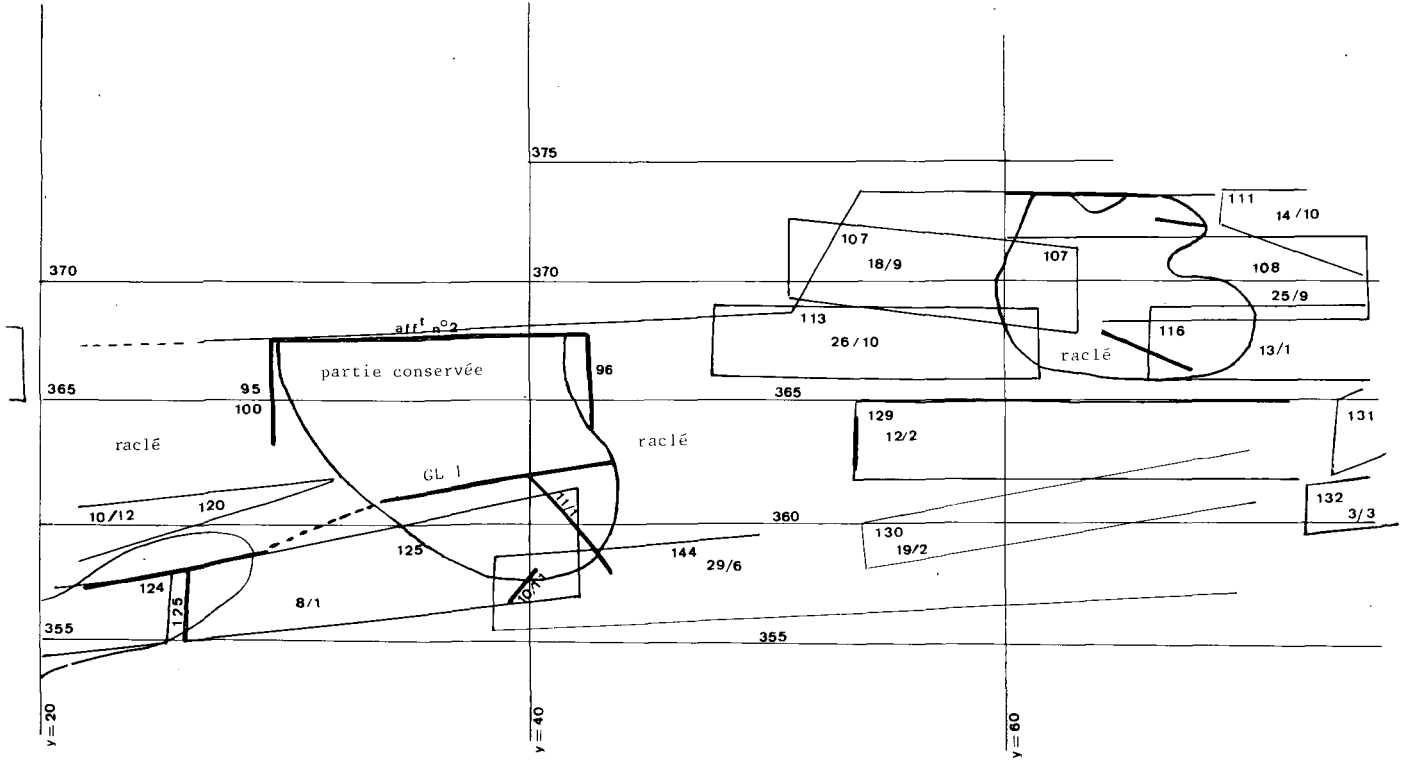


FIG.2. Exploitation des zones 1 et 2.

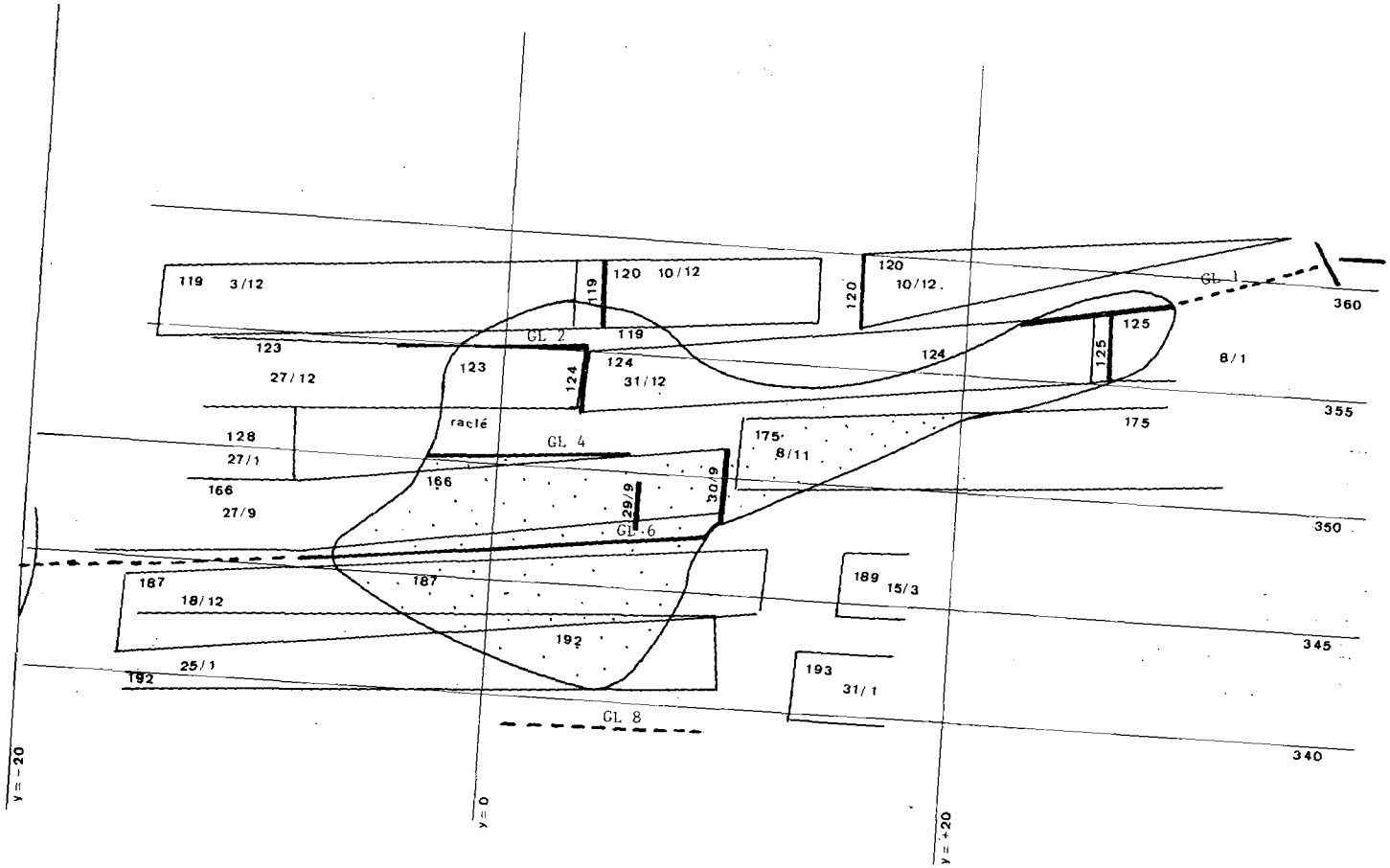


FIG.3. Exploitation de la zone 5–6.

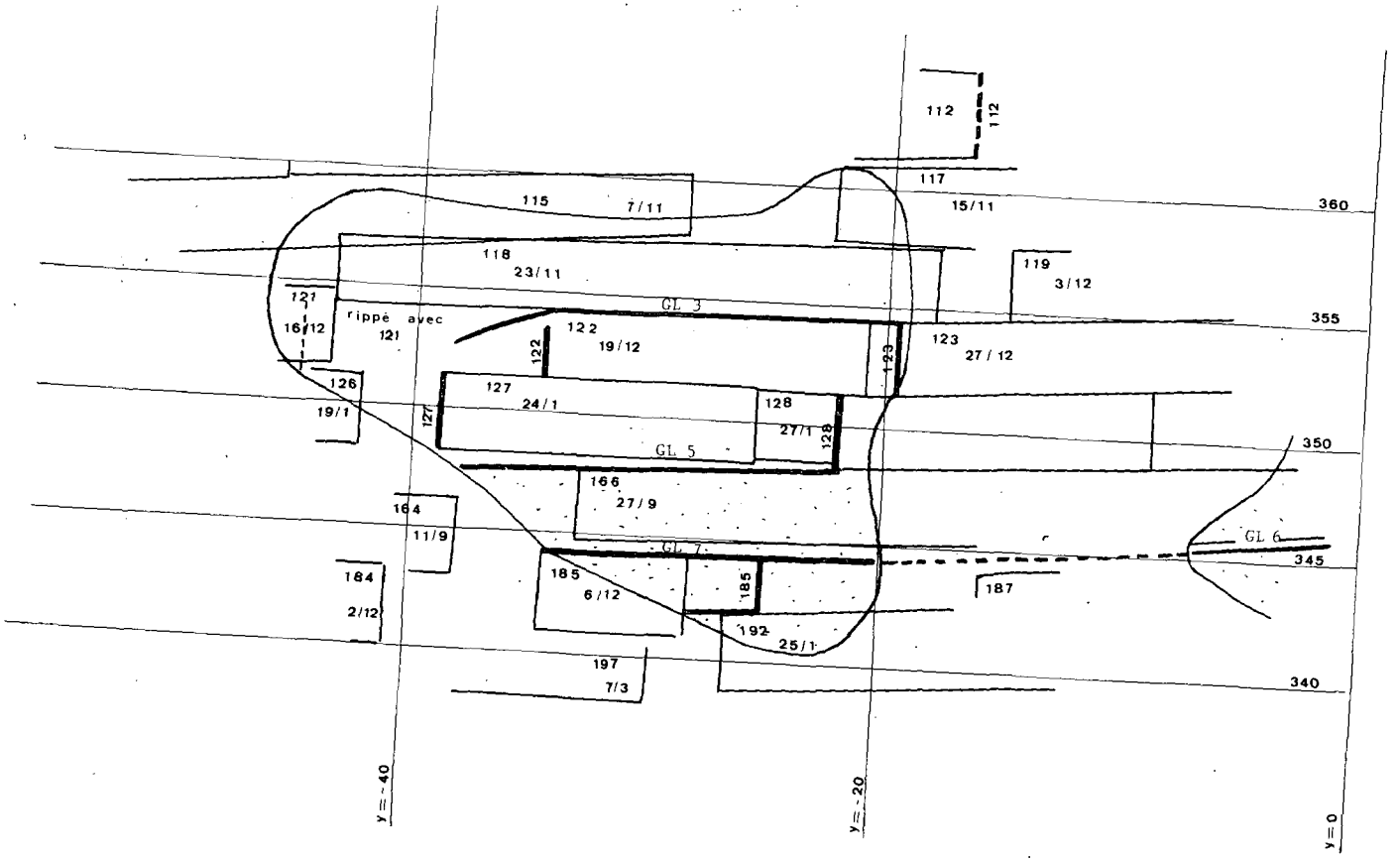


FIG.4. Exploitation de la zone 3–4.

tirs successifs avec leur date. On a indiqué également la position des fronts et affleurements qui ont fait l'objet de levés géologiques, et qui sont bien entendu en relation avec les tirs. Les figures 3 et 4 mettent en évidence en particulier la limite entre les deux phases d'exploitation.

On a essayé de tirer parti des documents relatifs à l'exploitation pour évaluer les quantités d'uranium et d'isotope 235 manquant dans les différentes zones en suivant leur passage à l'usine. Cette tâche s'est révélée extrêmement difficile. En principe l'étagement entre les zones auraient dû permettre une relativement bonne séparation : par exemple les zones 1 et 2 sont au-dessus de la cote 358, alors que les zones 4 à 6 sont presque tout entières au-dessous.En fait on a mélangé à tout moment du minerai provenant des différentes zones.

En effet la conservation d'une portion de la zone 2 a eu pour conséquence qu'on s'est abstenu de faire des tirs à proximité (beaucoup de minerai a été enlevé par raclage comme le montre la figure 2), et on a fait des nettoyages ultérieurs qui semblent avoir apporté de grandes quantités de minerai appauvri provenant de la zone 2. Les zones 3-4 et 5-6, qui sont au même niveau, ont constamment été exploitées simultanément. Il faut tenir compte d'autre part du jeu des stocks : l'aire de stockage est disposée de telle manière que le minerai est repris à l'usine dans l'ordre inverse de l'apport des camions, ce qui ne facilite pas l'interprétation des résultats. Enfin pendant la dernière phase d'exploitation, le minerai a été stocké et on ne peut donc pas faire de distinction entre les différents apports.

Tous les lots produits à l'usine ont fait l'objet d'analyses isotopiques, et on connaît pour chacun d'eux le poids d'uranium contenu (qui va de 4 à 8 tonnes). On peut résumer comme suit les bilans globaux :

- 1ère campagne d'appauvris (septembre 1975 à janvier 1976) : lots n° 6253 à 6299 et 7200 à 7247 : tonnage d'uranium : 686 tonnes - uranium 235 manquant : 299.4 kg;
- contamination résiduelle (mars et avril 1976) : lots 7248 à 7258 : 48 tonnes d'uranium - U_5 manquant : 1.8 kg;
- les lots n° 7259 à 7299 et 8200 à 8217 sont tous normaux, cinq d'entre eux cependant à la limite de normalité (0.7194 %) : la moyenne est 0.7201 %;
- lots contaminés d'Oklo-sud : n° 8218 à 8251 (novembre-décembre 1976) : 233 tonnes d'uranium - U_5 manquant : 3.9 kg;
- deuxième campagne d'appauvris (janvier à avril 1977) : lots n° 8255 à 8299 et 9200 à 9232 : 356 tonnes d'uranium - U_5 manquant : 54.3 kg.

Finalement, compte tenu de la partie exploitée avant la découverte du phénomène, et de la portion conservée (pour laquelle on ne peut faire qu'une estimation), on peut dresser le bilan suivant pour l'uranium 235 manquant :

exploitation 1970-1972	204 kg
portion zone 2 conservée	44 kg
campagne 1975-1976	301 kg
contamination Oklo-sud	4 kg
campagne 1977	54 kg
	607 kg

Pour ce qui est du tonnage d'uranium ayant effectivement participé aux réactions, on peut estimer de manière très approximative son ordre de grandeur à 800 tonnes. On sait que les zones de réaction sont généralement entourées par du minerai très légèrement appauvri ou contaminé : la délimitation est de toute façon un peu arbitraire.

De même, c'est seulement de façon très approximative qu'on peut essayer de ventiler ces quantités entre les quatre zones. Pour les tonnages d'uranium, on admettra 230 à 240 tonnes pour la zone 1, environ 200 tonnes pour la zone 2, 170 à 180 tonnes pour la zone 5-6, et 180 à 190 tonnes pour la zone 3-4. Pour les quantités d'uranium 235 manquant, on peut avancer les chiffres suivants : de l'ordre de 200 kg pour la zone 1 (dont la moitié avant 1972), de l'ordre de 200 kg également pour la zone 2 (partagés de la même manière), 100 à 110 kg pour la zone 5-6, et 90 à 100 kg pour la zone 3-4.

Le poids total d'uranium 235 manquant permet d'évaluer la quantité d'énergie dégagée par les réactions. Il faut d'abord tenir compte de la décroissance radioactive de l'uranium 235 : le déficit doit être multiplié par un facteur allant de 5.8 à 6.8 suivant la valeur retenue pour la date des réactions (1.8 à 2 milliards d'années). Il faut d'autre part tenir compte de l'uranium 235 restitué par décroissance radioactive du plutonium (facteur de conversion moyen de l'ordre de 0.45). On en déduit que le poids d'uranium 235 fissionné a été de l'ordre de 6 tonnes. Comme la fission d'un gramme d'uranium 235 produit à peu près 1 **MW·d**, la production d'énergie a donc été au total de l'ordre de 6 millions de **MW·d**, ou encore 16 500 MW·an, ou encore un peu plus de 500 milliards de mégajoules.

Portion de zone 2 conservée

Il est extrêmement dommage qu'on n'ait pas pu conserver un élément de réacteur avec tout son environnement géologique, comme cela aurait pu être le cas en zone 1. La portion de zone 2 conservée ne comporte en effet strictement que les réacteurs, avec seulement un mètre environ de bordure. Elle est néanmoins située dans un secteur particulièrement intéressant : les taux de réaction sont très élevés, et on a effectué un échantillonnage très dense (voir [4]), de sorte que ce secteur est extrêmement bien documenté.

Le témoin a la forme d'un prisme dont la base est un triangle rectangle isocèle de 5.50 m de côté, et la longueur de 15 mètres. Le minerai est retenu par ancrage au parement de la carrière ; le pendage du mur est de l'ordre de 45°, il est formé d'un conglomérat particulièrement solide (figures 5 et 6). La quantité d'uranium contenu est de l'ordre de 30 tonnes et la teneur isotopique moyenne de 0.57 %.

Trente et un sondages verticaux forés pour l'échantillonnage ont été mis à profit : ils s'enfoncent dans le mur et sont tubés ; sur quatre niveaux, des rails ont été soudés sur les tubages, et ces rails sont eux-mêmes retenus par 28 ancrages subhorizontaux. Les ancrages s'enfoncent de 4 à 5 mètres dans le mur ; on a utilisé des boulons à expansion, puis du ciment à prise rapide. L'ensemble est garni d'un coffrage en tôles soudées avec un remplissage de béton. On a mis en place une toiture amovible ainsi qu'un filet de protection, un drainage pour les eaux de

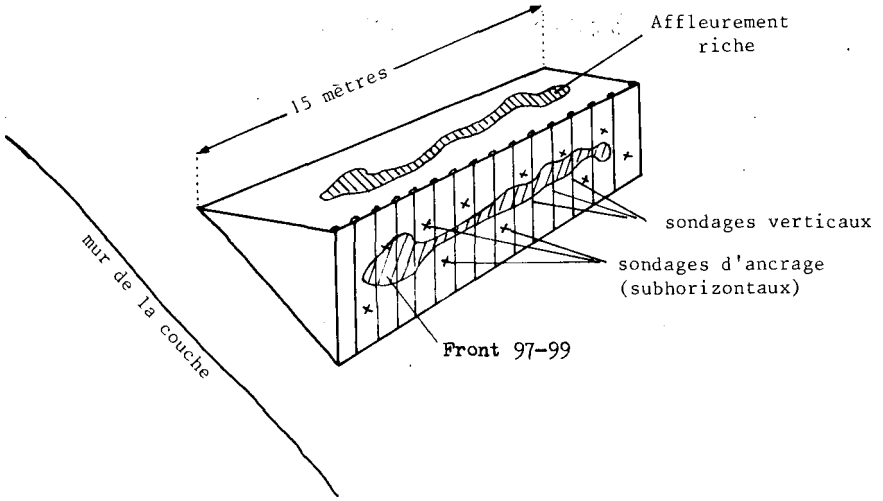


FIG.5. Portion de zone 2 conservée.

ruissellement au-dessus de l'ouvrage ; les eaux qui néanmoins s'infiltreraient peuvent être évacuées. La stabilité de l'ouvrage est régulièrement contrôlée.

Il ne servirait à rien d'avoir conservé ce témoin s'il ne pouvait être à nouveau échantillonné. On a prévu un accès depuis le bas de la carrière pour le personnel, ainsi qu'un treuil pour le matériel. On a approvisionné une petite sondeuse portative du type utilisé en prospection géologique.

Okelobondo

La COMUF fait procéder à des analyses de contrôle chaque fois qu'un enrichissement local du gisement fait craindre la répétition du phénomène. C'est ainsi que dans le sud de la carrière plusieurs secteurs ont fait l'objet d'investigations. Les mêmes précautions ont été prises en ce qui concerne Okelobondo.

Ce gisement, en cours de prospection, est immédiatement voisin de celui d'Oklo ; à vrai dire ce n'est que le prolongement, vers le sud et vers l'aval, de la même couche minéralisée. La figure 7 montre l'ensemble des deux gisements : les contours délimitent approximativement les portions où la teneur en uranium est suffisante pour être jugée exploitable (on notera sur cette figure la position excentrique des piles d'Oklo - on a indiqué également la situation du secteur où on a trouvé du minerai contaminé).

Une première alerte a eu lieu en 1974 ; on a décelé du minerai suspect dans le sondage OK 27, mais l'analyse n'a pas pu être entièrement confirmée. En 1976 un autre échantillon, dans le sondage OK 48, a donné pour ^{235}U la valeur un peu basse de 0.7188 %. Ce léger appauvrissement

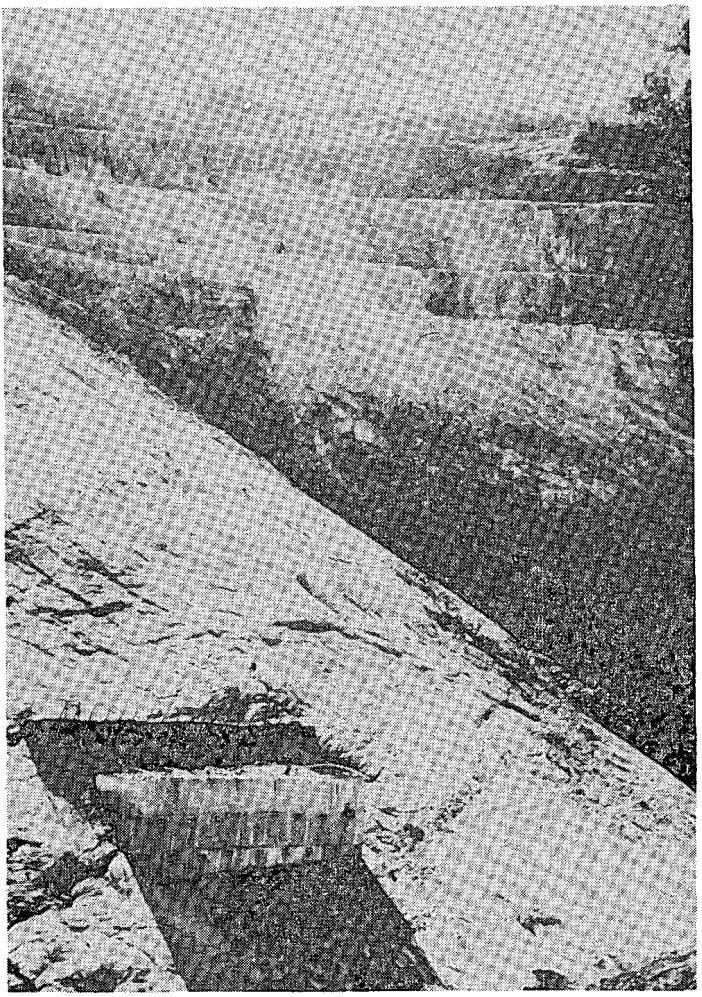


FIG.6. Carrière d'Oklo. La photo, prise en 1976, montre la portion de zone 2 conservée telle qu'elle se présentait à ce moment (l'ouvrage n'est pas achevé).

pouvait toutefois être attribué à une contamination lointaine, puisque ce sondage se trouvait, par rapport aux réacteurs d'Oklo, au sud et en aval, donc dans la direction qui semblait être celle des lessivages récents. Mais en août 1977 l'appauvrissement isotopique trouvé dans le sondage OK 84 bis était d'un tout autre autre de grandeur : 0.6749 %. Cette fois, l'hypothèse d'une contamination lointaine n'était guère plausible. Les analyses isotopiques de terres rares devaient confirmer qu'on se trouvait en présence d'un nouveau réacteur [5].

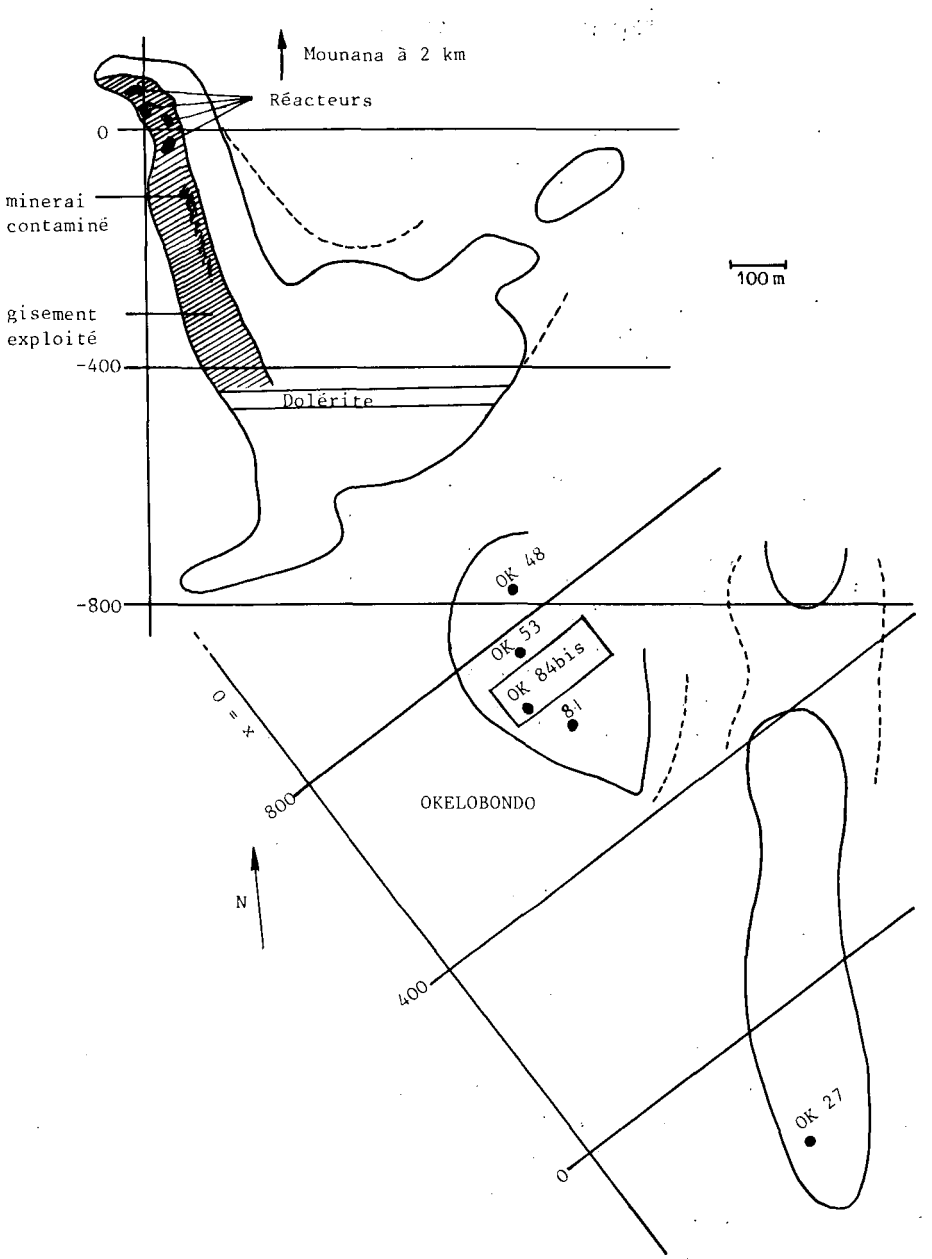


FIG. 7. Ensemble des gisements d'Oklo et Okelobondo.

L'exploitation du gisement d'Okelobondo n'est pas prévue dans l'immédiat, et la couche minéralisée étant à trois cents mètres de profondeur, il n'est pas question d'en faire pour le moment une investigation détaillée. On a procédé néanmoins à d'autres analyses isotopiques : on a trouvé dans le sondage OK 53 un échantillon à 0.7192 %, et dans OK 81, un échantillon à 0.7190 %. D'autre part, il est apparu que les terres rares de l'échantillon OK 48/5 étaient légèrement contaminées. Comme il ne semble pas que la contamination en terres rares puisse se faire très loin, et qu'il y a deux cent mètres entre OK 84 bis et OK 48, on peut se demander s'il n'y a pas d'autres foyers de réaction que celui qui a été identifié.

Cette découverte tendrait à prouver en tout cas que le phénomène "réacteur" n'est pas isolé dans le gisement, et qu'il apparaît chaque fois qu'il y a une concentration locale suffisante d'uranium.

REFERENCES

[1] BOYER, R.L., NAUDET, R., PFIFFELMANN, J.-P., «Exploration des foyers de réaction», Le phénomène d'Oklo (C.R. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 67.
[2] BOUZIGUES, H., BOYER, R.J.M., SEYVE, C., TEULIERES, P., «Contribution à la solution d'une énigme scientifique», Ibid., p. 237.
[3] GAUTHIER-LAFAYE, F., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/3.
[4] NAUDET, R., RENSON, C., Ibid., IAEA-TC-119/5.
[5] CESARIO, J., et al., Ibid., IAEA-TC-119/17.

DISCUSSION

G.A. COWAN: Compte tenu des courtes périodes disponibles pour l'échantillonnage sur un faciès donné, possédait-on des données sur les abondances isotopiques ou l'échantillonnage s'est-il fait sans ces informations?

R. NAUDET: Nous n'avions pas, bien entendu, de résultats d'analyses isotopiques au moment de l'échantillonnage, mais seulement une carte de teneurs du minerai établie par radiométrie; le faciès pile est d'ailleurs très reconnaissable; l'expérience a montré que l'uranium est appauvri à peu près partout dans ce faciès. L'échantillonnage n'était donc pas fait à l'aveugle, mais il est certain que les conditions n'étaient pas toujours très favorables; il fallait que le géologue interprète très vite ses observations.

ETUDE RADIOCHRONOLOGIQUE COMPLEMENTAIRE DE LA SERIE DU FRANCEVILLIEN ET DE SON ENVIRONNEMENT

M. BONHOMME*, J. LECLERC**, F. WEBER*
* Centre de sédimentologie et géochimie de la surface (CNRS), Strasbourg, France
** Compagnie minière de l'Ogooué (COMILOG), Moanda, Gabon

Résumé–Abstract

ETUDE RADIOCHRONOLOGIQUE COMPLEMENTAIRE DE LA SERIE DU FRANCEVILLIEN ET DE SON ENVIRONNEMENT.

La datation, par la méthode K-Ar, de biotites extraites de deux échantillons de gneiss du massif du Chaillu montre que le socle du Francevillien n'a pas subi de métamorphisme après 2700 MA. L'âge des filons de dolérite est précisé par la méthode de l'isochrone interne K-Ar: environ 1000 MA. Un programme est en cours pour donner une isochrone Rb-Sr plus précise que celle publiée en 1965 et pour tenter de lever, par les méthodes géochronologiques classiques, l'indétermination 1800 – 2000 MA de l'âge de la réaction nucléaire.

A FURTHER RADIOCHRONOLOGICAL STUDY OF THE FRANCEVILLIAN SERIES AND ITS ENVIRONMENT.

Dating, by the K-Ar method, of biotites extracted from two gneiss samples from the Chaillu Massif shows that the basement of the Francevillian basin did not undergo metamorphism after 2700 million years. The age of the dolerite veins, determined by the K-Ar internal isochrone method, is approximately 1000 million years. A programme is under way to give a more precise Rb-Sr isochrone than that published in 1965 and to try and remove, by conventional geochronological methods, the uncertainty regarding whether 1800 or 2000 million years is the age of the nuclear reaction.

Bien que toutes les mesures effectuées par les méthodes géochronologiques classiques confirment l'âge d'environ 1800 MA[1] pour la série du Francevillien il reste une incertitude sur la date des réactions nucléaires. En effet, Ruffenach et al. [2] ont trouvé pour la réaction nucléaire un âge de 2000 ± 100 MA par la

[1] Cet âge est obtenu par l'utilisation des constantes adoptées au Congrès géologique international de Sydney (1976): $\lambda^{87}Rb = 1{,}42 \times 10^{-11}$ an^{-1}; $^{40}K/K = 0{,}01167\%$, $\lambda\beta^{40}K = 4{,}962 \times 10^{-10}$ an^{-1}; $\lambda e^{40}K = 0{,}581 \times 10^{-10}$ an^{-1}; l'âge de 1740 MA publié antérieurement [1] était obtenu avec la constante $\lambda^{87}Rb = 1{,}47 \times 10^{-11}$ an^{-1}.

TABLEAU I. DONNEES ISOTOPIQUES POTASSIUM-ARGON

Echantillon	Origine	K_2O (%)	$\frac{^{40}Ar\ rad.}{^{40}Ar\ tot.}$ (%)	^{40}Ar rad. (10^{-6} cm^3/g)	$\frac{^{40}K}{^{36}Ar}$ (10^{-6})	$\frac{^{40}Ar}{^{36}Ar}$	Age (MA ± 2σ)
B 1176 (biotite)	Massif du Chaillu,	6,66	99,7	1340			2696 ± 61
B 1177 (biotite)	gneiss du socle	5,60	99,5	1202			2696 ± 62
R 925 (roche totale)	Dolérite de Mikouloungou,	1,51	97,0	64,6	122,4	9753	995 ± 30
R 925 (1)	sondage MG 7,	2,75	97,2	115,4	184,6	14275	981 ± 27
(fractions feldspathiques) (2)	profondeur 207 m	2,33	98,1	97,3	202,7	15553	977 ± 27

mesure du nombre de fissions de ^{235}U. Selon ces auteurs l'écart observé pourrait être dû:

- à une perturbation géologique qui aurait remis tous les systèmes géochronologiques à zéro, postérieurement à la réaction nucléaire, il y a 1800 MA; ou
- à une perte d'uranium d'environ 20% depuis l'époque de la réaction nucléaire[2] qui conduirait à une valeur trop élevée de l'âge obtenu par la mesure du nombre de fissions.

Ces hypothèses sont toutes deux plausibles:

- il est acquis que l'âge de 1800 MA n'est pas l'âge de la sédimentation mais qu'il s'agit d'un âge de diagenèse tardive [4];
- des remobilisations d'uranium ont eu lieu pendant ou après la réaction nucléaire: elles sont responsables des «auréoles de contamination» décrites par Naudet et Renson [5], mais sont-elles suffisantes pour expliquer une perte de 20% de l'uranium du cœur?

AGE DU SOCLE DU MASSIF DU CHAILLU

Un des arguments paraissant s'opposer à un âge de 2000 MA pour la réaction nucléaire était la présence, dans le système de l'Ogooué, de pegmatites datées de 1960 MA [6], contemporaines d'un métamorphisme du socle dans cette région. Toutefois la relation entre le système de l'Ogooué et le Francevillien est mal établie. Ces deux séries sont séparées par un grand accident nord-sud qui suit le cours de l'Ogooué: elles pourraient appartenir à deux cratons différents mis en contact tardivement. Il était donc important de dater le dernier métamorphisme du massif du Chaillu à proximité de la série du Francevillien. Dans ce but une datation par la méthode K-Ar a été effectuée sur les biotites extraites de deux échantillons très sains de gneiss prélevés dans la région de Magnima. L'âge trouvé sur ces biotites est de 2700 MA, il est identique à l'âge de la mise en place des granites du massif du Chaillu (tableau I). Ceci montre qu'il n'y a pas eu, dans la région proche de la bordure du Francevillien, de métamorphismes du socle après 2680 MA; en effet les biotites datées par la méthode K-Ar enregistrent des métamorphismes mêmes très faibles. Il n'a donc pas été possible de déceler dans le socle un événement métamorphique plus jeune que 2680 MA susceptible de fournir une limite antérieure au dépôt de la série du Francevillien.

---

[2] Une troisième hypothèse avait été envisagée: l'adoption d'une valeur différente pour la section de capture de ^{143}Nd. Elle ne semble pas devoir être retenue [3].

AGE DES DOLERITES

Les dolérites se sont mises en place au cours d'une phase tectonique de distension très tardive vis-à-vis des événements qui ont donné naissance aux surconcentrations responsables des réactions nucléaires. Il était néanmoins nécessaire de préciser leur âge, car la remobilisation de certains éléments dans le gisement (Pb et U notamment) peut être connexe de la venue des dolérites. Un premier essai de datation avait été entrepris en 1975 par la méthode K-Ar sur roche totale [4]. Les résultats étaient assez dispersés, ce qui est fréquent lorsque l'on applique cette méthode à des dolérites. La datation de ces dolérites a donc été reprise sur la fraction feldspathique d'une dolérite intrusive dans le FA à Mikouloungou (sondage MG 7, 207 m). L'âge trouvé, environ 1000 MA, peut être considéré comme l'âge de la mise en place des filons (tableau I).

CONCLUSION

Les mesures géochronologiques effectuées à Strasbourg depuis le Colloque de Libreville en 1975 ont permis de préciser l'âge de la mise en place des filons de dolérites (~ 1000 MA) et ont infirmé l'existence d'un métamorphisme postérieur à 2700 MA dans le socle, à proximité de la série du Francevillien. Ces résultats n'apportent aucun argument en faveur de l'une ou l'autre des hypothèses émises pour l'âge de la réaction nucléaire, 1800 ou 2000 MA. Un important programme de mesures est en cours par les méthodes Rb-Sr et K-Ar. Ce programme est destiné à: donner une isochrone Rb-Sr plus précise que celle publiée en 1965 [1]; tenter de déterminer la signification géologique de l'âge fourni par cette isochrone; dater les illites 2 M_1 des épontes des réacteurs nucléaires. Ces minéraux, lorsqu'ils sont très bien cristallisés, pourraient avoir conservé l'âge de leur formation, et ils sont incontestablement contemporains des réactions nucléaires. Il y a donc un espoir d'avoir par cette méthode une indication sur l'âge de la réaction. Malheureusement les résultats de ce programme sont encore trop fragmentaires pour être publiés.

REFERENCES

[1] BONHOMME, M., WEBER, F., FAVRE-MERCURET, R., Age par la méthode rubidium-strontium des sédiments du bassin de Franceville (République Gabonaise), Bull. Serv. Carte Géol. Als. Lorr. **18** 4 (1965) 243.

[2] RUFFENACH, J.C., MENES, J., DEVILLERS, C., LUCAS, M., HAGEMANN, R., Etudes chimiques et isotopiques de l'uranium, du plomb et de plusieurs produits de fission dans un échantillon de minerai du réacteur naturel d'Oklo, Earth Planet. Sci. Lett. **30** 1 (1976) 94.

[3] LUCAS, Monique, et al., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/14.
[4] WEBER, F., BONHOMME, M., «Données radiochronologiques nouvelles sur le Francevillien et son environnement», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 17.
[5] NAUDET, R., RENSON, C., «Résultats des analyses systématiques de teneurs isotopiques de l'uranium, Ibid., p. 265.
[6] VACHETTE, M., Age radiométrique des formations cristallines d'Afrique équatoriale (Gabon, République Centrafricaine, Tchad, Moyen-Congo), Ann. Fac. Sci. Univ. Clermont-Fd 25, Géol. Min. 8 (1964) 31.

DISCUSSION

B. POTY: Dans ces mesures d'âge, il y a une chose qui me surprend. L'événement le plus tardif du massif du Chaillu est daté à environ 2700 MA. La diagenèse tardive des grès du Francevillien est datée à 1800 MA. Les grès FA ont des couches rouges avec hématite, ils ne devraient donc pas être très antérieurs à 2200 MA. Mais ce qui nous surprend, c'est que la chaîne des montagnes du Chaillu a mis apparemment plusieurs centaines de millions d'années à se démanteler. Or, c'est quelque chose qui n'est pas classique en géologie. La chaîne hercynienne a mis quelques dizaines de millions d'années à se démanteler, la chaîne alpine de même. L'ordre de grandeur est de 40 à 50 millions d'années, mais pas 300 millions d'années. J'aimerais avoir quelques commentaires sur cette question.

M. BONHOMME: Ceci n'est pas un phénomène isolé. Je vous rappelle que sur le craton ouest-africain, les dernières manifestations – les ultimes manifestations – magmatiques qu'on connaisse correspondent à des émissions syénitiques intrusives qui sont datées à 1550 MA environ. La sédimentation dans tout le bassin de Taoudéni, qui repose sur le craton ouest-africain, commence au plus tôt à 1100 MA. Il y a donc là un intervalle d'un minimum de 450 MA entre la pénéplanisation du craton ouest-africain et le début de la sédimentation du bassin de Taoudéni. D'autre part, et cela est à rapprocher du cas particulier du massif du Chaillu, la série de grès de l'Ogooué, qui se trouve au nord-ouest du bassin de Franceville et dans laquelle viennent se mettre en place des pegmatites (donc tardives, qui postdatent l'ensemble du phénomène à 1970 MA peut-être), indique que dans le cas du massif de l'Ogooué, si on admet qu'il s'agit d'une série sédimentaire gneissifiée postérieure à la pénéplanisation du massif du Chaillu, l'intervalle se situe entre 2000 et 2700 MA, sans qu'on puisse dire quel est l'âge du début de la sédimentation.

Ainsi, quels sont les rapports – c'est une question que nous nous sommes posée – entre le Francevillien et cette série de gneiss de l'Ogooué métamorphisée au plus tard à 1970 MA et même probablement plus tôt? Pour l'instant on ne peut pas encore le dire, et les arguments géochronologiques ne permettent pas de trancher la question. Car, comme vous le dites, l'isochrone qu'on obtient sur les

sédiments de Franceville correspond à une diagenèse tardive et non pas à une diagenèse précoce. Ce qu'on espérait justement avec ces illites 2M, c'était d'arriver très près de l'âge du réacteur et par conséquent de se trouver plus près de la diagenèse précoce que de l'ensemble des phénomènes qui ont affecté la série du Francevillien après – mais est-ce vraiment après?

J. GEFFROY: Il est possible, pour reprendre la comparaison avec la chaîne hercynienne européenne, qu'au cours de phases orogéniques très postérieures à sa première pénéplanisation, le massif du Chaillu ait été relevé en bloc, d'où des possibilités multiples d'alimentations des bassins sédimentaires, alimentations très postérieures à l'âge des roches du socle (cf. le relèvement du Massif central et des massifs cristallins externes des Alpes lors de l'orogenèse alpine, avec reprise connexe de l'érosion et de la sédimentation).

M. BONHOMME: Dans la mesure où une comparaison avec les chaînes successives ouest-européennes est possible, l'exemple de l'ouest-africain montre des âges de 2200 MA (sinon 2900 MA) en des endroits où s'observent des venues magmatiques ou des événements métamorphiques successifs s'étageant jusqu'à 1500 MA. Ces vieux socles ont donc une histoire tectono-magmato-métamorphique longue et complexe. C'est vraisemblablement le cas du Chaillu, bien que la zone de Franceville paraisse en avoir été préservée.

Rosemary J. VIDALE: Les analyses par microsonde électronique montrent que la matrice Al-Si des minerais argileux et micacés se trouvant dans les zones du réacteur et à proximité présente la stœchiométrie chimique voulue, mais les cations les plus importants sont appauvris à des degrés différents. Il est probable qu'il y ait une perte de cations au cours du temps.

E. ROTH: Comment les analyses de Rb et Sr ont-elles pu être interprétées sur les argiles du cœur puisque des migrations de Rb et Sr dans les cœurs de réacteurs ont été prouvées par la disparition de ces éléments en tant que produits de fission?

M. BONHOMME: Les fractions fines analysées ne proviennent pas des cœurs eux-mêmes, mais de leur environnement immédiat, de 30 à 150 cm.

R. BROUSSE: D'une manière générale, l'argon est plus sensible à l'ouverture des réseaux que le strontium. Or vous avez des résultats inverses. Quelle explication pensez-vous pouvoir en donner?

M. BONHOMME: Nous n'avons pas encore assez de documents pour connaître les relations entre les âges K/Ar et Rb/Sr déterminés sur les fractions fines sédimentaires. Cependant, dans le cas d'argiles anchi et épimétamorphiques, il y a un bon accord entre les résultats. En ce qui concerne les sédiments, il semble que les âges K/Ar reflètent mieux l'héritage. Par conséquent on pourrait considérer dans ce cas qu'il y a, comme à Oklo, une meilleure conservation du document K/Ar.

ORGANISATION DES GISEMENTS D'URANIUM DE LA BOUTONNIERE DE MOUNANA (GABON)

M. RUHLAND, F. GAUTHIER-LAFAYE
Institut de géologie,
Strasbourg, France

Résumé–Abstract

ORGANISATION DES GISEMENTS D'URANIUM DE LA BOUTONNIERE DE MOUNANA (GABON).

L'étude comparative des différents gisements d'uranium de la bordure orientale de la boutonnière de Mounana fait apparaître que les quatre gisements actuellement connus – Boyindzi, Mounana, Oklo et Okelobondo – sont tous situés sur la même zone de flexure affectée de coulissage. Les deux premiers installés au contact du socle sont le siège de déformations cassantes, alors que les deux suivants sont impliqués dans de vastes structures souples résultant d'une même tectonique de coulissement.

ORGANIZATION OF THE URANIFEROUS DEPOSITS OF THE DISTRICT OF MOUNANA (GABON).

The comparative study of different uranium deposits from the eastern border of the inlier of Mounana reveals that the four deposits at present known, i.e. those of Boyindzi, Mounana, Oklo and Okelobondo, are situated on the same flexural zone affected by sliding. The two first, at the contact of the basement, are subject to break deformations, while the two others are implicated in extensive flexible sturctures resulting from the same sliding tectonics.

INTRODUCTION

Sur la bordure sud-ouest du bassin sédimentaire de Franceville [1], lui-même découpé en compartiments orientés NW-SE, se situent plusieurs gisements d'uranium (en cours d'exploitation ou en voie de l'être) grossièrement alignés selon une ligne méridienne. Il s'agit, du nord au sud, des gisements de Boyindzi, Mounana, Oklo et Okelobondo, installés sur la bordure orientale de la boutonnière de Mounana (fig. 1).

Différents par leur taille, leur agencement et par la structure de leur piège, ils sont néanmoins tous issus d'un même mécanisme tectonique: flexuration sur zone de coulissage.

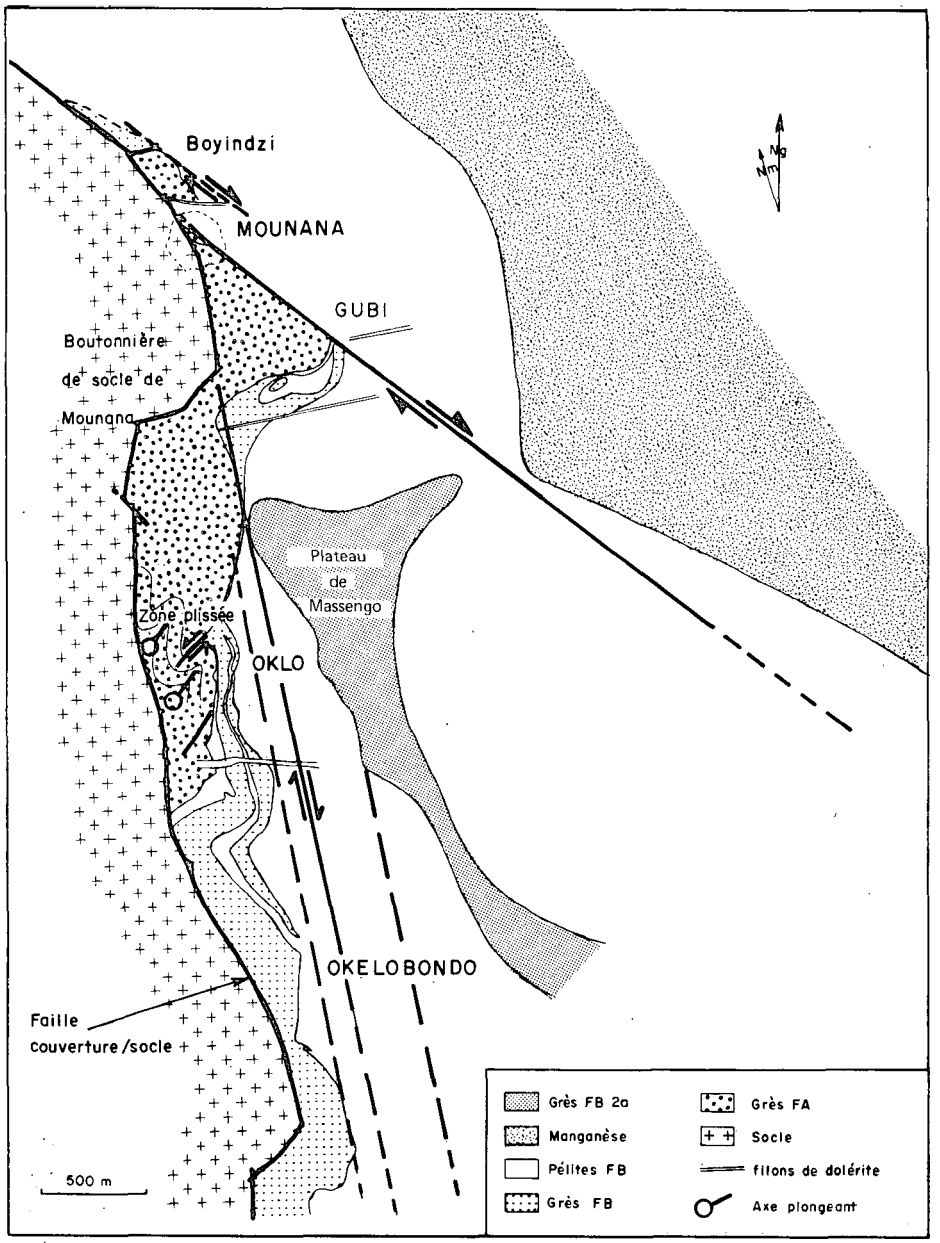


FIG.1. Carte du secteur oriental de la boutonnière de Mounana.

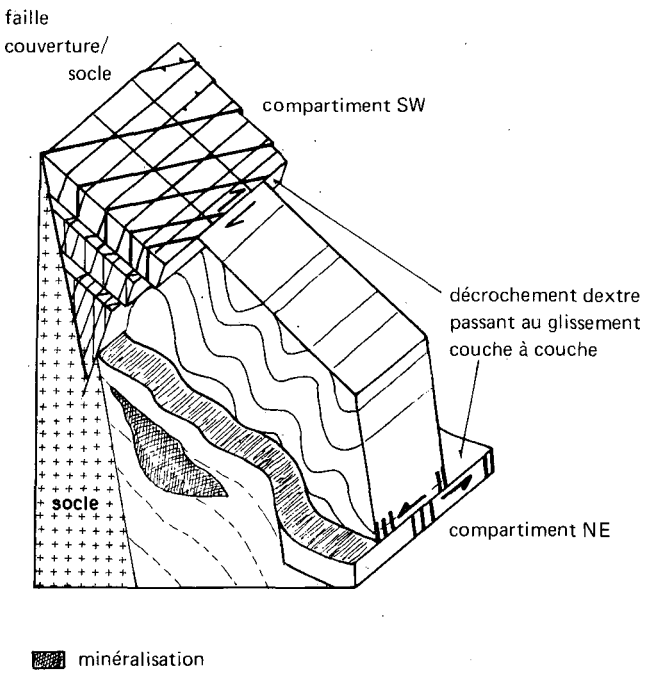


FIG.2. Gisement de Boyindzi: bloc diagramme schématisant les structures tectoniques.

1. RAPPEL DE L'ARCHITECTURE DES GISEMENTS

Le gisement de Boyindzi

Le gisement de Boyindzi a été reconnu par des sondages [2]. Sa géométrie détaillée a pu être approchée par l'analyse des très nombreux marqueurs tectoniques reconnus sur les carottes de sondage [3].

L'amas minéralisé se présente sous la forme d'une lentille biconvexe orientée N 140° et dont le pendage moyen est de 40° vers le NE. Les limites du gisement sont:

- au SW la faille bordière du socle granitique orientée N 150°;
- au N une flexure-faille normale amenant une couverture étanche de pélites et de grès fins sur les grès uranifères (fig. 2).

Dans le gisement les strates sont très redressées, parfois subverticales.

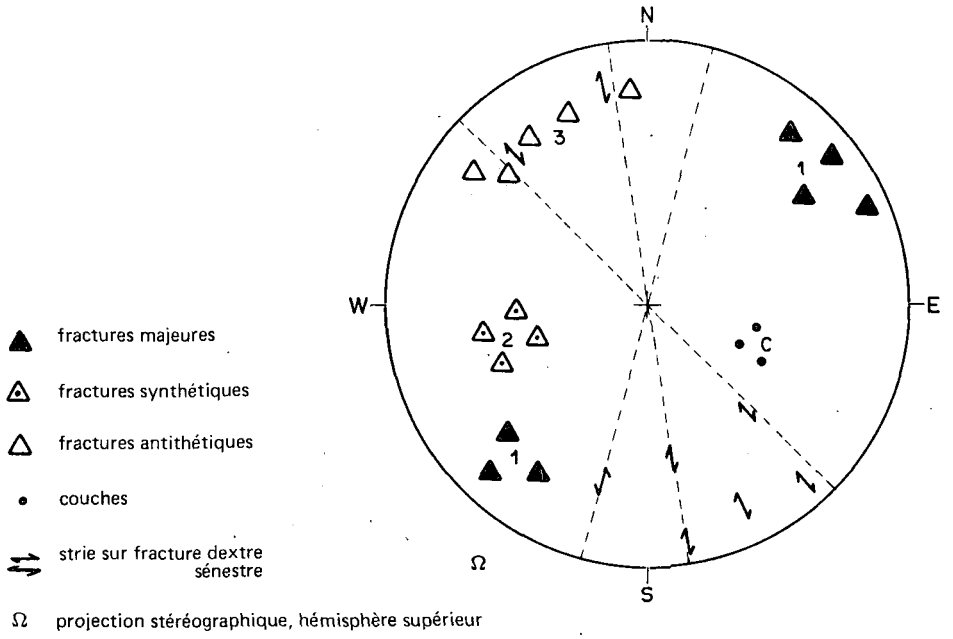


FIG.3. Stéréogramme synthétique de la carrière de Mounana: position des fractures et jeux de décrochements.

Le gisement de Mounana

Le gisement de Mounana, exploité de 1961 à 1975 en carrière et en mine, a fourni tous les éléments nécessaires à la compréhension du piégeage tectonique du gisement. Au contact de la boutonnière du socle les grès porteurs de la minéralisation sont fortement redressés, souvent jusqu'à la verticale, dans un jeu de décrochements divergents (N 140° à N 0°) défini par les failles $F_1 - F_3$ [2-5] (fig. 3).

La masse pélitique qui surmonte le gisement est essentiellement impliquée dans des plis serrés, dont les axes présentent une grande dispersion planaire orientée N 150° (fig. 4).

Des observations faites en 1966 [6] dans les roches du socle grâce aux travaux miniers ont montré un comportement identique:

- des roches cristallines massives (granite) et des grès;
- des roches feuilletées (gneiss) et des pélites de la couverture.

Ceci veut dire que les effets des mouvements tectoniques ne sont pas limités à la zone de contact proprement dite entre socle et terrains sédimentaires, mais qu'ils ont affecté solidairement socle et sédiments tout en provoquant des réactions spécifiques selon la compétence du matériau (fig. 4).

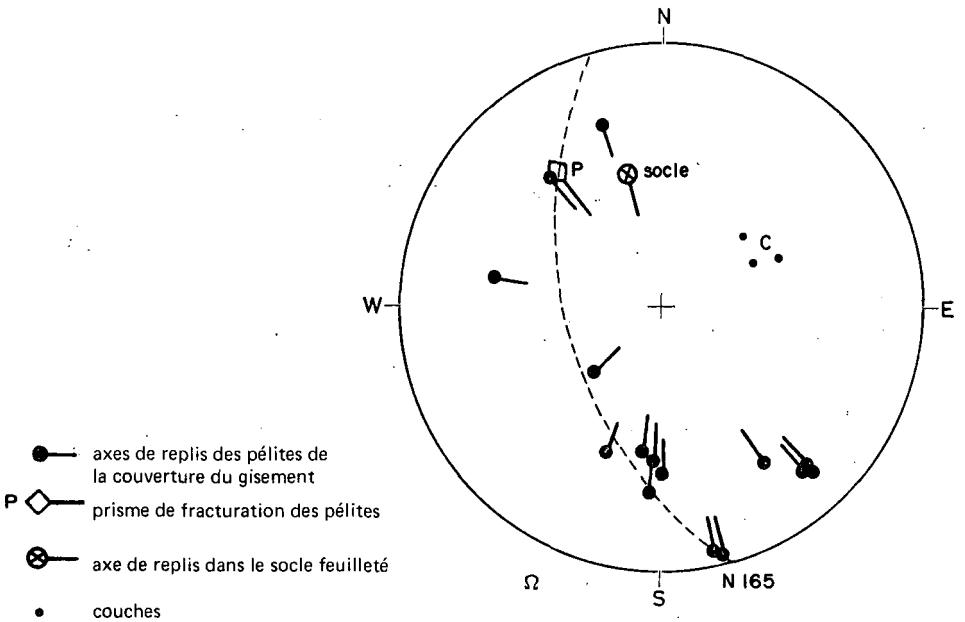


FIG.4. Gisement de Mounana: dispersion des axes de replis de la couverture pélitique du gisement et du socle feuilleté dans un plan N 165°; concordance d'orientation de la fracturation.

Le gisement d'Oklo

Le gisement d'Oklo est impliqué dans une structure tectonique souple située dans une flexure subméridienne en bordure de la boutonnière de Mounana.

Ce gisement, amplement décrit [2, 3, 7, 8], comprend un grand pli plongeant appelé dôme (fig. 5 et 6) qui porte sur son pourtour les réacteurs naturels d'Oklo [3, 8-10].

Le gisement d'Okelobondo

Ce gisement a été reconnu par des sondages qui ont mis en évidence une flexure bordière comparable à celle d'Oklo, ainsi que des structures obliques du type dressant [3, 9].

L'environnement tectonique du gisement est donné par les excellents affleurements fournis par les travaux miniers de la descenderie de la nouvelle mine. Il confirme l'analogie pressentie avec le gisement d'Oklo.

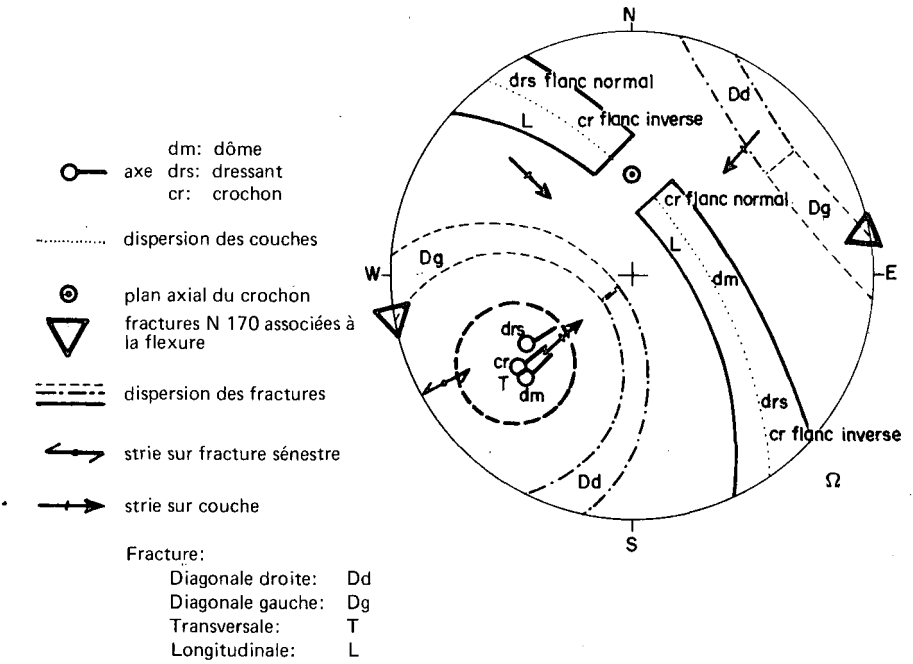


FIG.5. Gisement d'Oklo: Stéréogramme synthétique du dôme, crochon et dressant.

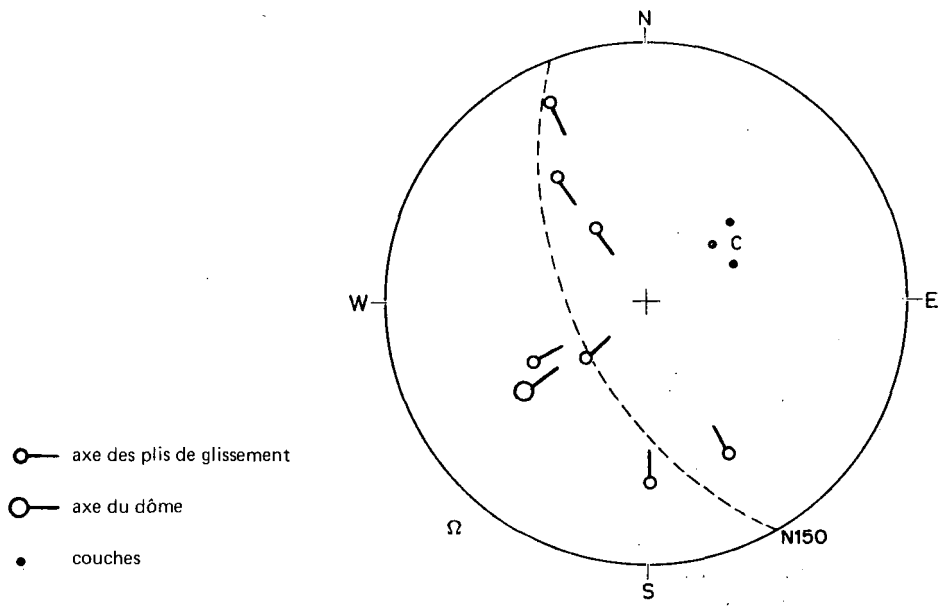


FIG.6. Déformation souple du gisement d'Oklo: dispersion des axes de plis sur un grand cercle.

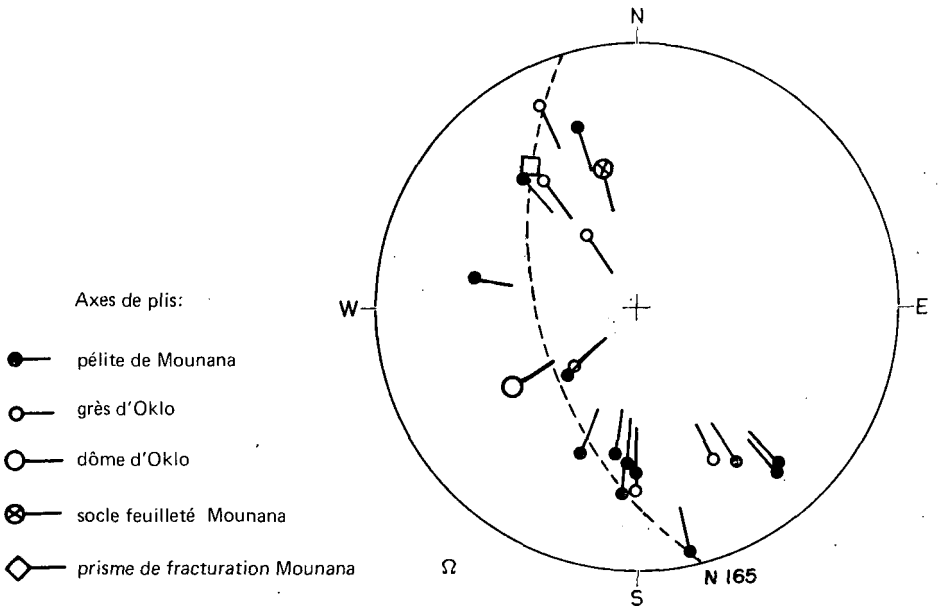


FIG. 7. Déformations souples à Mounana et Oklo: la disposition des axes de plis sur un grand cercle = glissement dans le plan N 165° concerne aussi bien les pélites de la couverture du gisement de Mounana que les grès du gisement d'Oklo.

2. COMPARAISON ENTRE LES DIFFERENTS GISEMENTS

Pour les gisements situés au nord, Boyindzi et Mounana, les liens et parentés sont évidents: style cassant, piège formé par des faisceaux de failles divergents (N 150° à 100° pour Boyindzi; N 0° à 140° pour Mounana), couverture réalisée par les plissements des pélites du toit, imprégnation localisée dans les zones de fracturation très ordonnée des grès. Ils sont tous les deux au contact du socle granitique, car la faille couverture/socle correspond à la limite occidentale du gîte minéralisé.

Situés au sud, les gisements d'Oklo et d'Okelobondo ont de nombreux points communs: ils sont installés dans des plis souples affectant les panneaux flexurés des grès à une certaine distance de la faille couverture/socle; les imprégnations sont localisées dans les grès à forte densité de fractures induites par les plis.

Apparemment les deux groupes de gisements nord et sud sont si différents par leur style, leur structure et leur situation par rapport à la faille principale que l'on doit se poser la question de savoir si effectivement un lien génétique existe entre eux, ou si la formation de pièges tectoniques diffère également dans le temps.

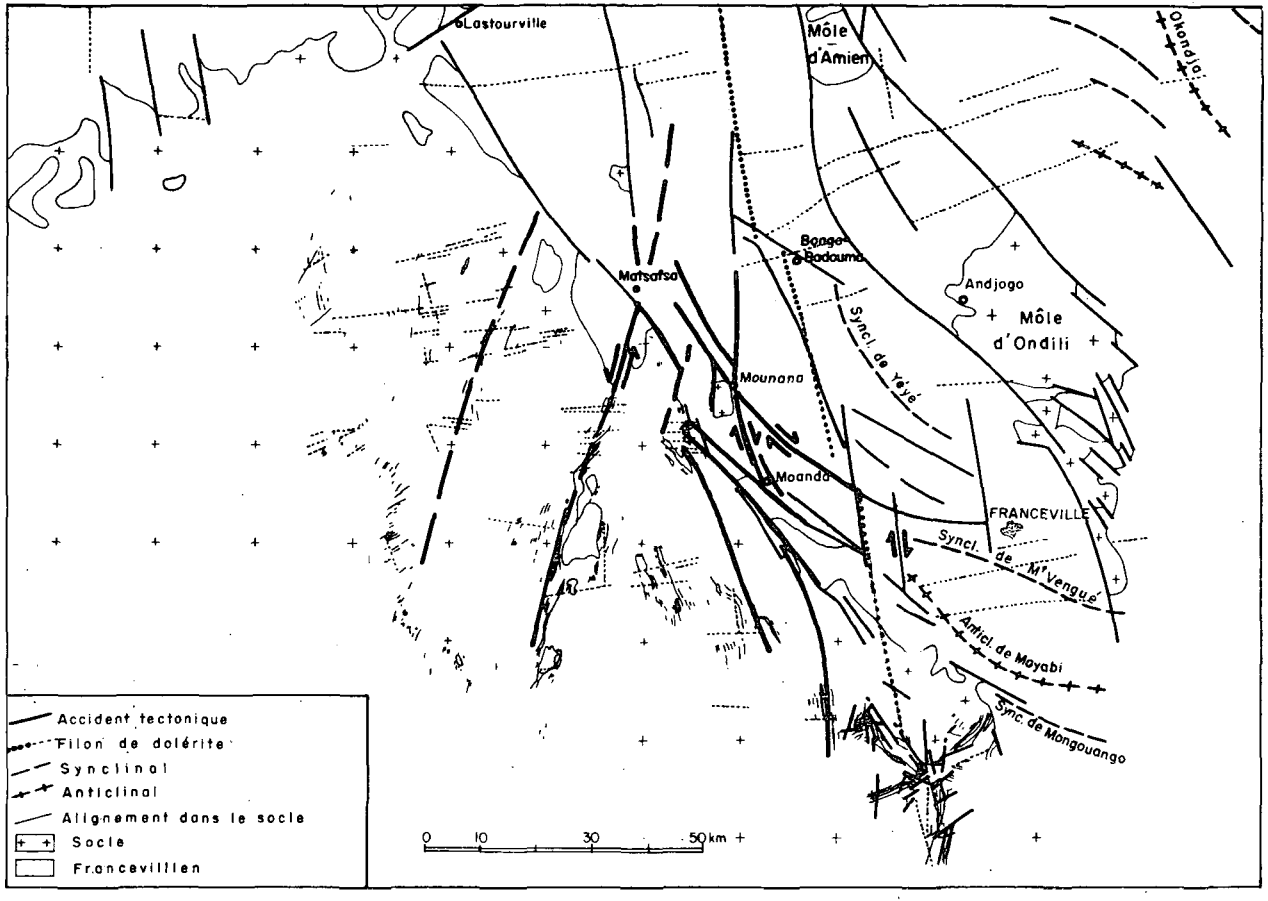


FIG. 8. Carte structurale du bassin de Franceville (d'après les cartes au 1/500 000 de Franceville E et W et la carte du socle au 1/200 000 transmise par COMILOG).

3. CONCLUSION: GENESE DE LA STRUCTURE DES GISEMENTS

Le fait principal qui préside à la formation des gisements est le relèvement du socle de la boutonnière de Mounana par rapport à la couverture sédimentaire, ce qui entraîne la formation de la flexure bordière orientale de direction grossièrement N-S et de pendage général E de 40° à 80°. La remontée du socle est due vraisemblablement à des mouvements de translation horizontale, qui ébauchent les larges structures du bassin de Franceville et les déforment par la suite [3].

Dans la flexure bordière à Mounana, la poursuite des mouvements de coulissage fait apparaître des décrochements qui s'expriment de manière diverse selon la compétence du matériel. Ainsi, dans les grès et les roches grenues du socle le jeu est cassant; il est plus diffus et partiellement souple dans les roches feuilletées telles que pélites et grès fins, et entraîne la formation de plis, surtout dans les zones de serrage subméridiennes provoquées par les jeux conjugués de décrochements dextres et sénestres [3].

A Boyindzi et Mounana, où les décrochements N 140° (fig. 1) entament le coin NE de la boutonnière de socle, les deux gisements sont limités aux dièdres constitués par les failles divergentes qui fracturent les niveaux gréseux. Les pélites plissées, formant la couverture des gisements, sont également témoins des jeux de coulissage (fig. 4).

Plus au sud, à Oklo et Okelobondo, où la zone de mobilité passe à l'est de la faille couverture/socle, ce sont les niveaux grossiers (grès, conglomérat) qui sont le siège de plis de serrage tels que dressant, dôme et crochon de la carrière d'Oklo. La répartition spatiale de ces structures et des plis mineurs associés rappelle celle des pélites de Mounana. On observe une même dispersion des axes de plis dans le plan moyen des couches (fig. 7), ce qui confirme l'étalement des structures par glissement.

Ce sont donc les mêmes types de mouvements qui ont provoqué la formation des gisements sur failles de Boyindzi et Mounana, et sur structures plissées plongeantes d'Oklo et d'Okelobondo, et qui expliquent la genèse simultanée des quatre gîtes minéralisés de la bordure orientale de la boutonnière de Mounana.

Les possibilités d'existence de gisements à haute teneur d'uranium (zones de réaction d'Oklo) sont à rechercher dans les zones d'extension de pièges volumineux, tel le dôme d'Oklo.

Le moteur tectonique d'ensemble de ces déformations réside dans un jeu de mosaïque de socle, qui s'exprime dans la région de Mounana par le relèvement de la boutonnière et sa translation vers le nord par les décrochements sénestres de Matsatsa et dextres de Mounana, Moanda, Mikouloungou [3, 9] (fig. 8).

REFERENCES

[1] WEBER, F., Une série précambrienne du Gabon: le Francevillien; sédimentologie, géochimie, Relations avec les gîtes minéraux associés, Mém. Serv. Carte Géol. Als. Lorr. **28** (1968) 328 p.

[2] PFIFFELMANN, J.-P., «L'uranium dans le bassin de Franceville», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 37-51.
[3] GAUTHIER-LAFAYE, F., Oklo et les gisements d'uranium du Francevillien: aspects tectonique et métallogénique, Thèse 3e cycle, Strasbourg (1977) 89 p.
[4] DES LIGNERIS, X., BERNAZEAUD, J., Le gisement de Mounana (Gabon), Bull. Inf. Sci. Tech. (Paris) no 38 (1960) 4-19.
[5] MORIN, N., TARDIEU, Y., Le gisement d'uranium de Mounana (République Gabonaise), Rev. Ind. Minér. (1972).
[6] RUHLAND, M., Observations de tectonique analytique dans la région de Mounana-Mikouloungou, Rapport du Laboratoire de géologie et paléontologie, Strasbourg, 1966, inédit.
[7] CHAUVET, R.J., «Description du gisement d'uranium d'Oklo», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 53-65.
[8] GAUTHIER-LAFAYE, F., RUHLAND, M., WEBER, F., Analyse tectonique du gisement d'Oklo, Ibid., p. 103-118.
[9] GAUTHIER-LAFAYE, F., et al., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/2.
[10] GAUTHIER-LAFAYE, F., Ibid., IAEA-TC-119/3.

DONNEES NOUVELLES SUR L'ENVIRONNEMENT GEOLOGIQUE DES REACTEURS NATURELS

F. GAUTHIER-LAFAYE, Y. BESNUS, F. WEBER
Université Louis Pasteur,
Institut de géologie,
Centre de sédimentologie et géochimie
de la surface (CNRS),
Strasbourg, France

Résumé–Abstract

DONNEES NOUVELLES SUR L'ENVIRONNEMENT GEOLOGIQUE DES REACTEURS NATURELS.

Depuis le Colloque de Libreville en 1975, la connaissance de l'environnement géologique des réacteurs a progressé dans le cadre d'une étude plus vaste des gisements uranifères du Francevillien. Dans le gisement d'Oklo, une stratigraphie fine de la couche Cl (couche minéralisée uranifère) a été établie, qui permet de resituer, stratigraphiquement, les réacteurs naturels. L'analyse tectonique du gisement d'Oklo fait ressortir les particularités de la structure d'Oklo et des zones de réaction situées dans des couloirs de cisaillement. Les études pétrographiques font apparaître deux types de minerai ayant des modes de formation distincts. Dans le premier cas le rôle des matières organiques semble prépondérant alors que dans le second des migrations de solutions oxydantes sont à l'origine de reconcentrations. Enfin, une étude géochimique effectuée sur des échantillons d'Oklo et d'Okelobondo mettent en évidence l'existence d'une phase géochimique «isolée» contenant l'uranium et un certain nombre d'élements traces. Cette phase est associée aux matières organiques. Cette étude aborde également le problème de la migration du plomb à Oklo et à Mounana.

NEW DATA ON THE GEOLOGICAL ENVIRONMENT OF THE NATURAL REACTORS.

Since the Libreville symposium in 1975 knowledge of the geological environment of the reactors has advanced as a result of a more extensive study of the Francevillian uranium deposits. In the Oklo deposit a detailed stratigraphy of the Cl bed (uraniferous mineralized bed) has been established, making it possible to re-establish stratigraphically the position of the natural reactors. A tectonic analysis of the Oklo deposit has revealed the special features of the Oklo structure and the reaction zones situated in the shear troughs. Petrographic studies have revealed the presence of two types of ore with distinct modes of formation. In the first case, the role played by organic materials seems predominant, while in the second case migrations of oxidizing solutions are the main source of the reconcentrations. Finally, a geochemical study made of samples from Oklo and Okelobondo points to the existence of an "isolated" geochemical phase containing uranium and a certain number of trace elements. This phase is associated with the organic material. This study also deals with the migration of lead at Oklo and Mounana.

1. PRESENTATION SOMMAIRE DU BASSIN ET DE LA SERIE DU FRANCEVILLIEN

1.1. Le bassin du Francevillien

Le bassin du Francevillien se situe dans le quart SE de la République du Gabon (fig. 1). Il est limité au nord et au sud respectivement par les massifs cristallophylliens du Nord-Gabon et du Chaillu. A l'ouest le bassin est bordé par le système métamorphique de l'Ogooué suivant une limite qui correspond à un grand accident subméridien. Ses relations avec ce système ne sont pas encore établies avec certitude: passage progressif du Francevillien à une série métamorphique à l'ouest? Enfin, à l'est, le Francevillien est recouvert par les formations continentales mésozoïques horizontales de la cuvette congolaise: séries du Stanley-Pool et des plateaux Batéké.

Le bassin du Francevillien est composé des bassins de Lastourville à l'ouest, d'Okondja au nord et de Franceville au sud [1, 2].

Un grand décrochement N 20° sénestre sépare le bassin de Lastourville, relativement peu tectonisé, des bassins de Franceville et Okondja. Ces derniers sont découpés par des décrochements N 140° dextres qui limitent les compartiments de socle et les formations sédimentaires [3].

Les bassins sédimentaires ont donc une forme et une orientation directement imposées par la tectonique et se sont individualisés par le jeu des accidents durant la sédimentation. L'accident de Mikouloungou par exemple ou l'accident de socle de la boutonnière de Mounana ont joué dès le FA, créant ainsi des domaines de sédimentation particuliers.

Les bassins de Franceville et d'Okondja peuvent s'interpréter comme appartenant à une branche dextre d'un méga-coin tectonique dont la branche sénestre serait représentée par le décrochement de Matsatsa. Dans ce cas, ce coin révélerait une compression du bassin suivant une direction N 170°.

Dans le bassin de Franceville, les décrochements N 140° sont associés à des accidents N 160° à N-S qui découpent le bassin en parallélogrammes ou en lentilles plus ou moins allongées. Dans ces lentilles, les flancs NW correspondent donc aux faces en compression avec décrochement alors que les flancs NNW à NW ont plutôt une tendance à l'extension avec ouverture et/ou effondrement des compartiments orientaux.

Les gisements d'uranium se localisent tous dans le bassin de Franceville, où on distingue deux secteurs uranifères.

Le premier secteur se situe dans la région de Mounana, à l'extrémité NW d'une lentille tectonique (lentille de Mounana – Moanda – Mikouloungou). Il comprend quatre gisements exploitables qui s'alignent suivant une direction N-S sur la bordure orientale de la boutonnière de socle de Mounana. Ces gisements sont respectivement du N vers le S: Boyindzi, Mounana, Oklo et Okelobondo.

Le second secteur uranifère se situe dans la région de Franceville, c'est-à-dire en position plus interne dans le bassin. Ce secteur, quoique très indiciel, ne comprend que le gisement de Mikouloungou.

1.2. La série du Francevillien

Le Francevillien est une série détritique et volcano-sédimentaire *non métamorphique* du Précambrien moyen. Les mesures radiochronologiques effectuées sur la fraction argileuse des sédiments francevilliens par les méthodes K-Ar et Rb-Sr donnent des valeurs très homogènes dont on déduit un âge voisin de 1800 MA [2, 4]. Toutefois, les mesures d'âge obtenues par l'étude des «réacteurs» montrent que cet âge doit correspondre à celui d'une diagenèse tardive et non de la sédimentation.

Weber [1] a subdivisé la série du Francevillien en cinq formations, qui sont de la base vers le sommet: le FA essentiellement gréso-conglomératique, le FB à dominante pélitique et ampélitique à la base (FB1), puis plus gréseux au sommet (FB2), et les formations FC, FD et FE volcano-sédimentaires avec, dans la formation FC, un épisode plus chimique (jaspes, dolomies).

La minéralisation uranifère se localise toujours au sommet du FA supérieur.

1.3. Les formations du FA et du FB1 dans le bassin de Franceville

1.3.1. Caractères sédimentologiques et pétrographiques

Les formations du FA et du FB1, qui sont respectivement à dominante grossière et pélitique, reflètent une évolution granulométrique positive sur plus de 1000 m de sédiments.

a) La formation du FA

Le FA, interprété comme d'origine fluviatile, présente deux mégaséquences positives (fig. 2) puissantes de 300 à 400 m et de très grande extension horizontale (décakilométrique).

La mégaséquence I, à la base du FA, correspond au comblement rapide et «désordonné» du bassin. La sédimentation est essentiellement grossière et conglomératique, les grès sont mal classés, les éléments anguleux. Les stratifications obliques, visibles à l'affleurement, sont constituées de feuillets épais difficilement discernables sur les carottes de sondage. Les corrélations entre sondages sont ici impossibles. A la base du FA les conglomérats sont fréquemment thorifères.

La mégaséquence II se caractérise par une granulométrie plus fine et une abondance d'alternances de faciès fins avec des faciès moyens à conglomératiques. Ces alternances s'organisent en séquences de deuxième ordre qui peuvent se corréler sur plusieurs kilomètres.

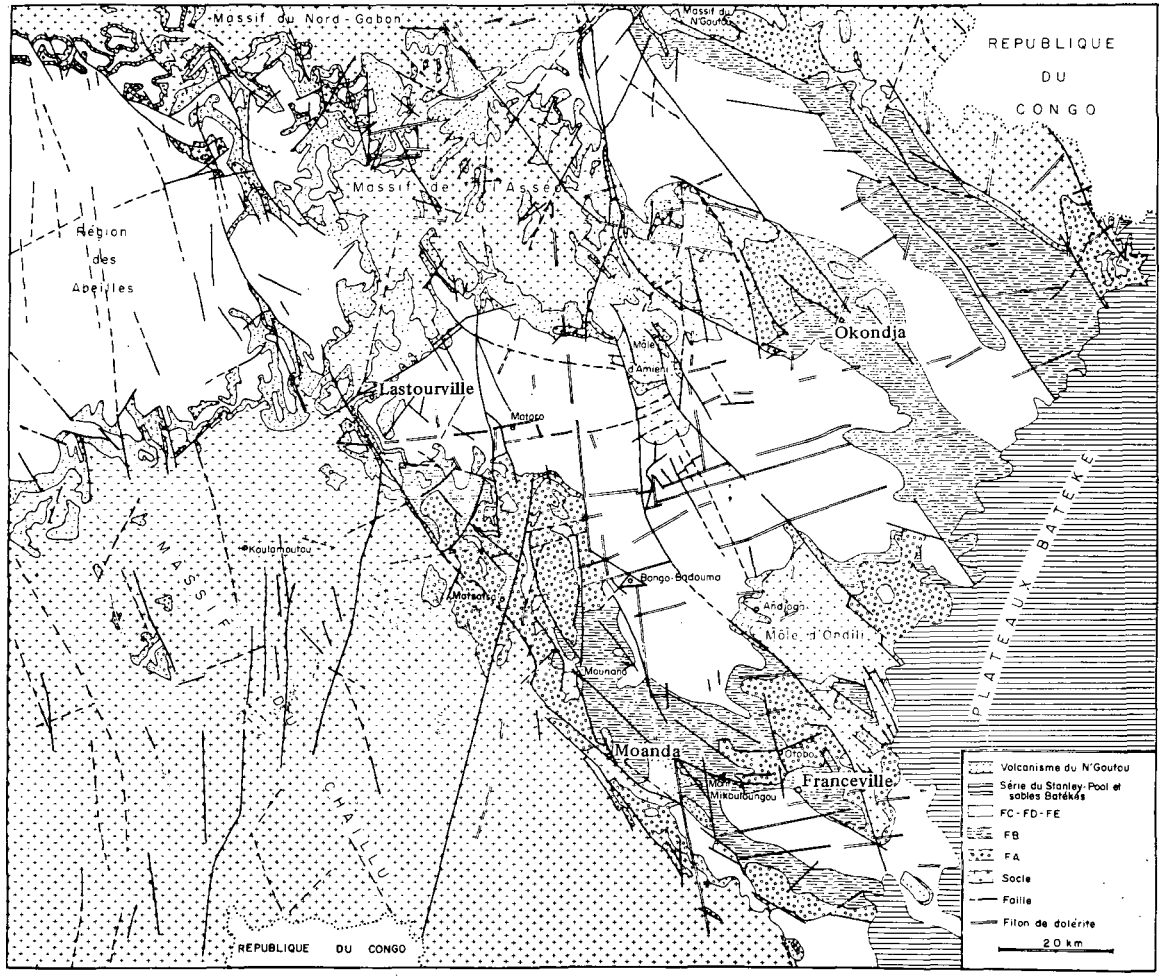


FIG. 1a. Carte géologique simplifiée du bassin du Francevillien (d'après la carte au 1/500 000 de Franceville O et E 1968, BRGM).

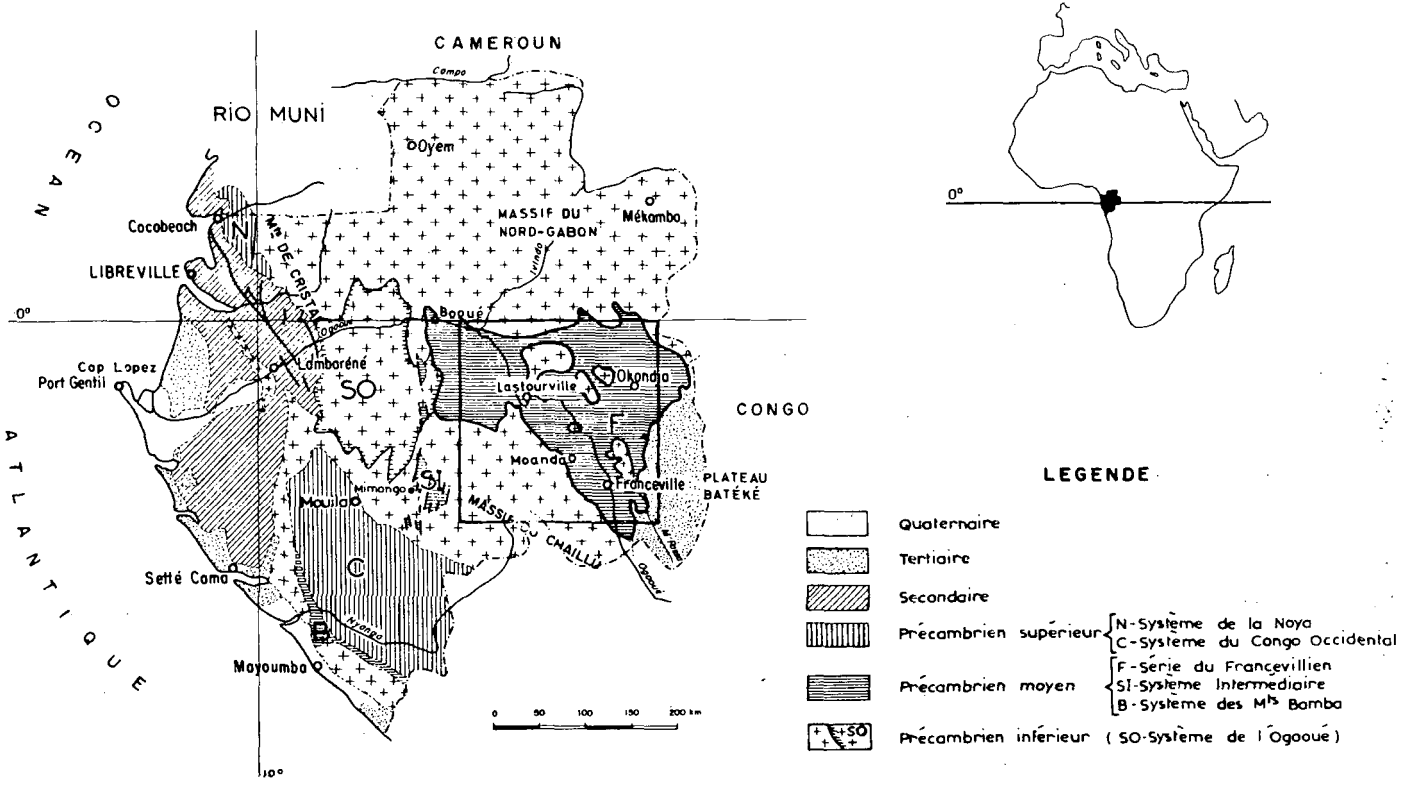


FIG.1b. Esquisse géologique du Gabon; situation de la série du Francevillien (d'après la carte de l'AEF).

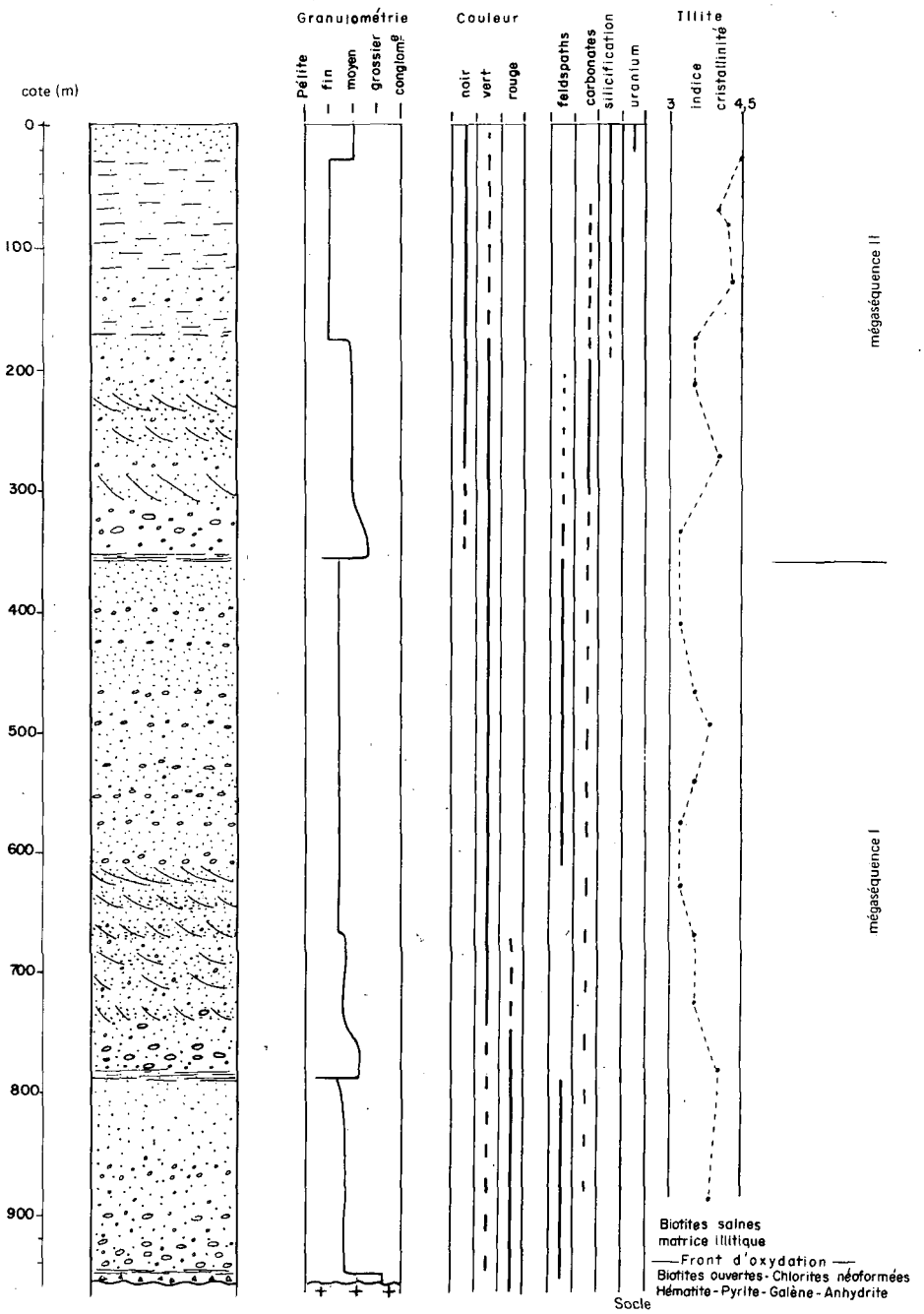


FIG. 2. Log du sondage BA2.

Ces sédiments ont été déposés par un réseau fluviatile à méandres, qui les a répandus plus ou moins uniformément sur la plaine alluviale. A cette époque, des seuils compartimentent le bassin et conditionnent les directions des apports et la zonéographie des faciès.

Le matériel détritique de ces grès est essentiellement constitué de quartz, feldspaths, micas (biotites et muscovites) et de minéraux chloritisés. Les minéraux lourds (zircons, monazites, apatites, etc.) sont relativement fréquents et souvent concentrés dans de fines passées.

La matrice des grès est pour l'essentiel constituée d'argile (illite et chlorite), de silice secondaire en nourrissage des grains de quartz, et de carbonate. L'abondance relative de ces trois constituants dans la matrice permet de subdiviser le FA en trois unités qui sont de la base vers le sommet [1]:

- une unité de grès à ciment argileux à la base de la formation; elle correspond, dans le sondage BA2 par exemple, à la base de la mégaséquence I;
- une unité de grès à ciment carbonaté (dolomie et *accessoirement* calcite et sidérose) au sommet de la mégaséquence I et à la base de la mégaséquence II; ici les carbonates peuvent constituer l'essentiel de la matrice ou se disposer en «mouches» plus ou moins disséminées dans le grès;
- une unité de grès quartzite au sommet du FA (~150 derniers mètres); ici les silicifications par nourrissage des grains de quartz sont de règle et peuvent constituer plus de 90% de la matrice; cette unité se caractérise également par une grande maturité des éléments détritiques: les quartz sont bien arrondis et les feldspaths sont rares; de nombreux opaques sont également disséminés dans la matrice ou les microfractures.

b) La formation du FB1

Cette formation comprend de la base vers le sommet:

- des pélites vertes qui, vers le haut, passent à des pélites grises à noires; cette unité des pélites vertes est extrêmement constante à l'échelle du bassin;
- une unité gréso-pélitique finement litée dont la base comporte souvent des chenaux gréseux ou des brèches à éléments dolomitiques; ces dernières sont interprétées, soit comme provenant du démantèlement d'un seuil exondé où se seraient précipités des carbonates, soit comme intraformationnelles; dans ce cas, elles résulteraient du démantèlement de niveaux carbonatés précipités dans des flaques lors de la sédimentation;
- une unité ampélitique qui peut contenir des niveaux dolomitiques, ferrugineux ou manganésifères.

Au cours du FB, une sédimentation pélitique et ampélitique s'installe donc dans tout le bassin. Cependant, dans les zones de bordure, telle la région orientale de la boutonnière de socle de Mounana, la base du FB comporte de larges chenaux gréseux qui reposent parfois directement sur les grès du FA. Ces grès présentent -

une régénération du matériel détritique: les quartz deviennent plus anguleux, les feldspaths apparaissent (plagioclase et microcline), les galets mous de pélite et les galets de socle sont abondants.

c) Passage du FA au FB

Une phase de réajustement tectonique sépare les formations FA et FB. On lui associe le changement brusque de sédimentation entre ces deux formations, et des soulèvements de compartiments de socle. Par exemple, à Mounana, une discordance angulaire a été observée entre le FA et le FB. Dans ce secteur, cette phase se marque également par l'érosion du FA supérieur et la présence d'un conglomérat à blocs de socle et de dolomie à la base du FB. Des érosions (ou absence de dépôt?) du sommet du FA supérieur sont également connus à Gubi et à Oklo.

1.3.2. Caractères diagénétiques

a) Transformations et migrations diagénétiques

Dans les grès, aucun minéral détritique n'est en équilibre thermodynamique avec son milieu. Ce n'est que durant la diagenèse que les sédiments tendront vers cet équilibre par des réactions entre minéraux et solution interstitielle ou entre minéraux eux-mêmes.

Dans les grès du FA supérieur, la diagenèse se marque par trois caractères qui sont:

- une silicification très intense (photo 2, planche 2)[1] et presque systématique des grès par nourrissage des grains de quartz (parfois plus de 90% de la matrice); cette silicification, souvent contemporaine d'une stylolitisation des quartz (photo 3, planche 2), doit être rattachée à une phase de compaction liée à l'enfouissement; bien que ces silicifications aient certainement eu lieu durant toute la diagenèse, on distingue une silicification «précoce» et générale dans tous les grès du FA, et des silicifications plus tardives et plus locales qui se sont mises en place après d'autres épisodes diagénétiques;
- une homogénéisation de la phase argileuse en illite et chlorite qui cristallisent tout au long de la diagenèse;
- une «altération» des plagioclases et des micas; l'altération de plagioclase se fait essentiellement par silicification, séricitisation et chloritisation; dans certains cas des matières organiques peuvent s'insérer dans les microfractures et anciens clivages des plagioclases [5]; les biotites sont chloritisées, elles

[1] Voir en annexe trois planches de photos.

perdent leur pléochroïsme et leur biréfringence; des muscovites néoformées légèrement pléochroïques se développent en épitaxie sur des squelettes d'anciennes biotites détritiques.

Durant la diagenèse, un certain nombre de fluides circulant dans les grès ont provoqué le dépôt de différentes phases minérales ou organiques. Entre les silicifications décrites plus haut, des phases à matière carbonée, sulfures et oxydes, se sont mises en place.

Enfin, une phase carbonatée a été reconnue. Elle se révèle être tardive et toujours postérieure à toute autre migration diagénétique.

En ce qui concerne les migrations de matière organique, sulfures et oxydes, leur chronologie par rapport aux silicifications est difficile à établir. Notons:

- que les sulfures (pyrite et galène essentiellement) sont très abondants et se localisent soit en tapissage sur des plans de fractures, soit en grains dispersés dans la matrice des grès;
- que les oxydes sont surtout des oxydes de fer qui colorent les séries rouges connues dans le centre du bassin de Franceville (région de Mikouloungou), ou au nord de Mounana (région de Leboka et Nord-Leyou).

L'existence de fronts d'oxydo-réduction témoigne que ces solutions ont certainement migré. L'analyse des paragenèses associées à ces fronts d'oxydo-réduction et la datation des micas provenant de ces séries rouges (1800 MA: Bonhomme, communication orale) nous amènent à conclure que l'acquisition de cette coloration appartient à un épisode diagénétique.

b) Estimation du degré de la diagenèse

Les caractères de silicification et d'homogénéisation de la phase argileuse (en illite et chlorite) des grès du FA témoignent d'une diagenèse d'enfouissement déjà relativement profonde. Cependant, en aucun cas ces grès n'ont atteint un métamorphisme épizonal. En effet, aucune schistosité avec recristallisation ni minéraux caractéristiques d'un tel métamorphisme n'ont été reconnus.

Des analyses faites aux rayons X sur la fraction argileuse des grès du FA montrent que les illites ont un indice de cristallinité (largeur à mi-hauteur du pic à 10 Å tel qu'il a été défini par Dunoyer de Segonzac [6]) compris entre 4 et 6 qui décroît avec la profondeur (fig. 3). La variété polymorphe de ces illites est généralement du type 1 M dominant. Ce n'est que dans les niveaux les plus profonds du FA que le type 2 M prend quelque importance.

Dans l'échelle proposée par Dunoyer de Segonzac ces indices de cristallinité indiquent que les sédiments du FA ont atteint un degré de diagenèse correspondant à la limite de la diagenèse profonde et du sommet de l'anchizone. La prédominance d'illite 1 M sur les illites 2 M souligne que ces grès n'ont cependant pas subi une diagenèse correspondant à l'anchizone franche.

Afin de préciser les conditions de pression et de température de cette diagenèse, des études sur les inclusions fluides et les matières organiques ont été

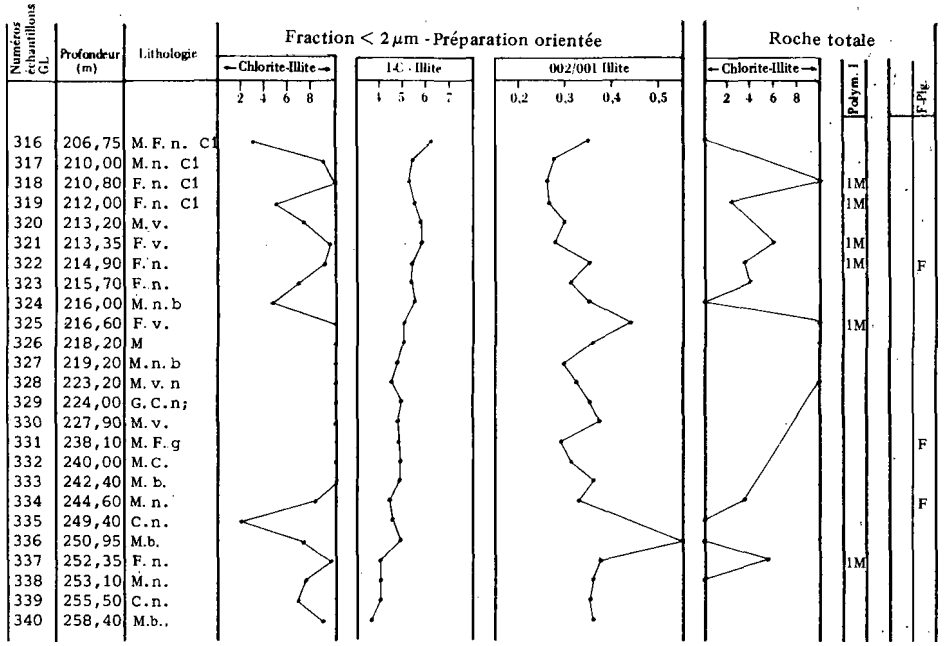


FIG.3. Analyse aux rayons X (sondage KN 196).
Lithologie: F – M – G – C: grès fin – moyen – grossier – conglomérat.
n – v – g – b: noir – vert – gris – blanc.
I-C – Illite: indice de cristallinité de l'illite.
Polym. 1: polymorphe de l'illite.
F: feldspath.

effectuées [7, 8]. Ces études confirment que les matières organiques ont atteint le stade de la diagenèse à gaz [8, 9], et l'existence, dans les auréoles de nourrissage des quartz, d'un fluide dont la température d'homogénéisation est voisine de 150°C [7].

2. LE GISEMENT D'OKLO

2.1. Présentation du gisement

Le gisement d'Oklo se situe à 2 km au sud du gisement de Mounana. Il est relayé dans sa partie méridionale par le gisement d'Okelobondo (fig. 4).

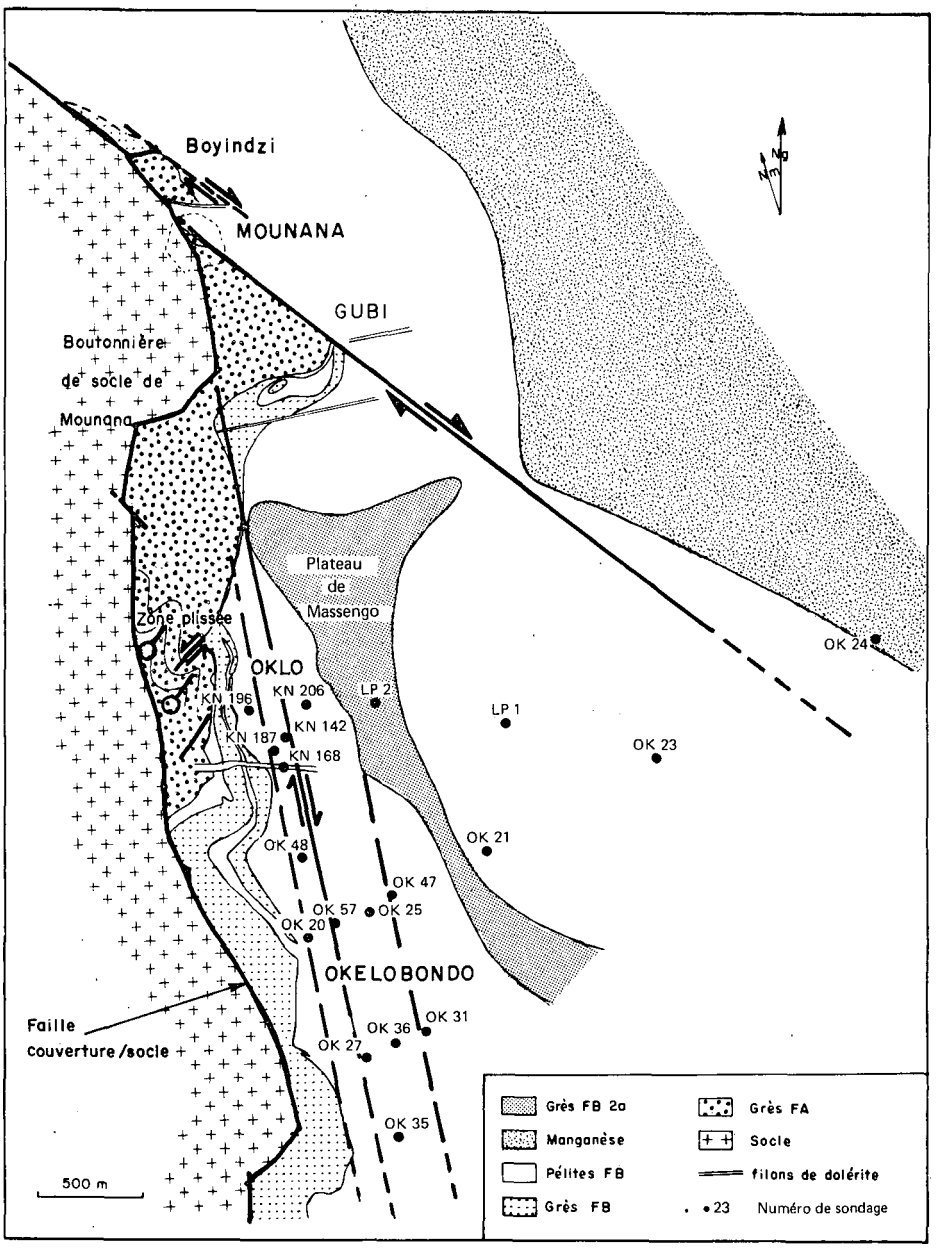


FIG. 4. Carte du secteur E, boutonnière de Mounana.

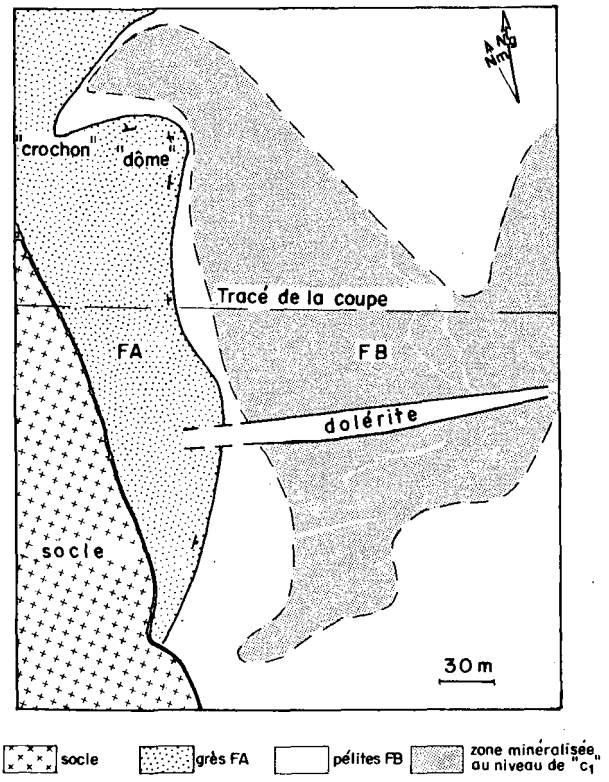


FIG.5a. Carte schématique du gisement d'Oklo (d'après Pfiffelmann, 1975).

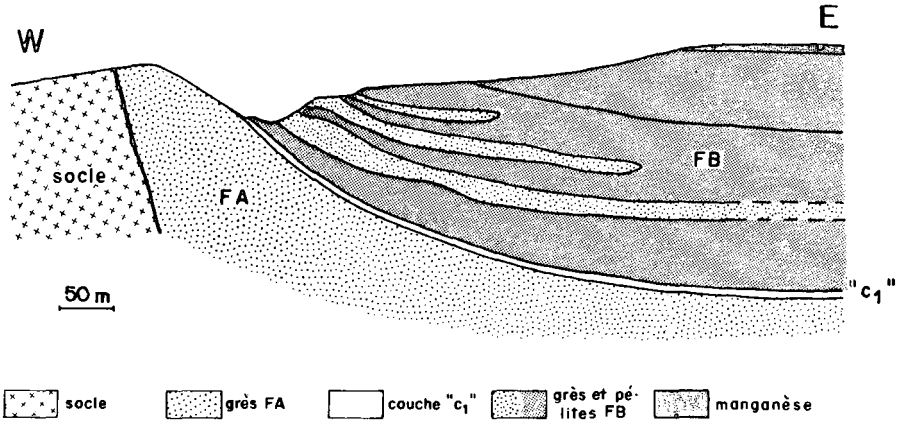


FIG.5b. Coupe du gisement au profil y = − 240 (d'après Laurent, 1976).

Le gisement d'Oklo, découvert en 1968, a été décrit par Chauvet [10]. Ce gisement s'étend plus ou moins uniformément sur 900 m dans le sens N-S et 600 m dans le sens E-W. Son exploitation en carrière, qui a débuté en 1970, a mis à jour, dans sa partie nord, les réacteurs nucléaires naturels.

Le gisement d'Okelobondo, découvert dans le cadre d'une prospection d'extension de gisement, apparaît comme étant moins uniforme que celui d'Oklo. Il est formé de deux «langues» minéralisées, plus ou moins allongées suivant une direction N-S. Ce gisement sera exploité en mine; actuellement il n'est connu que par sondages.

Ces deux gisements se cantonnent au bas d'une large flexure subméridienne dont le flanc W s'appuie contre la boutonnière de socle de Mounana (fig. 5). Des structures plissées dont les axes sont orientés N 60° interfèrent sur cette flexure et présentent des enrichissements en uranium parfois importants. Les zones de réaction se situent sur le pourtour d'un de ces plis.

L'essentiel de la minéralisation uranifère se situe dans les derniers niveaux de grès du FA supérieur, dans un épisode sédimentaire appelé *couche C1*. Un autre niveau situé à une vingtaine de mètres du mur de *C1*, et appelé *C2*, présente parfois quelques accumulations. Ce dernier niveau est rarement économique sauf lorsqu'il est impliqué dans une structure tectonique importante, en particulier dans une synforme très pincée (crochon) dans la partie nord du gisement d'Oklo.

2.2. Stratigraphie de la couche C1

Une stratigraphie fine de la couche C1 a pu être établie par B. Michel dans la carrière d'Oklo. De la base vers le sommet on distingue les épisodes sédimentaires suivants (fig. 6):

- un conglomérat silicifié, à galets de quartz rarement supérieurs à 5 cm, et qui forme le mur de C1; ce conglomérat, appelé *conglomérat du mur de C1*, est épais de 5 à 20 cm et extrêmement continu; il forme le parement W de la carrière d'Oklo et a été reconnu dans presque tous les sondages d'Oklo et d'Okelobondo;
- les *grès fins du mur* (épisodes C1a-b), épais de 0,80 m à 1,50 m, qui sont aussi très constants à l'échelle des gisements; l'épisode C1a est souvent à tendance pélitique et de couleur verte ou noire, alors que l'épisode C1b, toujours noir, comprend des grès fins à quelques intercalations de fines lentilles de grès moyens; un conglomérat épais de 5 à 10 cm peut parfois marquer la limite entre ces deux épisodes;
- les épisodes C1c-d-e, comprenant trois séquences de grès moyens à fins, parfois lenticulaires, et pouvant présenter des stratifications obliques; l'ensemble a une puissance de 1 m;
- les épisodes C1f-g-h-i: ce sont quatre séquences positives qui débutent toutes par un conglomérat, et qui évoluent vers des grès grossiers à moyens

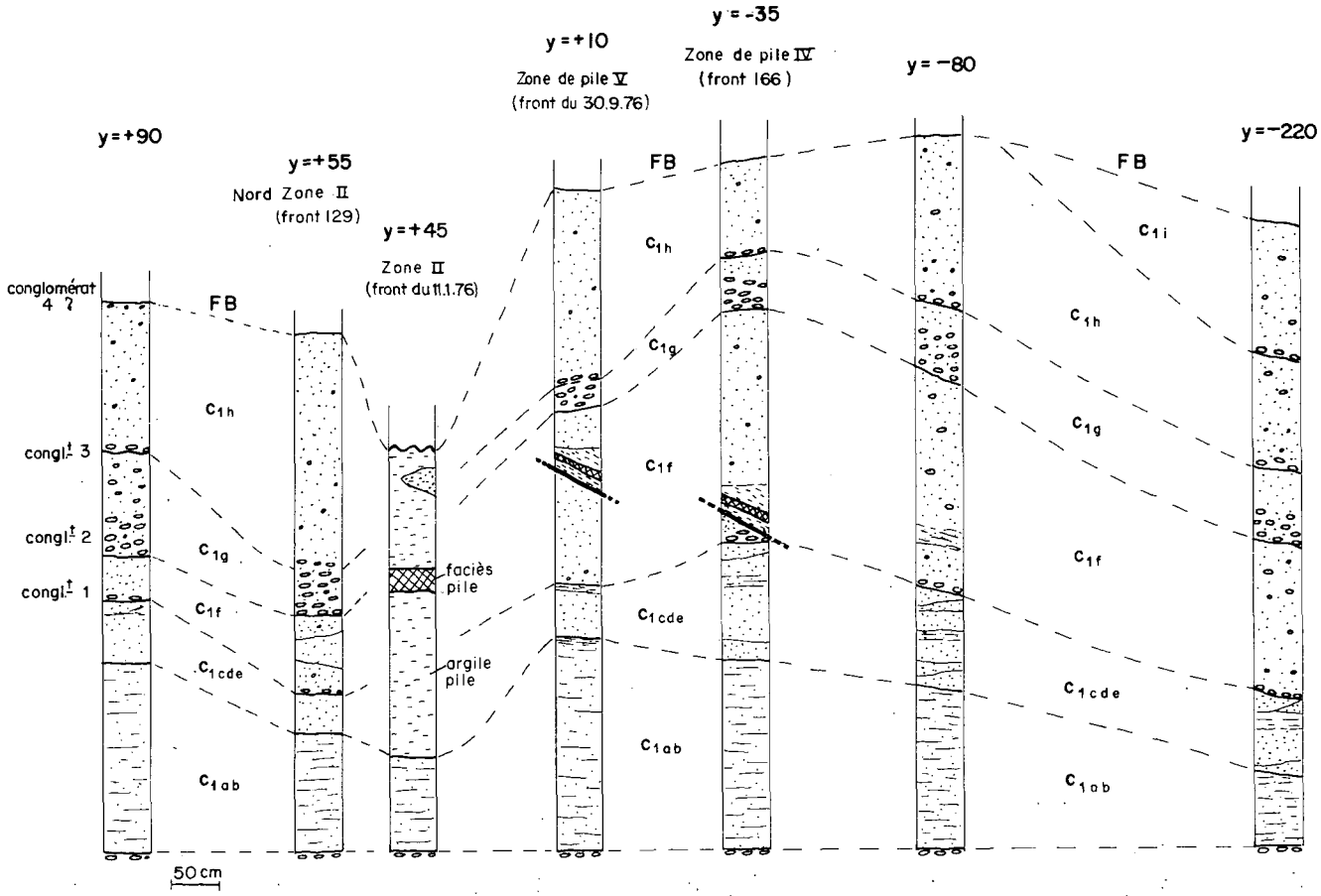


FIG. 6. Corrélations entre les différents niveaux de C1 dans la carrière d'Oklo.

au sommet; ces quatre conglomérats sont très constants dans la carrière d'Oklo où ils forment des niveaux repères; des niveaux décimétriques de grès fins s'intercalent fréquemment au sommet de ces séquences.

L'épisode C1i, qui termine le FA, est ensuite recouvert de pélites *(pélites du toit)* marquant la base de la formation FB. Les pélites sont ravinées par un chenal gréseux dont le cœur se situe dans la partie nord de la carrière d'Oklo. La bordure sud de ce chenal présente une alternance de faciès pélitiques à ampélitiques (au sommet) et de faciès gréseux à bréchiques contenant des blocs de dolomie et des éléments de socle.

Dans les gisements d'Oklo et d'Okelobondo, la minéralisation uranifère se localise presque exclusivement entre les grès fins du mur et les pélites du toit avec très souvent un ou deux niveaux à teneur maximale, qui correspondent à Oklo aux épisodes C1f et C1h.

2.3. La minéralisation uranifère dans le minerai «normal» d'Oklo

Par minerai *normal* on entend un minerai qui est situé loin des réacteurs naturels, et qui a une composition isotopique normale.

2.3.1. Nature de la minéralisation

Les premières observations en sections polies des minerais d'Oklo ont été faites par Geffroy et Lissilour [11]. De ces études il ressort notamment que l'uranium est essentiellement exprimé sous forme de pechblende. De la coffinite a parfois été observée, mais les auteurs [11, 12] semblent lui donner une origine secondaire par cémentation.

Les minéraux à U^{6+} sont rares et toujours rattachés à des remaniements secondaires. Citons des «gummites» au sens large et la wölsendorfite.

2.3.2. Types de minerai

A Oklo, deux types de minerai peuvent être distingués:

Le premier est le minerai banal d'Oklo (photo 1, planche 3). Il correspond à un grès noir, très silicifié, dont la teneur en UO_2, généralement de 0,4 à 0,6%, dépasse rarement 1%. L'uranium, exprimé sous forme de pechblende, est associé à des matières organiques [13]. La matrice, essentiellement constituée de silice secondaire par nourrissage de quartz, renferme également et en proportion variable de la chlorite et de l'illite. Les sulfures (pyrite et galène) y sont également très abondants.

Dans ce type de minerai, l'uranium est parfois associé à de la calcite. Il est cependant important de souligner que ce fait n'est en aucun cas commun au minerai normal d'Oklo et qu'il n'a été observé que très rarement.

Le second type de minerai est un grès peu à pas silicifié, noir, à «taches» hématiteuses, dont les teneurs en UO_2 varient de 5 à 25%. Comme précédemment, l'uranium est exprimé sous forme de pechblende qui est ici rarement en inclusion dans les matières organiques. La minéralisation se répartit autour de taches hématiteuses dont elle est séparée par une frange décolorée (photo 1, planche 2). La frontière entre taches hématiteuses et grès minéralisés apparaît ainsi comme un petit front d'oxydo-réduction d'échelle décimétrique.

Ce type de minerai est fréquemment associé à des zones fortement tectonisées. L'uranium tapisse les plans de micro-fractures qui affectent les quartz et la matrice des grès. Ces plans correspondent souvent à des plans de cisaillement auxquels sont associés des phénomènes de dissolution de silice (photo 4, planche 2 et photo 3, planche 3).

2.4. Analyse tectonique du gisement d'Oklo

L'analyse tectonique de détail effectuée dans la carrière d'Oklo a été rapportée dans une précédente communication [14]. Rappelons que cette analyse a fait apparaître deux types de structures tectoniques à Oklo.

Le premier type de structure est une large flexure subméridienne qui borde l'est de la boutonnière de Mounana. Elle affecte l'ensemble des gisements d'Oklo et d'Okelobondo, et est responsable du pendage moyen des couches de 30° à 40° vers l'est ainsi que du système de fracture N 150° à N 170°, auxquels peuvent être associées des flexures métriques à décamétriques. Le moteur de cette flexuration doit être recherché dans le relèvement et le basculement vers l'ouest du socle de la boutonnière de Mounana [15].

Le deuxième type de structure tectonique est représenté par des plis d'axe N 60° qui plongent de 30° à 40° vers le NE. Ces plis n'intéressent que la partie nord du gisement d'Oklo. Ce sont du nord vers le sud:

- une structure synclinale très serrée dont le flanc N est déversé;
- une large voussure anticlinale de 130 m d'amplitude qui contient, sur son pourtour, les réacteurs nucléaires fossiles; à cette voussure sont associés d'importants mouvements de glissement sur couches qui se font soit dans la ligne de plus grande pente, soit avec une composante SE;
- une flexure qui amène les couches à la verticale avec parfois un léger déversement; cette structure peut en fait s'assimiler au flanc sud du pli précédent;
- un large monoclinal pluri-hectométrique à très grand rayon de courbure.

Ces quatre plis sont respectivement appelés par les mineurs *crochon, dôme, dressant* et *cuvette*. Ces plis, beaucoup plus serrés que la flexure subméridienne, sont affectés par une fracturation en systèmes diagonale gauche (Dg: N 170°); diagonale droite (Dd: N 100°); transversale (T: N 140°) et longitudinale (L: N 60°).

Le percement d'une descenderie devant rejoindre le gisement d'Okelobondo a permis de recouper ces différents plis et d'effectuer de nombreux relevés tecto-

niques. De ces observations il ressort que ces plis peuvent se classer parmi les *plis isopaques* se caractérisant par une conservation de l'épaisseur des strates et des figures de compression intra-couches à la «base» du pli ou d'extension au «sommet» du pli.

Ces plis isopaques, aux axes fortement pentés, s'interprètent comme des plis d'entraînement provoqués par un mouvement horizontal sénestre lors d'une phase de serrage subméridienne.

Dans cette hypothèse, ces décrochements N 60° seraient conjugués des décrochements majeurs, dextres N 140° qui affectent les gisements de Mounana et de Boyindzi [3, 15, 16] et qui se prolongent vers le SE dans le bassin de Franceville (accident de Mikouloungou). Dans ce cas, ces deux directions peuvent s'intégrer dans un coin tectonique dont la branche dextre (N 140°) est soumise à des déformations cassantes (Mounana – Boyindzi) et dont la branche sénestre se marque par des déformations souples (Oklo nord).

3. QUELQUES DONNEES GEOCHIMIQUES SUR OKLO

3.1. Echantillonnage et méthodes

L'étude géochimique a été conduite sur 106 échantillons choisis comme suit:
- 37 échantillons dans le gisement d'uranium de composition isotopique normale (sondages KN 206, KN 196, KN 187, KN 168, KN 142, KN 81, KN 76);
- 33 échantillons dans l'environnement des réacteurs (sondages KN 225, KN 224, KN 223, KN 222, KN 221, KN 220, KN 219, KN 231);
- 5 échantillons dans la minipile;
- 25 échantillons dans le domaine stérile (sondages OK 24, OK 23, OK 21, LP 2, LP 1);
- 6 échantillons d'Okelobondo (sondage OK 48).

La répartition stratigraphique est la suivante:
- 75 échantillons dans C1;
- 14 échantillons dans le conglomérat du mur de C1;
- 17 échantillons dans les grès stériles sous C1.

Les analyses ont été faites sur 24 constituants majeurs, mineurs et traces: Si, Al, Mg, Ca, Fe, Mn, Ti, Na, K, perte au feu, Sr, Ba, V, Ni, Co, Cr, B, Zn, Ga, Cu, Pb, Sn, Mo, U. Les méthodes utilisées sont la fluorescence X pour Mo et U,[2] la spectrométrie de flamme pour Na et K et la spectrométrie d'arc pour les autres éléments.[3] Notons que, pour des raisons de technique des dosages, les

---

[2] Analyses effectuées au Laboratoire de minéralogie de l'Université Louis Pasteur, Strasbourg.

[3] Analyses effectuées au Centre de sédimentologie et géochimie de la surface (CNRS), Strasbourg.

TABLEAU I. MATRICE DES COEFFICIENTS DE CORRELATION POUR OKLO

	Si	Al	Mg	Ca	Fe	Mn	Ti	Na	K	PF	Sr	Ba	V	Ni	Co	Cr	B	Zn	Ga	Cu	Pb	Sn	Mo	U
Si																								
Al	-.97																							
Mg	-.70	.65																						
Ca	-.00	-.04	-.07																					
Fe	-.46	.38	.63	-.09																				
Mn	-.16	.11	.24	.20	.23																			
Ti	-.64	.66	.53	-.08	.41	.09																		
Na	-.45	.47	.24	-.03	.12	-.06	.31																	
K	-.94	.98	.54	.00	.28	.05	.64	.55																
PF	-.91	.85	.63	.11	.43	.38	.53	.24	.78															
Sr	-.40	.42	.26	.21	.12	.10	.46	.10	.42	.44														
Ba	-.77	.81	.39	-.01	.17	-.07	.49	.28	.80	.74	.59													
V	-.17	.01	.16	-.10	.18	.10	.00	-.22	-.07	.27	.32	.21												
Ni	-.07	.06	.26	-.10	.34	.30	.21	-.24	-.08	.16	.27	-.02	.27											
Co	.07	-.07	-.02	.02	.12	.19	-.00	-.24	-.12	.03	.11	-.10	.21	.67										
Cr	-.19	.15	.15	-.10	.26	.32	.34	-.16	.09	.29	.54	.35	.58	.53	.34									
B	-.43	.36	.19	-.06	.13	.00	.30	-.09	.37	.44	.45	.65	.44	.32	.34	.53								
Zn	-.28	.22	.61	-.06	.77	.45	.13	-.01	.09	.27	.12	.08	.25	.34	.10	.09	.03							
Ga	-.76	.66	.50	-.13	.39	.10	.55	.15	.62	.69	.34	.61	.40	.41	.25	.49	.58	.21						
Cu	.07	-.11	-.15	-.06	-.08	-.06	-.14	-.18	-.10	-.13	.06	.01	.20	.14	.26	.23	.18	-.18	.18					
Pb	.02	-.11	-.18	.12	-.07	.11	-.12	-.18	-.12	.07	.22	.08	.48	.12	.41	.47	.29	-.05	.18	.47				
Sn	.53	-.51	-.24	-.14	-.13	.01	-.32	-.46	-.52	-.40	-.09	-.35	.26	.44	.49	.29	.13	.04	-.12	.24	.26			
Mo	.15	-.16	-.17	-.03	-.03	.23	-.13	-.21	-.17	-.04	.18	-.02	.41	.14	.23	.41	.17	-.02	.07	.18	.63	.47		
U	.15	-.22	-.21	.09	-.03	.21	-.15	-.16	-.20	-.11	-.11	-.17	.14	.40	.80	.24	.18	-.07	.24	.34	.63	.47	.28	

analyses n'ont pu être effectuées que sur les échantillons à teneur en uranium inférieure à 2,5%. Les conclusions de l'étude géochimique s'appliquent donc aux minerais «banals» et non aux minerais «riches».

Les résultats des analyses ont été traités par les méthodes statistiques proposées par Besnus [17]: analyse des coefficients de corrélation totale, étude de la morphologie des nuages de points des diagrammes de corrélation.

3.2. Mise en évidence de plusieurs phases géochimiques – Répartition des éléments entre elles

On donnera ici à *phase géochimique* le sens très général d'une association d'éléments chimiques, sans considération de minéraux ou de faciès. Une phase géochimique peut ne se superposer à aucune phase minéralogique.

3.2.1. Méthode utilisée

L'analyse des coefficients de corrélation est faite par la méthode des *groupes à intercorrélations positives* de Besnus et Mosser [18]. On appelle ainsi tout ensemble d'éléments dans lequel tout élément est lié à chacun des autres par un coefficient de corrélation significativement positif. La méthode comporte trois étapes: 1) à partir de la matrice des coefficients de corrélation totale (tableau I), on détermine tous les groupes d'éléments répondant à la définition ci-dessus; 2) on range ces groupes selon un ordre, en partie empirique, tel que chaque groupe soit encadré par les groupes ayant le plus grand nombre d'éléments en commun avec lui (tableau II, partie gauche); 3) on interprète les phases géochimiques suggérées par le rangement précédent (tableau II, partie droite).

3.2.2. Phases mises en évidence

La nature des phases géochimiques en présence est suggérée par les éléments majeurs qu'on y trouve. On peut ainsi identifier cinq phases:

- un ensemble de groupes où figurent Al, Mg, Ti, perte au feu, correspond très certainement à une phase argileuse;
- les groupes où l'on trouve Ca et Mn et ceux où se rencontrent Fe, Mn et perte au feu peuvent être attribués à une phase carbonatée;
- un certain nombre de groupes où Fe et Mn, seuls éléments majeurs, paraissent associés à V, Ni, Cr, suggère une association d'oxydes qu'on appellera phase ferrugineuse;
- le groupe Si, Sn correspond évidemment aux matériaux siliceux (quartz primaire ou secondaire);
- restent alors plusieurs groupes où ne figurent que des éléments traces; ne pouvant les attribuer à une phase minéralogique définie, on les rassemble sous le nom de *phase isolée;* on note qu'elle contient l'uranium.

TABLEAU II. OKLO: GROUPES D'ELEMENTS A INTERCORRELATIONS POSITIVES ET LEUR INTERPRETATION
(PF = perte au feu)

Si Sn	phase "siliceuse"
V Ni Co Cr Sn	
V Ni Co Cr B Ga	
Sr V Ni Cr B Ga	
Sr V Cr B Ga Pb	
Sr V Cr B Pb Mo	
V Co Cr B Cu Pb Mo	phase "isolée"
Ni Co Cr Sn U	
Ni Co Cr B Ga U	
Co Cr B Ga Pb U	
Co Cr B Cu Pb Mo U	
Co Cr Cu Pb Sn Mo U	
Mn Co Cr Mo U	
Mn Ni Co Cr U	
Fe Mn Ni Cr	
Fe Mn Ni Zn	phase "ferrugineuse"
Fe V Ni Cr Ga	
Fe V Ni Zn Ga	
Mg Fe Ni Zn Ga	
Mg Fe Ti Ni Ga	
Al Mg Fe Ti K PF Ba Ga	
Al Mg Ti K PF Sr Ba B Ga	
PF Sr Ba V Cr B Ga	phase "argileuse"
Mg Ti Sr Ni B Ga	
Al Mg Ti Na K PF Ba	
Al Mg Fe PF Zn Ga	
Fe PF Ba V Cr	
Fe Mn PF Zn	
Fe Mn PF Cr	
Ca Mn	phase "carbonatée"
Ca Sr	

3.3. Précisions sur la phase isolée

Quatre éléments n'apparaissent que dans la phase isolée: Cu, Pb, Mo, U. Les autres éléments qu'on y trouve figurent aussi dans des groupes rapportés à d'autres phases: V, Ni, Co, Cr dans la phase ferrugineuse, Sr dans les phases argileuse et carbonatée, Ga dans les phases ferrugineuse et argileuse, B dans la phase argileuse, Sn dans la phase siliceuse.

L'appartenance de certains éléments en même temps à la phase isolée et à d'autres phases est confirmée et précisée par la morphologie particulière des nuages de points des diagrammes de corrélation tracés entre ces éléments et l'uranium. Ceci est bien net pour Ni et Co, que nous présentons comme exemples. Les nuages de points U-Ni et U-Co (fig. 7) sont limités vers les fortes teneurs en U par une droite qui passe par l'origine. Cette forme des nuages peut s'interpréter comme suit: à une teneur donnée en U correspond une teneur

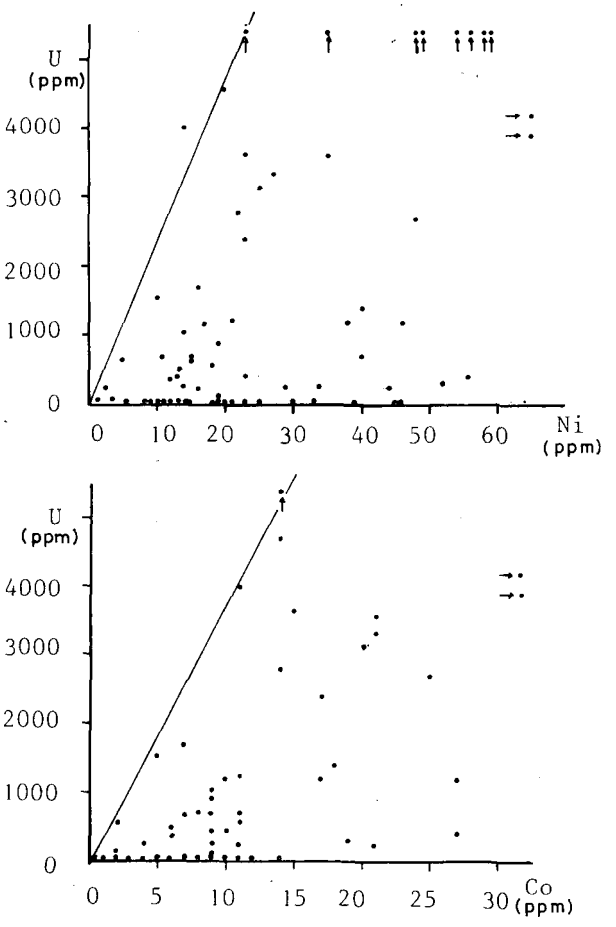


FIG. 7. Diagrammes de corrélation U-Ni et U-Co.

minimale en Ni, laquelle est proportionnelle à la teneur en U. A l'uranium est donc associée une certaine quantité de nickel, calculable par la pente de la droite limite. Du nickel en surplus, non lié à l'uranium, donne les points situés à droite de la droite limite.

Plusieurs éléments montrent des diagrammes avec U de morphologie semblable à celle qui vient d'être décrite: outre Ni et Co, on trouve Cr, B, Ga, Sn. Pour Ni, Co et Cr la droite limite est assez bien marquée pour qu'on puisse en retenir la pente. On peut ainsi préciser que la phase isolée contient Ni, Co et Cr en quantités telles que U/Ni= 250, U/Co= 350, U/Cr= 100.

Le nuage de points U-Pb montre également une telle morphologie, mais on doit l'interpréter autrement.

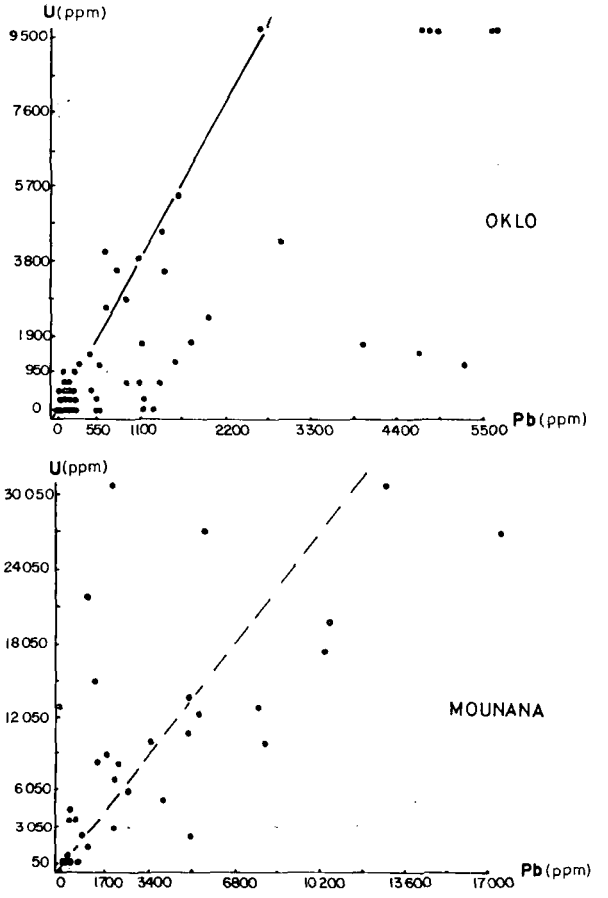


FIG. 8. Diagrammes de corrélation U-Pb à Oklo et à Mounana.

3.4. Comportement du plomb

On a vu que le plomb était entièrement lié à la phase isolée. Ceci ne surprend pas puisqu'il est en majeure partie radiogénique. La morphologie à droite limite du nuage de points U-Pb ne peut donc pas s'interpréter par l'appartenance du plomb à deux phases géochimiques. Elle s'explique par des migrations du plomb qu'on peut confirmer en comparant avec le gisement de Mounana voisin d'Oklo.

L'étude géochimique du gisement de Mounana a été faite sur 42 échantillons. Ceux-ci ont été prélevés dans les zones minéralisées profondes non atteintes par les oxydations de surface [19]. Une corrélation apparaît en U et Pb (coefficient de corrélation 0,61), indiquant bien la dépendance globale de l'un par rapport à l'autre. Cependant le rapport U/Pb est très variable, supérieur ou inférieur au rapport normal, voisin de 3, de l'uranium au plomb radiogénique. Le diagramme de corrélation U-Pb (fig. 8) illustre bien cette dispersion autour d'une droite de

pente 3. L'interprétation qu'on peut en donner est que le plomb a migré. Les mouvements se sont faits à petite échelle, enrichissant un échantillon aux dépens du voisin.

A Oklo par contre, dans les échantillons à U < 2,5% dont nous parlons ici, le rapport U/Pb dépasse rarement la valeur 3 et lui est souvent inférieur. Ceci est bien illustré par le nuage de points U-Pb, limité vers les fortes teneurs en uranium par une droite de pente voisine de 3, laquelle correspondrait bien au rapport normal de l'uranium au plomb radiogénique. Les teneurs en plomb, dans les stériles ou les minerais non enrichis que concerne notre étude, sont donc soit normales, soit en excès. Or on sait d'autre part que les zones à très fortes teneurs en uranium sont déficitaires en plomb [20]. On est alors amené à penser que, à Oklo comme à Mounana, le plomb a migré. Ici cependant, les migrations se sont faites à l'échelle du gisement, enrichissant irrégulièrement l'ensemble du site au détriment des minerais les plus riches.

3.5. Interprétation

L'étude géochimique des minerais normaux permet d'affirmer que l'uranium n'est pas associé aux constituants majeurs de la roche, éléments ou minéraux. Il est par contre lié à divers éléments traces en une phase isolée pour laquelle une interprétation peut être proposée.

L'association reconnue de l'uranium avec de la matière organique invite à interpréter la phase isolée comme une phase organique. Celle-ci peut ne plus être une phase majeure de la roche, soit parce qu'elle s'est condensée, soit parce qu'elle a été en partie détruite.

L'identification de la phase isolée à une phase organique est en accord avec ce qu'on sait de la composition chimique des huiles et des bitumes. Les métaux les plus abondants qu'on trouve dans ces matériaux sont en effet Cu, Pb, Cr, Mo, V, Co, Ni, U [21]. Ce sont ces éléments qui constituent notre phase isolée, auxquels ne s'ajoutent que trois éléments, Sr, Ga, B, associés d'ailleurs aussi à d'autres phases. L'accord qualitatif est donc bon.

La comparaison quantitative, bien que peu sûre car la variabilité des teneurs dans les huiles et les bitumes est très grande, laisse penser que notre phase isolée est plus riche en uranium, relativement aux autres métaux, qu'une matière organique banale. S'il en est bien ainsi, la matière organique aurait pu jouer deux rôles: 1) apporter, en se mettant en place, une partie des éléments traces qu'on trouve dans la phase isolée; 2) piéger après sa mise en place d'autres éléments, dont l'uranium, apportés indépendemment des premiers.

Le plomb, enfin, apparaît aussi comme associé à cette phase, ce qui ne surprend pas puisqu'il est en grande partie radiogénique. On précise cependant son comportement en notant qu'il a en partie migré, depuis les zones à minerais très riches vers les autres sites.

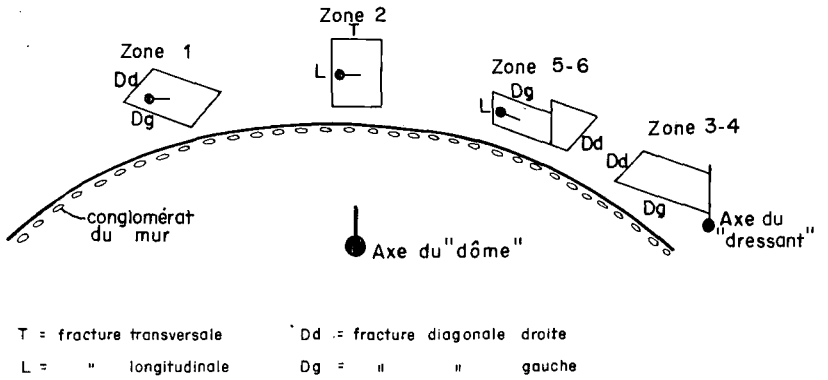


FIG. 9a. Plan illustrant le découpage des zones de réaction par les différents systèmes de fractures.

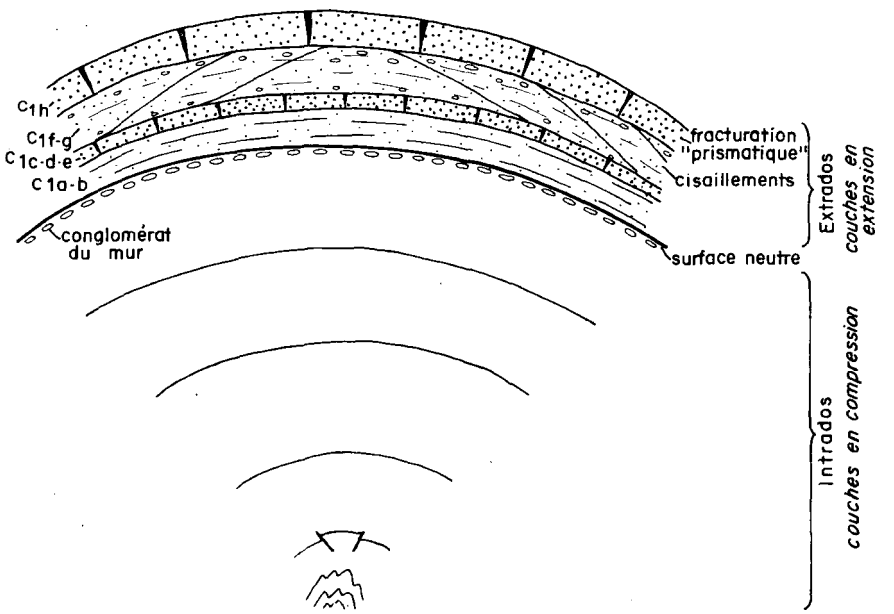


FIG. 9b. Coupe schématique perpendiculaire à l'axe du dôme (la couche C1 étant agrandie par rapport à l'intrados du pli).

4. GEOLOGIE DE L'ENVIRONNEMENT IMMEDIAT DES REACTEURS

4.1. Présentation des réacteurs

Les réacteurs nucléaires d'Oklo se répartissent en quatre zones numérotées, du nord au sud, 1, 2, 5–6, 3–4 (fig. 9). Ces zones se disposent autour du dôme sur une longueur totale de 140 m; elles sont limitées au sud par le dressant et au nord par un système de fracture majeure orientée N 170° (Dg) [22].

Sur le terrain, les *réacteurs* se reconnaissent par la présence d'un minerai très riche (U 25 à 50%) entouré d'une gangue argileuse, totalement dépourvue de quartz et formant les épontes [22–24].

Cet ensemble, plus ou moins concordant aux plans de stratification, se trouve toujours en position stratigraphique équivalente à la couche C1 classique du gisement d'Oklo. L'épaisseur totale de la gangue argileuse et du minerai varie entre 0,2 et 3 m; les longueurs peuvent atteindre 15 à 20 m suivant les zones. Le phénomène a donc intéressé une partie importante du gisement et on estime à 1500 tonnes la quantité d'uranium qui a participé aux réactions.

4.2. Environnement sédimentologique des réacteurs

Les coupes de la couche C1 effectuées autour du dôme entre le crochon et le sud du dressant (levés de B. Michel au sud de $y = -80$) ont fait l'objet d'une synthèse sur la figure 6. Elles font ressortir les faits suivants:

- à l'exception des zones de réaction 1 et 2, essentiellement argileuses, les différents épisodes de la couche C1 se corrèlent très bien entre les profils $y = +90$ et $y = -220$;
- la couche C1 présente une diminution de puissance au nord du profil $y = -80$; cette diminution est maximale en zone 2;
- l'épisode C1i, sommet des grès du FA, n'existe pas au nord de $y = -80$; cette absence de C1i peut être rapportée à une absence de dépôt des sédiments ou à leur ravinement; la présence, vers le profil $y = -200$, de figures de ravinement au sommet de cet épisode, ainsi que l'existence d'un chenal gréseux constituant la base du FB au nord du profil $y = -80$, nous incite à opter en faveur de la seconde hypothèse;
- dans les zones de réaction 3–4 et 5–6, les argiles et le faciès-pile se situent préférentiellement dans les épisodes C1f et C1g, plus précisément au sommet du C1f et à la base du C1g dans la zone 5–6 et à la base du C1f dans la zone 3–4.

A l'exception d'un amincissement de la couche C1 correspondant sans doute à l'érosion du sommet de C1 et de la présence d'un chenal FB, la sédimentologie de l'environnement des zones de réaction ne présente donc pas de grandes particularités par rapport à l'ensemble du gisement d'Oklo.

Dans un tel contexte gréso-conglomératique où les sédiments se sont vraisemblablement déposés en régime fluviatile, l'origine des argiles de pile, totalement dépourvues de quartz, semble difficilement concevable à partir d'un modèle purement sédimentologique. En effet, même si un tel régime fluviatile est susceptible de déposer des sédiments fins dans les flaques correspondant à des bras morts d'anciens méandres, l'absence totale de quartz ne peut s'expliquer. De plus, les très bonnes corrélations des différents épisodes de C1 à l'échelle de la carrière et même du pourtour du dôme, et le fait que des passages latéraux de faciès à granulométrie très différente n'ont jamais été observés dans ces zones, rendent peu probable l'existence de telles flaques.

Ajoutons en outre que nulle part dans le bassin de Franceville de telles argiles n'ont été observées. Il semble donc bien qu'il s'agisse là d'un faciès original et particulier aux zones de réaction.

4.3. Analyse tectonique de l'environnement des réacteurs

L'analyse tectonique du gisement d'Oklo a montré que la flexure subméridienne bordant la boutonnière du socle de Mounana, et les plis d'entraînement N 60°, résultent d'une phase de compression N-S.

Dans l'environnement des réacteurs, c'est-à-dire autour du dôme et dans la couche C1, cette tectonique se marque par deux types de déformations majeures correspondant à une fracturation des roches suivant les différents systèmes associés au dôme, et à des cisaillements parallèles à légèrement obliques aux plans de stratification.

4.3.1. Analyse des déformations dans l'environnement immédiat des réacteurs

a) La fracturation associée aux flexures subméridiennes et aux plis N 60°

Les quatre systèmes de fractures Dg, Dd, T et L associés au dôme, ainsi que les fractures N 160° à N 170° associées à la flexure subméridienne, ne s'expriment pas avec la même intensité dans tous les niveaux de la couche C1. Ils sont en effet essentiellement marqués dans les niveaux de grès moyens à grossiers silicifiés du C1c-d-e et du C1h, où ils provoquent la rupture de la roche suivant un *débit prismatique*. Dans les niveaux conglomératiques, plus hétérogènes, leur fréquence diminue, et les *déformations cisaillantes* dominent.

Selon leur situation géographique autour du dôme, ces différents systèmes de fracture constituent également des plans de décrochement majeurs. Sur les flancs N et S du dôme, il s'agit des fractures Dg sur lesquelles ont été observés des mouvements de coulissage sénestre, et du système T dextre à la charnière de ce pli.

L'analyse de la géométrie des zones de réaction montrera que celle-ci est commandée par ces différents systèmes de fractures [22].

b) Les cisaillements

Les cisaillements affectent exclusivement les niveaux gréseux hétérogènes (grès conglomératiques et conglomérats) du C1, c'est-à-dire les épisodes C1f et C1g, ainsi que les joints argileux intercalés dans les bancs de grès. Ils affectent rarement les grès silicifiés du C1c-d-e ou du C1h.

Les plans de cisaillement, parallèles à légèrement obliques aux couches, constituent des *couloirs de cisaillement*. Ils confèrent à la roche un débit en feuillets et induisent une fracturation qui s'ordonne suivant le schéma classique de Riedel [22].

Le long des couloirs de cisaillement des mouvements de glissement dans la ligne de plus grande pente ou avec une composante SE sont observables.

Au microscope, de tels couloirs se révèlent être des zones de dissolution préférentielle de silice, et de dépôt d'UO_2, de sulfures et d'hématite en tapissage sur les plans de fracture (photo 4, planche 2 et photo 3, planche 3).

Dans les zones de réaction 3–4 et 5–6, de tels couloirs de cisaillement sont de règle dans les grès du C1f et C1g qui encadrent le minerai entré en réaction et les argiles d'éponte. Leurs passages fréquents aux plans de couche rendent compte de l'allure flexurée de ces faciès, qui s'observent sur de très nombreux fronts de taille [22].

Les systèmes de fractures associés à de telles déformations s'ordonnent en fracture synthétique (R), et antithétique (R'), dont les angles avec le plan de cisaillement sont respectivement de 10–20° et 70–90°. Dans certains cas, et en particulier dans les niveaux plus compétents de grès moyens à grossiers du C1f, l'intensité de cette fracturation conduit à la formation d'une brèche tectonique. Cette évolution de la fracturation a été observée sur un front de taille situé au nord de la zone de réaction 1 ($y = +90$). Il s'agit d'un niveau bréchique, épais de 1 m à 1,50 m, qui affecte le sommet du C1f et la base du C1g sur une vingtaine de mètres (photo 1, planche 1). A cette brèche, légèrement oblique sur la stratification (10 à 20°), sont associées des circulations de fluides oxydants, marquées par le dépôt d'hématite sur les bordures de chaque élément tectonique constituant la brèche. Le centre de chacun de ces éléments, de couleur noire, montre un enrichissement en UO_2 et l'ensemble du niveau bréchique livre le maximum de teneur en uranium de ce front de taille.

c) Géométrie des zones de réaction

Le suivi géologique des zones de réaction durant leur exploitation a permis de préciser leur géométrie et de mesurer le contrôle tectonique dans leur élaboration [22]. De cette étude il ressort principalement que les réacteurs se situent dans des couloirs de cisaillement dont les limites sont commandées par les différents systèmes de fractures associées au dôme.

4.4. Interprétation

Le dôme correspond à un pli conique d'axe N 60°, plongeant de 40° vers le NE. La conservation de l'épaisseur de ses strates et sa géométrie permettent de le classer parmi les plis isopaques. Des figures de bourrage et d'expulsion de coins, observées dans la descenderie, soulignent la compression des couches au cœur de la charnière. Au niveau de la couche C1, les mouvements de glissement couche-à-couche et des cisaillements au sein des grès fins du mur et des épisodes C1f et C1g sont de règle. Ces indices, marqueurs d'un étirement des couches, nous amènent à situer ce niveau stratigraphique à l'extrados du dôme. Dans ce cas, il est possible que le conglomérat du mur, qui ne présente aucun indice d'étirement et ne montre qu'une fracturation relativement faible, corresponde à la surface neutre de ce pli (fig. 9b).

A ce régime d'étirement la couche C1, constituée d'une alternance de niveaux silicifiés compétents et de niveaux plus argileux moins compétents, réagit soit en se fracturant dans le premier cas, soit par des cisaillements dans le second.

Les zones de réaction, situées dans les niveaux de grès peu compétents, ont donc une forme régie par les couloirs de cisaillement dont la géométrie est commandée par les systèmes de fractures qui découpent le pourtour du dôme en différents *panneaux*. Suivant la situation des différentes zones de réaction sur les flancs ou la charnière du dôme, ces panneaux sont limités soit par les fractures diagonales dans le premier cas, soit par les fractures transversales et longitudinales dans le second cas. Cette différence de découpage peut être rapportée à une voussure qui affecte la crête du dôme suivant une direction perpendiculaire à son axe. Cette voussure, qui a donc la direction des fractures transversales, peut en outre rendre compte de la disposition particulière des zones de réaction en une *ceinture* perpendiculaire à l'axe du dôme qui s'incline vers le sud.

CONCLUSION

Les études pétrographiques ont mis en évidence, à Oklo et Okelobondo, deux types de minerai correspondant à deux stades de minéralisation échelonnés dans le temps.

Le premier type de minerai, ou minerai «banal», d'Oklo a une teneur en UO_2 de l'ordre de 0,2 à 0,5%. L'uranium y est en inclusion dans les matières organiques. Ce minerai est généralement représenté par des grès silicifiés, riches en pyrite et galène.

Le deuxième type, dit minerai riche, a une teneur en UO_2 de 5 à 25%: c'est un grès noir, peu à pas silicifié, possédant des taches hématiteuses. Il présente fréquemment des indices de cisaillement et de fracturation importants.

Le minerai de type 1

Dans les gisements actuellement reconnus d'Oklo et d'Okelobondo, les grès minéralisés appartenant au type 1 renferment l'essentiel de la minéralisation exploitée. Celle-ci est exprimée sous forme de pechblende en inclusion dans des matières organiques certainement migrées.

Les matières organiques ont joué très probablement un rôle déterminant dans la mise en place du minerai. L'association actuelle de l'uranium avec les matières organiques le laissait supposer; les données géochimiques le confirment.

Les migrations de matières organiques ont dû se produire sous un enfouissement correspondant à la *fenêtre pétrolière,* avant la fin de leur évolution qui les a amenées à la diagenèse à gaz. Les études pétrographiques ne sont pas suffisamment avancées pour déterminer avec certitude si la mise en place des matières organiques est antérieure ou postérieure à la silicification des grès par nourrissage des quartz. On peut toutefois penser que la silicification a diminué la porosité du grès dans des proportions telles qu'une migration des matières organiques sur une grande échelle est devenue improbable. En ce cas, la migration des matières organiques serait antérieure à la silicification qui, d'après les résultats de l'étude des inclusions fluides [7] serait intervenue alors que la série avait atteint l'enfouissement maximal compatible avec le degré d'évolution diagénétique des phyllites (sommet de l'anchizone).

Le rôle des matières organiques dans la réduction, le transport et/ou la fixation de l'uranium reste encore difficile à définir. Doit-on envisager la réduction de l'uranium par une activité bactérienne ou par une action directe des hydrocarbures? Ou les matières organiques interviennent-elles dans le transport de l'uranium après sa fixation?

Dans l'élaboration de ce type de minerai, deux types de contrôle structural doivent être invoqués. Le premier est *local* et se marque essentiellement par la création de pièges structuraux. Ces pièges, par la fracturation qui leur est associée, sont particulièrement propices à des circulations de fluides. Leur géométrie, leur position haute et leur fermeture par des terrains imperméables du FB rappellent celles de réservoirs pétroliers. La fermeture de ces pièges structuraux par le FB, pouvant représenter la roche-mère à partir de laquelle les matières organiques ont migré, constitue un cas classiquement décrit par les pétroliers.

Le deuxième type de contrôle structural est *régional.* Au cours de la sédimentation du FA et du FB, la paléogéographie du bassin de Franceville est commandée par une tectonique synsédimentaire qui individualise des microbassins lenticulaires, d'orientation NW-SE, en bordure desquels se situent les gisements d'uranium. Cette évolution du bassin s'accompagne, au FA et au FB, d'une forte subsidence et, au FB, d'une sédimentation ampélitique importante dans un milieu relativement confiné favorable au développement des matières organiques. Cette

richesse en matières organiques du FB, susceptible d'intervenir ultérieurement dans la fixation de l'uranium, constitue une particularité du bassin de Franceville.

La grande puissance du FA, également caractéristique du bassin de Franceville, constitue un autre élément favorable. Cette épaisse formation, et en particulier les conglomérats radioactifs de la base du FA, peuvent en effet constituer une importante réserve d'uranium initialement disséminé dans les grès puis reconcentré par des nappes aquifères profondes dans les pièges à matières organiques.

Le minerai de type 2

La relation étroite existant entre les zones oxydées à hématite et les zones noires à pechblende dans le faciès du type 2 nous permettent d'attribuer un rôle prépondérant à des circulations de solutions oxydantes dans l'élaboration de ce minerai. Ces solutions, migrant dans des grès minéralisés du type 1, sont susceptibles de remobiliser l'uranium sous forme d'ion et de complexe uranyle. Au cours de leur cheminement à travers les grès pyriteux du type 1, ces solutions perdent progressivement leur pouvoir oxydant, ce qui entraîne la reprécipitation et la concentration de l'UO_2 en aval.

Ce type de minerai se différencie nettement du minerai de type 1 par le fait qu'une portion du fer y est à l'état oxydé sous forme d'hématite. Cette dernière provient de l'oxydation de la pyrite qui, d'après Granger et Warren [25], produit un agent oxydant relativement inerte (SO_4^{2-}) et, selon le pH, un ou plusieurs agents réducteurs actifs (H_2S ou HS^-); ceci a pour résultat d'accroître le potentiel réducteur effectif du système. La précipitation de l'uranium est alors accompagnée d'une destruction de la pyrite avec libération du fer. Ce dernier, en s'éloignant des amas pyriteux et donc des zones réductrices, peut précipiter sous forme d'hématite. Les températures relativement basses nécessaires à ces réactions impliquent que ces reconcentrations ont eu lieu avant ou après que les conditions maximales de diagenèse n'aient été atteintes. Les matières organiques ont pu contribuer à la réduction de l'uranium, mais il est significatif que leur pouvoir réducteur, s'il existait encore, n'était plus suffisant pour maintenir tout le fer à l'état réduit comme dans le minerai de type 1.

Dans l'élaboration de ce type de minerai, un contrôle structural du type *ponctuel* doit être considéré. Il est caractérisé par une association entre le minerai enrichi du type 2 et une fracturation intense liée à des couloirs de cisaillement intracouche. Les solutions oxydantes ont circulé à la faveur d'une augmentation de la porosité due à ces déformations tectoniques. Ces déformations, essentiellement limitées aux épisodes sédimentaires C1f et C1g du sommet du FA, expliqueraient l'apparente concordance observée entre ce type de minerai et ces deux épisodes sédimentaires.

Ainsi, le minerai de type 2 résulte de circulations de solutions oxydantes dans une structure tectonique représentée par la flexure subméridienne bordant la boutonnière de Mounana. Cette interprétation est confirmée par de nouvelles observations effectuées dans la partie sud du gisement d'Oklo par B. Michel et R. Chauvet. Dans cette zone il a en effet été mis à découvert, depuis l'affleurement, une couche C1 à fort pendage, rouge, totalement oxydée et stérile. Vers l'aval, après une zone de cémentation à cuivre natif et chalcolite, un minerai noir, présentant d'abord de nombreuses passes hématiteuses, a ensuite été découvert. L'absence totale de produits jaunes dans le minerai noir semble infirmer une origine récente de ces oxydations.

Ces solutions oxydantes ont circulé préférentiellement dans des couloirs de cisaillement qui sont postérieurs aux nourrissages des quartz. Cette chronologie des événements diagénétiques est en faveur d'une circulation de ces solutions postérieurement à l'enfouissement maximal des sédiments, c'est-à-dire durant un épisode de remontée du bassin.

Sur le pourtour du dôme se manifeste un contrôle structural du type *exceptionnel* où les déformations provoquent une bréchification des grès du C1f et C1g. C'est sans doute dans ces niveaux bréchiques, où les circulations ont été favorisées, que les reconcentrations d'uranium ont été maximales. Les teneurs atteintes sont de l'ordre de 20%. Des phénomènes de *dissolution et de mobilisation de silice* localisés dans ces zones de fracturation et de cisaillement ont pu encore augmenter ces teneurs en uranium. Dans ce cas, il est possible que le seuil de criticité nécessaire au déclenchement des réactions nucléaires ait pu être atteint. Le déclenchement des réactions nucléaires provoque alors un bombardement neutronique déstructurant les minéraux dans le cœur du réacteur et dans son voisinage et entraîne une solubilisation massive de la silice, phénomènes qui sont à l'origine de la formation du *faciès pile* [23, 26].

REFERENCES

[1] WEBER, F., Une série précambrienne du Gabon: le Francevillien; sédimentologie, géochimie; Relation avec les gîtes minéraux associés, Mém. Serv. Carte Géol. Als. Lorr. 28 (1968) 328 p.

[2] WEBER, F., BONHOMME, M., «Données radiochronologiques nouvelles sur le Francevillien et son environnement», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 17.

[3] GAUTHIER-LAFAYE, F., Oklo et les gisements d'uranium du Francevillien: aspects tectonique et métallogénique, Thèse 3^{e} cycle, Strasbourg (1977) 81 p.

[4] BONHOMME, M., WEBER, F., FAVRE-MERCURET, R., Age par la méthode rubidium-strontium des sédiments du Bassin de Franceville (République du Gabon), Bull. Serv. Carte Géol. Als. Lorr. 18 4 (1965) 243–52.

[5] BOULADON, J., WEBER, F., WEYSSET, Cl., FAVRE-MERCURET, R., Sur la situation géologique et le type métallogénique du gisement de manganèse de Moanda près de Franceville (République du Gabon), Bull. Serv. Carte Géol. Als. Lorr. 18 4 (1965) 253–76.

[6] DUNOYER de SEGONZAC, G., Les minéraux argileux dans la diagenèse, Passage au métamorphisme, Mém. Serv. Carte Géol. Als. Lorr. 29 (1969).
[7] OPENSHAW, R., et al., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/9.
[8] VANDERBROUCKE, Mireille et al., Ibid., IAEA-TC-119/10.
[9] CASSOU, A.M., CONNAN, J., CORREIA, M., ORGEVAL, J.-J., «Etudes chimiques et observations microscopiques de la matière organique de quelques minéralisations uranifères», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 195.
[10] CHAUVET, R.J., «Description du gisement d'uranium d'Oklo», Ibid., p. 53.
[11] GEFFROY, J., LISSILOUR, J., Etude microscopique des minerais d'Oklo., Bull. Inf. Sci. Tech. (Paris) n° 193 (1974).
[12] WEBER, F., GEFFROY, J., LE MERCIER, Marcelle, «Synthèse des études minéralogiques et pétrographiques des minerais d'Oklo, de leurs gangues et des roches encaissantes», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 173.
[13] GEFFROY, J., «Etude microscopique des minerais uranifères d'Oklo», Ibid., p. 133.
[14] GAUTHIER-LAFAYE, F., RUHLAND, M., WEBER, F., «Analyse tectonique du gisement d'Oklo», Ibid., p. 103.
[15] RUHLAND, M., GAUTHIER-LAFAYE, F., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/38.
[16] PFIFFELMANN, J.-P., «L'uranium dans le bassin de Franceville», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 37.
[17] BESNUS, Y., Etude géochimique comparative de quelques gisements supergènes de fer, Thèse, Strasbourg (1977) 197 p.
[18] BESNUS, Y., MOSSER, Ch., Les groupes à intercorrélations positives: une méthode statistique pour déterminer la répartition des éléments chimiques entre les traces constitutives d'une roche, C.R. Hebd. Acad. Sci., Sér. D, 283 (1976) 587–90.
[19] GEFFROY, J., CESBRON, F., LAFFORGUE, P., Données préliminaires sur les constituants profonds des minerais uranifères et vanadifères de Mounana (Gabon), C.R. Hebd. Acad. Sci., Sér. D 259 (1964) 601–3.
[20] NAUDET, R., FILIP, A., «Etude du bilan neutronique des réacteurs naturels d'Oklo», Le phénomène d'Oklo, (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 527.
[21] KREJCI-GRAFF, K., «Trace metals in sediments, oils, and allied substances», The Encyclopedia of Geochemistry and Environmental Sciences (Fair Bridge, R.W., Ed.) IV A (1972) 1201–9.
[22] GAUTHIER-LAFAYE, F., «Suivi géologique de l'exploitation des réacteurs naturels d'Oklo», Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/3.
[23] GAUTHIER-LAFAYE, F., WEBER, F., «Etudes minéralogiques et pétrographiques effectuées à Strasbourg sur les réacteurs naturels d'Oklo», Ibid., IAEA-TC-119/8.
[24] NAUDET, R., FILIP, A., RENSON, C., «Distribution détaillée de l'uranium à l'intérieur des amas», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 83.
[25] GRANGER, H.C., WARREN, C.G., Unstable sulfure compounds and the origin of rolltype uranium deposits, Econ. Geol. 64 (1969) 160–71.
[26] WEBER, F., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/24.

Annexe

PLANCHE 1

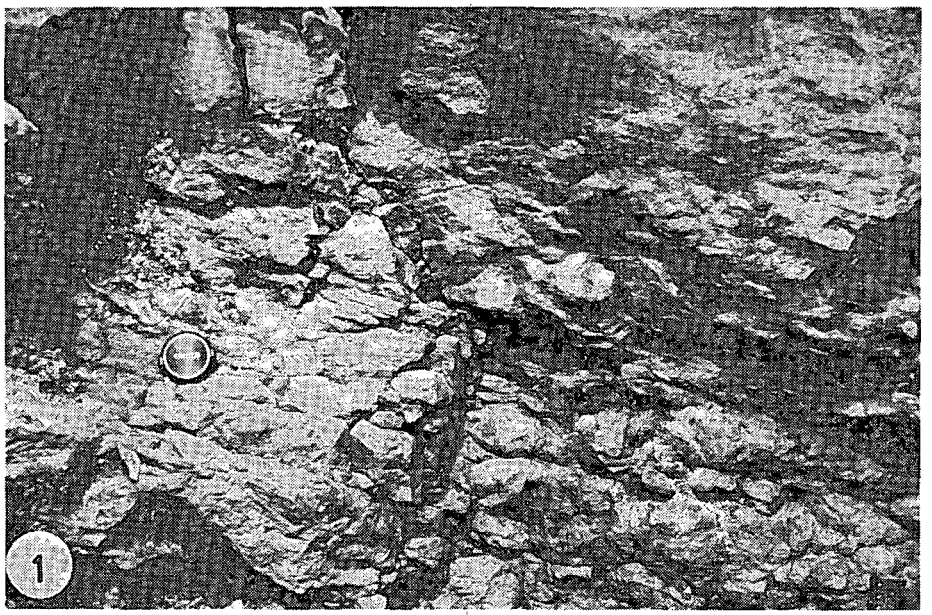


PHOTO 1. Brèche tectonique au niveau du profil y = + 90 de la carrière d'Oklo.

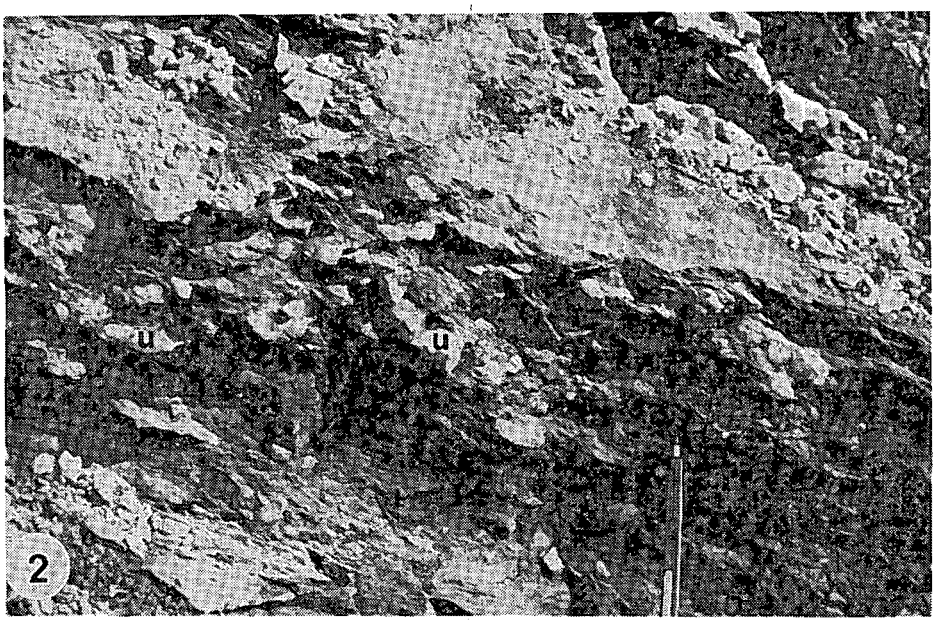


PHOTO 2: Détail du faciès pile sur le front du 11 janvier 1976 situé en zone de réaction 2 (U: uraninite).

PLANCHE 2

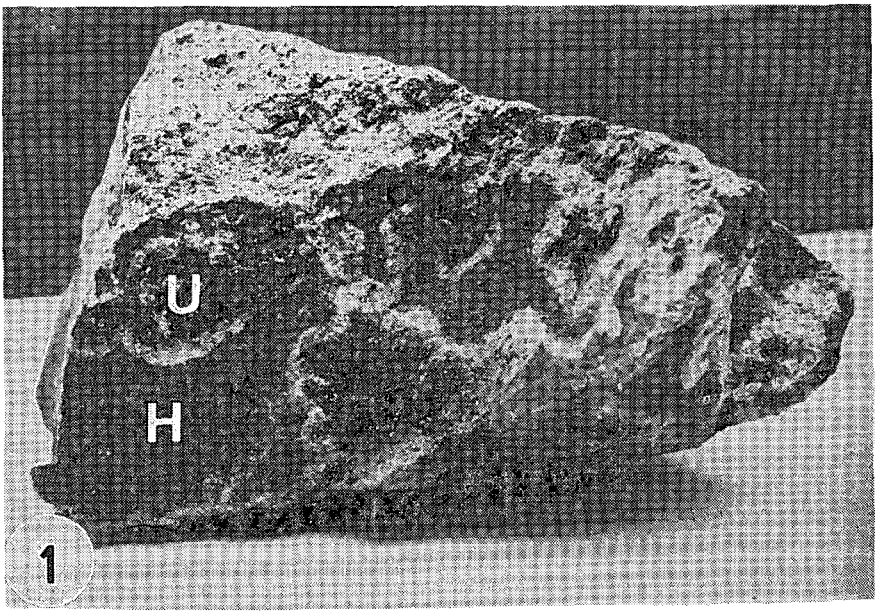


PHOTO 1. Grès «riche» d'Oklo à taches hématiteuses. Les zones riches en uranium (U) sont séparées des zones hématiteuses (H) par un liseré blanc.

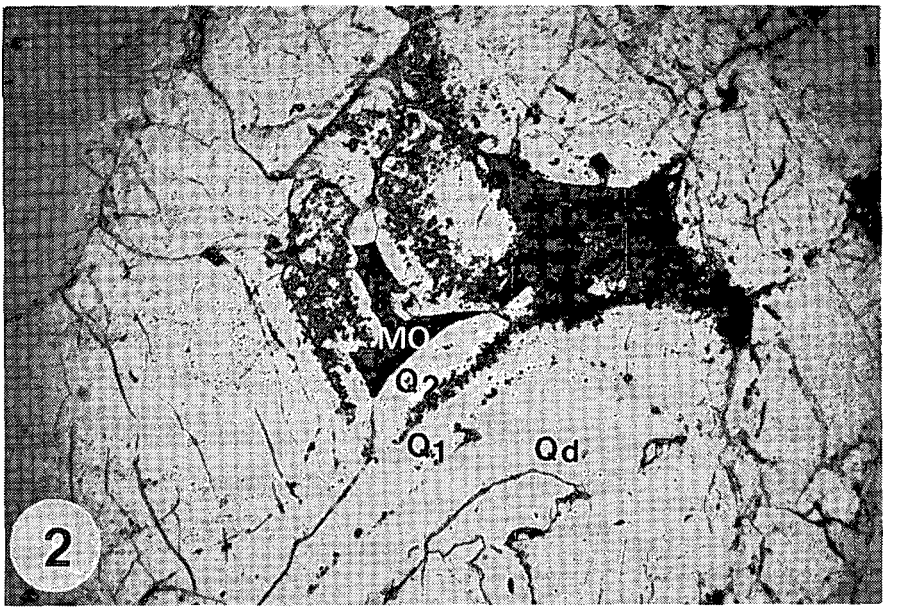


PHOTO 2. Lame mince. LP X 12. Sondage OK 23, cote 426,00. Les silicifications successives sont marquées par des liserés d'opaques dans les auréoles de nourrissage (Q1 et Q2) des grains de quartz (Qd). Remarquer deux épisodes à opaques (MO: matière organique).

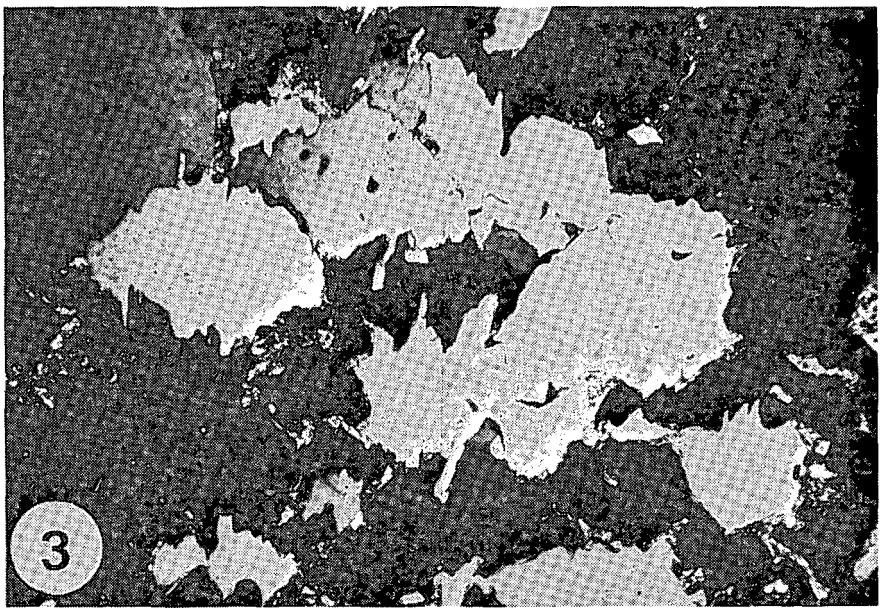


PHOTO 3. Lame mince. LPA X 30. Sondage OK 23, cote 498,10. Stylolites dans un grès grossier. Remarquer l'allongement des grains de quartz perpendiculairement aux joints stylolitiques.

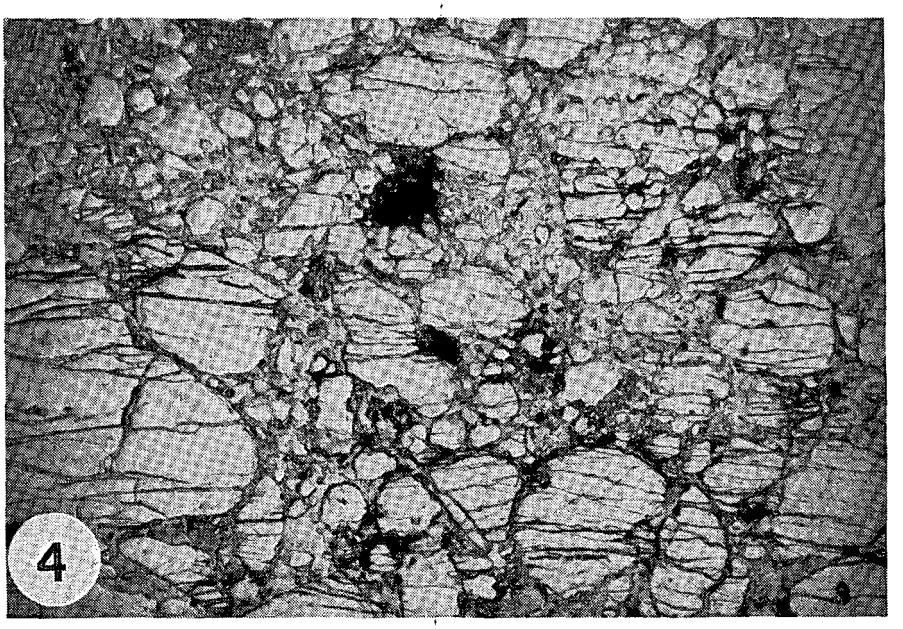


PHOTO 4. Lame mince. LP X 12. Echantillon GL 2231. Front du 30 septembre 1976. Fracturation très dense dans un grès moyen minéralisé. Les fractures sont colmatées d'hématite, d'uranium et de sulfures.

PLANCHE 3

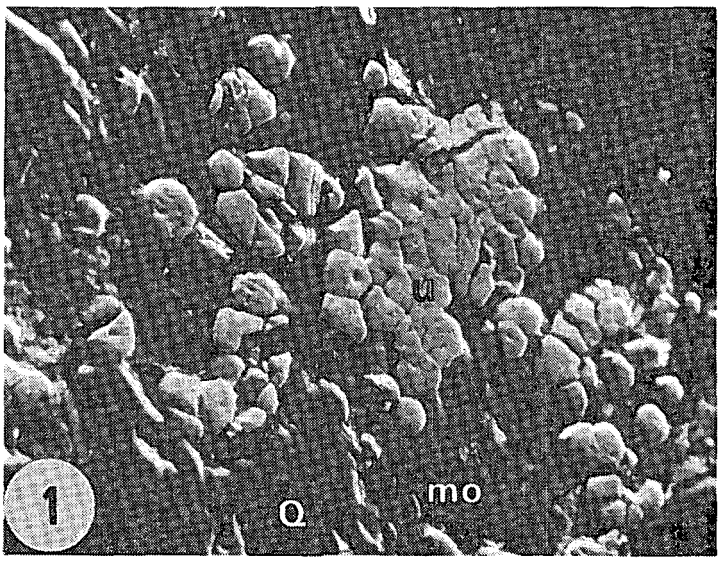


PHOTO 1. MEB X 350. Sondage KN 206, cote 319,80. Amas d'uranium (U) en inclusion dans la matière organique (MO) (Q: quartz).

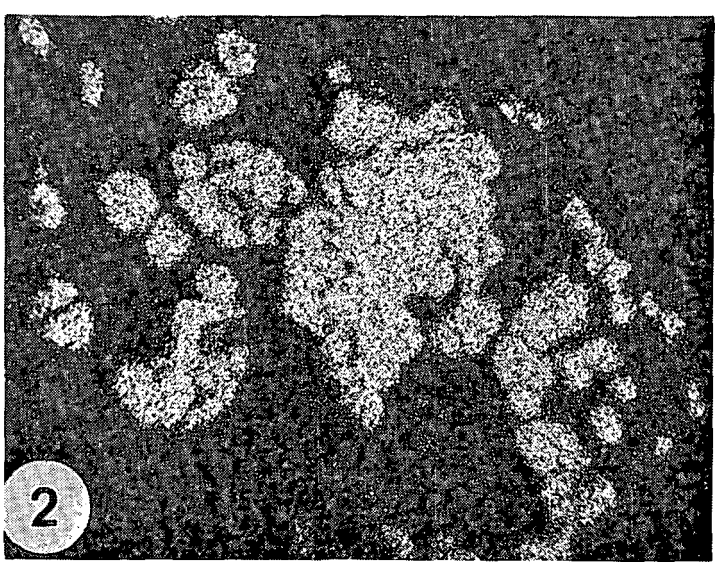


PHOTO 2. Carte de distribution de l'uranium correspondant à la photo 1.

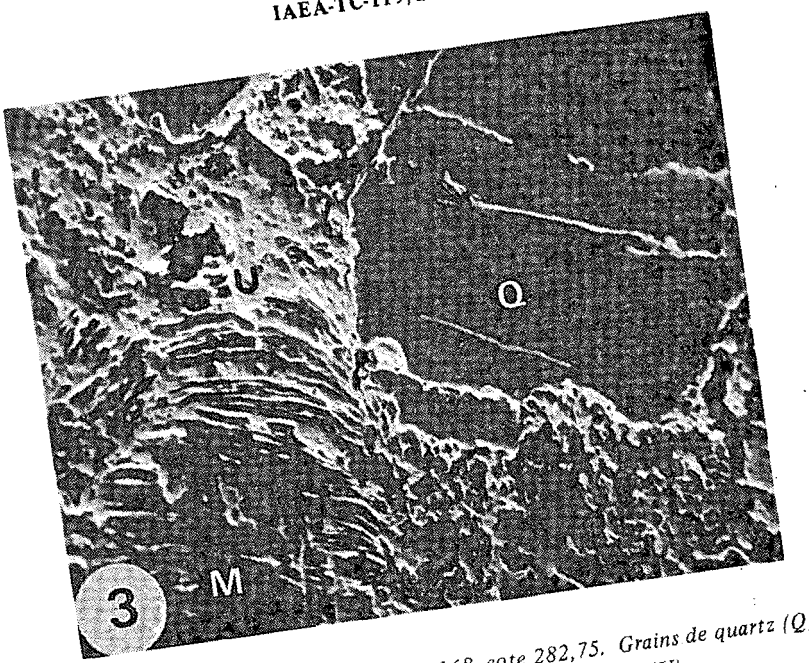


PHOTO 3. MEB X 350. Sondage KN 168, cote 282,75. Grains de quartz (Q) et muscovite (M) dans une zone de fracturation riche en uranium (U).

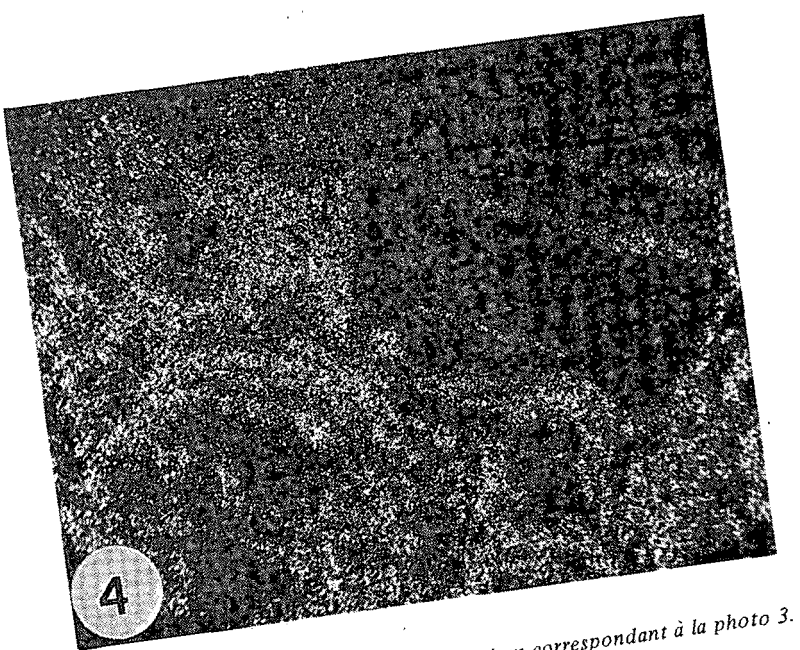


PHOTO 4. Carte de distribution de l'uranium correspondant à la photo 3.

DISCUSSION

B. POTY: Est-il possible d'établir une chronologie de la formation du dôme, du dressant et du crochon, ou bien ces trois plis se sont-ils formés durant un même épisode?

F. GAUTHIER-LAFAYE: A Oklo, trois types de phases tectoniques doivent être différenciés. La première est une tectonique synsédimentaire qui s'exprime dès le sommet du FA et qui a dû se poursuivre durant toute la sédimentation. Cette tectonique a structuré les bassins de sédimentation et marque déjà la grande flexure subméridienne qui borde la boutonnière de Mounana. La deuxième phase tectonique s'est produite sous un enfouissement plus important; elle est caractérisée par les mouvements de coulissage horizontaux. Ces mouvements accentuent la flexure subméridienne kilométrique de Mounana et entraînent la formation des plis souples en crochon, dôme et dressant. Ces trois derniers plis appartiennent certainement au même épisode et au même moteur tectonique. Enfin, le troisième type de tectonique est lié au fonctionnement des réacteurs et se marque par des réajustements (tassements et glissements) dus à la disparition par dissolution des grès de C1.

B. POTY: Dans la carrière d'Oklo, en novembre 1977, on n'observe aucune grande fracture verticale ayant permis d'importantes circulations de fluides et l'établissement d'un régime de pression hydrostatique pour les fluides. De telles fractures ont-elles été observées auparavant durant l'exploitation?

F. GAUTHIER-LAFAYE: Il n'y a pas à Oklo (et il n'y a pas eu) de grandes failles verticales. Mais les couloirs de cisaillement intracouche renferment des brèches tectoniques dont la porosité peut se comparer à celles qui sont associées aux failles verticales. Il est également possible que ces brèches montent assez haut au-dessus des zones de réaction et qu'elles rejoignent des fractions plus superficielles.

B. POTY: Peut-on préciser les relations chronologiques entre la formation du minerai «normal» à matière organique associée et la silicification diagénétique des grès?

F. GAUTHIER-LAFAYE: Les observations pétrographiques ne sont pas suffisamment avancées pour fournir des arguments qui donneraient avec certitude une chronologie de la silicification et de la mise en place des matières organiques.

F. CHANTRET: Une simple remarque concernant la photo 1 de la planche 2: je pense que dans cet échantillon l'hématite est primaire, c'est-à-dire qu'elle a été mise en place avant l'uranium (et la matière organique associée); les auréoles blanchâtres en bordure de ces îlots hématisés correspondent à la réduction locale du Fe^{3+} en Fe^{2+}. Mais il faut s'assurer que l'hématisation n'est pas limitée aux fissures du grès, mais est aussi développée au sein des blocs gréseux, d'où l'intérêt de la situer par rapport à la silicification.

F. GAUTHIER-LAFAYE: Dans cet échantillon, le fer était initialement à l'état réduit dans les pyrites. La circulation de solutions oxydantes a provoqué

l'oxydation de ces pyrites et la précipitation d'hématite dans des zones moins réductrices, c'est-à-dire moins riches en pyrites.

M. PAGEL: En étudiant les indices de cristallinité des illites êtes-vous certain d'obtenir les températures maximales atteintes par les sédiments? Ces illites peuvent avoir subi des réajustements postérieurs lors de la diagenèse carbonatée car il a été mis en évidence (Openshaw et al., IAEA-TC-119/9, présents comptes rendus) que la composition chimique des solutions dans les grès varie considérablement entre la diagenèse siliceuse et la diagenèse carbonatée. Cette remarque comporte également des conséquences pour les études géochronologiques.

F. GAUTHIER-LAFAYE: Dans les zones de la diagenèse profonde et du sommet de l'anchizone, c'est-à-dire dans la zone à illite 1M, il est en effet possible que la chimie du milieu et que la diagenèse à carbonate soient intervenues dans les valeurs de l'indice de cristallinité de l'illite. Cependant, dans le cas des illites 2M, c'est-à-dire des séricites-muscovites, la diagenèse à carbonate ne les aurait certainement pas modifiées.

V.A. PCHELKIN: Pourriez-vous fournir quelques données confirmant le fait que la phase organique est responsable de l'augmentation de la concentration d'uranium? La phase organique n'est-elle pas la cause essentielle de la distribution des isotopes de l'uranium?

F. GAUTHIER-LAFAYE: Dans le minerai entré en réaction, il n'y a plus aucune relation entre la matière organique et l'uranium. Une telle relation n'est évidente que dans le minerai à faible teneur d'Oklo (0,2 à 0,5%). Dans le minerai de type 2 où l'uranium a une teneur de 5 à 25%, la relation entre matière organique et uranium n'existe également plus (ou est de toute façon mineure). Dans ce dernier cas, nous pensons plutôt que ce sont des mécanismes d'oxydo-réduction, faisant intervenir des circulations de solutions oxydantes conduisant à l'oxydation des pyrites, qui sont à l'origine des surconcentrations amenant localement des teneurs suffisantes pour atteindre le seuil de criticité nécessaire au déclenchement des réactions. Ensuite, ce sont essentiellement les solutions chauffées par les réacteurs nucléaires qui sont à l'origine de la formation, dans son état actuel, du «minerai pile» par dissolution massive des grès minéralisés appartenant au minerai du type 2.

SUIVI GEOLOGIQUE DE L'EXPLOITATION DES REACTEURS NATURELS D'OKLO

F. GAUTHIER-LAFAYE
Université Louis Pasteur,
Institut de géologie,
Centre de sédimentologie et de géochimie
de la surface (CNRS),
Strasbourg, France

Résumé–Abstract

SUIVI GEOLOGIQUE DE L'EXPLOITATION DES REACTEURS NATURELS D'OKLO.

La portion des réacteurs naturels d'Oklo qui était en place après leur découverte a été exploitée entre septembre 1975 et février 1977. Dans les zones de réaction, 27 fronts de taille et 8 affleurements ont été relevés en détail et échantillonnés, 1700 échantillons environ ont été prélevés. Ces levés ont été l'occasion de nombreuses observations sédimentologiques, pétrographiques et tectoniques.

GEOLOGICAL FOLLOW-UP OF THE MINING OF THE OKLO NATURAL REACTORS.

The part of the Oklo natural reactors which was still in place after their discovery was mined between September 1975 and February 1977. In the reaction zones 27 faces and 8 outcrops have been surveyed in detail and sampled, approximately 1700 samples having been taken. In the course of these surveys a large number of sedimentological, petrographic and tectonic observations have been made.

INTRODUCTION

La reprise des travaux d'extraction du minerai dans la partie nord du gisement d'Oklo, qui contient les réacteurs nucléaires, a débuté en septembre 1975 et s'est achevée en février 1977. Actuellement il ne reste plus sur le terrain qu'une portion de la zone de réaction 2, ancrée sur le parement ouest de la carrière.

Le suivi géologique durant l'exploitation des «réacteurs» a permis de relever 27 fronts de taille et 8 affleurements à la sole, et de prélever environ 1700 échantillons. A cette occasion, de nombreuses observations géologiques ont pu être effectuées. Elles ont permis de préciser la forme et la géométrie des réacteurs et d'étudier leur contexte sédimentologique, stratigraphique et tectonique.

Présentation des réacteurs

Les réacteurs nucléaires d'Oklo se répartissent selon quatre zones numérotées, du nord au sud, 1, 2, 5-6 et 3-4 (fig. 1).[1] Ces zones s'étendent sur une longueur totale de 140 m et se disposent autour d'une large voussure anticlinale appelée *dôme* par les mineurs [1].

Elles sont limitées au sud par le flanc vertical du dôme et au nord par un système de fractures majeures orientées N 170° (Dg).

Sur le terrain, les réacteurs se caractérisent par la présence d'un niveau fortement enrichi en UO_2 appelé *faciès pile* et dont la teneur en uranium est de 30 à 50%. C'est dans ce type de faciès que se sont déroulées les réactions de fission. Le faciès pile est toujours entouré d'une gangue argileuse formant les épontes et appelée *argile de pile*. Les argiles et le faciès pile sont plus ou moins concordants avec les plans de stratification et se trouvent toujours en position stratigraphique équivalente à la *couche C1* classique du gisement d'Oklo [2].

L'épaisseur totale de la gangue argileuse et du faciès pile varie entre 0,2 et 3 m et leur longueur peut atteindre 15 à 20 mètres suivant les zones.

A l'œil nu, les argiles de pile sont généralement compactes, très homogènes, de couleur verte ou noire et totalement dépourvues de quartz. A proximité du faciès pile, aucune structure sédimentaire ni aucun litage ne sont apparents. Ces derniers n'apparaissent qu'à 1 m à 1,50 m des passées entrées en réaction. Sur le terrain, la distinction entre argile de pile et faciès pile répond essentiellement à un critère de radioactivité. Celle-ci passe en effet très rapidement de 20 000 coups/s dans les argiles à plus de 80 000 dans le faciès pile sur quelques centimètres.

L'observation macroscopique permet de constater que le faciès pile est constitué d'amas d'uraninite englobés dans une matrice argileuse présentant très fréquemment des taches hématiteuses.

La proportion d'argile et de grès dans la couche C1 amène à différencier deux types de zones de réaction. Ce sont, d'une part celles dont les argiles constituent l'essentiel de la couche C1 et qui sont représentées par les zones 1 et 2, et d'autre part les zones à environnement plus gréseux correspondant aux réacteurs 3-4 et 5-6.

Localisation des fronts de taille et des affleurements à la sole

Les fronts de taille et les affleurements à la sole se répartissent de la façon suivante (fig. 1):

---

[1] Voir en annexe les douze figures mentionnées dans le texte ainsi que d'autres relevés géologiques de fronts de taille et affleurements.

Zone de réaction 1 (fig. 1A)

En zone de réaction 1, cinq fronts de taille ont été étudiés. Ce sont les fronts 108, 111, 116, du 8.9.75 et de la *minipile.* Ce dernier front a été relevé en 1974 [1].

Un affleurement situé à la cote 373,5 a également été relevé par Weber en 1973. Le mauvais état du terrain a cependant limité les observations géologiques et l'échantillonnage.

Zone de réaction 2 (fig. 1B)

En zone de réaction 2 on dispose de neuf fronts de taille numérotés 95, 96, 97, 99, 100, 101, du 10.1.76, 11.1.76 et du 30.1.76.

Les fronts 95-100, 96-101 et 97-99 constituent respectivement les faces sud, nord et est de la portion de zone 2 conservée. Les fronts du 10.1.76, 11.1.76 et du 30.1.76 se situent plus en aval. Le front du 10.1.76 est une coupe inclinée à 45°.

Un affleurement à la sole (n° 1) a également fait l'objet d'un échantillonnage à maille serrée. A cet affleurement doit s'ajouter un relevé effectué par Weber en 1973 [3] à la cote 368 et qui correspond à la sole de la zone 2 conservée.

Zone de réaction 3-4 (fig. 1C)

En zone de réaction 3-4, on dispose de six fronts de taille numérotés 122, 123, 127, 128, 166 et 185 et de trois affleurements à la sole, 3, 5 et 7.

Zone de réaction 5-6 (fig. 1D)

En zone de réaction 5-6, il a été relevé les fronts 119, 124, 125, du 29.9.76 et du 30.9.76 et quatre affleurements à la sole, 1, 2, 4 et 6.

Hors des zones de réaction

En dehors des zones de réaction, quatre fronts de taille, numérotés 112, 120, 129 et du 24.1.76, ont été étudiés. A ces coupes s'ajoute un front de taille relevé en 1974 et situé entre les zones de réaction 1 et 2 [1]. Les affleurements 1, 6 et 7 se prolongent également en dehors des zones de réaction et l'affleurement 8 se situe en aval des zones 3-4 et 5-6.

Méthodes de travail

Etude des fronts de taille

Dans la carrière d'Oklo, le minerai est extrait après un tir à l'explosif, par tranches de 3 m d'épaisseur et de 20 à 30 m de longueur. Ces tranches se relaient dans le sens N-S et les fronts de taille constituent leur extrémité nord.

Chaque front de taille a été photographié au Polaroïd et en diapositive couleur 24 X 36. Un levé géologique et un plan compteur au 1/20 ont ensuite été effectués pour chacun d'eux (voir annexe).

La position des fronts de taille a été obtenue par des relevés de points topographiques qui ont été reportés en coordonnées x-y-z sur une grille établie par la COMUF. Cette grille est identique à celle qui est utilisée pour l'implantation des sondages SC et KN.

L'échantillonnage des fronts de taille a été effectué de deux façons différentes suivant qu'il intéressait des études géologiques ou physiques.

Les échantillons géologiques ont été soit spécifiquement choisis pour des études bien définies (études minéralogiques, géochimiques, études des matières organiques, des inclusions fluides, etc.), soit prélevés plus systématiquement dans chaque faciès caractéristique de la coupe étudiée.

Les échantillons prélevés en vue d'études sur la physique des réacteurs se cantonnent dans le faciès pile et ses épontes immédiates. Dans ce cas la maille d'échantillonnage peut être de 5 à 2 cm suivant les coupes.

Etude des affleurements à la sole

L'exploitation du minerai par tranches de 3 m a permis d'effectuer de nombreuses observations géologiques et un échantillonnage très continu sur des surfaces horizontales situées à différentes cotes. Pour les trois premiers affleurements, les déblais trop importants ont cependant limité les observations géologiques et ont contraint à prélever les échantillons en creusant des tranchées. En général, sur ces affleurements, les échantillons ont été prélevés à une maille de 25 cm dans les zones de réaction et de 50 cm à l'extérieur.

Pour les affleurements 4, 5, 6 et 7, des levés géologiques ont été effectués. Ils sont donnés en annexe. Les échantillons sont également prélevés avec une maille de 25 à 50 cm. Dans certains cas des coupes transversales ont également pu être échantillonnées. Tous ces échantillons sont reportés sur les levés géologiques.

DESCRIPTION DES ZONES DE REACTION

Zone de réaction 1

Lors de la découverte des réacteurs nucléaires à Oklo, la zone de réaction 1 s'étendait des profils $x = -13$ à -30 et $y = +60$ à $+70$ entre les cotes 373,5 et 366,50. La reconstitution amont de cette zone, c'est-à-dire au-dessus de la cote 373,50, a montré qu'environ la moitié de ce réacteur avait déjà été exploitée avant le «gel» de la carrière en 1972 et qu'elle pouvait se prolonger jusqu'au profil $y = -46$ à la cote 381,5.

Front de taille type 111 (fig. 2)

Sur ce front de taille, orienté suivant une direction N 40°,[2] trois compartiments présentant des successions lithologiques différentes doivent être distingués.

Dans le compartiment occidental, après les pélites du mur, viennent 15 cm de grès fins, noirs, auxquels succèdent 40 à 60 cm d'argile de pile verte à filonnets de kaolinite. Ces argiles sont surmontées de 20 cm de grès fins argileux, noirs, très cisaillés, qui présentent le maximum de radioactivité.

Le compartiment central montre une épaisse masse d'argile de pile verte et noire, à filonnets de kaolinite et à taches hématiteuses. Ces argiles contiennent le faciès pile. De fines passées (5 cm) argileuses noires, riches en matière organique, peuvent s'intercaler dans ces argiles de pile ou former des lentilles. Un ensemble gréso-conglomératique présentant un faciès rouge et noir et correspondant aux épisodes C1f et C1g recouvre l'ensemble.

Enfin, dans le compartiment oriental, on peut observer, de la base vers le sommet, les grès fins pélitiques du mur de l'épisode C1a-b, surmontés des grès et conglomérats des épisodes C1c-d-e, C1f et C1g.

D'un point de vue tectonique ce front de taille montre deux types de structures qui sont:

- une flexure-faille N 120° affectant les compartiments est et ouest; cette flexure abaisse les compartiments est et se bloque sur des fractures N 120° à 140° dextres;
- un pli serré dont l'axe est orienté N 80°; ce pli affecte les argiles et le faciès pile et présente des images de bourrage dans la charnière avec épaississement du faciès pile.

Fronts de taille 108, 116, du 8.9.75 et de la minipile

Les fronts 108 et 116 présentent les mêmes caractéristiques lithologiques et tectoniques que celles décrites pour le front 111. On remarquera cependant que sur ces deux coupes, les argiles de pile sont encore plus développées puisque les grès moyens et conglomérats de la couche C1 n'existent plus et qu'elles sont directement surmontées des pélites noires du FB. Sur la coupe 116, située en aval de la zone 1, quelques fines passées de grès moyens subsistent cependant entre les grès fins du mur et les argiles de pile.

D'un point de vue structural, on retrouve sur le front 108 le même découpage des argiles et du faciès pile suivant une direction N 140° et sur le front 116, un pli souple affectant les argiles de pile.

Le report sur stéréogramme (fig. 3) des différents axes mesurés sur les fronts de taille 108, 111 et 116 montre qu'ils se dispersent sur un plan correspondant au

---

[2] Toutes les directions sont mesurées par rapport au nord magnétique.

plan de stratification. Cette dispersion des axes s'interprète comme étant due au glissement des argiles de pile dans la ligne de plus grande pente des couches.

Les fronts de taille du 8.9.75 et de la minipile présentent des images très différentes. Ici, les argiles et le faciès pile, très peu épais, se localisent dans des zones d'interruption tectonique du conglomérat C1g. La minipile, décrite en 1975 [1], s'interprète comme une zone bréchique, concordante avec le conglomérat C1g (ou conglomérat intercalaire) et limitée par des systèmes de fracture orientés en N 140°.

La même disposition et la même interprétation peut être faite pour les argiles bréchiques de la coupe du 8.9.75, correspondant sans doute à la terminaison nord de la minipile.

Géométrie de la zone de réaction 1

L'analyse des fronts de taille et l'étude des sondages, particulièrement nombreux dans la zone de réaction 1, permettent de proposer une géométrie relativement précise de cette zone.

Les différentes coupes montrent toutes un découpage de la zone de réaction suivant des accidents orientés en N 140°, le long desquels on observe en général un effondrement des compartiments NE avec une composante horizontale dextre (le compartiment NE se déplace vers le SE). La composante verticale s'accompagne de flexures, donnant l'allure crochonnée au réacteur, ou de plis souples à plans axiaux faiblement pentés dans les argiles et le faciès pile.

La position des sondages renfermant des passées riches ($UO_2 > 30\%$) ou montrant des appauvrissements importants amène à découper la zone de réaction en compartiments d'orientation N 140° et plus ou moins décalés vers le SE. Les limites N et S de ces compartiments sont orientées suivant une direction N 100° correspondant au système de fracture Dd associé au dôme. L'aval de la zone 1 (limite E) se ferme sur une fracture orientée N 0 à N 20° observée sur le front 116. Elle est interprétée comme appartenant au système de fracture Dg.

En amont de la cote 373,5, les limites du réacteur ont été dessinées en extrapolant les données obtenues par l'étude à l'aval de cette zone et en tenant compte des sondages percutants effectués antérieurement à l'exploitation de cette portion du réacteur. L'orientation et les positions de ces limites, dans cette zone du réacteur, restent donc encore très imprécises. On remarquera cependant que ce découpage relie la minipile à la zone de réaction 1 et qu'il tient compte des différentes directions tectoniques relevées sur cette coupe.

Zone de réaction 2

Lors de la reprise de l'exploitation au nord de la carrière en septembre 1975, la zone de réaction 2, partiellement exploitée, s'étendait des profils x = 0 à + 20 et y = + 30 à + 50 entre les cotes 368 et 357.

Front de taille type du 11.1.76 (fig. 4)

Le front de taille du 11.1.76 présente deux compartiments d'orientation différente (fig. 4): un compartiment occidental orienté N 85° et un compartiment oriental orienté N 120°.

Dans le compartiment occidental, le conglomérat et les grès fins du mur sont directement surmontés de 2 à 3 mètres d'argile de pile contenant le faciès pile. Une lentille de grès fins à moyens, verts, désilicifiés et présentant de nombreux plans de cisaillement s'intercale dans ces argiles qui sont ensuite directement surmontées de pélites noires du FB, fortement plissées suivant des axes N 145°.

Le compartiment oriental du front présente les conglomérats et grès du C1g et du C1h formant un miroir de décrochement majeur orienté N 130° et porteur de stries dextres subhorizontales. Ce décrochement, passant au nord du compartiment occidental, constitue la limite NE des argiles et du faciès pile.

Le faciès pile se présente sous forme de deux passées de 15 à 35 cm, flexurées et discontinues, qui débutent et s'interrompent sur des flexures-failles subméridiennes.

Les argiles de pile, particulièrement bien développées dans cette zone, présentent plusieurs aspects différents suivant leur distance au faciès pile. D'abord noires et très homogènes sur 40 cm, elles deviennent vertes, sans traces de structure sédimentaire, sur 10 à 20 cm.

Au mur, ces argiles peuvent présenter un litage plus ou moins bien marqué par l'alternance de fines passées vertes ou noires. L'observation microscopique confirme la présence d'un ancien litage sédimentaire [4].

Enfin, notons que l'équivalent des grès fins du mur, au contact avec ces argiles, est totalement dépourvu de quartz sur 50 à 60 cm. Ces sédiments, par leur couleur noire et leur litage en niveaux de 5 à 10 cm d'épaisseur, ont cependant conservé l'aspect de grès fins.

Fronts de taille 95-100, 96-101, 97-99 et du 10.1.76

Les fronts de taille renfermant du faciès pile (fronts 97-99 et du 10.1.76) présentent la même succession lithologique et les mêmes structures tectoniques que celles qui ont été observées sur le front du 11.1.76. Sur le front 97-99, on remarquera en particulier l'intense plissement des pélites noires du FB, et sur la coupe du 10.1.76 l'interruption des argiles et du faciès pile sur les conglomérats du C1f et C1g qui forment ici un plan de décrochement majeur de direction N 150°.

Les fronts 95-100 et 96-101, correspondant respectivement aux faces N et S de la portion de zone 2 conservée, n'ont pas recoupé de faciès pile à l'exception du front 100, sur une très faible puissance et à l'extrémité E des argiles de pile. Sur ces fronts de taille, situés en bordure de la zone 2, les grès de la couche C1 réapparaissent et sont particulièrement bien développés sur les fronts 96-101. Sur les coupes 95-100, plus proches du réacteur, les argiles de pile sont encore puissantes d'environ 1 m et les grès et conglomérats forment des «noyaux» plus ou moins discontinus.

Géométrie de la zone de réaction 2

La géométrie de la zone de réaction 2 est essentiellement commandée par les systèmes de fractures transversales (T) de direction N 140° qui découpent la zone en compartiments plus ou moins larges. De tels compartiments sont visibles sur les fronts du 11.1.76 et du 30.1.76. Comme pour la zone de réaction 1, ces accidents sont associés à l'effondrement des compartiments NE et à une composante horizontale dextre. La composante verticale des mouvements s'accompagne de glissements sur couches dans la ligne de plus grande pente qui flexurent les argiles et le faciès pile. Il est également possible que ces glissements soient à l'origine du dédoublement du faciès pile sur le front du 11.1.76. Enfin, les plis serrés observés dans les pélites du FB sur les fronts 97-99 et du 11.1.76 traduisent également un raccourcissement suivant des directions subméridiennes et NE-SW.

Les compartiments d'orientation N 140° sont limités au NW et au SE par des fractures N 40° à N 60° visibles sur les fronts 97-99 et du 10.1.76. Ce type de fracture appartient au système L du dôme. La position des sondages renfermant ou non du faciès pile est en bon accord avec ce type de découpage.

Zone de réaction 5-6

Le suivi géologique des zones de réaction a permis de montrer que les zones 5 et 6, qui avaient été différenciées lors de la campagne de sondages de reconnaissance avant juin 1975, peuvent en fait se regrouper en une seule zone maintenant appelée zone 5-6. Cette zone de réaction s'étend des profils x = + 30 à + 45 et y = + 30 à − 7,5 entre les cotes 357 et 340.

Front de taille type du 30.9.76 (fig. 5)

Sur le front de taille du 30.9.76 on retrouve les différents épisodes stratigraphiques C1a à C1h de la couche C1 définis dans le gisement «normal» d'Oklo. Seul l'épisode C1i n'est pas représenté.

Au sommet des grès du C1f, s'intercale de 0,4 à 1,50 m d'argile de pile renfermant en son centre une passée de 0,30 à 0,40 m de faciès pile. Dans le faciès pile, le maximum d'appauvrissement est généralement situé dans un joint plus argileux qui emprunte l'axe de ce faciès et dans lequel on observe une chute de teneur en uranium.

Le faciès pile est flexuré suivant un axe subméridien. Vertical au sommet du front, il s'infléchit en effet jusqu'à un pendage de 45° E, concordant avec les plans de stratification. Vers le bas, il s'arrête sur une fracture orientée N 160°, 75° E et présente à ce niveau le maximum de radioactivité. En aval de cette fracture, une argile noire et rouge (hématite), renfermant quelques «nodules» d'uranium dispersés, fait suite au faciès pile.

Les argiles d'épontes sont dépourvues de quartz; aucune structure sédimentaire n'y est observable. Au sommet du front, là où elles sont les plus épaisses (1 à 40 m), les argiles sont vertes et présentent un aspect très homogène. Leur contact avec les grès encaissants se fait par l'intermédiaire de fractures subverticales et pratiquement sans aucune transition. Dans la zone où le faciès pile se ferme, les argiles s'amincissent (0,40 m) et changent d'aspect. Elles perdent en effet leur couleur verte pour devenir grises ou noires et acquièrent un débit «feuilleté». Vers l'aval, elles butent sur les grès moyens, silicifiés, très cisaillés, appartenant au C1f. Ces grès peuvent se retrouver dans les argiles d'éponte sous forme de blocs isolés et également cisaillés de 5 à 30 cm.

Les conglomérats et grès encaissant les argiles de pile présentent deux faciès bien distincts. Ce sont:

- un faciès noir à taches hématiteuses, peu à pas silicifié, et présentant des indices de cisaillement importants; ce faciès se cantonne au toit du faciès pile et des argiles;
- un faciès noir, très silicifié et peu cisaillé, surmontant les grès précédents, ou constituant le mur des argiles; dans ce dernier cas, ces grès présentent de très nombreuses fentes d'ouverture colmatées par de la silice; ces fentes sont soit concordantes aux plans de stratification, soit perpendiculaires aux couches.

Ces deux faciès appartiennent respectivement au minerai *riche* du type 2 et *pauvre* du type 1 définis à Oklo [5].

Fronts de taille 119, 124, 125 et du 29.9.76

Les coupes 119 et 124 sont particulièrement intéressantes par le fait qu'elles visualisent l'ouverture amont de la zone de réaction.

Sur la figure 6, ces deux fronts de taille, relativement proches l'un de l'autre, ont été superposés. Les grès de la couche C1 s'interrompent sur une fracture majeure subméridienne à l'est de laquelle se situent les argiles et le faciès pile directement surmontés des pélites noires, plissées, du FB. Au sein des argiles de pile subsiste un niveau de grès moyen à conglomératique présentant un débit feuilleté. Ces grès sont affectés de plans de cisaillement parallèles aux couches et auxquels sont associés une fracturation en système synthétique R et antithétique R′ de Riedel. Des brèches tectoniques longent les plans de cisaillement majeurs.

A 3 m au sud du front du 30.9.76, la coupe du 29.9.76, située plus au centre de la zone de réaction, présente une grande puissance d'argiles de pile, qui sont ici directement surmontées des grès du C1h. Le faciès pile est également flexuré suivant un axe subméridien. Enfin, le front 125, situé à l'extrémité N de la zone de réaction, renferme 3,50 m d'argiles reposant directement sur les grès fins du mur et surmontés des grès rapportés au C1h.

Affleurements à la sole 4 et 6

Les affleurements 4 et 6 montrent l'aspect très discontinu et sinueux du faciès pile. Sur ces deux affleurements, les argiles et le faciès pile sont encadrés de grès du C1 et sont toujours limités par des accidents tectoniques correspondant soit aux fractures Dg, soit au système L du dôme. Ces mêmes systèmes de fracture peuvent parfois décaler latéralement ou isoler des amas de faciès pile (profil $y = +4$ des affleurements 4 et 6). Dans l'affleurement 6, lorsque le faciès pile s'amincit ou disparaît, la gangue argileuse diminue également d'épaisseur en même temps que les grains de quartz réapparaissent dans un faciès gréseux, vert, friable et très argileux. Comme pour le front du 30.9.76, les grès encaissant les argiles d'éponte appartiennent au minerai *riche* d'Oklo de type 2. Ils sont toujours désilicifiés à proximité des argiles de pile et présentent également très souvent un débit feuilleté associé à des zones de cisaillement.

Géométrie de la zone de réaction 5-6

L'analyse des fronts de taille et des affleurements à la sole a montré que les formes et les limites des argiles et du faciès pile sont guidées par les systèmes de fracture Dg et L du dôme.

Les limites de cette zone de réaction dessinées sur la fig. 1D tiennent compte de ces observations et de la position des sondages renfermant des passées fortement minéralisées ($UO_2 > 30\%$) ou présentant un appauvrissement en ^{235}U relativement important ($< 0{,}710$).

Dans la partie sud de la zone de réaction, entre les profils $y = +10$ et $y = -7{,}5$, les données relativement nombreuses montrent que les fractures L sont souvent associées à une disparition plus ou moins complète du faciès pile et qu'elles découpent cette portion du réacteur en trois compartiments.

Par contre, la partie nord de cette zone de réaction (entre $y = +30$ et $y = +10$) est moins bien connue. Dans cette zone, il est cependant intéressant de remarquer la disparition progressive des grès appartenant aux épisodes C1c-d-e à C1h et leur remplacement par les argiles et le faciès pile qui s'accompagne d'une réduction importante de la couche C1 comme le montre la figure 7.

Zone de réaction 3-4

La zone de réaction 3-4, comme la zone 5-6, résulte du regroupement des zones 3 et 4 qui avaient été différenciées avant la reprise des travaux d'exploitation en septembre 1975.

La zone de réaction 3-4 s'étend sur une longueur de 25 m entre les profils $y = -20$ et $y = -45$, sur une largeur de 18 m entre $x = +25$ et $x = +43$ et une hauteur de 20 m entre les cotes 360 et 340.

Front de taille type 127 (fig. 8)

Comme sur la coupe du 30.9.76 située en zone de réaction 5-6, le front de taille 127 présente tous les épisodes sédimentaires caractéristiques de la couche C1.

Les argiles et le faciès pile sont ici intercalés entre les épisodes C1c-d-e et les grès du C1h et s'interrompent, vers l'aval, contre les grès moyens du C1f et le conglomérat du C1g. Ces grès présentent un faciès caractéristique du minerai riche d'Oklo du type 2 et montrent des indices de cisaillement très importants.

Les argiles et le faciès pile sont flexurés suivant un axe N 60° correspondant à l'axe du dôme. Des fractures N 60° ou fractures longitudinales (L) décalent le faciès pile. Ces décrochements peuvent être rapportés à des mouvements de glissement particulièrement importants dans cette portion du réacteur où les couches sont subverticales.

Fronts de taille 122, 123, 128, 166 et 185

Sur les coupes 122, 166 et 185, les argiles et le faciès pile se localisent dans les niveaux du C1f. Sur la coupe 166, les argiles de pile s'appuient contre une fracture majeure N 50° ou fracture L à laquelle est associée une flexuration des grès sous-jacents. Ce type de fracture se rencontre également sur la coupe 122 où il est alors bordé du faciès pile.

Sur les fronts 123 et 128, situés au nord de la zone de réaction, les argiles et le faciès pile surmontent directement les grès fins du mur (front 128) ou les grès du C1c-d-e (front 123). Ils sont ensuite surmontés des grès du C1h. Les principaux systèmes de fracture relevés sur ces fronts de taille sont du type Dd (N 100°) et Dg (N 160° à 170°).

Affleurements 5 et 7

Les affleurements 5 et 7 présentent de nombreuses analogies avec les affleurements 4 et 6 situés en zone de réaction 3-4. On retrouve en effet l'allure très discontinue et sinueuse du faciès pile situé dans un encaissant essentiellement gréseux. Fréquemment les grès sont très proches du faciès pile comme sur le profil y = + 26 de l'affleurement 7, où faciès pile et grès du mur ne sont distants que d'une trentaine de centimètres.

Au mur des argiles de pile, et avant d'atteindre les grès moyens très silicifiés du C1c-d-e, on remarquera la présence fréquente de grès à matrice très argileuse et à taches hématiteuses (y = − 27 de l'affleurement 7). Des passages latéraux entre ces grès et des argiles noires ont été remarqués entre les profils y = − 26 et y = − 29 de l'affleurement 7.

La forme et les limites des argiles et du faciès pile sont ici commandées soit par les fractures Dd et Dg dans la partie nord de la zone de réaction, entre y = − 30 et y = −20, soit par les fractures L au sud du profil y = − 30.

Géométrie de la zone de réaction 3-4

La géométrie de la zone de réaction 3-4 est réglée, soit par le dressant, soit par les systèmes de fracture Dd et Dg (fig. 9).

L'influence du dressant se fait sentir dans la partie sud du réacteur, dans une bande large d'une dizaine de mètres et parallèle à l'axe de cette flexure. Dans cette zone, où les couches sont subverticales, les fractures L et les mouvements de glissement sur couche ou le long de plans de cisaillement règlent la forme des amas à faciès pile.

Au nord de cette bande subverticale, la géométrie du réacteur est essentiellement guidée par les fractures des types Dd et Dg contre lesquelles s'arrêtent les argiles et le faciès pile.

Les niveaux stratigraphiques encaissant les argiles de pile varient d'une zone à l'autre du réacteur et montrent des puissances très variables. Ces variations s'observent sur la figure 10 représentant une coupe schématique NW-SE passant par les sondages SC 51, 57, 58, 52, 56 et KN 231. Du SE vers le NW on observe que:

- dans les sondages SC 51 et 57, la couche C1 est très peu épaisse; le toit du faciès pile correspond au sommet de l'épisode C1h et le mur à l'épisode C1c-d-e;
- dans le sondage SC 58, les argiles et le faciès pile sont surmontés des épisodes C1g et C1h alors que les épisodes C1c-d-e n'existent plus et que les grès fins du mur C1a-b présentent une réduction importante de puissance;
- dans les sondages SC 52 et 56, les grès encaissant le faciès pile appartiennent aux mêmes épisodes que ceux des sondages SC 51 et 57 tout en présentant ici une épaisseur plus importante;
- enfin, dans le sondage KN 231, dépourvu de faciès pile, la couche C1 est entièrement représentée sur une épaisseur égale au double de celle qui a été reconnue dans le sondage SC 51.

Ces positions différentes du faciès pile par rapport aux épisodes sédimentaires de C1 se marquent par une flexuration du faciès pile qui semble suivre une direction N 100° correspondant aux fractures Dd.

Fronts de taille situés hors des zones de réaction

Sur les fronts de taille situés entre les zones de réaction, la couche C1 est complète depuis les épisodes C1a-b jusqu'à C1h. Seul le front 112, situé au nord de la zone de réaction 3-4 ($y = -16{,}50$) présente une couche C1 à dominante argileuse où seuls les grès du C1h sont représentés.

Sur les fronts 129, 120 et du 24.1.76, les grès du C1f et C1g présentent le faciès du minerai riche d'Oklo (type 2) où les grès noirs, peu silicifiés, sont toujours associés à des passées hématiteuses.

Sur le front 129, la zone oxydée à hématite se cantonne au sommet de l'épisode C1g et surmonte des grès noirs présentant le maximum de radioactivité. La

frontière entre ces deux faciès est oblique sur la stratification. Il faut remarquer que ce type de grès noir, riche en UO_2, était particulièrement abondant au nord de la zone de réaction 2. Ces grès sont en outre toujours associés à des zones de cisaillement parfois très intenses. La figure 11 représente de tels cisaillements observés dans les grès et conglomérats du C1f et C1g du front du 24.1.76. Le conglomérat est affecté de cisaillements majeurs concordants avec les plans de stratification. A ces cisaillements sont associés des systèmes de fracture particuliers qui se décomposent en fractures synthétiques R et antithétiques R' de Riedel. Ces fractures font respectivement un angle de 10-20° et 70-90° avec le plan de cisaillement majeur. Dans le niveau plus homogène et plus compétent du C1f, ce type de fracturation conduit à la bréchification du grès. C'est dans cette brèche que se situe le maximum de radioactivité.

Enfin, les grès du C1h et du C1c-d-e présentent généralement un faciès très silicifié, noir, où la fracturation découpe la roche en prismes limités par les différents systèmes de fractures associés au dôme. Ces grès appartiennent au minerai pauvre du type 1 d'Oklo.

INTERPRETATION – CONCLUSION

Le suivi géologique de l'exploitation des réacteurs d'Oklo permet de faire plusieurs observations d'ordre tectonique, stratigraphique et pétrographique.

Tectonique

L'analyse des fronts de taille a montré que les zones de réaction se situent dans des couloirs de cisaillement auxquels est associée une bréchification des grès et que leurs limites correspondent à des systèmes de fracture associés au dôme. Suivant la situation des zones de réaction sur le pourtour du dôme, ces systèmes de fracture sont principalement des types Dd et Dg pour les zones situées sur les flancs du dôme (zones 1 et 3-4) ou des types T et L pour la zone 2 située à la crête du pli. La zone de réaction 5-6, située entre le dressant et la zone 2, montre un découpage intermédiaire où les fractures Dg et L forment les frontières du réacteur.

L'analyse tectonique détaillée du dôme [1, 2, 5] montre que la localisation des zones de cisaillement dans la couche C1, et parfois dans certains niveaux particuliers de cette couche, est liée à la géométrie particulière de ce pli.

Stratigraphie

La présence d'une zone de réaction s'accompagne toujours d'une disparition plus ou moins totale de certains épisodes sédimentaires de la couche C1. Dans

la zone de réaction 2, uniquement constituée d'argile, ce phénomène est total entre le milieu de l'épisode C1a-b et les pélites du toit appartenant au FB. Il est même possible dans ce cas qu'une partie des pélites FB ne soient plus représentées.

La disparition totale des grès de C1 s'observe également dans la partie aval de la zone de réaction 1 alors qu'elle n'est que partielle vers la cote 373 (front 111). Enfin, à la cote 380, c'est-à-dire à la fermeture amont du réacteur, tous les épisodes sédimentaires sont de nouveau représentés.

Dans les zones de réaction 3-4 et 5-6 les argiles et le faciès pile semblent se localiser préférentiellement dans les épisodes sédimentaires du C1f et C1g qui montrent alors des réductions très importantes de puissance (fronts 119, 122, 127). Dans certains cas, ces deux niveaux ont totalement disparu (front 125), dans d'autres, l'épisode C1g subsiste alors que les niveaux inférieurs, y compris une partie du C1a-b, n'existent plus (fig. 10).

Cette absence de certains épisodes sédimentaires de la couche C1 est interprétée comme résultant d'une désilicification massive des grès, consécutive au déclenchement des réactions de fission [4, 5]. Cette désilicification entraîne alors la réduction de puissance de C1 observée systématiquement à l'emplacement d'un réacteur.

Sous l'influence de la pression lithostatique, l'amincissement de la couche C1 entraîne un réajustement des terrains par des mouvements verticaux le long de fractures et par des glissements dans la ligne de plus grande pente des couches. Ce dernier mécanisme de rattrapage doit évidemment être facilité par la présence de niveaux argileux encaissant le faciès pile et résultant du fonctionnement des réacteurs.

Sur les fronts de taille, ces différents mouvements se traduisent (fig. 12):

- par des glissements le long de fractures préexistantes tels les différents systèmes associés au dôme (L, T, Dd, Dg) ou aux cisaillements; ces glissements sont à l'origine de l'allure flexurée du faciès pile;
- par un plissement de pélites du FB qui s'observe particulièrement en zone de réaction 2, notamment dans la partie aval, ce qui entraîne un épaississement *apparent* de ces pélites;
- par le dédoublement du faciès pile observé sur les fronts du 11.1.76 ou 127 et la présence de plis d'entraînement affectant les argiles et le faciès pile sur les fronts 111 et 116; ces deux images traduisent bien les glissements, vers l'aval, des argiles et du faciès pile.

Pétrographie

Pour les zones de réaction situées dans un environnement gréseux (zones 3-4 et 5-6), les grès encaissant le faciès pile présentent toujours un faciès correspondant au minerai riche d'Oklo du type 2 [2, 5]. Il s'agit de grès noirs, peu à pas silicifiés, présentant des passées oxydées à hématite et dont la teneur en UO_2 est

supérieure à 1%. Ils sont ensuite surmontés de grès noirs pyriteux, très silicifiés, dont la teneur en uranium est de l'ordre de 0,2 à 1% et qui appartiennent au minerai banal d'Oklo du type 1.

A proximité immédiate des réacteurs, les grès perdent leur cohésion et deviennent pulvérulents. Dans certains cas (affleurements 6 et 7) leur passage progressif aux argiles de pile a pu être suivi. De telles observations soulignent l'importance des phénomènes de désilicification dans la formation des argiles de pile.

Enfin, au voisinage des zones de réaction 1 et 2, il a été remarqué une extension particulièrement importante du minerai riche d'Oklo où des radioactivités de l'ordre de 80 000 à 100 000 coups/s, c'est-à-dire comparables à celles du faciès pile, ont fréquemment été mesurées (front 129).

En conclusion, les zones de réaction se sont formées dans le minerai riche d'Oklo lié à des couloirs de cisaillement. Le fonctionnement des réacteurs a modifié la géométrie de la couche C1 par dissolution partielle ou totale des épisodes gréseux de la couche C1 (C1c à h).

Cette diminution d'épaisseur est compensée par des mouvements verticaux (effondrement du toit) et par un mouvement de glissement couche à couche provoquant un serrage des zones de réaction. Ce dernier se traduit par des plis et des dédoublements de la couche sur des failles inverses.

REFERENCES

[1] GAUTHIER-LAFAYE, F., RUHLAND, M., WEBER, F., «Analyse tectonique du gisement d'Oklo», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 103.

[2] GAUTHIER-LAFAYE, F., et al., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/2.

[3] WEBER, F., GEFFROY, J., LE MERCIER, Marcelle, «Synthèse des études minéralogiques et pétrographiques des minerais d'Oklo, de leurs gangues et des roches encaissantes», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 173.

[4] GAUTHIER-LAFAYE, F., WEBER, F., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/8.

[5] GAUTHIER-LAFAYE, F., Oklo et les gisements d'uranium du Francevillien, Thèse de 3e cycle, Strasbourg (1977).

Annexe

FIGURES 1 A 40

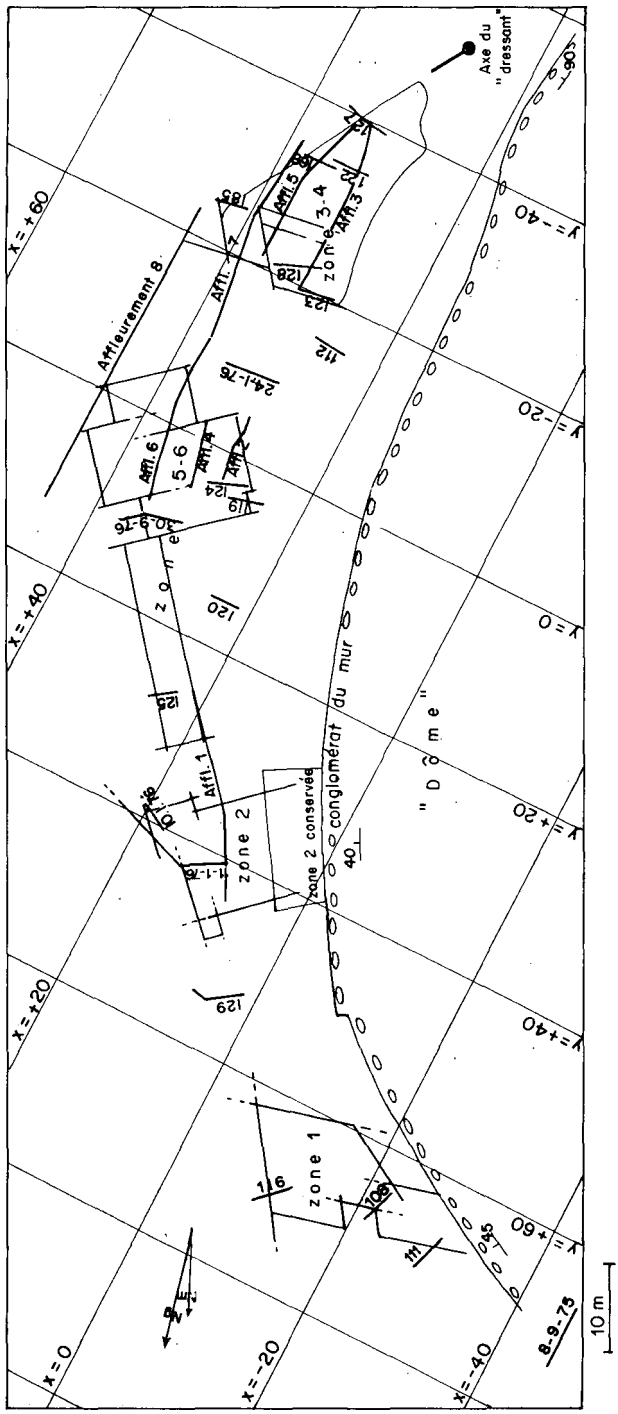


FIG. 1. Situation des zones de réaction (projection sur un plan horizontal).

Situation des fronts de taille cités dans le texte.

(Les figures 1A à 1D ci-après indiquent l'emplacement exact de tous les fronts de taille et affleurements.)

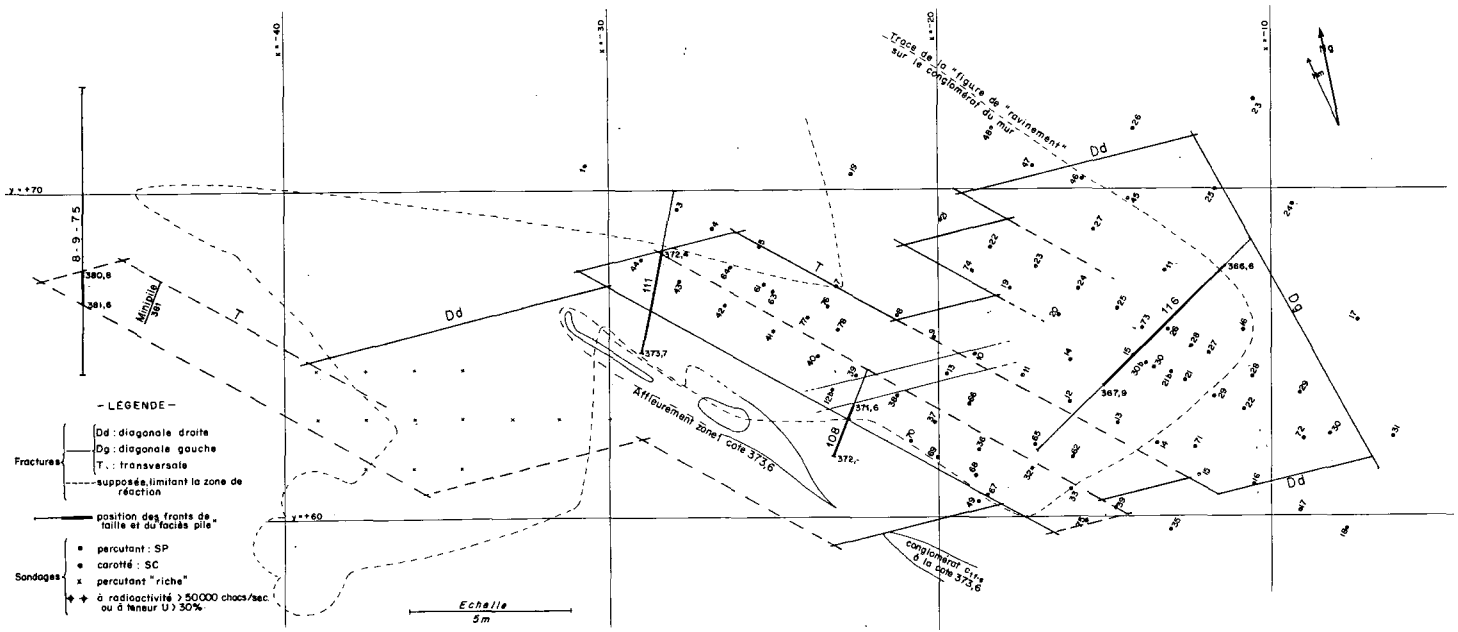


FIG.1A. Plan de la zone de réaction 1.

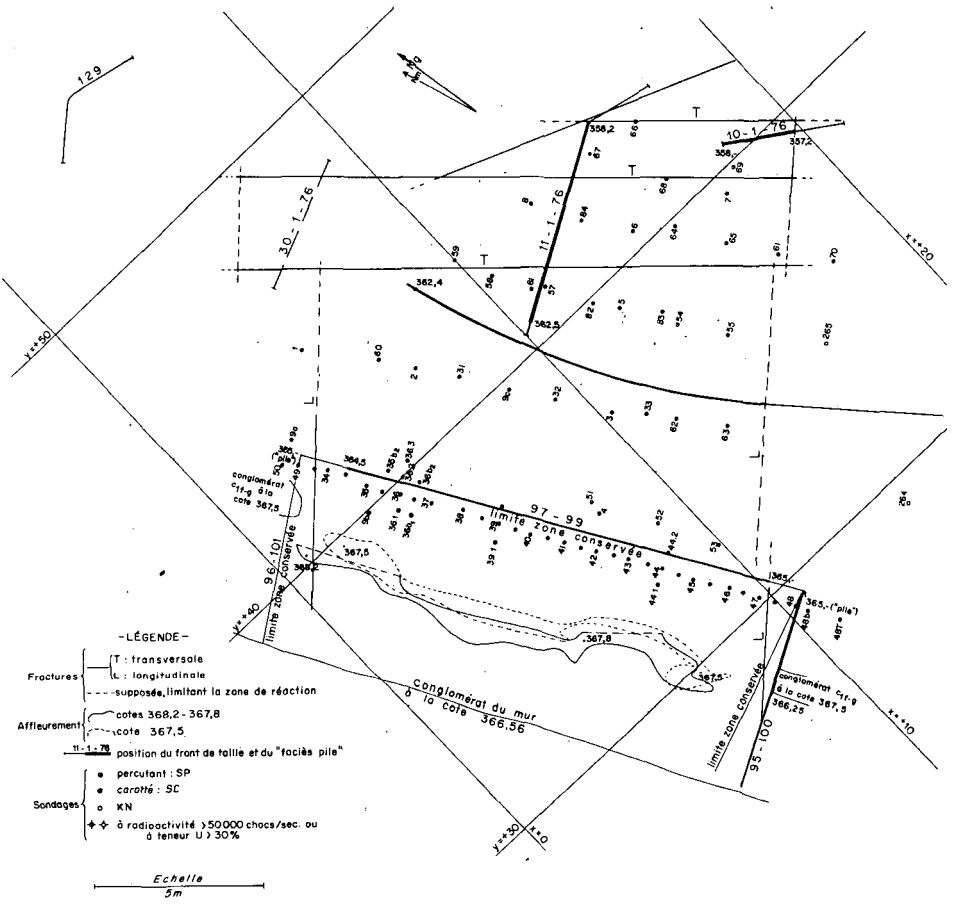


FIG.1B. Plan de la zone de réaction 2.

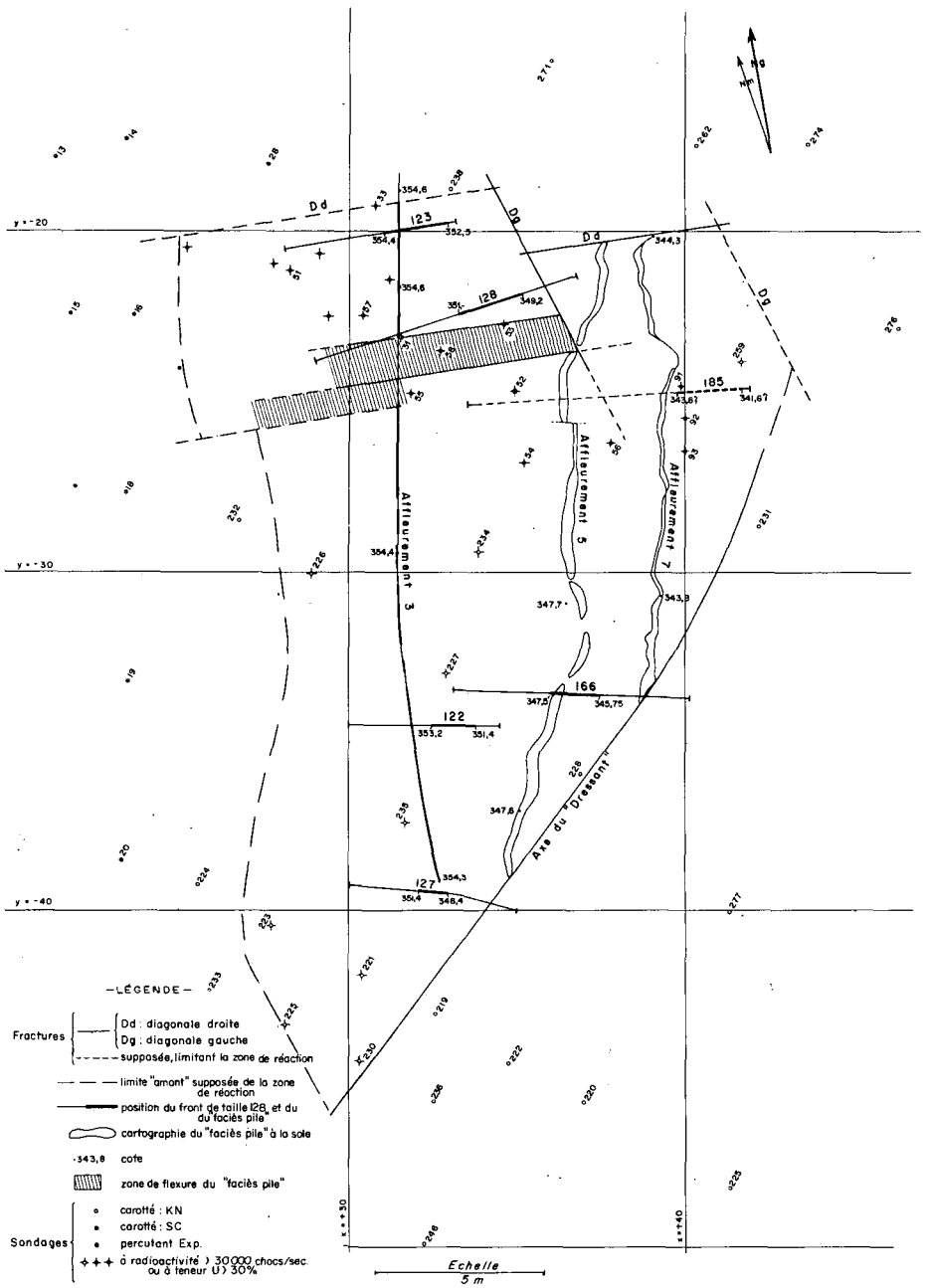


FIG.1C. Plan de la zone de réaction 3–4.

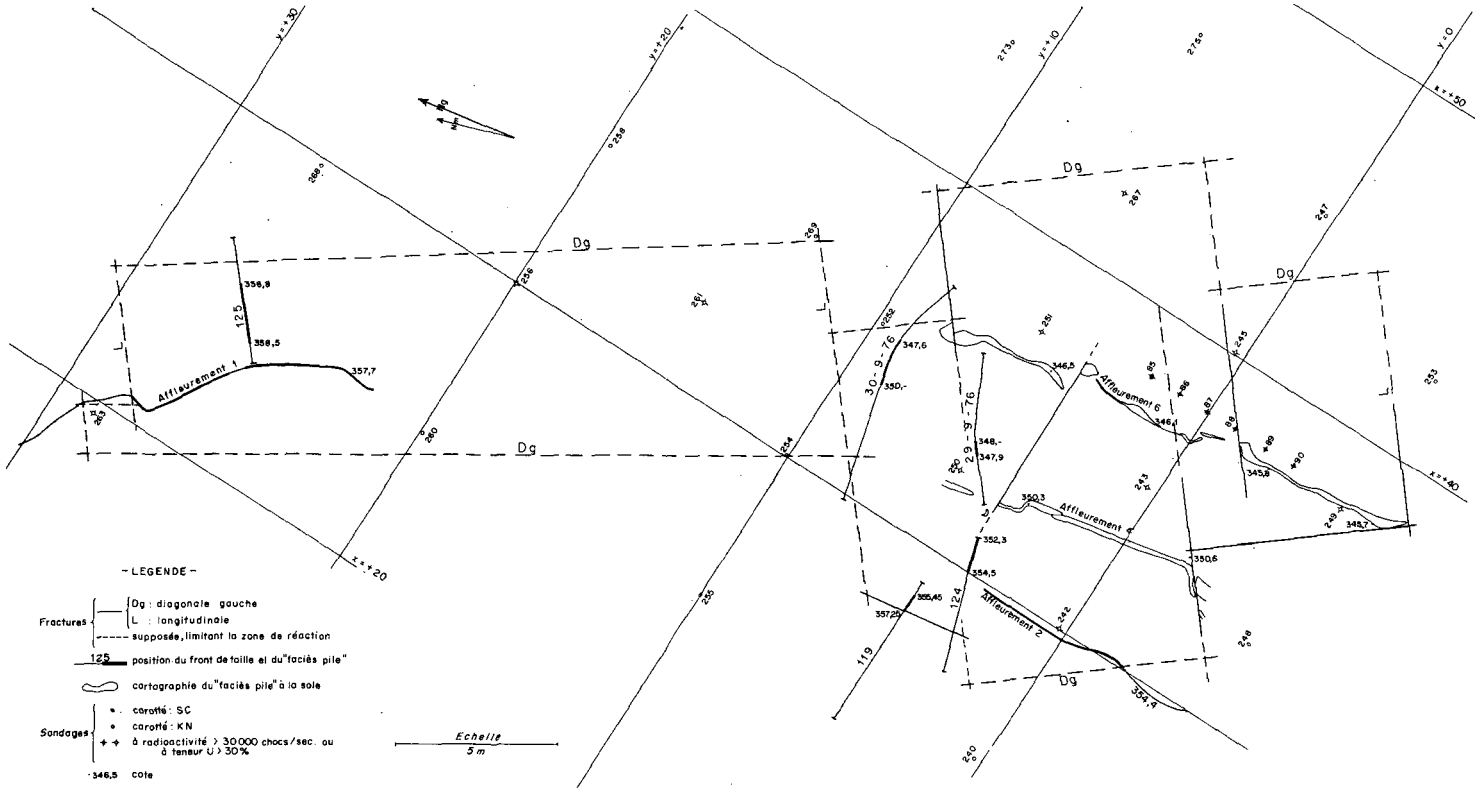


FIG.1D. Plan de la zone de réaction 5–6.

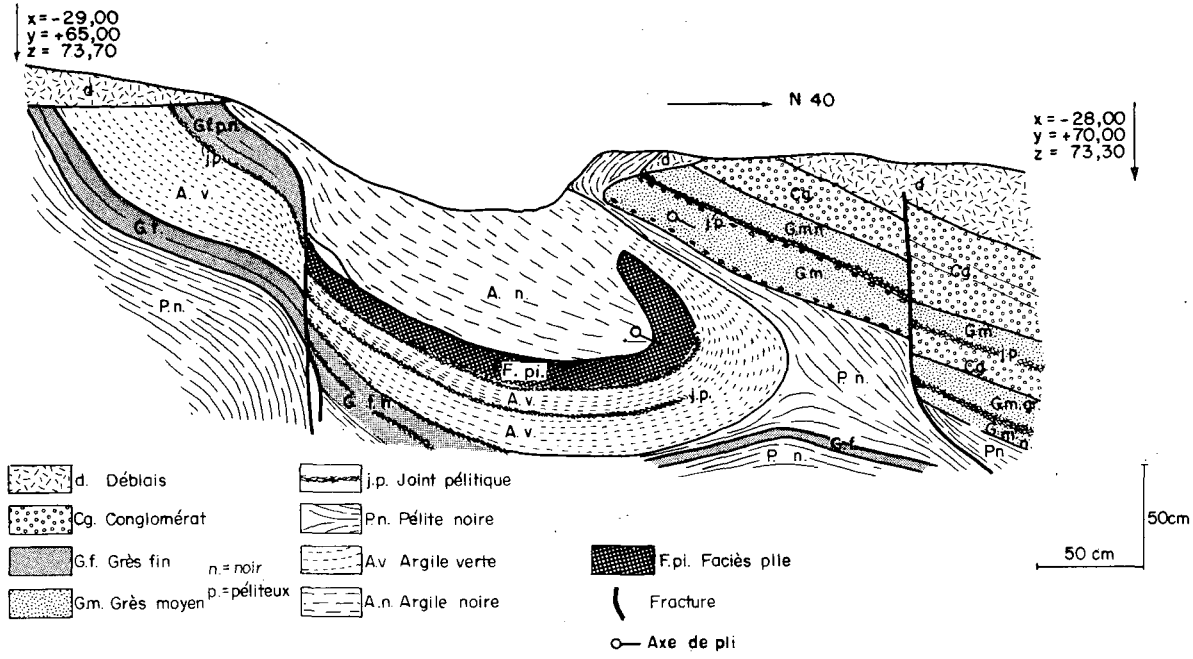


FIG. 2. Levé géologique du front 111, zone 1.

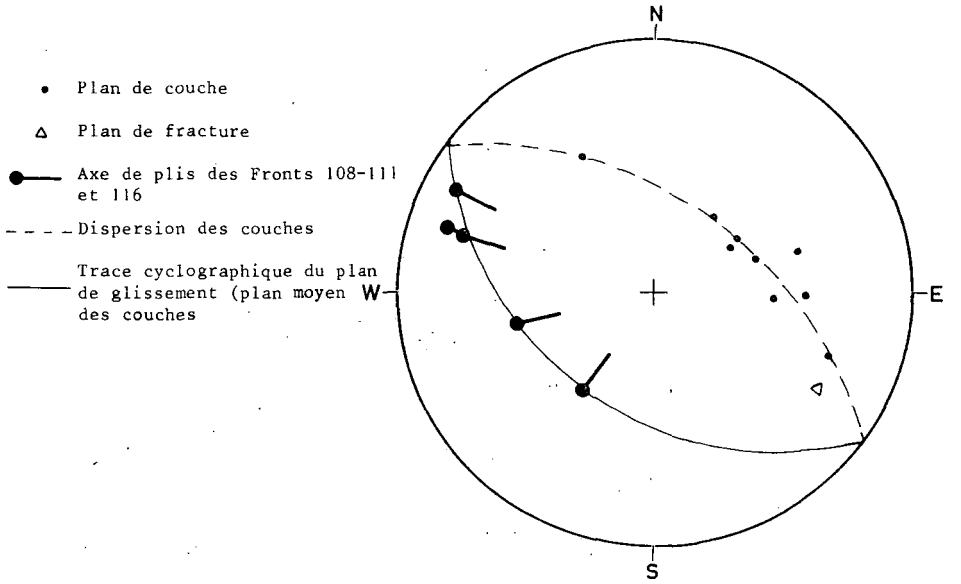


FIG. 3. Disposition des axes de plis en zone de réaction 1.

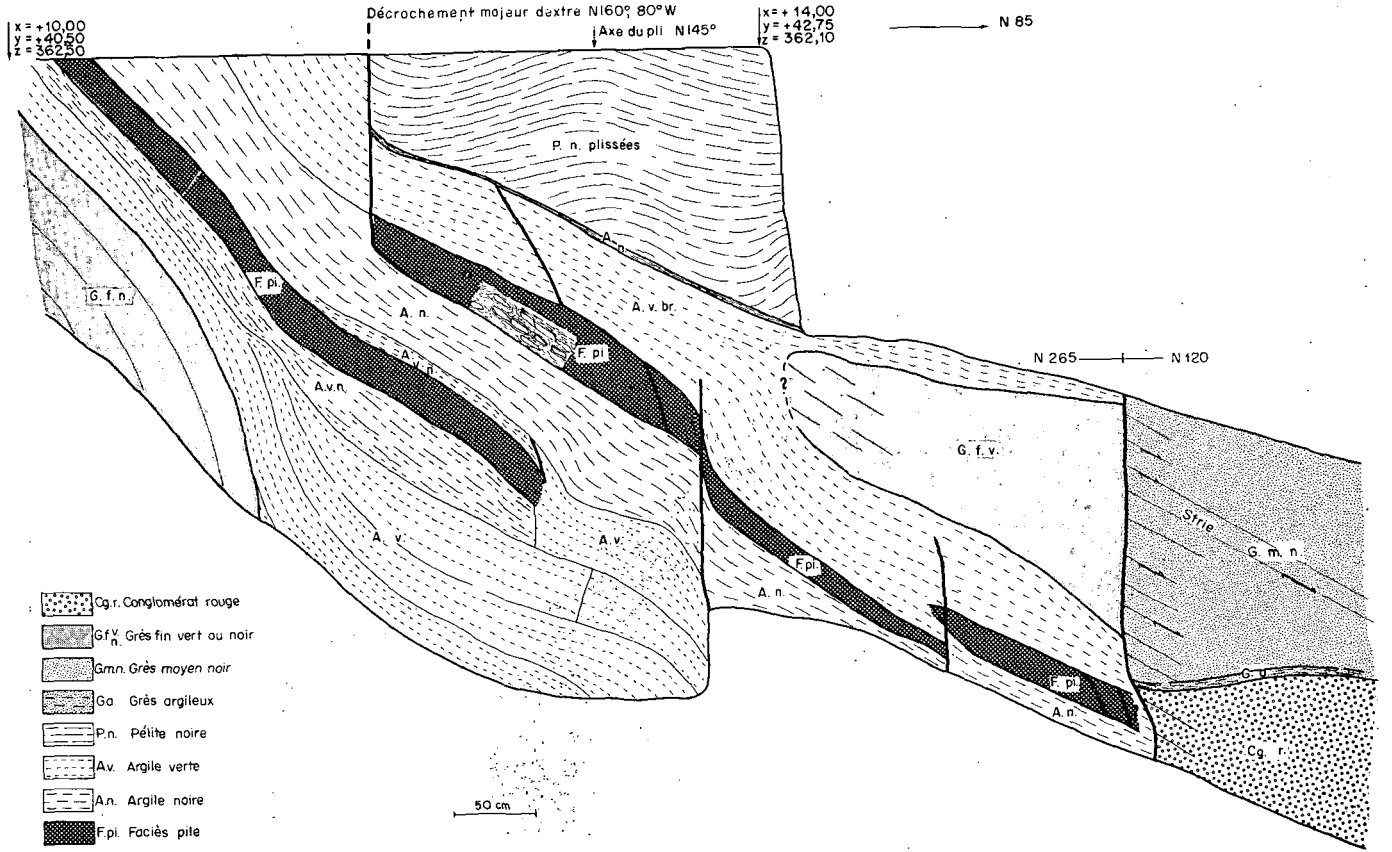


FIG.4. Levé géologique du front du 11.1.76, zone 2.

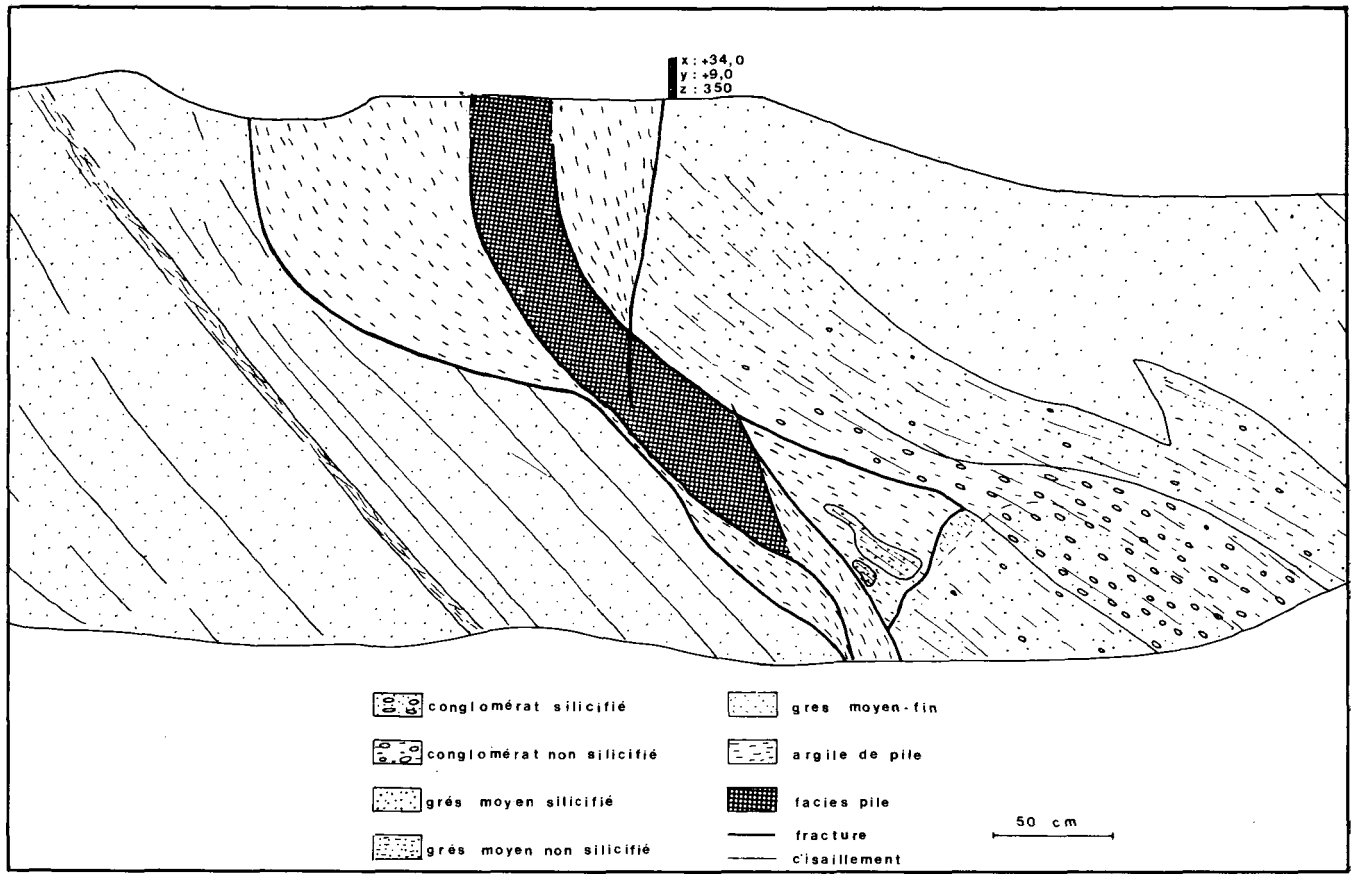


FIG.5. Levé géologique du front du 30.9.76, zone 5–6.

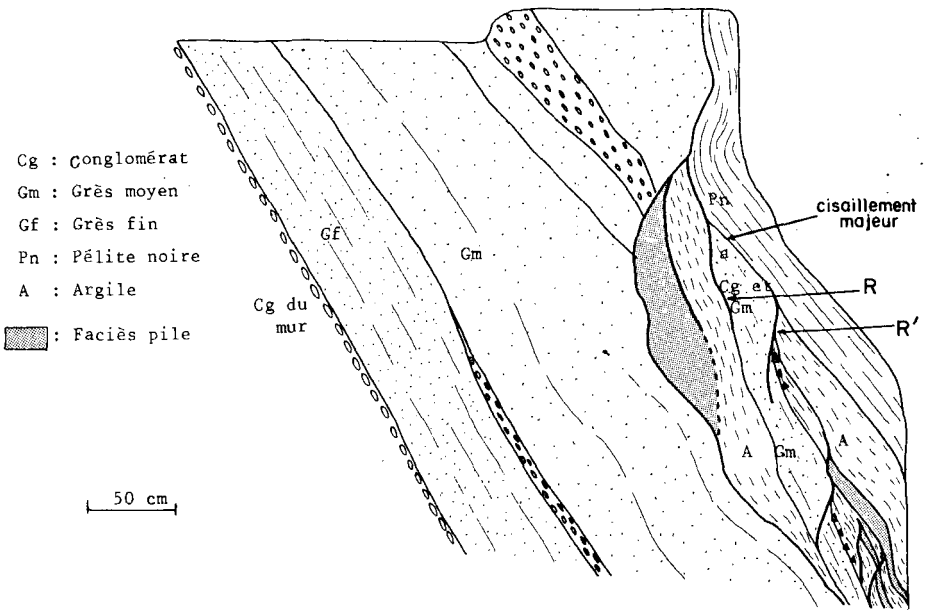


FIG.6. Schéma géologique des fronts 119 et 124, zone 5–6.

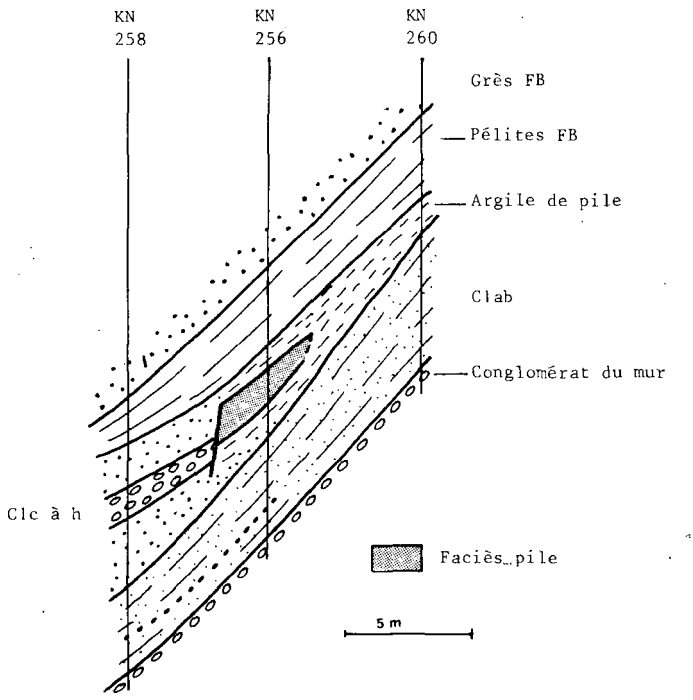


FIG.7. Coupe simplifiée de la zone de réaction 5–6 (profil y = + 20).

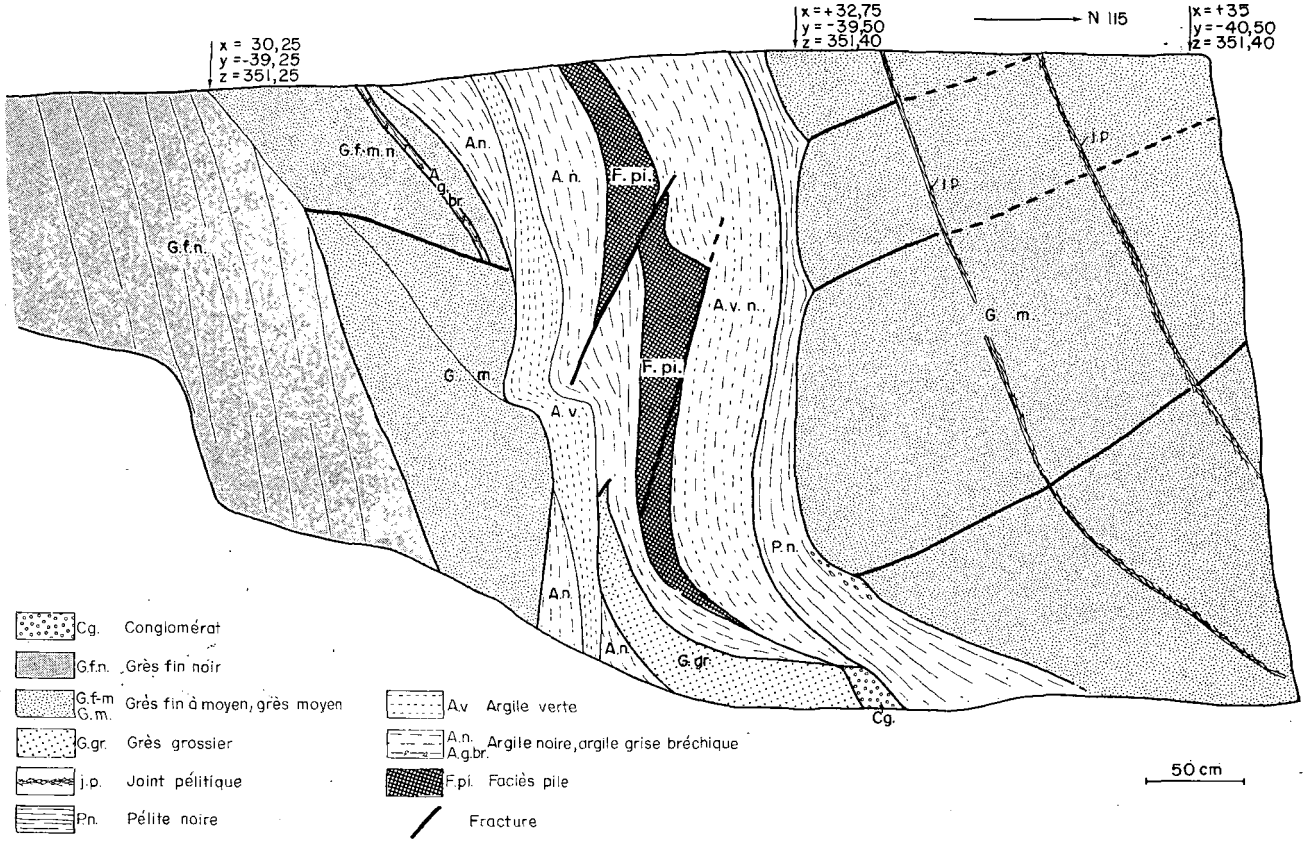


FIG.8. Levé géologique du front 127, zone 3–4.

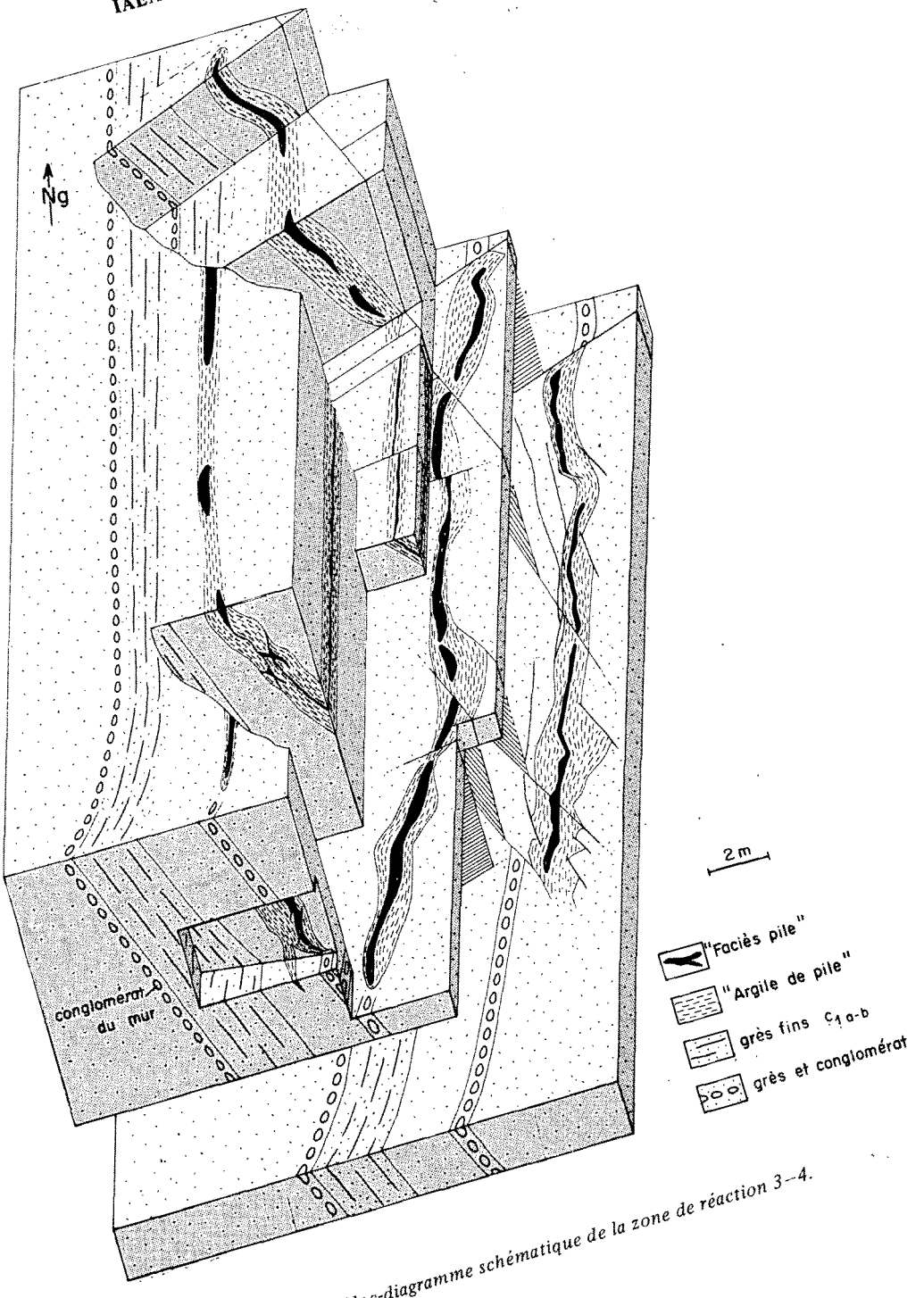


FIG.9. Bloc-diagramme schématique de la zone de réaction 3–4.

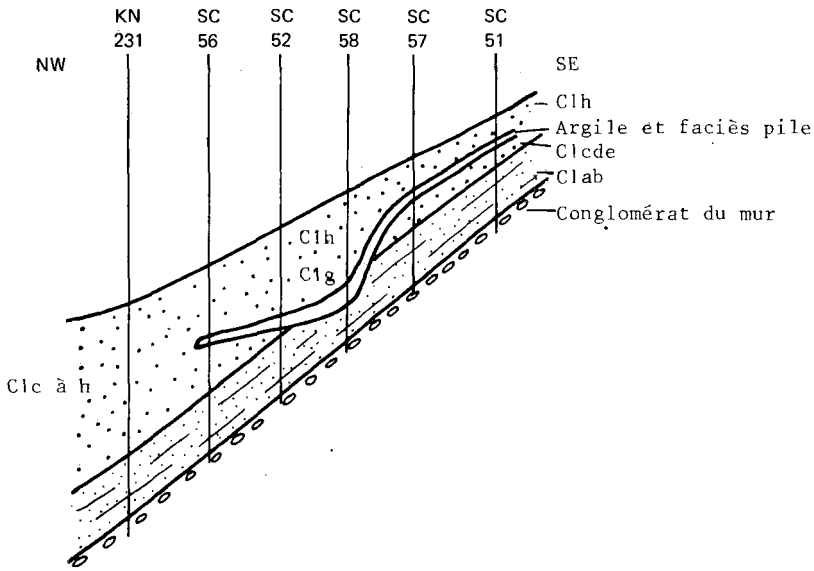


FIG.10. Coupe schématique de la zone de réaction 3–4.

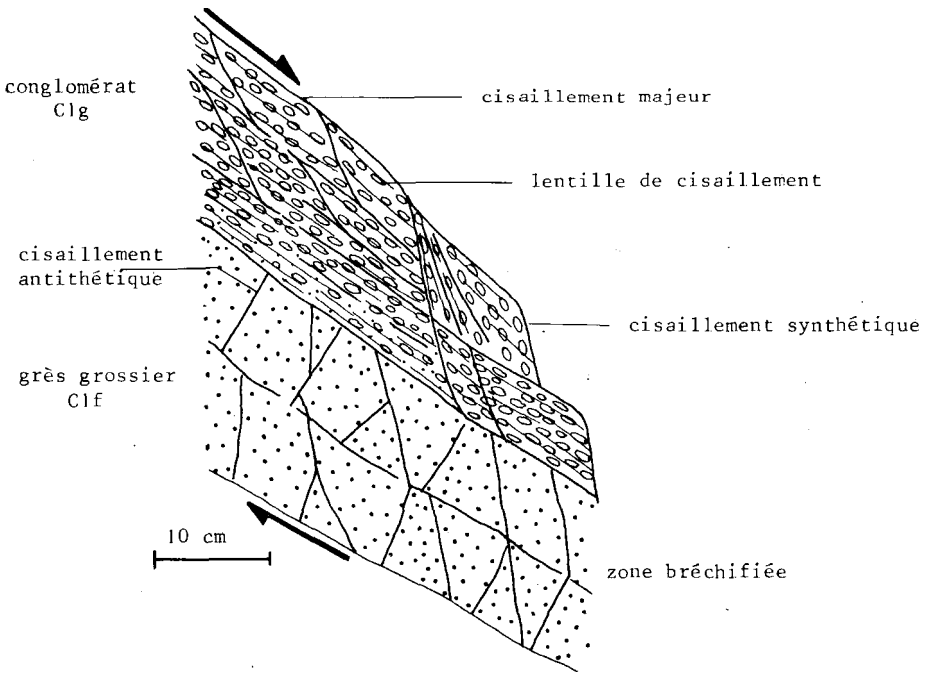


FIG.11. Cisaillements dans les conglomérats et grès du Clf et Clg du front du 24.1.76.

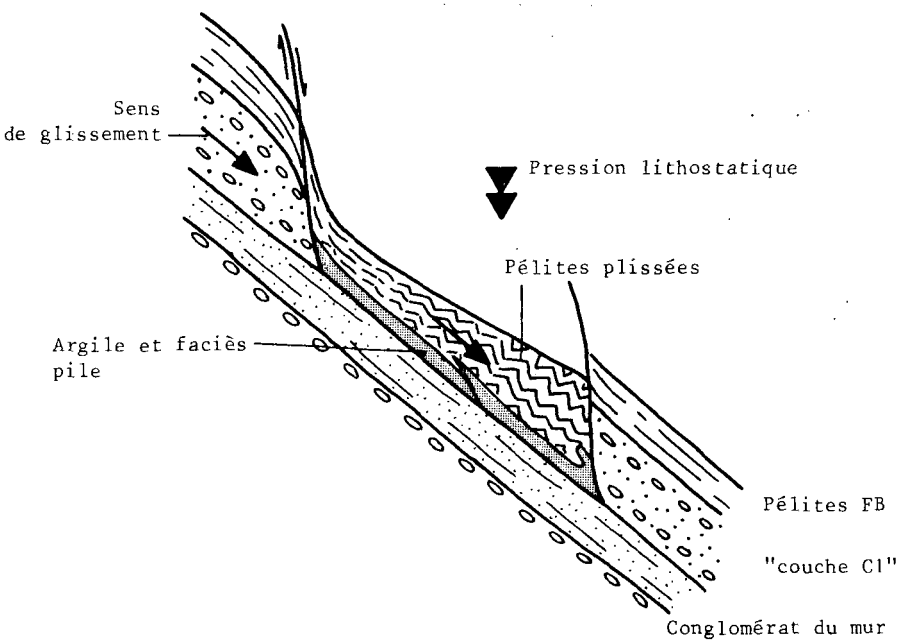


FIG. 12. Réajustements tectoniques consécutifs aux réactions nucléaires.

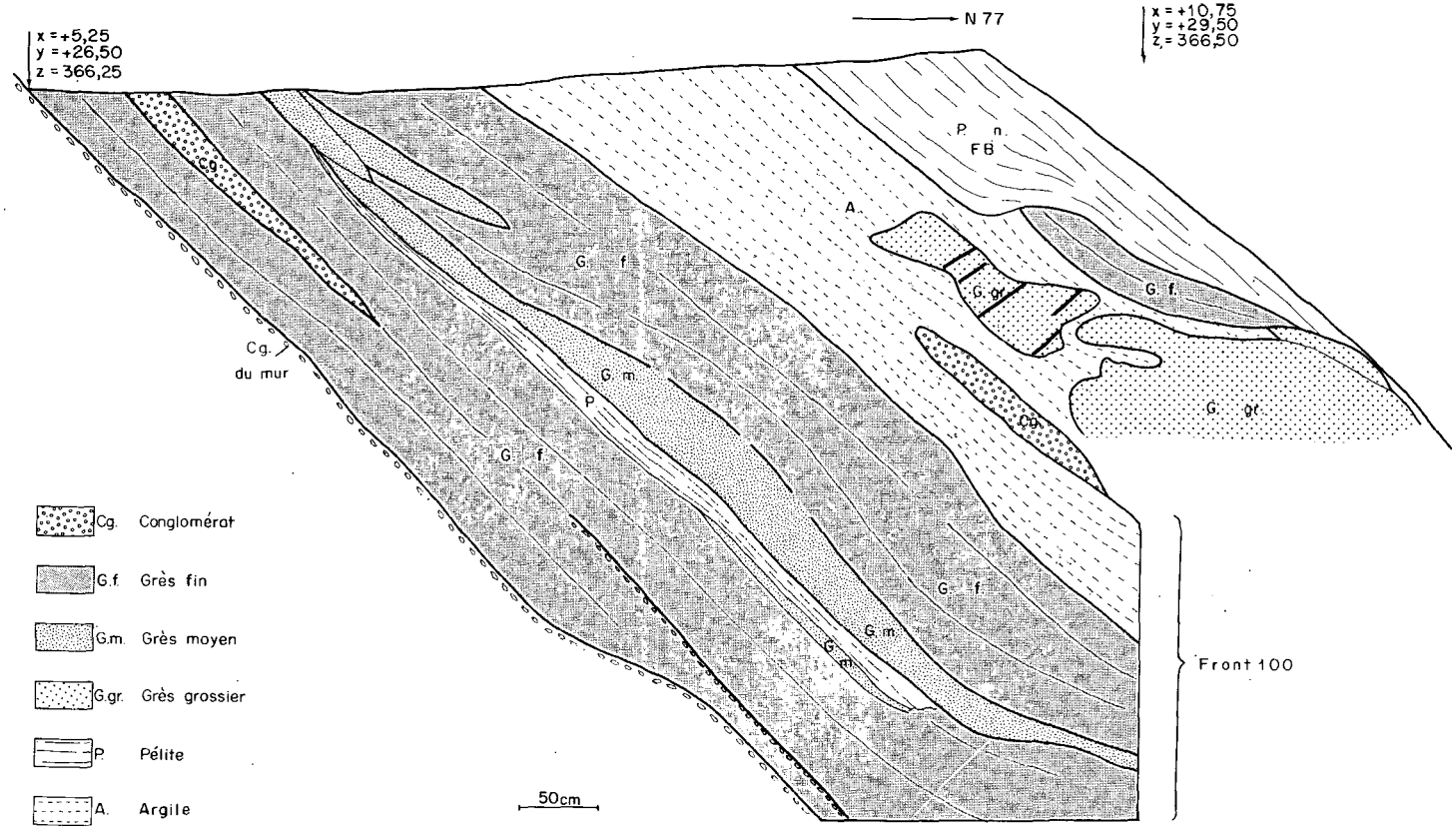


FIG. 13. Front 95–100, zone 2 (face sud de la zone ancrée) (front relevé par J.P. Laurent, COMUF).

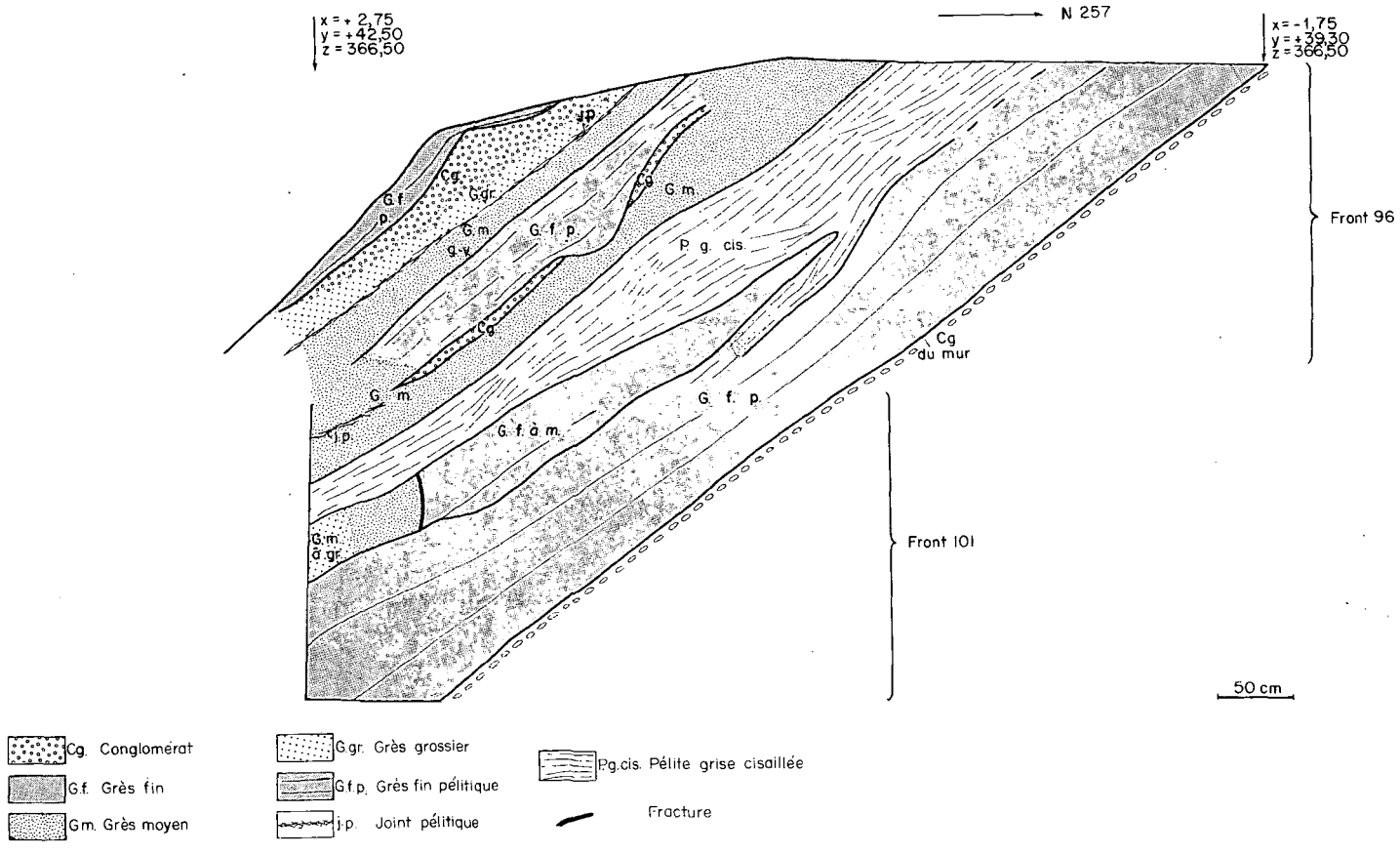


FIG.14. Front 96–101, zone 2 (face nord de la zone ancrée) (front relevé par J.P. Laurent, COMUF).

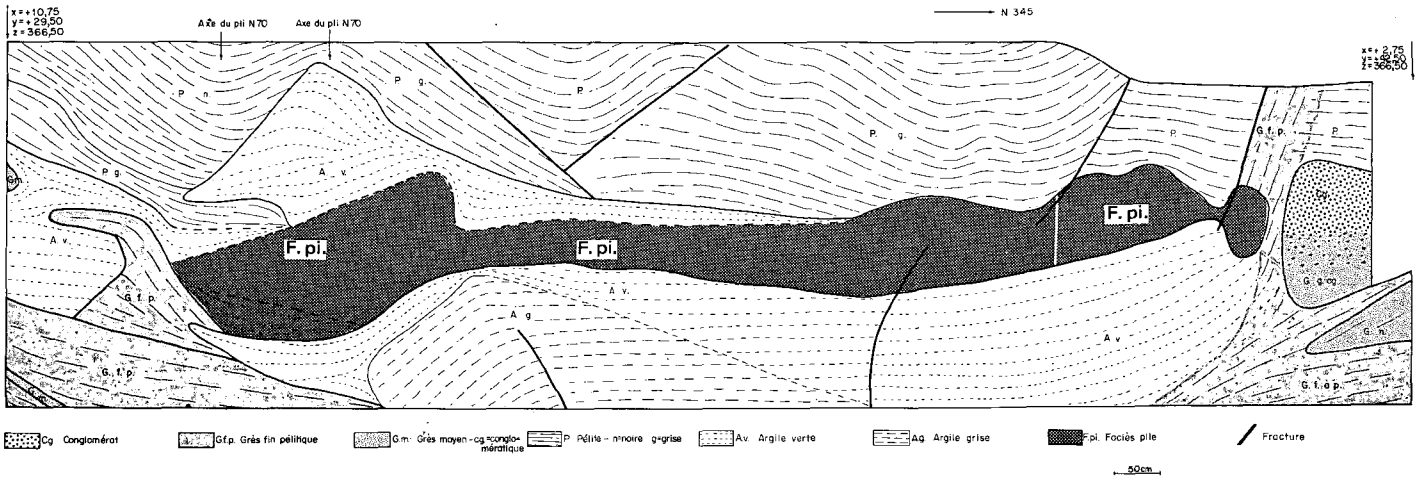


FIG.15. Front 97–99, zone 2 (face est de la zone ancrée) (front relevé par J.P. Laurent, COMUF).

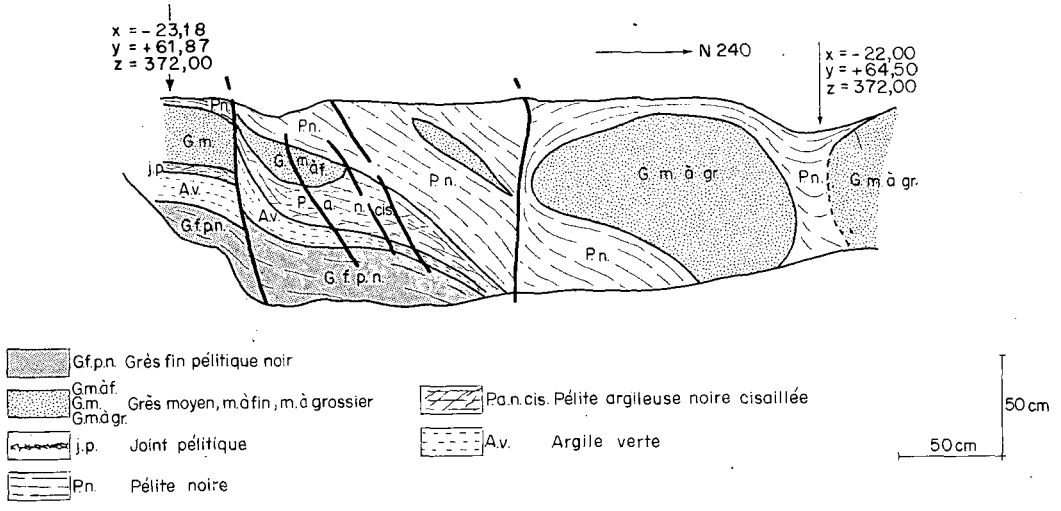


FIG.16. Front 108, zone 1.

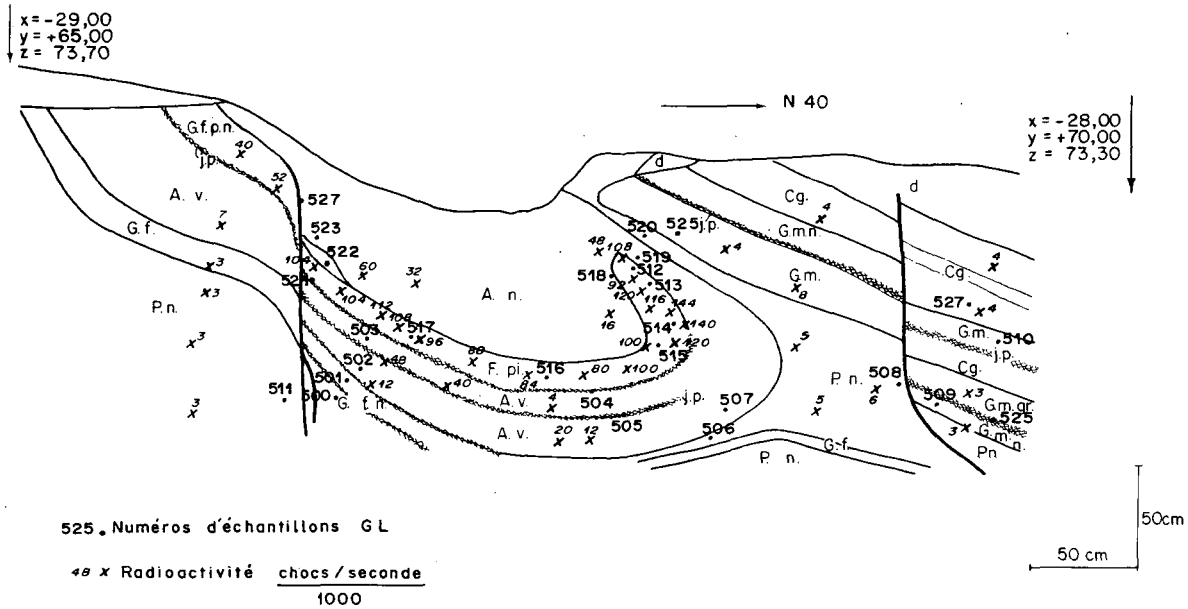


FIG. 17. Front 111, zone 1: situation des échantillons GL et plan compteur.

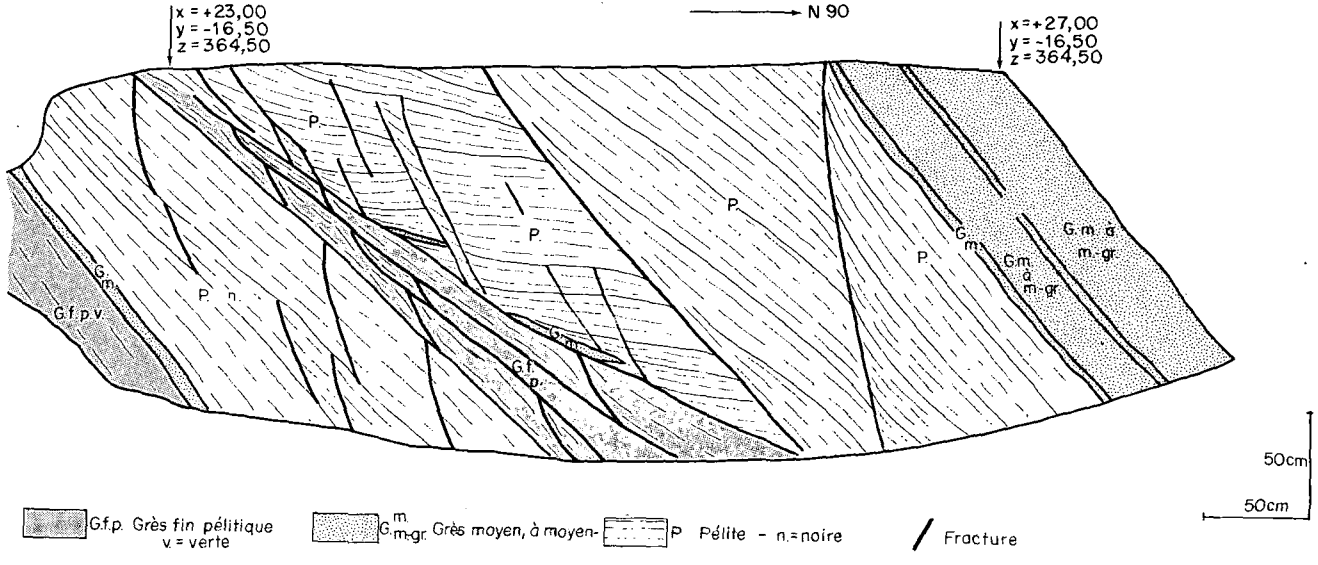


FIG.18. Front 112, au nord de la zone 3–4.

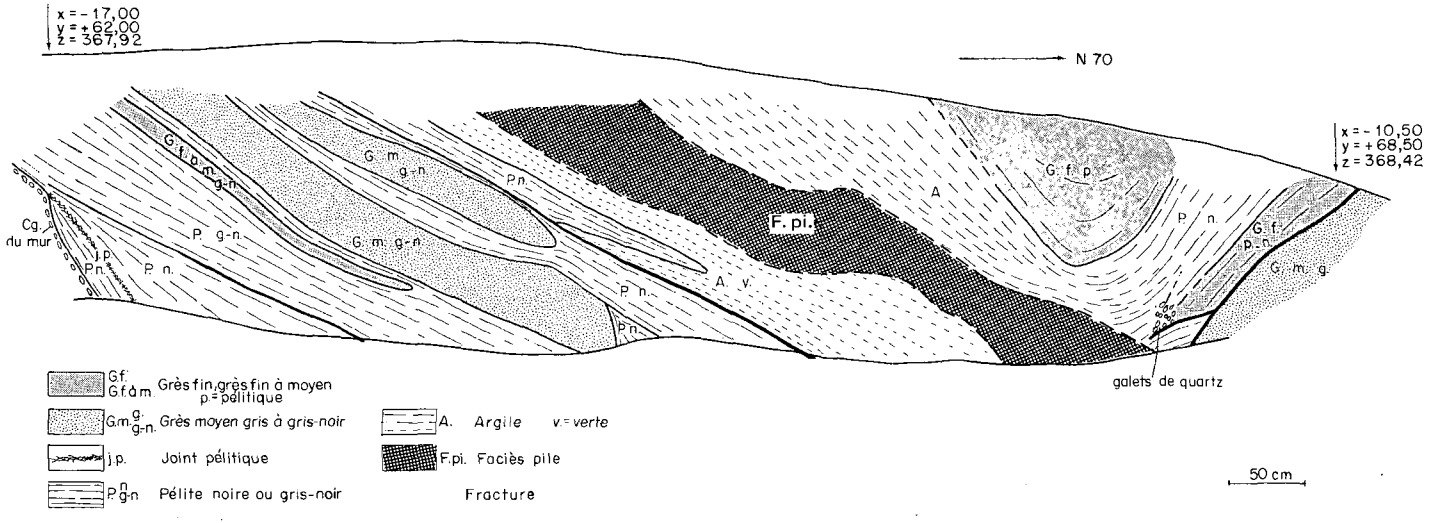


FIG. 19. Front 116, zone 1.

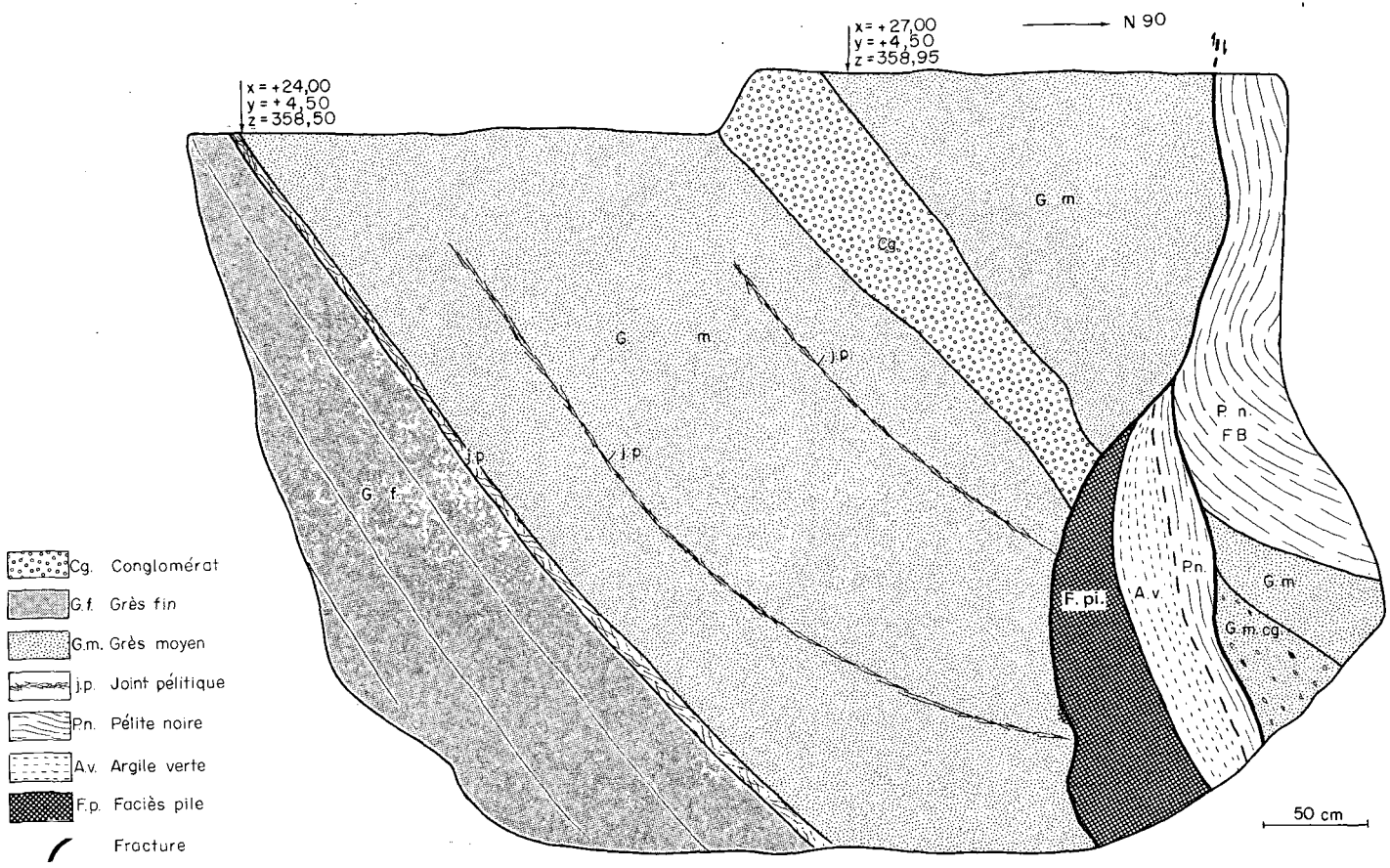


FIG.20. Front 119, zone 5–6.

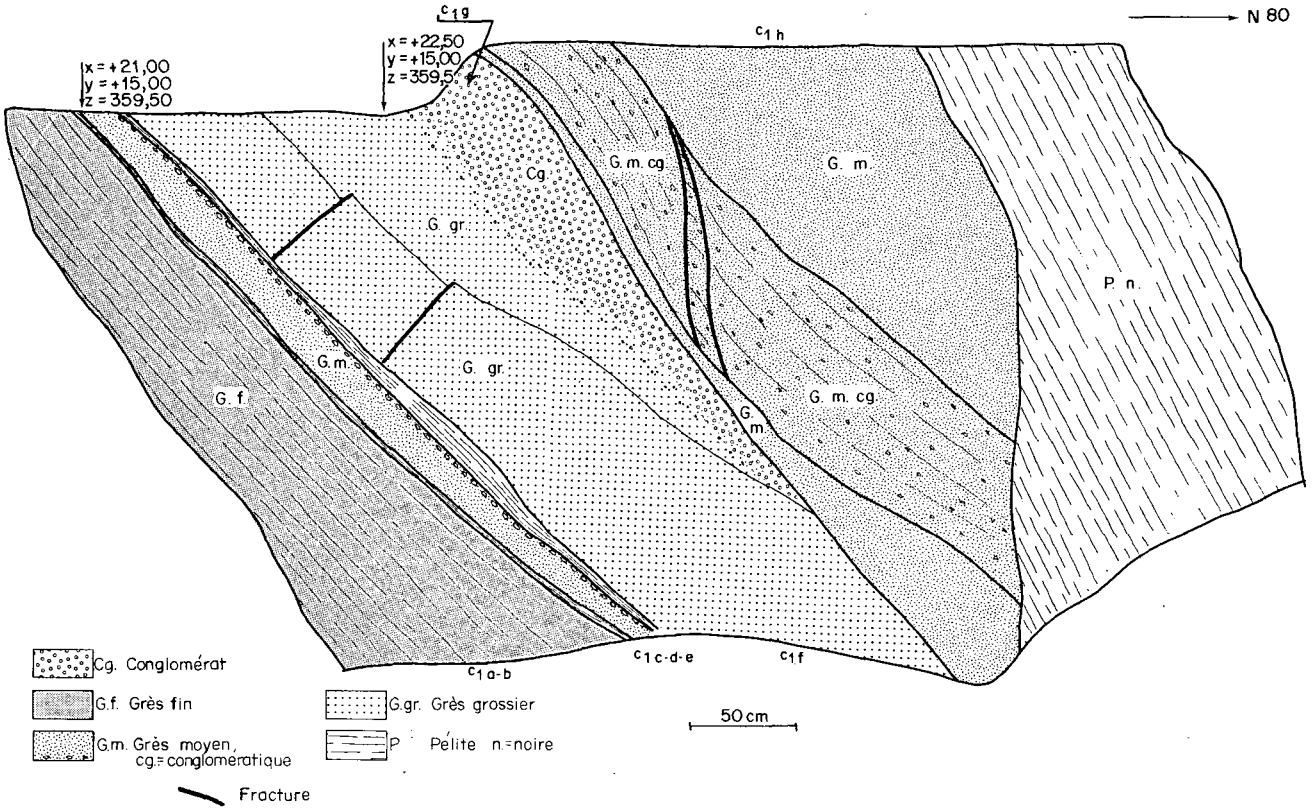


FIG.21. Front 120, à l'ouest de la zone 5–6.

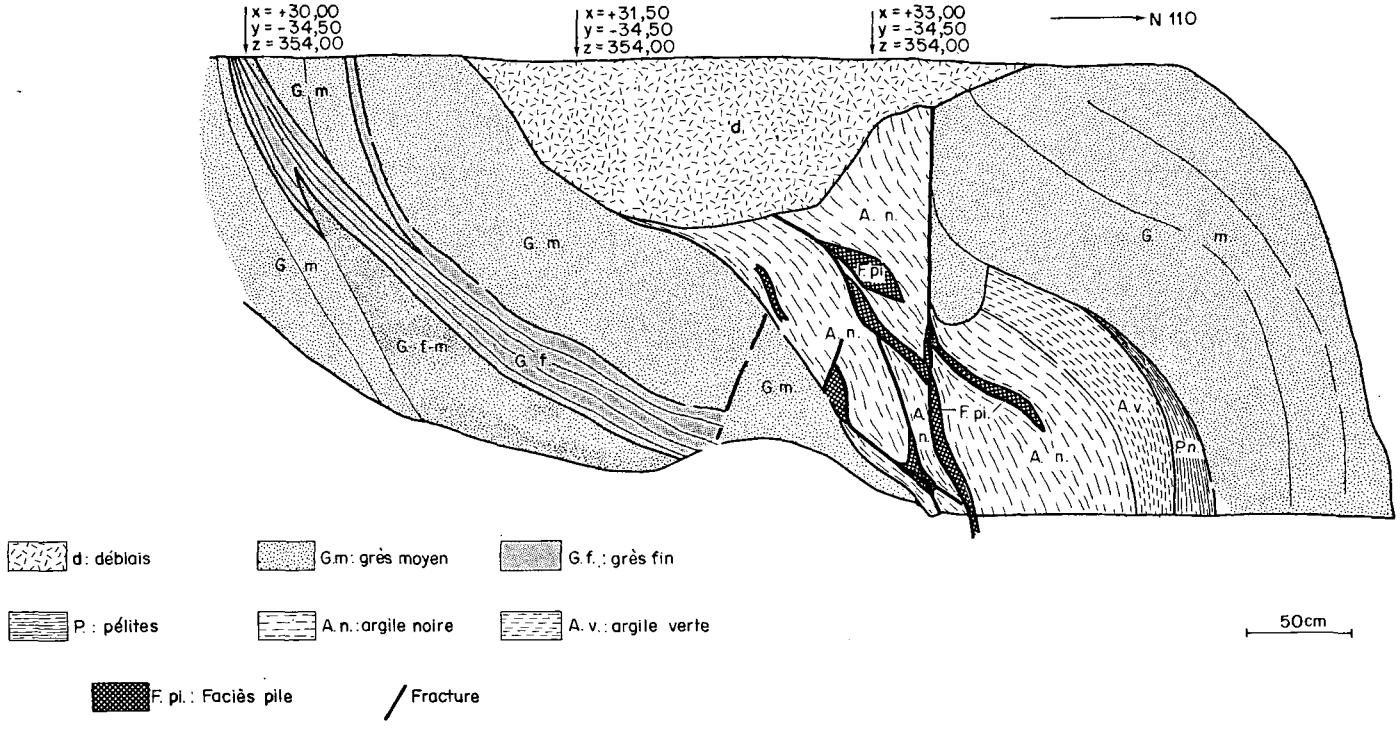


FIG.22. Front 122, zone 3–4.

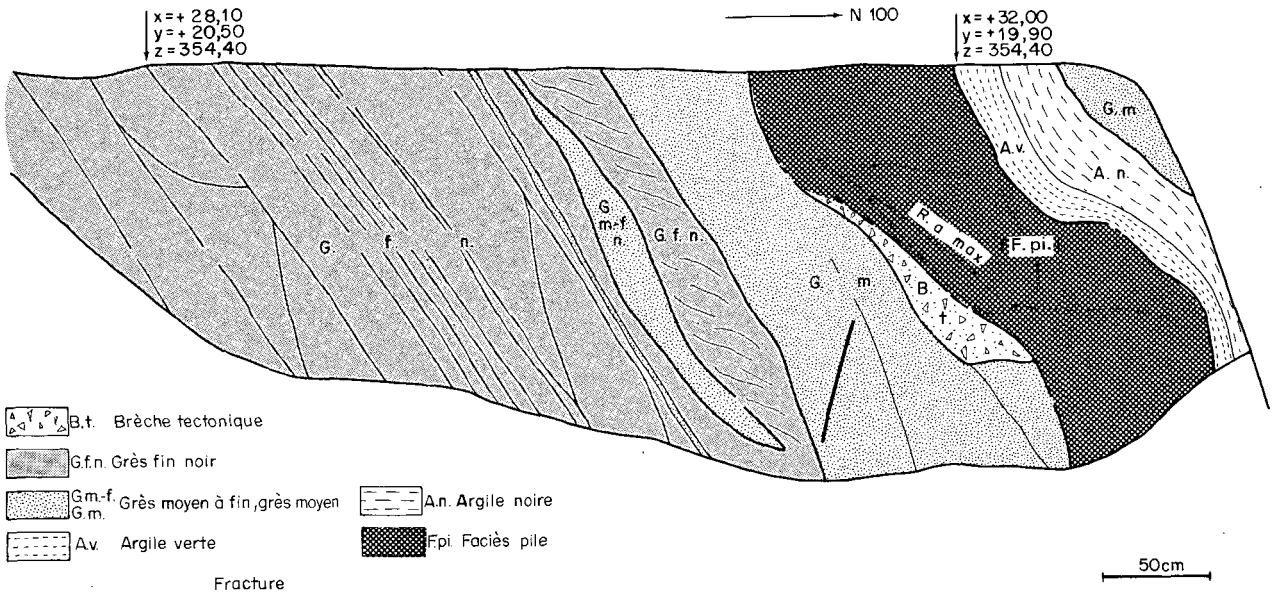


FIG.23. Front 123, zone 3–4.

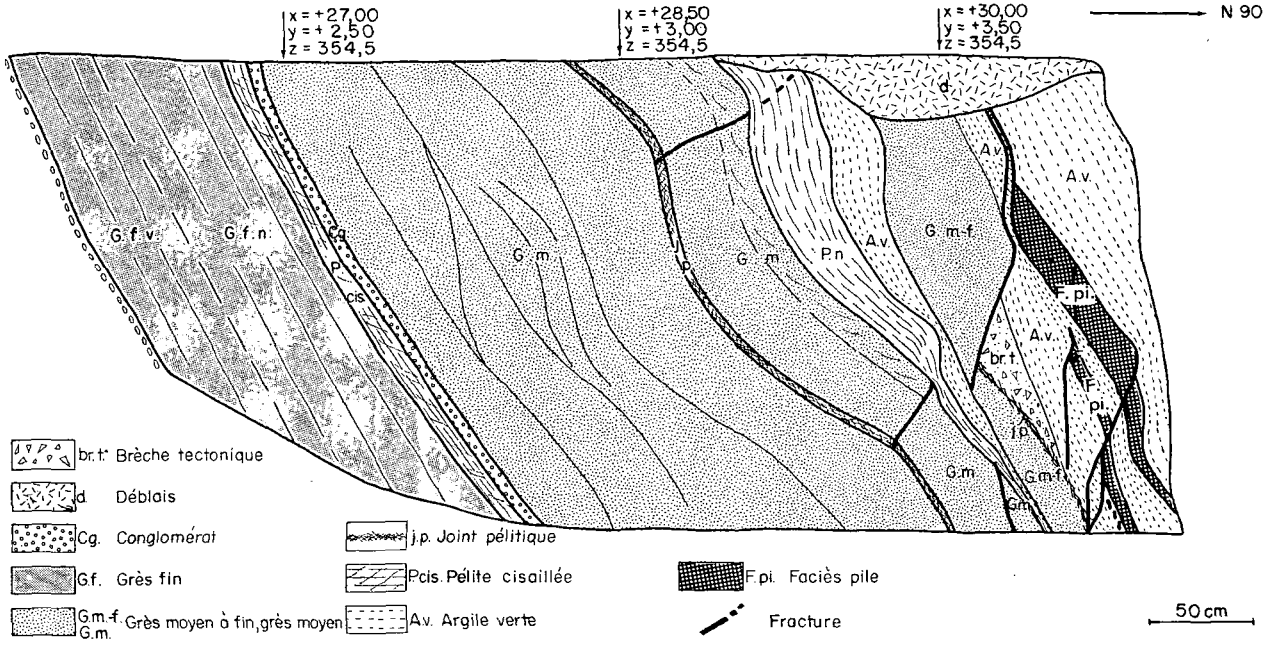


FIG. 24. Front 124, zone 5–6.

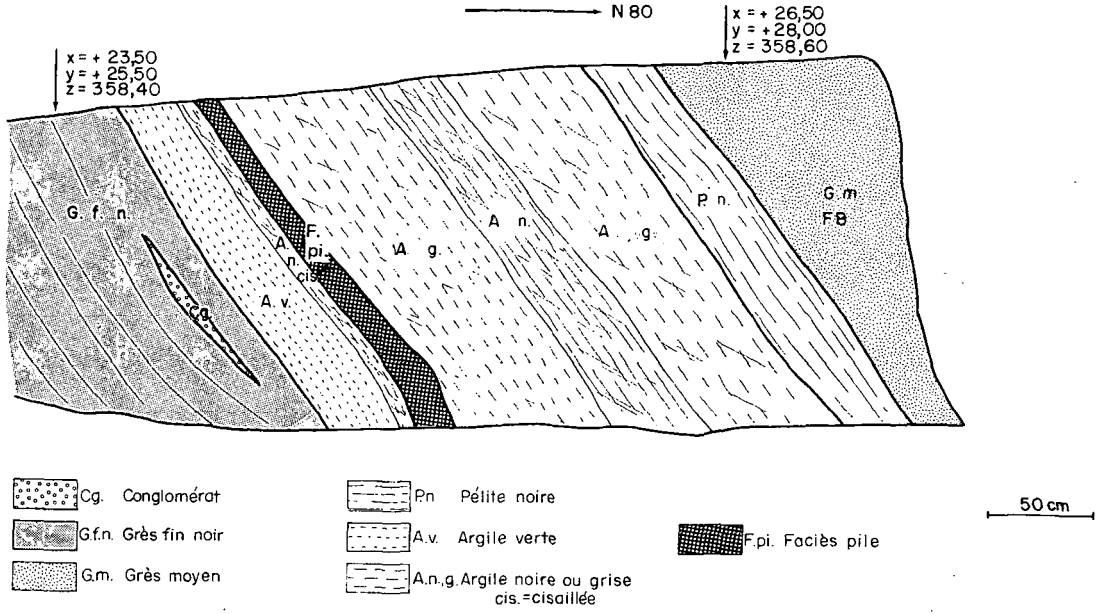


FIG.25. Front 125, zone 5–6.

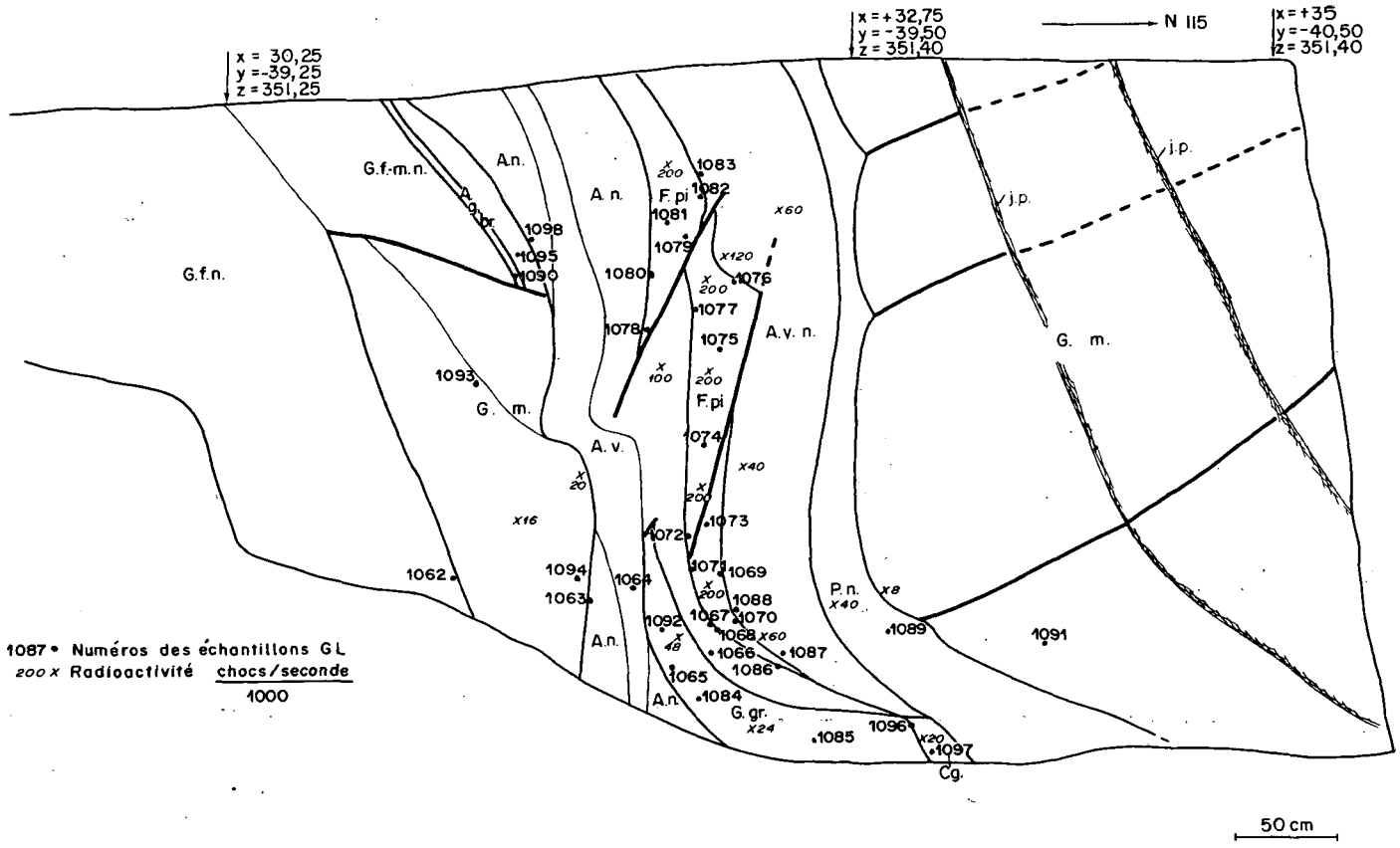


FIG.26. Front 127, zone 3–4: situation des échantillons GL et plan compteur.

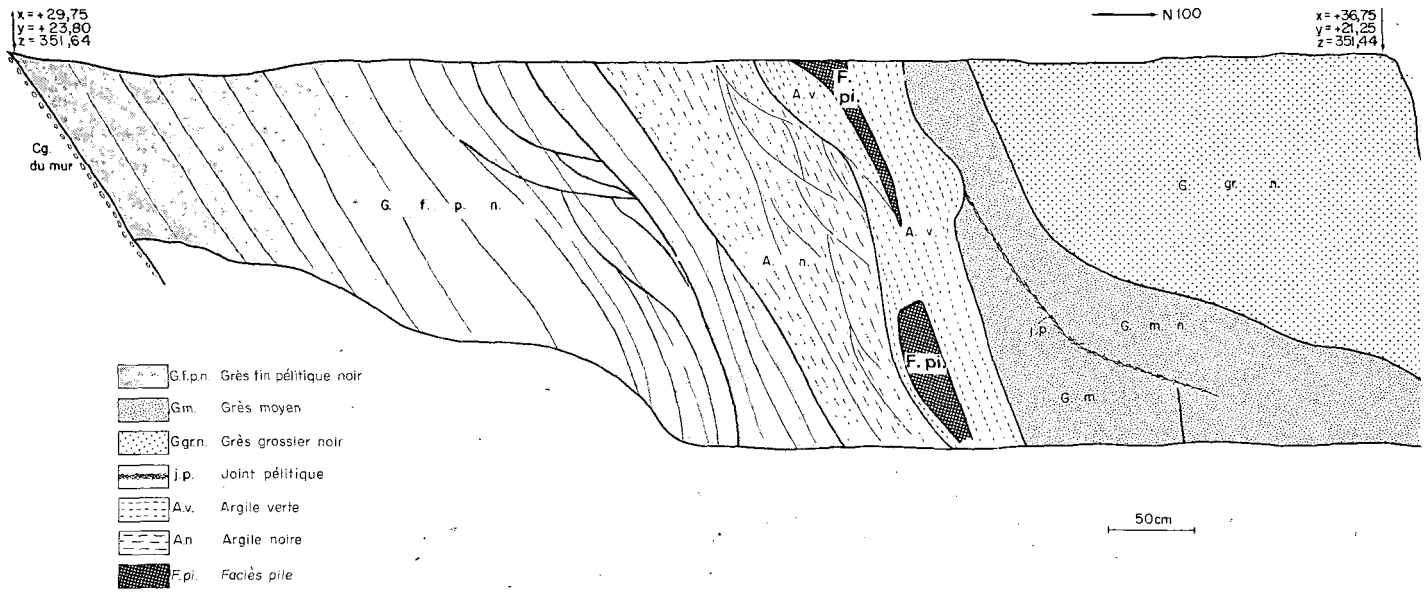


FIG. 27. Front 128, zone 3–4.

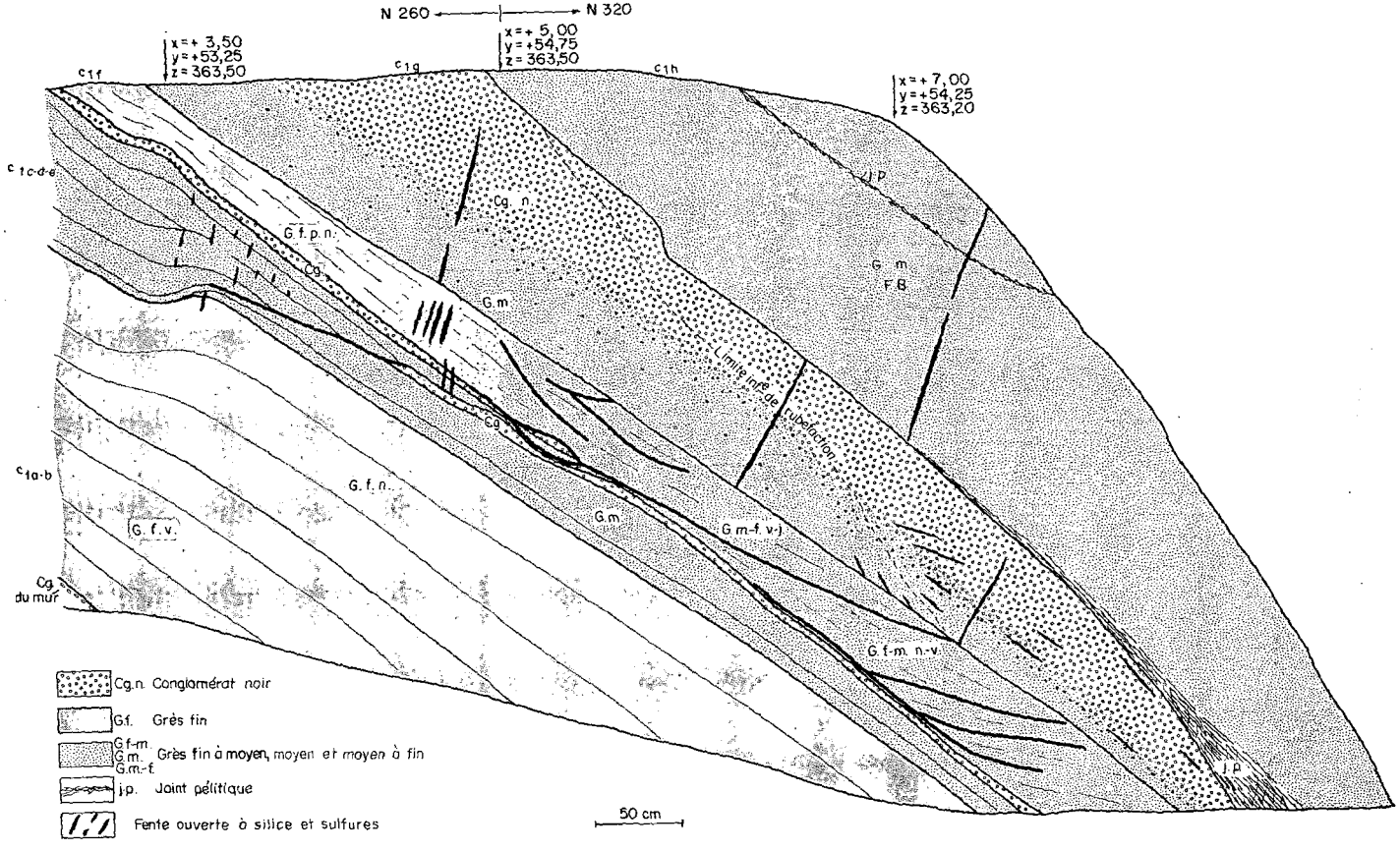


FIG.28. Front 129, au nord de la zone 2.

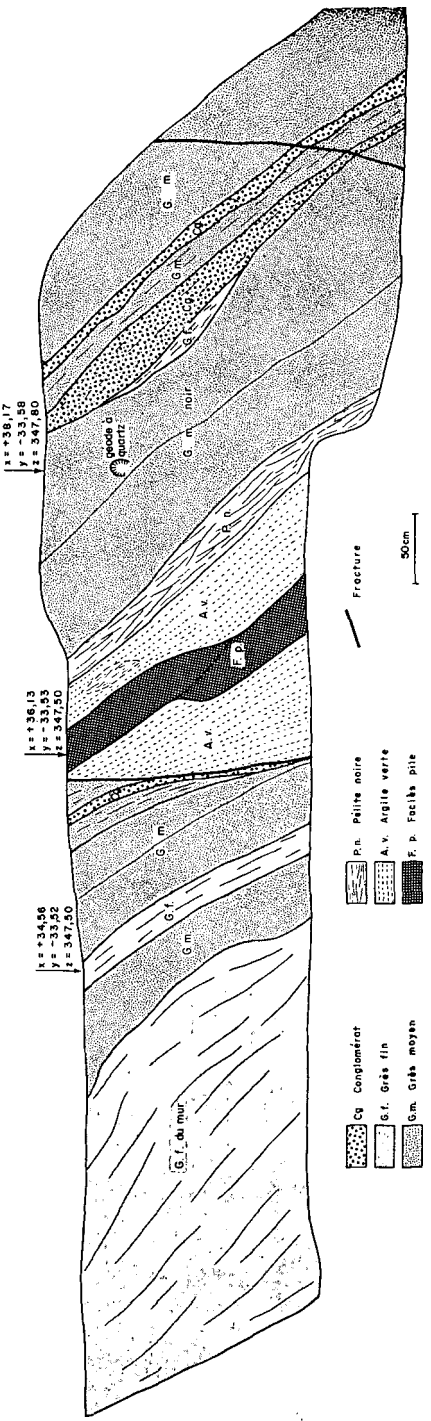


FIG.29. Front 166, zone 3–4.

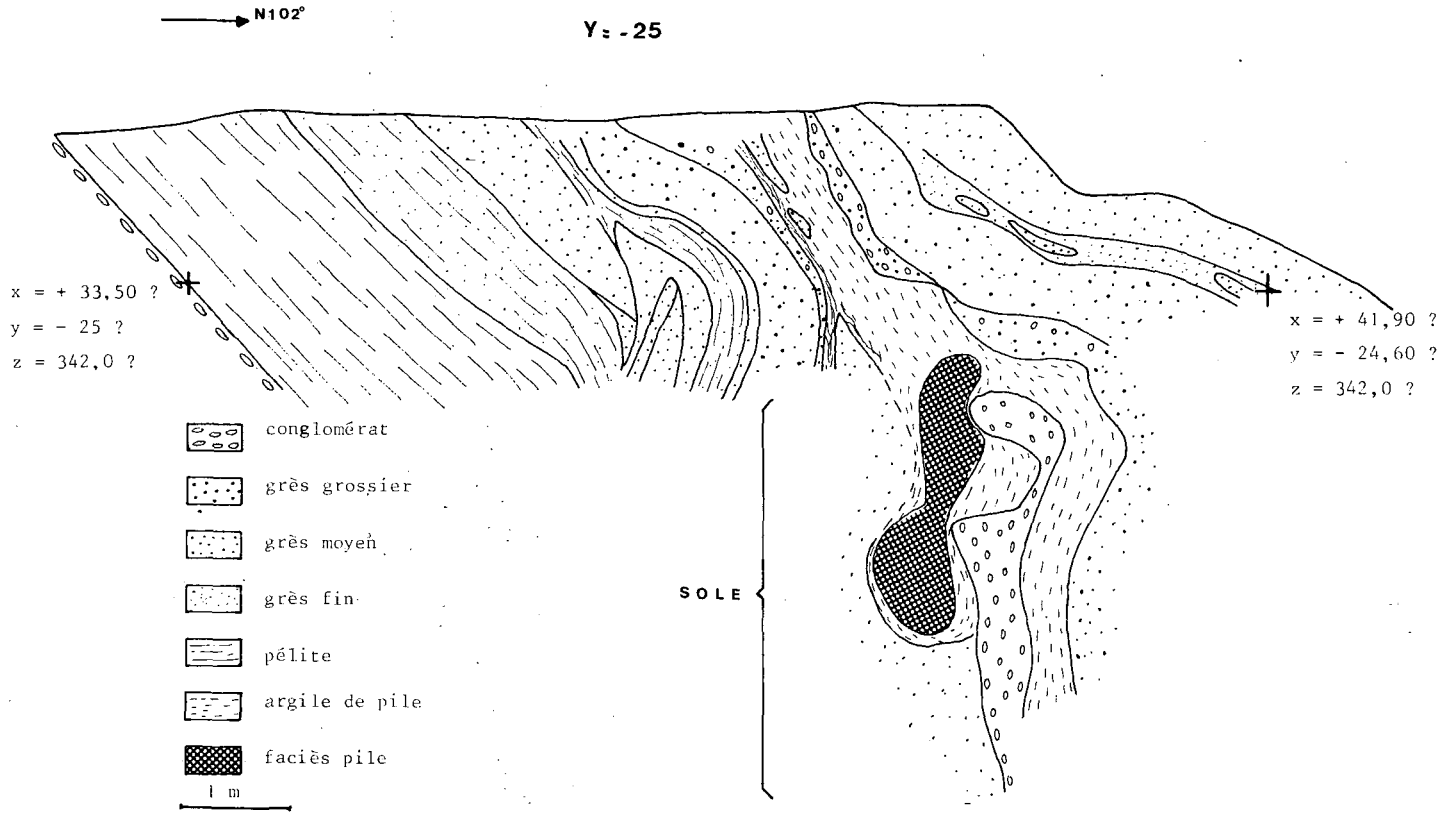


FIG.30. Front 185, zone 3–4 (front relevé par B. Michel et F. Mobangui, COMUF).

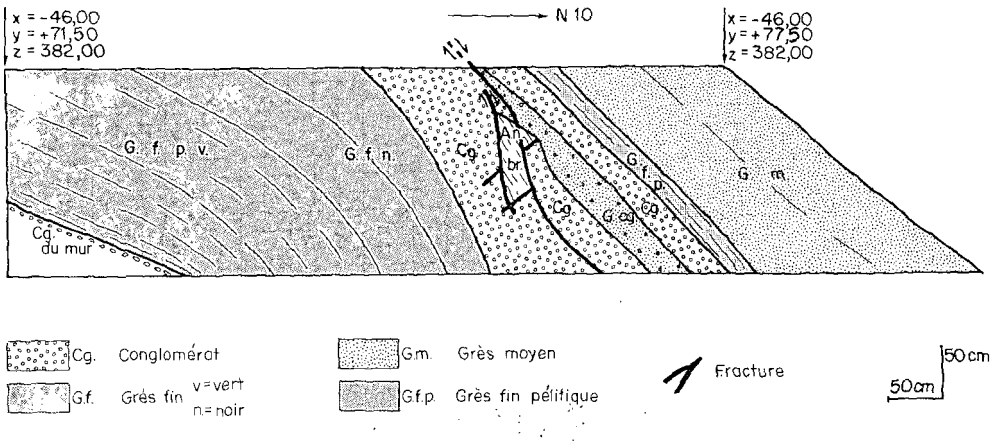


FIG.31. Front du 8.9.75, nord de la minipile.

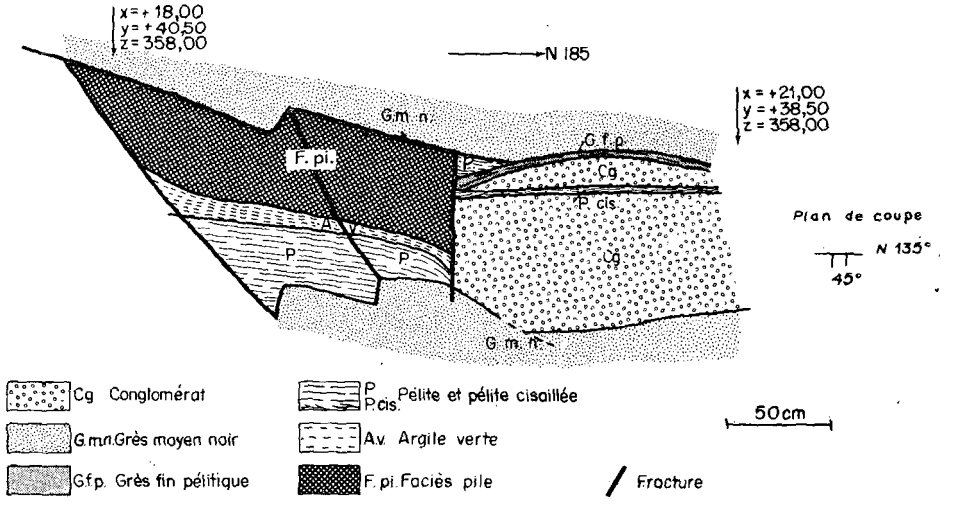


FIG.32. Front du 10.1.76, zone 2.

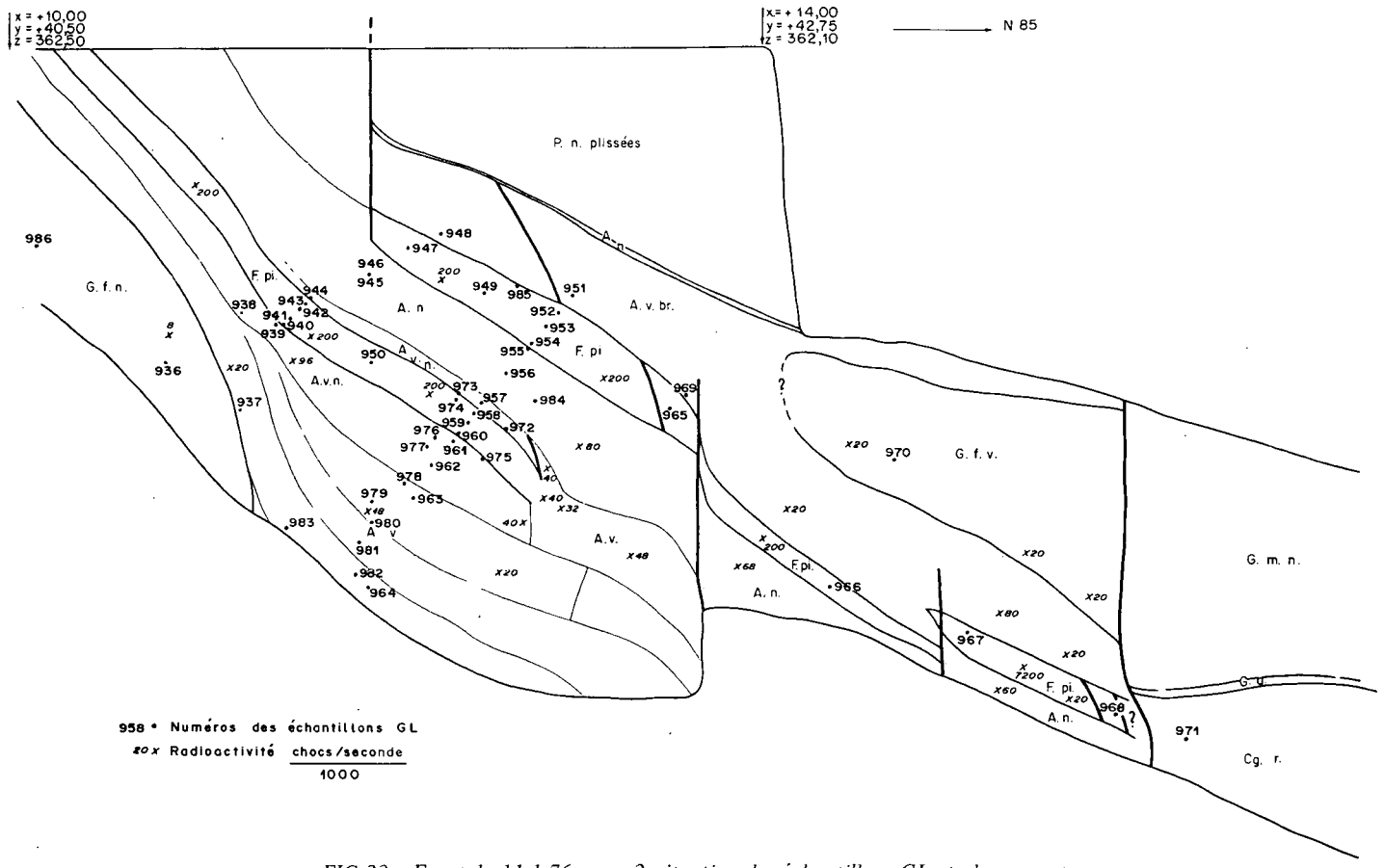


FIG.33. Front du 11.1.76, zone 2, situation des échantillons GL et plan compteur.

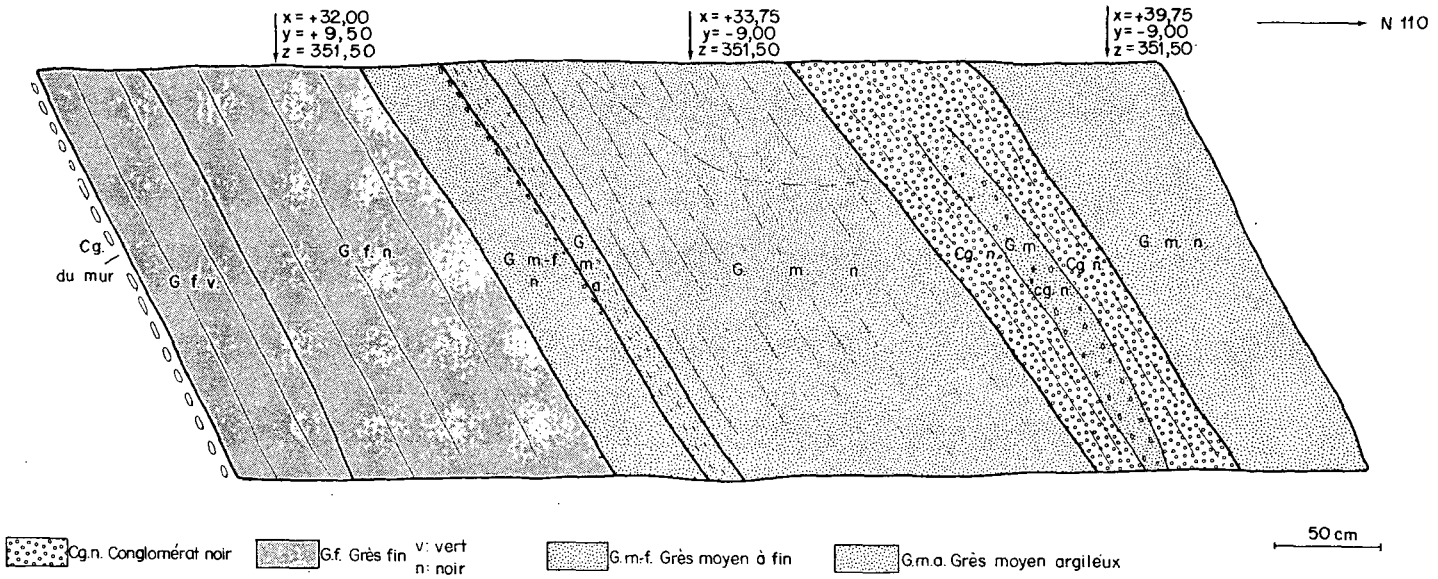


FIG. 34. Front du 24.1.76, entre les zones 3–4 et 5–6.

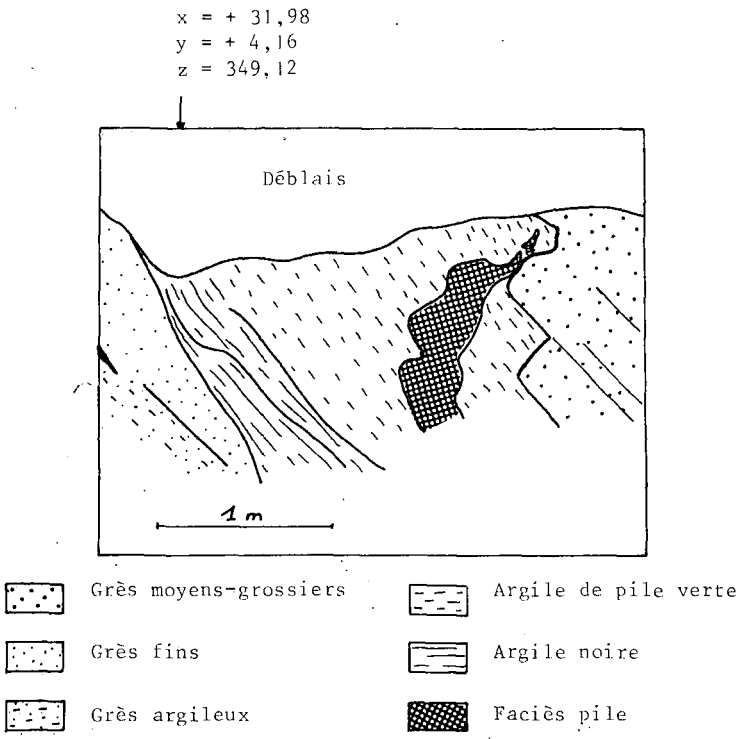


FIG.35. Front du 29.9.76, zone 5–6 (dessin d'après photo).

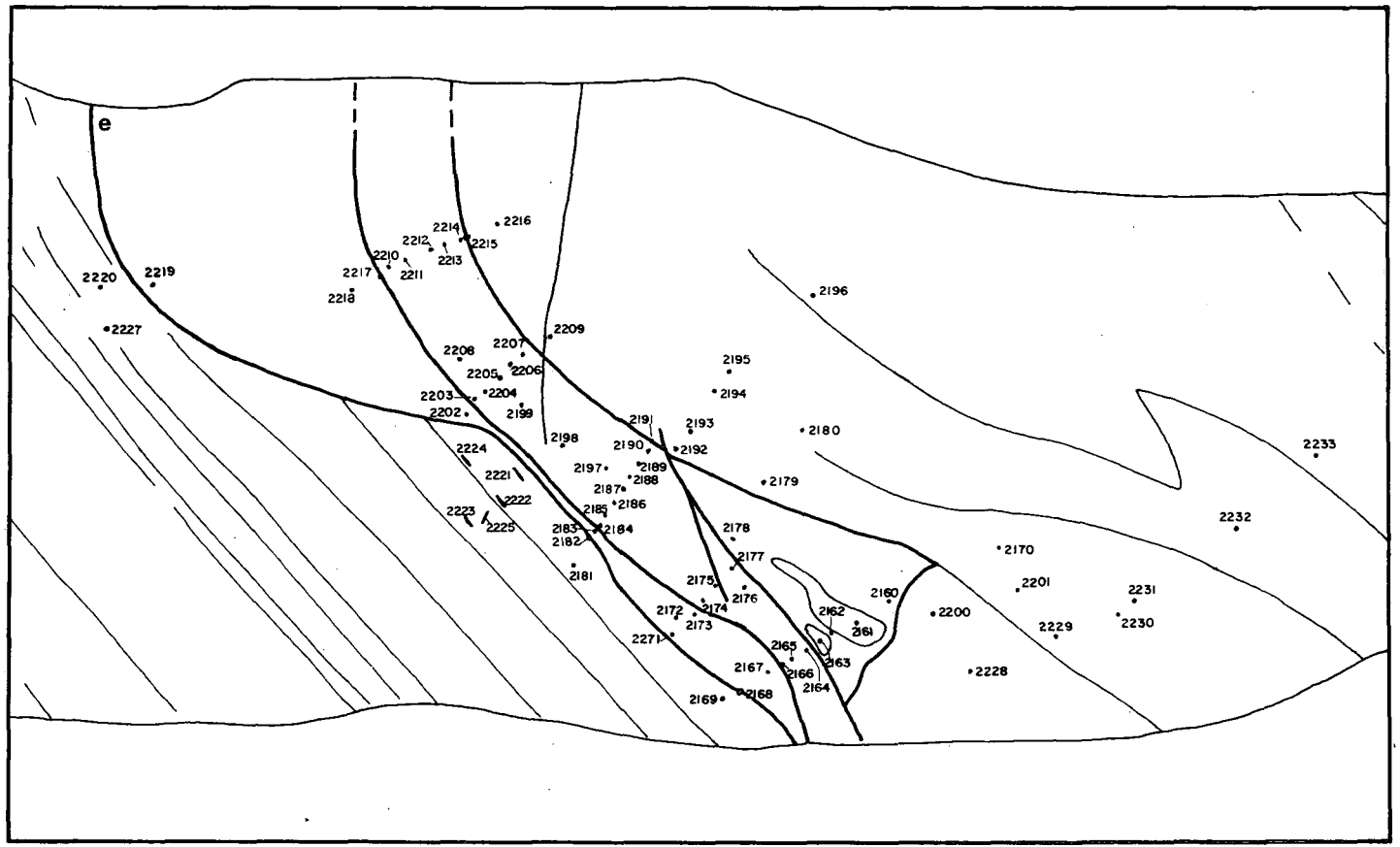


FIG.36. Front du 30.9.76, zone 5–6, situation des échantillons GL et plan compteur.

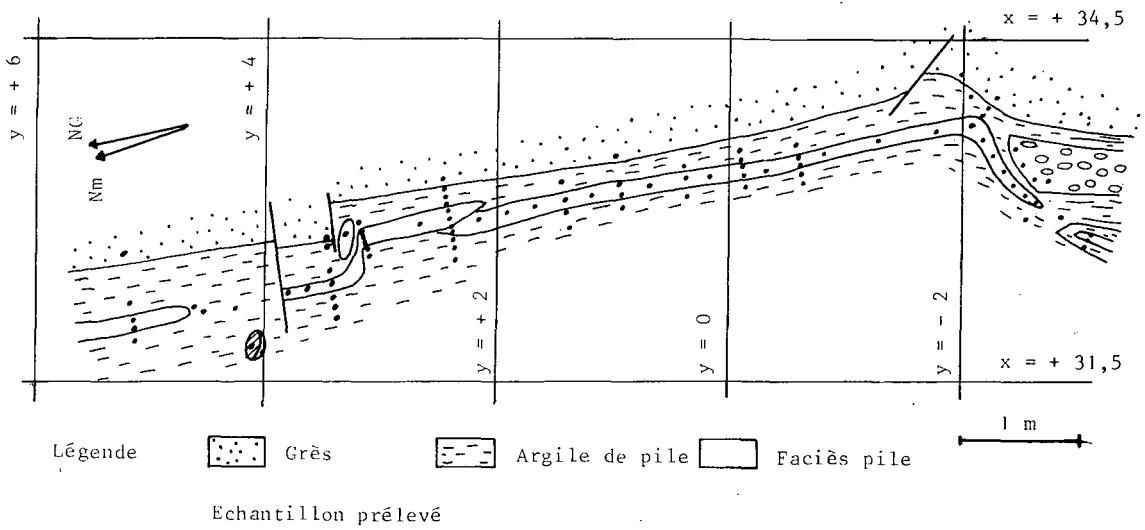


FIG.37. Affleurement 4, zone 5–6.

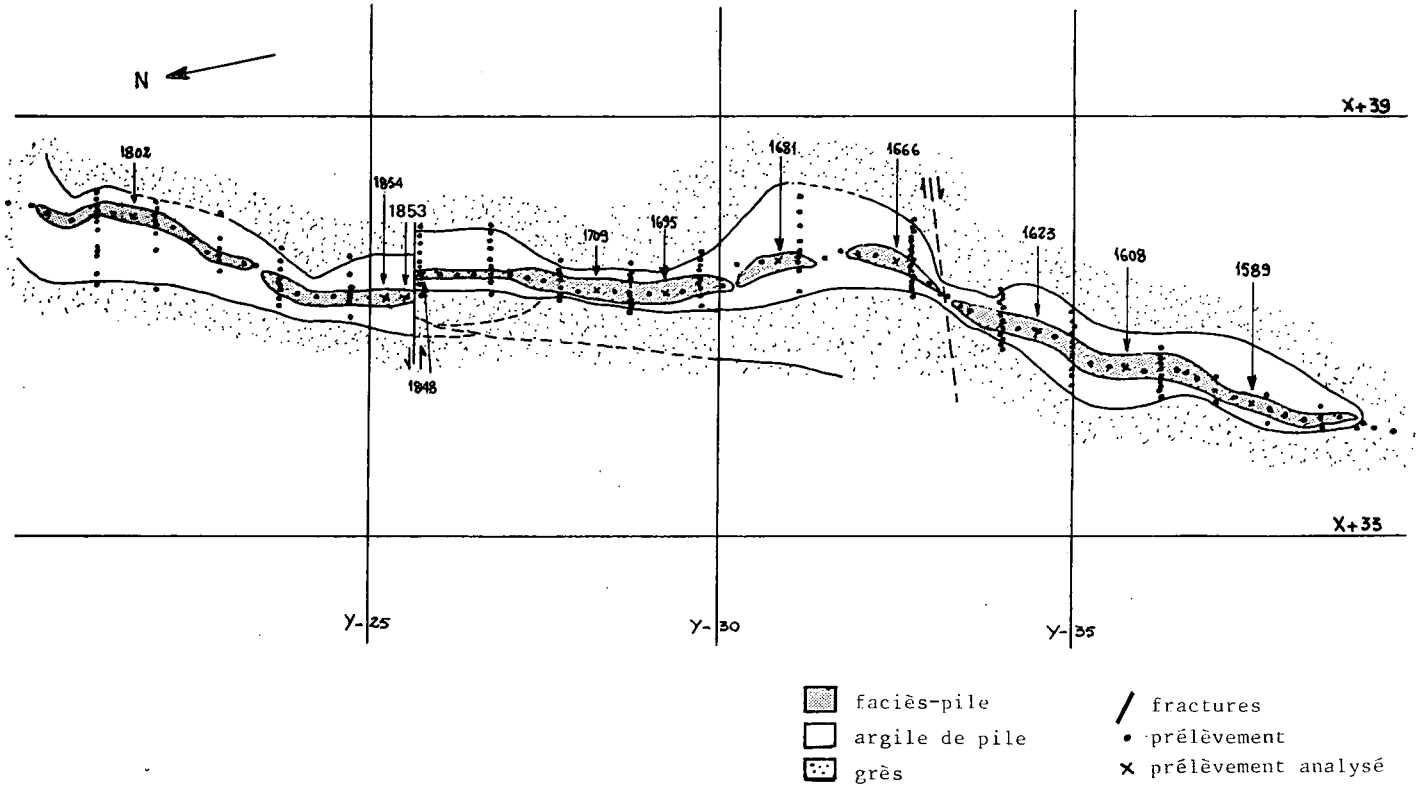


FIG. 38. Affleurement 5, zone 3–4.

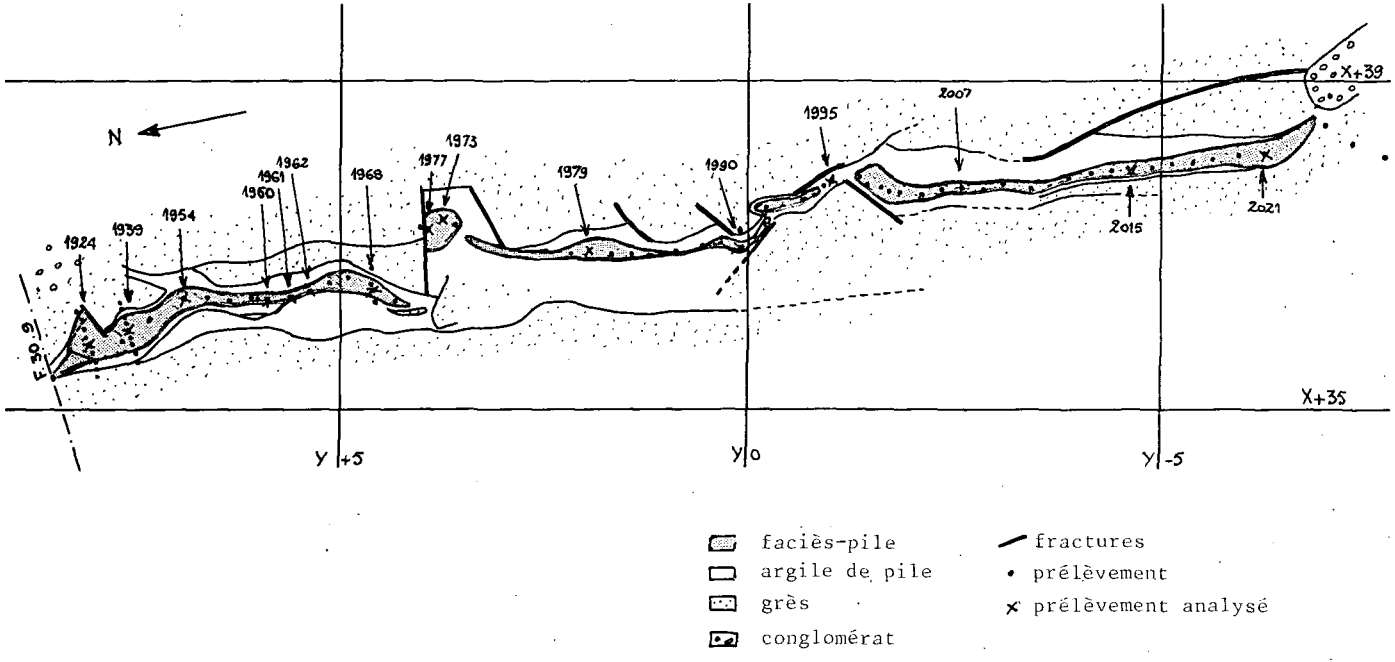


FIG.39. Affleurement 6, zone 5–6.

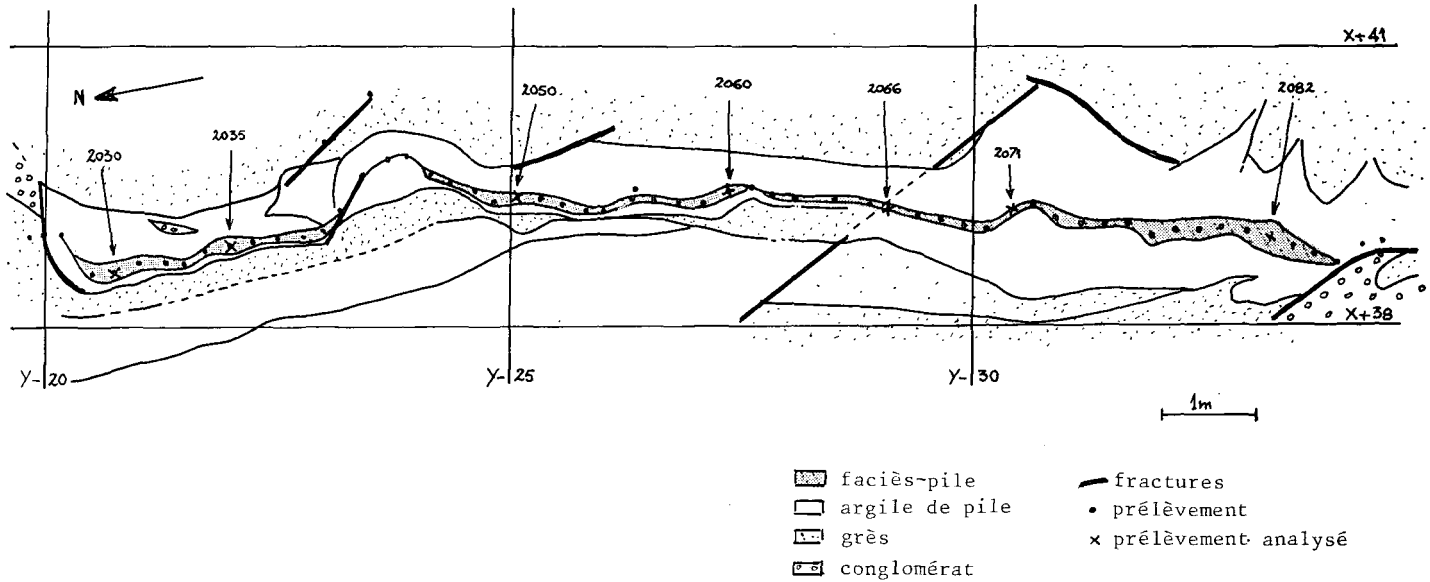


FIG.40. Affleurement 7, zone 3–4.

NOUVELLES ANALYSES SYSTEMATIQUES DE L'URANIUM DES MINERAIS D'OKLO

R. NAUDET, C. RENSON
CEA, Centre d'études nucléaires de Saclay,
Gif-sur-Yvette, France

Résumé–Abstract

NOUVELLES ANALYSES SYSTEMATIQUES DE L'URANIUM DES MINERAIS D'OKLO.

Le travail d'analyse systématique de l'uranium du secteur des réacteurs, décrit dans IAEA-SM-204/21 et 204/23 (Colloque de Libreville sur le phénomène d'Oklo, 1975), a été poursuivi: il comporte des mesures radiométriques de teneur sur carotte, des mesures de teneur sur poudre, et des analyses isotopiques: environ trois cents analyses isotopiques nouvelles ont été effectuées à Pierrelatte depuis le colloque de Libreville. Les résultats sont présentés sous forme de tableaux, et les plus intéressants sont commentés. Cette investigation apporte d'abord une contribution essentielle à la description du phénomène «réacteur naturel». En particulier les nouvelles zones de réaction découvertes fin 1974, et explorées au cours de l'exploitation du gisement, ont été étudiées extensivement. Il est extrêmement remarquable que l'on trouve des réactions pratiquement partout, sur des étendues considérables, même là où les passes riches sont temporairement étroites ou déchiquetées. On a mis ainsi en évidence des situations extrêmement variées, et également de vastes portions où les taux de réaction sont très faibles. Les analyses systématiques sont importantes pour permettre de sélectionner des échantillons appropriés pour la plupart des autres études, et de définir convenablement leur environnement. On a montré d'autre part que l'étude détaillée des distributions de taux de réaction était riche en enseignements puisque l'uranium a conservé pour l'essentiel sa configuration: on a poursuivi l'étude de quelques «situations» particulièrement intéressantes. On a examiné également de plus près l'éventualité de remobilisations d'uranium dans les bordures de zones de réaction, et on s'est intéressé aux phénomènes de contamination par des analyses dans l'environnement proche ou moins proche des réacteurs.

NEW SYSTEMATIC ANALYSES OF THE URANIUM IN THE OKLO ORES.

The systematic analytical work on the uranium of the reactor sector described in papers IAEA-SM-204/21 and 204/23 at the symposium on the Oklo Phenomenon at Libreville, Gabon in 1975, has been continued: it has included radiometric measurements of concentration in core samples, measurements of concentration in powder, and isotopic analyses – about 300 additional isotopic analyses have been carried out at Pierrelatte since the Libreville symposium. The results are presented in tables with comments on the most interesting ones. This research has made an essential contribution to the description of the "natural reactor" phenomenon. In particular, the new reaction zones discovered at the end of 1974 and explored while the deposit was being mined have been extensively studied. It is very remarkable that reactions are found almost all over the site, over considerable stretches, even where rich bands are temporarily narrow or jagged-edged. Thus, very varied situations have been found, including large areas where the reaction rates are very low. The systematic analyses are important for the selection of appropriate samples for most other studies and for the proper definition of their environment. It has been shown, moreover, that the detailed study of reaction rate distributions is a rich source of information because the uranium

has largely preserved its configuration: some particularly interesting "situations" have been studied. The possibility of remobilization of the uranium near the edge of the reaction zones has also been examined more closely, and phenomena of contamination have been investigated by means of analyses carried out near to or further from the reactors.

I - MESURES EFFECTUEES ET RESULTATS

1. Radiométrie γ sur carottes

On a décrit dans [1] le procédé radiométrique mis au point à Saclay, permettant de déterminer le profil des teneurs en uranium du minerai le long d'une carotte de sondage, par intégration continue. Ce procédé a ce double avantage d'être non destructif, et de donner une courbe plus représentative que celle obtenue à partir d'échantillons isolés, car on intègre pour chaque point de mesure un volume important (environ 0.5 kg de minerai). Il exige toutefois que le carottage ait une parfaite intégrité.

On avait donné dans [1] les résultats relatifs à 42 sondages. Pour 4 d'entre eux, on a complété les mesures sur des portions de carottes supplémentaires, et on a étudié en outre 15 autres sondages. Les résultats sont reproduits dans le tableau I[1]: on donne pour la cote moyenne (milieu de l'intervalle de 5 cm) la teneur en %. La précision a été discutée précédemment ; dans le cas des SC 89, 91 et 92, dont le carottage est de mauvaise qualité, certains points de mesures risquent d'être sous-évalués.

2. Teneur isotopique de l'uranium

On avait publié dans [2] les résultats d'environ sept cents analyses isotopiques d'uranium ; plus de trois cents analyses supplémentaires ont été effectuées depuis le colloque de Libreville. La quasi-totalité de ces mesures a été réalisée au Laboratoire de Pierrelatte, en spectrométrie de masse sur UF_6 [3] ; pour quatre ou cinq échantillons, la masse d'uranium étant insuffisante, les résultats ont été obtenus par thermoionisation au Laboratoire de Bruyères-le-Châtel [4]. Le nombre indiqué est relatif exclusivement à l'étude du phénomène "réacteurs" ; il ne comprend pas les analyses de contrôle d'exploitation de la COMUF, ni bien entendu les analyses systématiques de lots d'uranate produits par l'usine.

Le tableau II donne les résultats. On a classé les échantillons en quatre catégories : coupes sur les affleurements initiaux - sondages SC - sondages KN - échantillons prélevés au cours du suivi géologique de l'exploitation. Pour chacun d'eux, on indique le numéro d'échantillon, la cote de prélèvement, la teneur en uranium de la poudre, et la concentration atomique en isotope 235. Pour la position des coupes, sondages ou fronts, on se reportera aux figures de la référence [5].

[1] Tableaux I et II: voir annexe.

Dans le cas d'une coupe sur les affleurements 1 ou 2', la cote représente la distance à un côté du rectangle de base. Dans le cas des sondages paraffinés (sondages SC jusqu'à SC 84 inclus), les échantillons dont le numéro n'est pas indexé ont 5 cm de longueur (sur un quart ou parfois une demi-carotte) ; ceux qui portent un indice (exemple n° 2129/3) ont 1 cm de longueur sur 1/4 de carotte (de même le n° 2152/2.3.4 par exemple a 3 centimètres, etc.) ; dans tous les cas la cote est celle du milieu de l'échantillon. Dans le cas des sondages SC 85 à 93 et des sondages KN, la cote est souvent plus imprécise. Pour les prélèvements sur les fronts ou affleurements GL, il est nécessaire de se reporter aux levés géologiques [6].

La teneur en uranium de la poudre est en général mesurée par radiométrie γ [1] ; la précision n'est que de 3 ou 4 % (et même moins en valeur relative pour les faibles teneurs) ; toutefois, pour chaque sondage KN, au moins une poudre a fait l'objet d'une mesure chimique à Mounana. Les teneurs isotopiques mesurées à Pierrelatte sont données à ± 0.0010 %, mais cette marge inclut l'erreur systématique provenant du standard ; la reproductibilité de la mesure est en réalité de ± 0.0003 %.

II - COMMENTAIRES

1. Sondages SC des zones 1 et 2

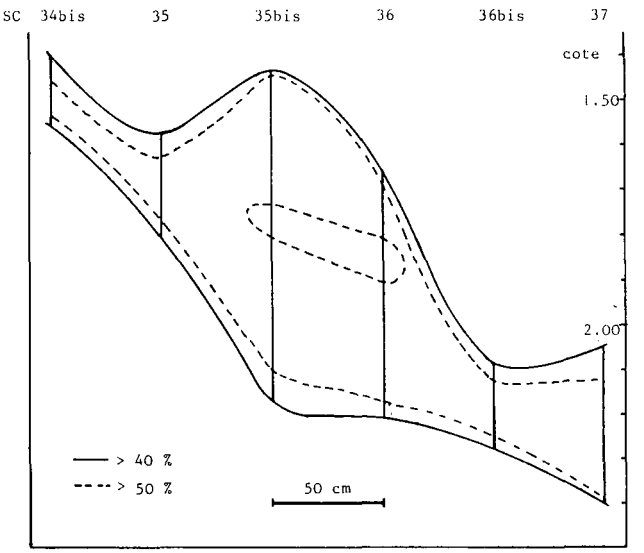
On a montré précédemment que l'étude détaillée des taux de réaction est pleine d'enseignement, puisque l'uranium a conservé pour l'essentiel sa configuration, et que ces distributions sont interprétables en termes de physique des réacteurs. C'est la raison pour laquelle on a poursuivi en 1975 l'étude de quelques "situations" intéressantes. En particulier, on a étudié des ensembles de sondages immédiatement voisins (distants de 50 cm) pour examiner comment évoluaient la répartition de l'uranium et les courbes correspondantes d'appauvrissement isotopique.

C'est ainsi qu'au voisinage du SC 36, qui a fait l'objet d'études particulièrement détaillées, on a étudié les sondages SC 35 bis, SC 35 b2, SC 36/1, SC 36/2 et SC 36 bis ; dans ce secteur de zone 2, l'uranium est très concentré. Les résultats sont homogènes et les évolutions constatées conformes à ce qui est prévisible d'après la configuration de l'uranium. A titre d'illustration, on montre sur la figure 1 l'évolution observée lorsqu'on passe de SC 35 bis à SC 36 bis ; la passe à plus de 50 % s'amincit fortement, et on en voit les effets sur les courbes d'appauvrissement isotopique ; celle du SC 36 reflète la dissymétrie d'environnement ; pour SC 36 bis la passe est devenue très mince, et le maximum central disparaît.

Dans le même esprit, on a étudié dans la zone 1 SC 63 bis, immédiatement à la suite de SC 61 et SC 63, et SC 21 bis, immédiatement à la suite de SC 30 bis, SC 30, ces deux secteurs sont particulièrement intéressants. SC 43 a été étudié pour compléter la série SC 35 à SC 44, et de même SC 82 et 84 pour former avec SC 32 une coupe dans l'aval de la zone 2.

2. Etude d'un petit secteur sur l'affleurement 2'

Les coupes 2'P, 2'P' et 2'Q' avaient mis en évidence des appauvrissements isotopiques extrêmement élevés le long d'un petit joint argileux repérable sur le terrain. On a voulu examiner une nouvelle fois cette situation avec plus de détail, en faisant dans deux petites zones de ce



Position de la passe riche de SC 34bis à SC 37

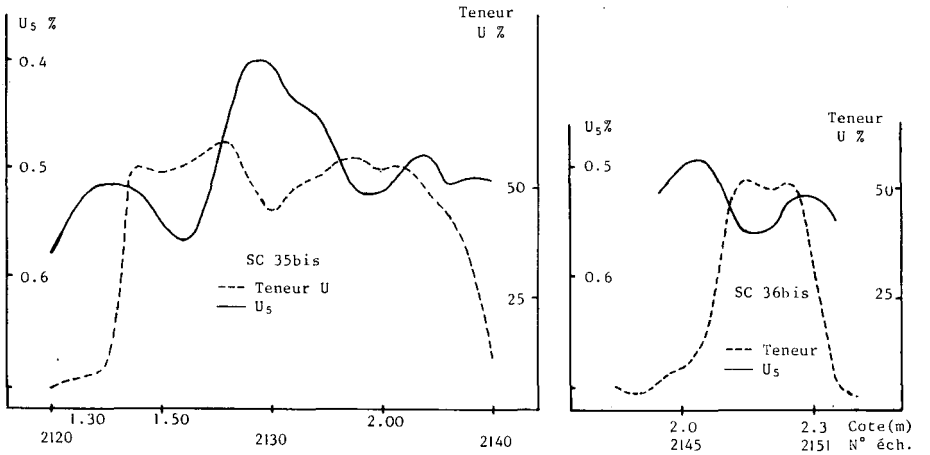


FIG.1. Sondages SC 35 bis et SC 36 bis.

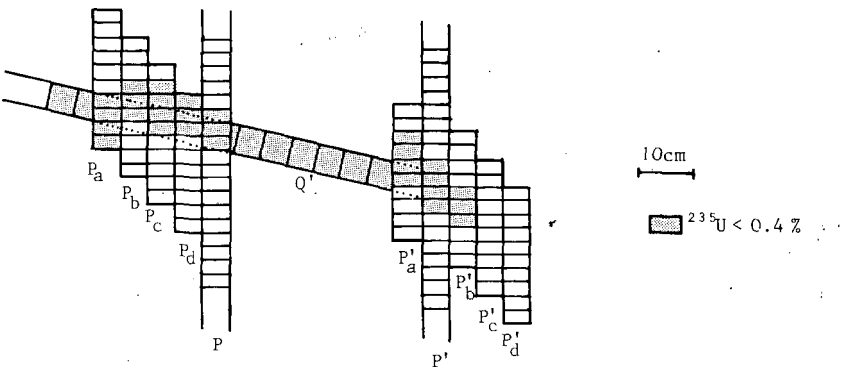


FIG.2. Echantillonnage fin dans le secteur 2'Q'.

secteur des prélèvements continus à deux dimensions (coupes 2'P_a, 2'P_b, 2'P_c, 2'P_d, 2'P'_a, 2'P'_b, 2'P'_c, 2'P'_d, voir figure 2). Les résultats sont spectaculaires : on a trouvé un grand nombre de teneurs isotopiques voisines de 0.3 % (chiffre qui n'a jamais été atteint par ailleurs). A titre d'illustration voici les valeurs trouvées dans seize échantillons jointifs occupant une petite zone 20 x 10 cm:

0.3456 %	0.3266 %	0.3180 %	0.3711 %
0.3065 %	0.3033 %	0.3079 %	0.3316 %
0.2955 %	0.3648 %	0.3146 %	0.3382 %
0.3267 %	0.4164 %	0.3616 %	0.3808 %

Cette situation est tout à fait exceptionnelle. Mais on en a trouvé une autre analogue à 50 mètres de là, en zone 5 : sur le front du 30/9, un petit joint argileux a été repéré au centre de la passe riche ; on a prélevé sur la traversée les échantillons GL 2234 à 2237. Les résultats montrent d'une manière semblable la coïncidence d'un fort pic d'appauvrissement isotopique avec le minimum de teneur du minerai

GL 2234	U = 51 %	^{235}U : 0.5890 %
2235	23 %	0.5170 %
2237	55 %	0.5717 %

Certes les appauvrissements ne sont pas aussi élevés qu'en zone 2, mais en valeur relative, le phénomène est le même (la valeur trouvée pour GL 2235 est le record de la zone 5 ; les échantillons GL 2198 et 2205 ont été prélevés sur le même joint).

3. Etude des bordures des zones de réaction

En premier lieu, on a examiné de plus près la bordure inférieure du SC 36 (échantillons 1420 à 1423) ; à cet endroit, la teneur uranium s'effondre brusquement, il reste un fort appauvrissement isotopique avec un gradient élevé ; on avait cru relever des fluctuations de teneur isotopique, en particulier entre les échantillons provenant de deux quarts de carottes adjacents. En réalité, si les résultats dans les deux quarts de

carotte sont décalés, l'esentiel peut sans doute s'expliquer par le fait que le sondage est oblique par rapport à la stratification et qu'il y a un fort gradient ; autrement dit, même dans cette position de bordure, il semble que l'uranium a été peu perturbé.

On a examiné en détail un petit secteur situé au mur du SC 44 ; dans les échantillons 1931 et 1932, l'uranium est presque normal, puis dans 1933 on trouve brusquement des teneurs isotopiques de l'ordre de 0.57 % ; ces échantillons ont fait l'objet d'études nombreuses (terres rares, plomb, thorium, analyse ionique). On ne peut toutefois exclure qu'il s'agisse en réalité d'un petit fragment de minerai tombé au fond du trou au moment de la foration et incorporé dans la carotte suivante.

On a examiné les prolongements toit des sondages SC 30 et SC 30 bis. Dans ces deux sondages, on trouve au-dessus de la zone de pile proprement dite, au moins 1.50 m de minerai riche (5 à 25 %). Les analyses ont montré que la totalité de cet uranium est contaminé, ce qui représente un poids considérable d'uranium 235 manquant. Mais le plus remarquable est que les teneurs isotopiques sont très constantes ; les huit analyses nouvelles, qui jalonnent deux mètres de sondages, ont donné des valeurs qui sont toutes comprises entre 0.6834 et 0.6876. Tout se passe comme si, au lieu d'une arrivée d'uranium appauvri dans du minerai normal, on avait la mise en place homogène d'une grande quantité d'uranium appauvri. On peut rappeler qu'on a trouvé la même situation dans le sondage SC 20, également en zone 1.

D'une manière générale les portions situées au toit des réacteurs sont en général davantage contaminées. On sait que dans le SC 36, la contamination est persistante au toit ; on a analysé deux échantillons distants d'un centimètre dans du minerai très pauvre (n° 1890/4 et 1890/5 : teneur ∿ 0.1 %). On a trouvé deux valeurs très voisines et du même ordre que dans le minerai environnant. Même dans ce cas, où elle est faible, la venue d'uranium contaminant semble assez homogène.

4. Sondages KN

Ces 59 sondages ont été forés dans un but d'exploration et non d'échantillonnage et les carottages sont de mauvaise qualité ; ils présentent cependant un grand intérêt, car ce sont les seuls (à l'exception de SC 85 à 90, qui malheureusement ne sont pas meilleurs) à avoir traversé les zones 4 à 6, et d'autre part ils sont les seuls à fournir un échantillonnage systématique de l'environnement. On a donc analysé au moins un échantillon de chaque sondage.

Parmi les 16 sondages KN qui ont traversé des zones de réaction, sept ou huit ont été étudiés avec un peu plus de détail (on va étudier également le SC 89). Dans les zones 3-4 et 5-6 l'appauvrissement isotopique de l'uranium ne semble pas en relation aussi évidente avec l'épaisseur de la passe riche que dans les zones 1 et 2 ; peut-être cela provient-il d'une plus grande hétérogénéité dans l'environnement. D'autre part, les corrélations entre les courbes d'appauvrissement isotopiques et celles de teneur du minerai ne semblent pas aussi strictes ; certes, les courbes de teneurs et les positionnements sont mal connus, et les échantillons peu nombreux, mais les successions de valeurs trouvées dans un sondage sont quelque peu déconcertantes. Peut-être là encore faut-il attribuer

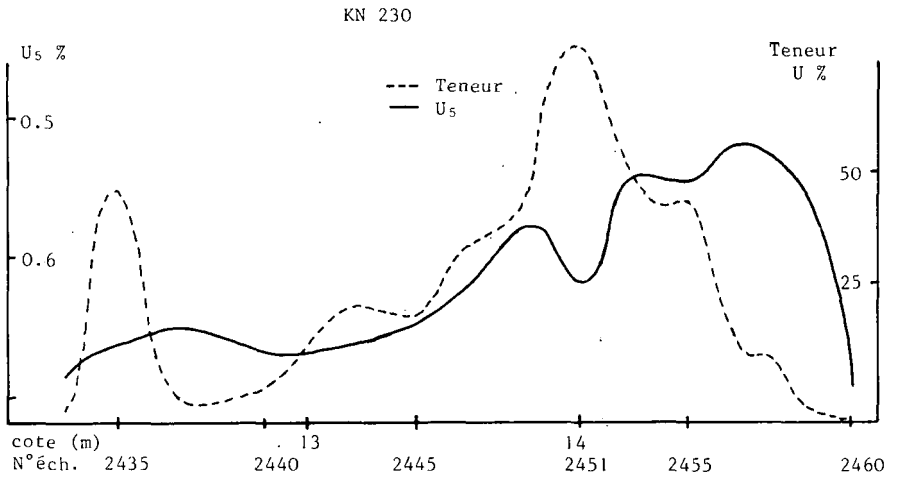


FIG.3. Sondage KN 230.

ces observations à l'irrégularité de l'environnement, mais on peut aussi se demander si les conditions dans lesquelles se sont déroulées les réactions dans ces zones moins argilisées ne sont pas un peu différentes de celles des zones 1 et 2.

Un sondage a été étudié en détail : le KN 230 ; c'est en effet celui qui a traversé la passe la plus riche, et le carottage est relativement bon. Il apparaît que la zone de pile s'étend sur près de trois mètres : l'appauvrissement isotopique maximum est très élevé (pour la zone 4) puisqu'on trouve 0.522 %. Toutefois la portion la plus appauvrie est décalée par rapport à la courbe de teneur du minerai (fig. 3) ; d'autre part, il y a deux passes riches distinctes, et il reste un appauvrissement notable dans la portion à basse teneur qui sépare les deux passes. En réalité, l'exploration du site a montré qu'on se trouve dans la région fortement flexurée du "dressant" ; le sondage pénètre dans une partie de la couche presque verticale, d'où la grande longueur traversée. Il n'est donc pas étonnant que dans cette situation il n'y ait pas une corrélation précise avec la courbe de teneur.

Dans les zones 3 à 6, il reste des grès autour des argiles de piles, et quelquefois le "faciès-pile" est directement au contact de grès sains, c'est-à-dire peu fracturés et peu désilicifiés. C'est par exemple le cas du KN 226 ; ce sondage a été choisi pour faire des études sur les quartz qui sont donc très proches des zones de flux intense (inclusions fluides - traces de fission). C'est la raison pour laquelle on a mesuré l'appauvrissement isotopique de l'uranium dans la région frontière, et en particulier dans les premiers décimètres de grès.

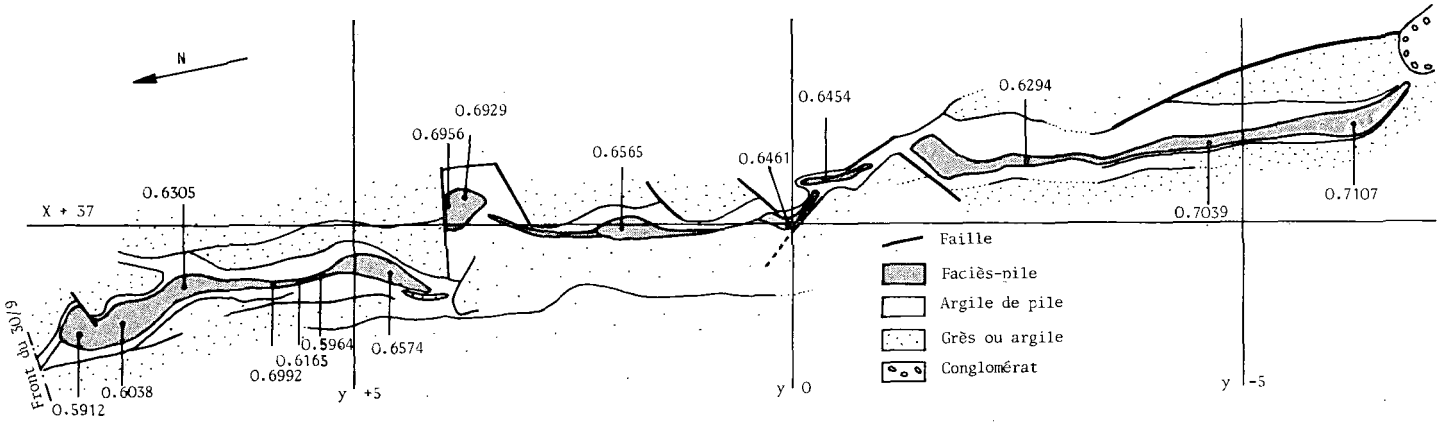


FIG.4. Affleurement n° 6.

5. Echantillonnage géologique

Le suivi géologique de l'exploitation du secteur des piles [6] a montré d'une part que les zones de réaction étaient plus étendues qu'on ne l'avait d'abord supposé, et d'autre part que leur morphologie était compliquée. Les lentilles à haute teneur sont très souvent déformées, parfois dédoublées et même hachées par des accidents ; ailleurs elles s'amincissent ou comportent des interruptions (fig. 4).

Il était important en tout état de cause de reconnaître de manière extensive ces zones nouvelles du point de vue des taux de réaction, car cette investigation est une contribution essentielle à la description du phénomène "réacteur naturel". Mais on s'est appliqué plus particulièrement à rechercher des secteurs ou des petites portions comportant du minerai identique à celui des zones de réactions intenses, mais où la minceur de la passe riche ou la nature de l'environnement n'auraient pas permis la criticité. Il semblait très important de les identifier, d'une part pour étudier les particularités minéralogiques liées aux réactions nucléaires, d'autre part pour essayer de comprendre les mécanismes de propagation des réactions. Au vu des levés géologiques, il semblait a priori que ce genre de situation devait se trouver très souvent.

Cela a donc été une surprise de constater qu'il y avait des réactions pratiquement partout. On a fait des analyses systématiques tout au long des affleurements et dans la plupart des fronts des zones 3 à 6. Il est tout à fait remarquable, non seulement que le faciès-pile semble inséparable de la proximité de réactions nucléaires, ce qui suggère très fortement que celles-ci ont joué un rôle décisif dans sa formation, mais aussi que les réactions aient gagné la totalité des secteurs tectonisés, et qu'il n'y ait pratiquement aucune interruption dans des portions de terrain très vastes (par rapport à la longueur de migration des neutrons). Il y a là un fait majeur qu'il faut expliquer.

Comme pour les sondages KN, on est souvent frappé par l'absence de corrélation apparente entre l'intensité des réactions et la richesse locale du minerai, par contraste avec ce qu'on connaît des zones 1 et 2. Certes les levés ne sont pas suffisamment détaillés pour qu'on ait une idée correcte des répartitions de teneur (la notion de "faciès-pile" est un peu subjective, et l'épaisseur de ce faciès ne renseigne qu'incomplètement sur l'accumulation d'uranium). En particulier on trouve des taux de réaction significatifs dans des petites portions de minerai riche déchiquetées ou isolées.

Dans quelques cas, de petits accidents tectoniques ont provoqué un déplacement de la passe riche ; on a cherché à savoir par l'analyse isotopique de l'uranium si le rejet était antérieur ou postérieur aux réactions ; il est en général difficile de conclure, mais il semble bien que les réactions ont eu lieu dans une géométrie proche de celle qui subsiste.

On trouve de grandes portions, notamment dans le bas de la zone 3-4, où les appauvrissements isotopiques sont partout très petits. On s'est demandé s'il ne s'agissait pas de vastes zones de contamination. Sur ce point non plus on ne peut répondre avec certitude, mais il semble bien, d'après les autres études, qu'il y ait eu effectivement des réactions.

6. Contamination à l'extérieur des zones de réaction

Au paragraphe 3, on a rendu compte des mesures effectuées dans les portions de sondages situés au mur et au toit des réacteurs ; un problème analogue se pose dans les bordures latérales des zones de réaction. En particulier on a analysé l'uranium dans deux coupes s'éloignant de la zone 2 en restant dans des argiles relativement riches ; le minerai est analysé au maximum de teneur dans le sens transversal ; les résultats sont les suivants (origine des coordonnées arbitraire) :

0	m	SC 46	: 0.6923 %	0	m	GL 1005	: 0.6987 %
1	m	SC 47	: 0.7170 %	0.75	m	GL 1008	: 0.7066 %
1.50	m	SC 47 bis	: 0.7190 %	1.75	m	GL 1012	: 0.7199 %
2.0	m	SC 48	: 0.7185 %	2.75	m	GL 1016	: 0.7200 %
2.50	m	SC 48 bis	: 0.7199 %				

Dans les deux cas, on retrouve très vite de l'uranium normal ou presque normal, il faut souligner que le SC 46 et GL 1005 sont incontestablement dans les réacteurs, et qu'il y a presque sûrement encore des réactions dans SC 47 et GL 1008. Dans le même ordre d'idée on a trouvé de l'uranium normal dans les SC 24 et SC 26 qui sont extrêmement proches de la zone 1 (et déjà partiellement argilisés). Dans le cas des zones 3 à 6, les sondages dans lesquels on trouve de l'uranium légèrement appauvri sont toujours très proches des zones de réaction. Il est donc confirmé que la contamination en s'étend pas au-delà de 2 ou 3 mètres, et peut-être même 1 à 2 mètres, des réacteurs eux-mêmes.

Au-delà de cette distance, et sauf dans un très petit nombre de cas sur lesquels on va revenir, l'uranium est normal, c'est-à-dire que sa teneur isotopique est supérieure ou égale à 0.7196 % ; il apparaît que si on considère tous les sondages de cette catégorie, la moyenne, de l'ordre de 0.7200 à 0.7201, n'est pas significativement différente de celle que l'on obtient dans le minerai normal du sud de la carrière. Il semble donc qu'on puisse affirmer qu'en dehors de "l'auréole", la contamination est presque rigoureusement nulle.

On a trouvé cependant quelques sondages avec de l'uranium dont la teneur est un peu trop basse, par exemple 0.7189. C'est le cas en particulier de KN 270 et KN 272 ; ces deux sondages sont situés à l'aval de la zone 1, et l'exploitation a montré qu'il y avait là une petite portion du gisement qui semblait contaminée. De même KN 275 et KN 277 à l'aval des zones 4-5 sont légèrement inférieurs à la moyenne.

Il semble qu'il y ait deux types distincts de contamination. La première est celle de "l'auréole" ; elle est strictement limitée à 1 ou 2 mètres, 3 mètres maximum ; elle est confinée dans la zone tectonisée et argilisée et se trouve aussi bien à l'amont qu'à l'aval des réacteurs ; cette contamination pourrait dater de l'époque des réactions. D'autre part, on trouve de manière sporadique à l'aval des réacteurs, une contamination qui semble de nature différente ; elle peut se trouver à une distance quelconque, comme l'ont montré les résultats d'exploitation ; elle pourrait être le résultat d'un lessivage récent.

Annexe

TABLEAU I. RADIOMETRIE γ SUR CAROTTES

SC 21 bis	
Cote	U %
5.75	3.7
80	3.6
85	4.1
90	5.6
95	6.2
6.00	7
05	9
10	13
15	23
20	24
25	22
30	20
35	15
40	11
45	9
50	10
55	22
60	27
65	33
70	35
75	44
80	38
85	21
90	8
95	25
7.00	26
05	13
10	12
15	9
20	3
25	2
30	1.2

SC 24	
9.55	0.7
60	0.6
65	1
70	1
75	0.9
80	3.2
85	3.5
90	11
95	4.9
10.00	4.8
10.05	2
10	0.7

SC 26	
8.00	1.5
05	1.2
10	1.3
15	1
20	1.5
25	13
30	20
35	26
40	17

SC 30 (complément)	
4.25	2.5
30	2.3
35	2.9
40	3.3
45	2.8
50	2.2
55	2.3
60	3.8
65	4.0
70	4.2
75	4.4
80	4.6
85	7
90	7
95	10
5.00	4
05	4
10	5
15	12
20	15
25	22
30	13
35	15

SC 30 bis (complément)	
4.25	2.6
30	3.0
35	5.9
4.40	6.6
45	7
50	8
55	12
60	18
65	14
70	16
75	17
80	10
85	9
90	9
95	10
5.00	10
05	8
10	7
15	7
20	6
25	7
30	6
35	10

SC 32 (complément)	
4.65	2.6
70	4
75	1.9
80	2
85	3
90	7
95	3

SC 36/1	
1.20	5
25	12
30	12
35	13
40	37
45	50
50	46
55	45
60	47
65	47
70	41
75	40
80	49
85	40
90	17

SC 46 bis	
2.45	4.4
50	4.1
55	19
60	23
65	30
70	24
75	18
80	9

SC 47 bis	
2.30	15
35	20
40	31
45	
50	26
55	9

SC 48	
2.15	8
20	11
25	15
30	13
35	21
40	19
45	16
50	10

SC 49	
0.65	2.7
70	3.4
75	3.3
80	2.7
85	3.7
90	3.1
1.40	⩽ 1
45	"
50	"
55	"
60	"
65	"
70	"

SC 63 bis	
2.60	4
65	11
70	9
75	13
80	22
85	22
90	35
95	39
3.00	13
05	19
10	26
15	13
20	13
25	6
30	2

SC 72	
6.70	6.2
75	4.8
80	4.4
85	6
90	4.7
95	14
7.00	14
05	13
10	13
15	12
20	14
25	20
30	22
35	25
40	27

SC 82 (complément)	
6.65	1.5
70	2.2
75	2.3
80	2.6
85	3.1
90	3.2
95	5.1
7.00	7.8

SC 84 (complément)	
7.95	6.3
8.00	1.8
05	1.4
10	1.4
15	1.8
20	3.4
25	4.4

SC 89	
4.65	1.7
70	2.4
75	2.8
80	2.2
85	2.3
90	6
95	39

5.00	(34)
05	38
10	16
15	31
20	26
25	21
30	11
35	15
40	15
45	12
50	4
55	3
60	4
65	1
70	<1

SC 92	
4.30	2.4
35	2
40	2
45	3.5

4.50	11
55	28
60	44
65	46
70	27
75	9

SC 93	
4.30	52
35	51
40	42
45	13
50	6
55	3
60	2
65	1.4
70	1.3
75	<1

An 3	
0.05	9.6
10	11
15	12
20	10
25	12
30	5.9
35	6
40	11
45	32
50	39
55	34
60	44
65	43
70	51
75	51
80	50
85	48
90	52
95	51
1.00	19

1.05	5
10	6.4
15	4.3

An 4	
0.05	48
10	48
15	45
20	34
25	31
30	34
35	26
40	22
45	6
50	4
55	6.4
50	4.4
65	1.7

TABLEAU II . ANALYSES ISOTOPIQUES D'URANIUM

1. Affleurements initiaux

N° échant.	Cote	U %	^{235}U % at.
Coupe 1 U			
910	0.50	14	
911	0.60	32	0.6959
912	0.70	15	
Coupe 2'P_a			
2335	- 0.39	46	
2336	- 0.365	43	0.3456
2337	- 0.34	32	0.3065
2338	- 0.315	34	0.2955
2339	- 0.29	34	0.3267
Coupe 2'P_b			
2342	- 0.415	50	
2343	- 0.39	23	0.3266
2344	- 0.365	22	0.3033
2345	- 0.34	38	0.3648
2346	- 0.315	55	0.4164
Coupe 2'P_c			
2352	- 0.365	37	0.3180
2353	- 0.34	24	0.3079
2354	- 0.315	17	0.3146
2355	- 0.29	38	0.3616
2356	- 0.265	41	

Coupe 2'P_d			
2360	- 0.365	39	0.3711
2361	- 0.34	38	0.3316
2362	- 0.315	32	0.3382
2363	- 0.29	41	0.3808
2364	- 0.265	52	
Coupe 2'P'_a			
2370	- 0.34	35	
2371	- 0.315	18	0.4438
2372	- 0.29	22	0.3285
2373	- 0.265	10	0.3730
2374	- 0.24	6	0.4188
2375	- 0.215	22	0.3976
2376	- 0.19	29	
Coupe 2'P'_b			
2383	- 0.215	45	
2384	- 0.19	25	0.3783
2385	- 0.165	34	0.3535
2386	- 0.14	26	0.3531
2387	- 0.115	40	
Minipile			
2091		54	0.7183
2092		64	0.7004

2. Sondages SC

N° échant.	Cote	U %	^{235}U % at.
SC 0			
2252	9.35	3	0.7201

SC 21 bis			
2506	6.20	28	0.5789
2511	6.45	9	0.6364
2514	6.60	31	0.5407
2517	6.75	51	0.5507
2520	6.90	6	0.5258
2523	7.05	14	0.6176

SC 24			
2527	9.90	13	0.7200
SC 26			
2528	8.35	22	0.7197
SC 30 compléments			
2461	4.225	5	0.6865
2468	4.62_5	4	0.6875
2474	4.97_5	9	0.6846
2479	5.25	14	0.6876
SC 30 bis compléments			
2482	4.22_5	3.5	0.6855
2489	4.62_5	7	0.6861
2495	4.97_5	13	0.6879
2500	5.25	7	0.6834
SC 35 bis compléments			
2129/3	1.70	48	0.4024
2131/3	1.80	53	0.4396
2137/3	2.10	47	0.4976
2139/3	2.20	32	0.5091
SC 35 b2			
2200	1.95	3	0.5603
2202/3	2.05	49	0.5172
2204/3	2.15	59	0.5182
2206/3	2.25	55	0.4530
2208/3	2.35	23	0.4232
2210/3	2.45	44	0.4339
2212/3	2.55	55	0.4510
2214/3	2.65	44	0.4628
2216/3	2.75	33	0.5028
2218/3	2.85	10	0.4939
SC 36 compléments			
1890/4	1.01	∿ 0.1	0.645
1890/5	1.02	∿ 0.1	0.648
1421/1	2.23	5	0.5040
1422/2	2.29	6	0.5390
1422/4	2.31	7	0.5677
1423/2	2.34	2	

SC 36/1			
2226/3	1.45	54	0.5447
2228/3	1.55	52	0.5081
2230/3	1.65	49	0.4832
2232/3	1.75	31	0.4455
2234/3	1.85	53	0.5510
SC 36/2			
2239/3	2.25	19	0.4593
2241/3	2.35	61	0.5098
2243/3	2.45	51	0.4601
2245/3	2.55	50	0.4423
2247/3	2.65	50	0.4416
SC 36 bis			
2144	1.95	6	0.5239
2146/3.4	2.05	21	0.4926
2148/3	2.15	58	0.5570
2150/3	2.25	54	0.5314
2152/3.4	2.35	38	0.5501
SC 43			
2413	1.60	7	
2415	1.70	28	0.6351
2417	1.80	27	0.5816
2419	1.90	49	0.5041
2421	2.00	39	0.4911
2423	2.10	2	0.5356
SC 44 compléments			
1919	1.15	0.4	0.7144
1922	1.30	0.3	0.7107
1932	3.05	8	0.7167
1933/2	3.09	(36)	0.5673
1933	3.10	10	0.5577
1934	3.15	1.5	0.6157
1935	3.20	3.9	0.6437
1936	3.25	1.9	0.7037
SC 47 bis			
2530	2.40	30	0.7190

SC 48			
2531	2.35	33	0.7185
SC 48 bis			
2283	2.42	40	0.7199
SC 57			
2223	11.40	32	0.7007
SC 58			
2093	17.50	48	0.7039
SC 74			
2747	5.50	26	0.6284
SC 82			
2103	7.10	50	0.6128
2105	7.20	55	0.6167
2107	7.30	57	0.6262
2109	7.40	5	0.6534
SC 84			
2111	8.35	33	0.6431
2113	8.45	42	0.6307
2114/5	8.52	43	0.5942
2116	8.60	37	0.6179
SC 85			
2562	5.80		

SC 86			
2571	5.40		
2573	5.50	37	0.6591
SC 87			
2574	5.10		
SC 88			
2580	4.95	46	0.6718
SC 89			
2589	4.90		
2591	5.00	53	0.6229
2593	5.10	34	0.6224
2595	5.20	6	
SC 90			
2610	5.12	57	0.6803
SC 91			
2615	4.45		
SC 92			
2624	4.65	46	0.6848
SC 93			
2627	4.25	38	0.6844

3. Sondages KN

N° échant.	Cote	U %	^{235}U % at.
KN 219			
2641	16.50-16.60	0.4	0.7195

KN 220			
2642	23.15-23.25	7.1	0.7202
KN 221			
2645	10.10	59.1	0.6551

KN 222			
2646	21.20-21.25	1.8	0.7195
KN 223			
2158	8.10-8.20	14	0.6518
2159	8.20-8.30	49	0.6772
2648	8.27	55.9	0.6817
2160	8.30-8.40	55	0.6904
2161	8.40-8.50	31	0.6790
2162	8.50-8.60	23	0.6808
2649	8.80	10.8	0.6732
KN 224			
2650	4.65-4.85	3.0	0.7190
KN 225			
2715	25.95-26.25	0.44	0.7204
KN 226			
2532	10.48	27.4	0.6479
2652	10.60	27	0.6408
2653	10.70	52	0.6603
2533/1	10.73		
2535/1	10.96		0.701
2538/1	11.18		0.708
KN 227			
2168	15.51-15.60	2	0.6491
2169	15.60-15.68	44	0.6335
2654	15.70	50.9	0.6277
2170	15.73-15.81	54	0.6379
2171	15.81-15.87	54	0.6413
KN 228			
2655	21.65-21.75	1.7	0.7018
KN 229			
2656	7.40	4	0.7029

KN 230			
2431	11.45 -11.55	5.1	0.67
2433	12.07_5-12.12_5	1.8	0.6878
2435	12.25 -12.35	48.6	0.6607
2437	12.47_5-12.52_5	5	0.6503
2440	12.80 -12.90	5	0.6722
2443	13.17_5 -13.25_5	21	0.6598
2445	13.37_5-13.42_5	18	0.6507
2447	13.57_5-13.62_5	33	0.6199
2449	13.77_5-13.82_5	38	0.5781
2451	13.95 -14.05	68.6	0.6195
2453	14.17_5 -14.22_5	43	0.5436
2455	14.37_5-14.42_5	40	0.5427
2457	14.57_5-14.62_5	11	0.5223
2458	14.67_5-14.72_5	12	0.5304
2459	14.77_5-14.82_5	2.5	0.5479
2460	14.97_5-15.02_5	0.7	0.6956
KN 231			
2657	27.50-27.60	11	0.7201
KN 232			
2659	7.05-7.25	3.9	0.7138
KN 233			
2660	5.17	21.7	0.7142
KN 234			
2303	17.65-17.75	12	0.6981
2305	17.85-17.95	61	0.7021
KN 235			
2174	13.45-13.50	60	0.6539
2175	13.50-13.60	25	0.6517
KN 236			
2665	21.10-21.8	1.5	0.6475

KN 237			
2666	4.40-4.60	8.4	0.7202
KN 238			
2667	17.25-17.45	5.3	0.7194
KN 239			
2668	16.15-16.35	3.9	0.7197
KN 240			
2716	5.80-6.20	0.5	0.7199
KN 241			
2669	22.10-22.30	8.3	0.7200
KN 242			
2670	13.75-13.85	47.7	0.6901
KN 243			
2177	19.85-19.95	45	0.6425
2672	19.95-20.05	57.9	0.6359
2178	20.15-20.25	7	0.7031
KN 244			
2673	12.45-12.75	2.7	0.7205
KN 245			
2179	25.20-25.30	10	0.6757
2180	25.30-25.40	56	0.6629
2674	25.35-25.45	52.4	0.6644
2181	25.40-25.50	25	0.6573
KN 246			
	15.50-15.90	1.6	(0.72)

KN 247			
2675	30.75-30.95	7.9	0.7202
KN 248			
2676	16.20-16.30	14.7	0.7202
KN 249			
2679	21.60-21.70	20.5	0.7177
KN 250			
2682	18.15-18.25	55.3	0.6902
KN 252			
2686	20.50-20.70	18.9	0.7158
KN 253			
2688	26.0 -26.20	8.9	0.7203
KN 254			
2689	15.25-15.45	3.7	0.6988
KN 255			
2690	8.45-8.65	5.3	0.7197
KN 256			
2185	17.80-17.90	47	0.6435
2186	17.90-18.00	54	0.6353
2187	18.00-18.05	49	0.6413
2188	18.05-18.10	33	0.6520
KN 257			
2694	21.90-22.00	32.2	0.7194

KN 258			
2191	18.80	2	0.7196
KN 259			
2321 2322	26.24-26.30 26.36-26.45	9 50	0.7044 0.6938
KN 260			
2698	10.25-10.40	4	0.7085
KN 261			
2699	19.15-19.25	43.0	0.6699
KN 262			
2700	24.10-24.30	7.1	0.7202
KN 263			
2701	8.45-8.55	48.0	0.6881
KN 264			
2717	4.85	2.3	0.7202
KN 265			
2702	7.00-7.50	4.5	0.7173
KN 266			
2703	23.25-23.45	8.5	0.7204
KN 267			
2192 2193 2194 2195	28.00-28.10 28.20 28.25-28.35 28.40-28.45	3 8 56.4 12	0.6885 0.6140 0.6180 0.6152

KN 268			
2197	18.70-18.30	1.3	0.7193
KN 269			
2704	22.20-22.40	6.5	0.7195
KN 270			
2705	14.10-14.30	13.3	0.7189
KN 272			
2707	17.90-18.00	3	0.7189
KN 273			
2709	9.60-10.10	2	0.7196
KN 274			
2170	8.20-8.60	3	0.7203
KN 275			
2711	13.00-13.40	1	0.7193
KN 276			
2713	10.00-11.00	6	0.7200
KN 277			
2714	10.00-10.50	2	0.7184
OK 84 bis			
2721 2724 2740 2731	309.7-311.0 312.9-314.3 313.5 313.8	6 5 4.2	0.7198 0.6749 0.7037

4. Echantillons prélevés au cours de l'exploitation

Affleurement GL 1

GL	995	59%	0.5766
	997	55	0.5251
	1005	54	0.6987
	1008	55	0.7066
	1012	5	0.7199
	1016	20	0.7200
	1030	24	0.7025
	1035	57	0.6384
	1044	57	0.6092
	1051	54	0.6984
	1057	48	0.6738

Affleurement GL 2

GL	832	9	0.7189
	839	42	0.6905
	846	46	0.6506
	853	49	0.6760

Affleurement GL 3

GL	641	20	0.6470
	646	59	0.6565
	651	55	0.6590
	659	57	0.6628
	667	60	0.6657
	673	49	0.6560
	684	45	0.6403
	690	56	0.6707
	700	46	0.6974
	709	44	0.6887
	720	50	0.6136
	732	61	0.6990

Affleurement GL 4

GL	1500	54	0.6154
	1508	48	0.6885
	1525	56	0.6974

Affleurement GL 5

GL	1589	50	0.6816
	1608	61	0.6277
	1623	56	0.6519
	1626	54	0.6647
	1681	55	0.6388
	1695	57	0.6930
	1709	53	0.6885
	1748	33	0.7047
	1753	48	0.7134
	1754	51	0.7054
	1802	43	0.6017

Affleurement GL 6

GL	1924	60%	0.5912
	1939	57	0.6038
	1954	54	0.6305
	1960	57	0.6992
	1962	45	0.5964
	1968	52	0.6574
	1973	46	0.6929
	1977	3	0.6956
	1979	46	0.6565
	1990	57	0.6461
	1995	53	0.6454
	2001	54	0.6522
	2007	55	0.6294
	2015	51	0.7039
	2021	50	0.7107

Affleurement GL 7

GL	2030	50	0.7144
	2035	40	0.6992
	2050	46	0.6951
	2060	48	0.6977
	2066	57	0.6637
	2071	54	0.6705
	2082	51	0.6412

Affleurement GL 8

GL	2326	11	0.7196

Front 119

GL	600	42	0.6701

Front 122

GL	766	56	0.6466
	772	58	0.6662

Front 123

GL	820	57	0.6211
	825	28	0.5837
	826	21	0.5869

Front 124

GL	870	51	0.6704

Front 125

GL	907	57	0.6348

Front 127

GL	1075	35%	0.6259
	1081	49	0.5138

Front 128

GL	1362	44	-0.6320
	1369	35	0.6167

Front 166

GL	1830	46	0.6372
	1856	20	0.5784
	1865	47	0.6183

Front 185

GL	2372	25	0.6675

Front du 10/1

GL	927	53	0.7073
	931	49	0.6354

Front du 11/1

GL	953	60	0.5566
	966	52	0.6331
	967	47	0.5632

Front du 29/9

GL	1900	57	0.6433
	1909	63	0.6370

Front du 30/9

GL	2186	57	0.5633
	2198	47	0.5272
	2205	36	0.5370
	2212	45	0.5530
	2234	51	0.5890
	2235	23	0.5170
	2237	55	0.5717

REFERENCES

[1] NAUDET, R., FILIP, A., RENSON, C., «Distribution détaillée de l'uranium à l'intérieur des amas», Le phénomène d'Oklo (C.R. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 83.
[2] NAUDET, R., RENSON, C., «Résultats des analyses systématiques de teneurs isotopiques de l'uranium», Ibid., p. 265.
[3] BOYER, R.J.M., CATTIN, G., TEULIERES, P., «Précision et sensibilité de l'analyse isotopique de l'uranium contenu dans le minerai d'Oklo», Ibid., p. 245.
[4] CESARIO, J., et al., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/17.
[5] NAUDET, R., RENSON, C., Ibid., IAEA-TC-119/5.
[6] GAUTHIER-LAFAYE, F., Ibid., IAEA-TC-119/3.

BILAN DESCRIPTIF DES REACTEURS D'OKLO

R. NAUDET, C. RENSON
CEA, Centre d'études nucléaires de Saclay,
Gif-sur-Yvette, France

Résumé–Abstract

BILAN DESCRIPTIF DES REACTEURS D'OKLO.

Les réacteurs d'Oklo constituent un phénomène de terrain: on ne peut tenter de l'expliquer sans d'abord bien le caractériser dans l'espace, et on ne peut faire l'étude d'échantillons particuliers sans les situer chacun dans leur contexte. Il a paru utile de regrouper les renseignements qui ont été accumulés au cours de cinq années d'exploration du site, et d'en dégager les grands traits. Le mémoire décrit successivement chacune des quatre grandes zones de réaction, et rassemble les principales données topographiques, sédimentologiques, structurales, et celles concernant la distribution de l'uranium et des taux de réaction. La description est faite secteur par secteur; on essaie de dégager la physionomie particulière de chacun d'eux, on examine les problèmes éventuellement posés par le raccordement entre les secteurs, et on indique les situations les plus intéressantes. On fait d'autre part un bilan de l'échantillonnage. Le nombre des échantillons (plus de 5000 ont été répertoriés, sans compter les nombreux sondages non découpés) ne permettait pas de publier un catalogue complet. On s'est efforcé d'en décrire l'essentiel, de donner les renseignements utiles, et de rattacher l'échantillonnage aux situations décrites.

DESCRIPTIVE EVALUATION OF THE OKLO REACTORS.

The Oklo reactors are a terrain phenomenon: they cannot be explained without a previous description of their location, and particular samples cannot be studied without reference to their specific contexts. The authors have reviewed the information accumulated during the five years of exploration of the site and have singled out the main features. The paper successively describes each of the four large reaction zones, and gives the main topographic, sedimentological and structural data and information concerning the uranium distribution and the reaction rates. The area is described sector by sector; an attempt is made to bring out the features peculiar to each; any problems raised by the connections between the sectors are examined, and the most interesting locations are identified. In addition, an account of the sampling is given. The number of samples (over 5000 have been recorded, excluding the many uncut probes) made it impossible to publish a complete catalogue. The authors have aimed at describing the essential characteristics, giving useful information and linking the samples with the locations described.

A Oklo, on ne peut pas parler du phénomène "réacteurs" dans l'abstrait : il s'agit d'un phénomène géologique qui s'est déroulé dans l'espace et dans le temps ; il y a une très grande variété de situations locales, et peut-être des stades différents d'évolution. Chaque coupe ou chaque sondage doit donc être replacé dans son environnement propre, dans son contexte particulier.

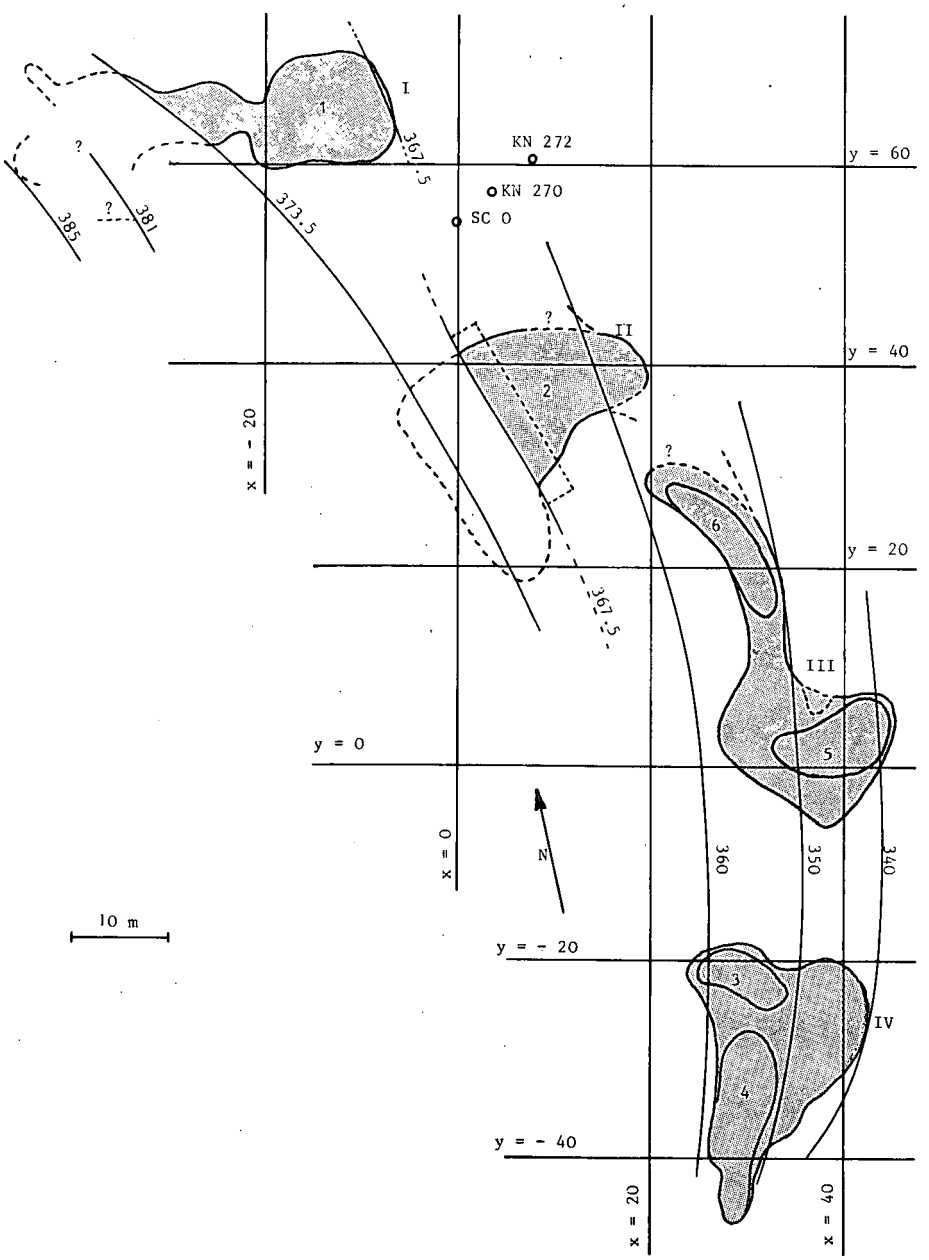


FIG.1. Les réacteurs d'Oklo.

De nombreuses informations ont été publiées sur ces réacteurs en tant que phénomène de terrain [1][2][3][4][5][6][7], mais il a paru utile d'en regrouper l'essentiel en procédant secteur par secteur : dans ce qui suit, on a cherché à dégager en grands traits la physionomie particulière de chaque portion des zones de réaction.

Bien qu'on ait numéroté les zones de réaction de 1 à 6 dans l'ordre de leur découverte, les réacteurs se regroupent en quatre ensembles seulement (figure 1) : on décrira donc successivement les zones : 1, 2, 5-6 et 3-4. Auparavant, quelques remarques préliminaires sont relatives à la nature des informations dont on dispose.

Remarques préliminaires

Tout d'abord il faut rappeler qu'en plus des prélèvements d'échantillons, effectués directement sur les affleurements ou les "fronts" ou par l'intermédiaire des sondages "carottés", on dispose d'informations sur la répartition de l'uranium grâce à des mesures radiométriques de terrain. Celles-ci ont été faites "à la brique" sur les affleurements et les fronts, et par "radiocarottage" dans les sondages. En plus des quelque 180 sondages de prise d'échantillons, une centaine de sondages "percutants" ont été forés dans ce seul but. En outre, des radiocarottages ont également été faits dans les trous de mine au cours de l'exploitation ; ces dernières informations toutefois sont très fragmentaires. Dans les sondages, les mesures ont été faites tous les 10 cm sur toute la longueur de la passe minéralisée, et parfois tous les 5 cm dans la passe riche.

D'autre part il faut rappeler que, parmi les sondages carottés, on distingue les sondages SC forés spécialement pour l'étude du phénomène et KN dus à l'initiative de la COMUF, et qu'on peut par ailleurs les classer en sondages "paraffinés" ou ordinaires. Ces derniers ont fourni la plupart du temps des carottes de mauvaise qualité à la traversée des zones de minerai riche et argileux : une grande partie de la passe riche est souvent perdue et les fragments restants mal situés ; c'est le cas d'une trentaine de sondages SC et des sondages KN. Seul l'emploi d'un carottier triple et de la technique du paraffinage a permis d'obtenir des carottes de bonne qualité et transportables : cette technique a été utilisée pour 92 sondages SC.

Le rapprochement d'informations provenant de plusieurs sources pose souvent des problèmes de topographie. Les difficultés ont trois origines :

- La COMUF utilise un système de coordonnées local XY ; à un certain moment, précisément juste avant la reconnaissance des zones de réaction, un repère topographique a été accidentellement déplacé ; les affleurements primitifs et tous les sondages SP et SC ont donc été repérés dans un système erroné. Ultérieurement, le repère a été rectifié et une correspondance a été établie entre les deux systèmes (l'erreur étant de l'ordre de trois mètres) ; mais la transposition n'est pas parfaite. Il en résulte qu'entre la reconnaissance effectuée au moyen des sondages SP et SC et les fronts et affleurements levés au cours de l'exploitation, il peut y avoir un petit décalage ; de même, dans la zone 3 par exemple où coexistent des sondages SC et KN, leur position relative n'est peut-être pas très exacte.

- Lorsque les sondages doivent traverser une certaine épaisseur de recouvrement, la verticalité n'est pas parfaitement assurée, et au bout d'une

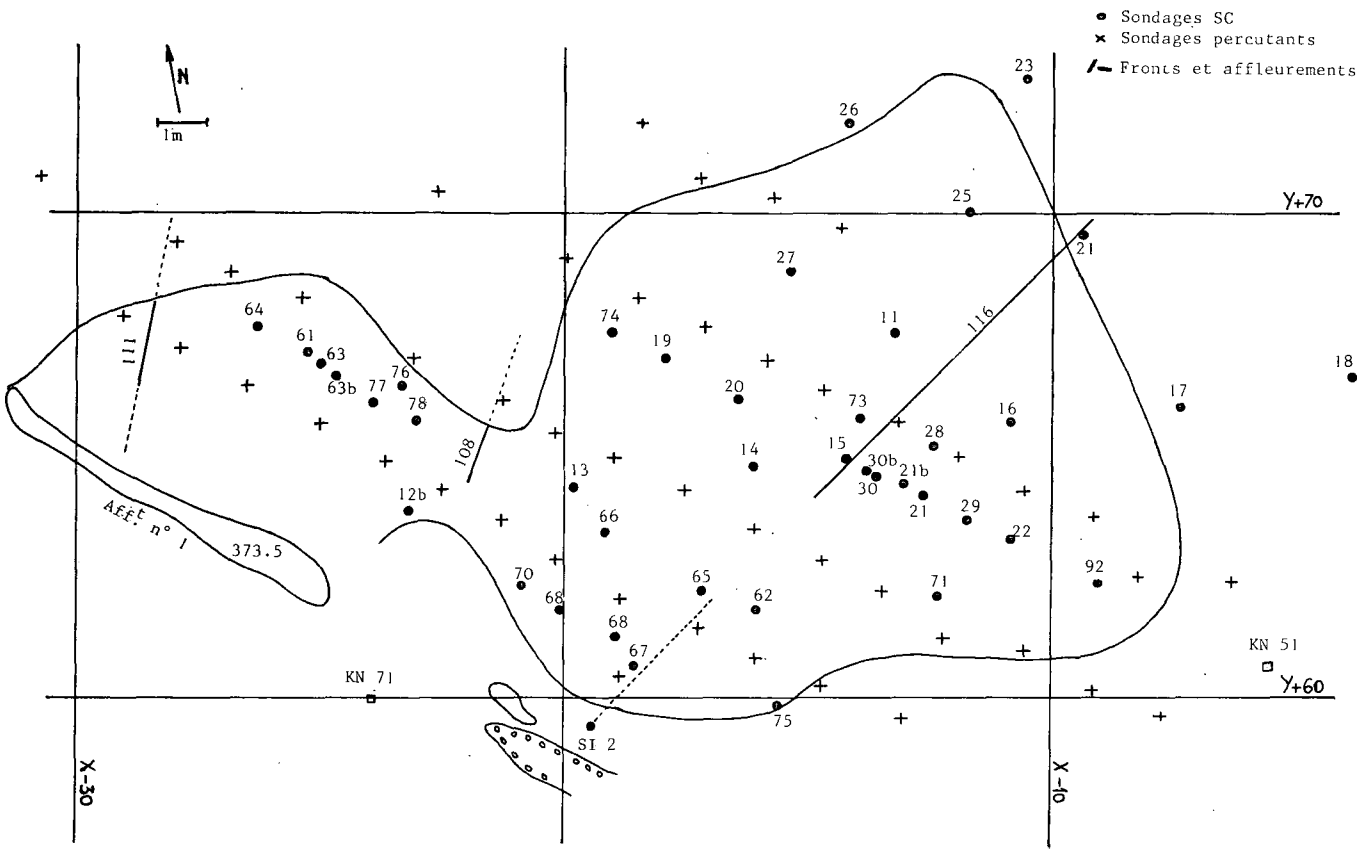


FIG.2. Zone 1: position des sondages et levés géologiques.

vingtaine de mètres par exemple (cas des sondages KN) il y a une déviation qui n'est déjà plus négligeable. Cela peut expliquer que les observations faites au cours de l'exploitation semblent parfois ne pas coïncider avec ce qu'on avait trouvé au fond d'un sondage théoriquement au même endroit.

Enfin, il faut se souvenir que les levés géologiques au moment de l'exploitation ont été effectués dans des conditions difficiles ; les "fronts" ne sont ni plans, ni verticaux, et les repères topographiques sont en général décalés par rapport aux observations ; en outre, dans plusieurs cas, des oublis ou des erreurs ont été à l'origine d'ambiguïtés ou de contradictions qu'il n'a pas été possible de corriger par la suite.

La conjonction de ces trois sources d'erreur, jointe au caractère compliqué de la morphologie des zones de réaction, crée souvent des problèmes d'interprétation délicats.

Enfin une dernière remarque doit être faite à propos de la représentation des zones de réaction et de leurs limites. Les zones de réaction se caractérisent par la présence de minerai à très forte teneur, par la présence d'argiles qui se sont substituées aux grès, enfin par un appauvrissement isotopique de l'uranium significatif ; ces trois critères ne coïncident pas toujours (près des frontières on peut trouver du minerai riche avec très peu de réactions, ou au contraire du minerai pauvre contaminé, ou des zones argilisées avec de l'uranium normal, etc.) ; pour chaque critère, il y a des transitions ; enfin la position exacte de la frontière, quelle que soit la définition retenue, n'est la plupart du temps pas exactement connue. Sur les figures 2, 4, 6 et 8, les contours n'ont donc qu'une valeur indicative ; leur sens est le suivant : les sondages situés à l'intérieur satisfont en principe assez nettement aux trois critères, et les fronts qui traversent le contour sont ceux qui ont "vu" une fermeture. Par ailleurs on sait que les zones de réaction sont généralement limitées par des accidents structuraux ; plutôt que des lignes arrondies, il faudrait donc utiliser des lignes brisées ; mais la plupart du temps on ne connaît pas la position ni la direction des accidents, et ceux-ci délimitent d'ailleurs davantage les portions argilisées que les réactions elles-mêmes. Sur la figure 3, on a cherché à donner une image plus structurale de la zone 1, conformément à [6], mais là encore ce n'est qu'une interprétation à titre indicatif.

ZONE 1 (figures 2, 3 et 3 bis)

Généralités

La zone 1 est la plus septentrionale ; c'est aussi la plus haute ; elle s'étage entre une cote qui n'est certainement pas inférieure à 385 et une cote voisine de 367. Elle est située sur le flanc nord du "dôme" ; les couches sont inclinées dans une direction différente de celle des autres zones (davantage vers le nord), et le pendage est plus faible. Celui-ci diminue d'ailleurs vers l'aval ; de l'ordre de 35° dans la partie haute, il n'est plus en moyenne que de 22° dans la partie inférieure, avec d'ailleurs un fort gauchissement ; compte tenu des déformations, on y trouve même des portions subhorizontales.

Bien qu'on connaisse mal la partie exploitée avant la découverte du phénomène, il semble que cette zone avait dans sa plus grande dimension plus de 40 mètres. Le poids d'uranium affecté par les réactions était vrai-

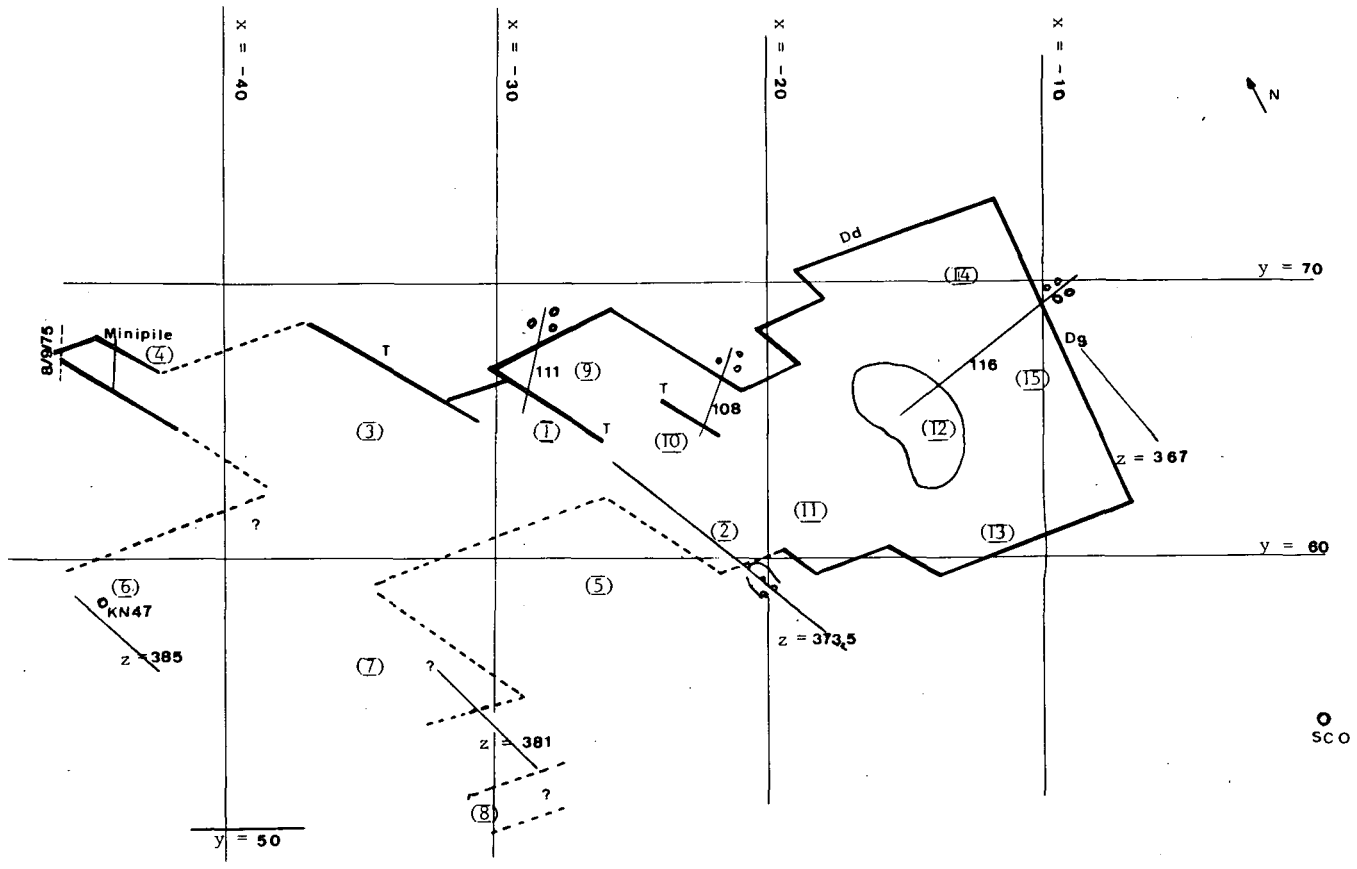


FIG.3. Zone 1: image structurale.

semblablement de l'ordre de 230 à 240 tonnes, le déficit actuel en uranium 235 voisin de 200 kg. La moitié environ (en U_5 manquant) a été exploitée avant 1972, à savoir tout ce qui se trouvait au-dessus de la cote 373.5 (à l'exception d'une toute petite portion laissée sur le parament nord de la carrière à la cote 381.5, formant ce qu'on a appelé la minipile [4]).

Pour la partie exploitée avant 1972, en dehors des informations tirées des radiocarottages dans les trous de mine et du passage du minerai en usine [1], on ne possède que quelques débris du sondage KN 47. Pour la partie étudiée après 1972, on dispose des renseignements ou échantillonnages suivants :

- affleurement n° 1 (cote 373.5) : carte de teneurs - échantillonnages divers, plus 2 coupes 1 U et 1 V;
- 49 sondages "percutants" (de SP 1 à SP 49);
- 41 sondages carottés verticaux : SC 11 à SC 30 (+ SC 21 bis, SC 30 bis), et SC 61 à SC 78 (+ SC 63 bis) - 27 de ces sondages ont été paraffinés ; cinq d'entre eux (n° 17 - 18 - 23 - 24 - 26) sont à l'extérieur de la zone de réaction, mais en bordure immédiate;
- 1 sondage oblique, SI_2, qui a été foré dans la couche, suivant son pendage, sur six mètres environ;
- 4 fronts : "minipile" (+ observations des fronts du 8/9 et du 14/9/75) - fronts n° 108 - 111 et 116;
- par ailleurs, trois sondages (SC 0, KN 270 et KN 272) jalonnent une ligne dans le minerai "ordinaire", à mi-distance entre la zone 1 et la zone 2.

La position des sondages et levés géologiques est indiquée sur la figure 2 (voir aussi figure 3 pour KN 47 et la minipile, et la figure 1 pour SC 0, KN 270, KN 272).

La zone n° 1 est très argilisée, comme la zone n° 2. On rappelle que le minerai "normal" d'Oklo comporte successivement, de bas en haut à partir du "conglomérat du mur" : environ 2 mètres de grès fins stériles, puis un ensemble gréso-conglomératique minéralisé formant la "couche C_1" proprement dite, puis une petite épaisseur de pélites stériles (de l'ordre de un à deux mètres ou quelquefois moins dans le voisinage de la zone 1), enfin des grès dits du F_1B. On constate que dans la zone 1, les grès de C_1 ont disparu, ils sont remplacés par des "argiles de piles", reposant sur les grès fins du mur plus ou moins altérés, et qui au toit sont recouvertes soit par des pélites résiduelles, soit directement par les grès du F_1B. Il en résulte que du conglomérat du mur au grès du F_1B, on a généralement quatre à cinq mètres consécutifs d'argiles (au contraire, dans les zones 3 à 5, il reste toujours des grès de C_1 de part et d'autre des argiles de piles). Dans les bordures des zones de réaction toutefois, on peut trouver des situations intermédiaires comportant encore des grès (SC 74).

Au point de vue structural, les limites correspondent généralement aux fractures "diagonales droites" et "diagonales gauches" : à l'intérieur, les fractures "transversales" découpent également des compartiments. L'ensemble de la zone comporte des séries de décrochements "en tiroir" qui lui donnent parfois une allure déchiquetée.

Au moment de l'exploration du site, la zone n° 1 a été présentée, par contraste avec la zone n° 2, comme très irrégulière [1]. On constatait que sur une ligne de sondages par exemple, on pouvait rencontrer en alternance des passes riches ou très pauvres, et on a eu beaucoup de difficultés

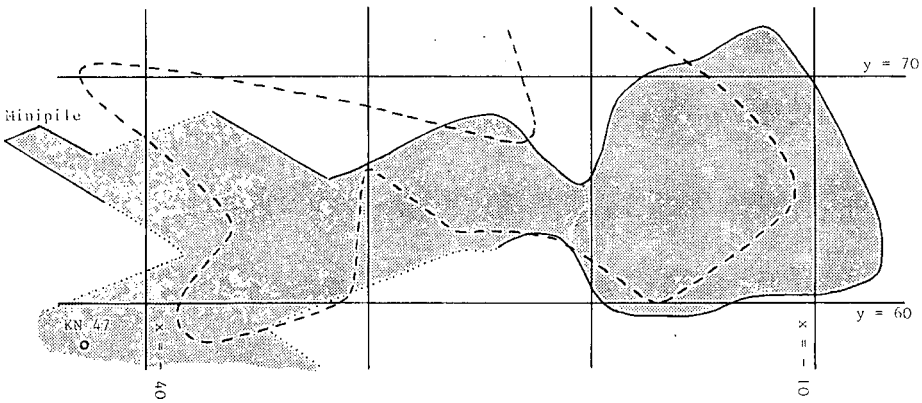


FIG.3 bis: Figure de ravinement sur le conglomérat du mur de la zone 1.

à essayer de reconstituer la portion exploitée de cette zone. Cette impression repose en fait sur deux caractères distincts : d'une part, du point de vue de la géométrie, la structure en "décrochements" successifs fait que l'ensemble a une forme compliquée, et qu'on peut passer sans transition d'une compartiment à un autre tout à fait différent ; d'autre part la minéralisation est effectivement assez irrégulière : on peut rencontrer des accumulations d'uranium plus ou moins grandes, et également des degrés de concentration de cet uranium plus ou moins élevés. Malgré ces irrégularités, le faciès argileux et les réactions nucléaires sont sans solution de continuité sur des distances considérables.

D'une manière générale, l'uranium est nettement moins concentré qu'en zone 2. En premier lieu on trouve rarement du minerai à plus de 40 %, alors qu'en zone 2 et aussi dans les autres zones, même dans les passes très minces on rencontre presque toujours des teneurs comprises entre 50 et 60 %. En outre l'uranium est plus étalé, et on trouve fréquemment, sur un ou deux mètres au-dessus de la passe la plus riche, du minerai à teneurs intermédiaires (2 à 20 %) avec parfois des passes riches secondaires.

Les appauvrissements isotopiques sont très variables. On trouve localement des taux de réaction élevés : le record d'appauvrissement est détenu par le sondage SC 63 où on a trouvé 0.409 % ; mais dans la majorité des cas (tout au moins dans la portion non exploitée en 1972) les taux de réaction sont modestes, les teneurs en uranium 235 étant le plus souvent au-dessus de 0.60 %.

A beaucoup de points de vue, la zone 1 apparaît comme intermédiaire entre les zones 3 à 6 d'une part, et la zone 2 d'autre part.

Un fait très curieux, qui mérite d'être mentionné ici, est la présence sur le conglomérat du mur d'une "figure de ravinement", ou du moins d'une zone d'érosion qui peut être interprétée comme telle, c'est-à-dire comme une structure sédimentaire, et dont les contours coïncident étrangement

avec ceux des réacteurs (figure 3 bis). Cette coïncidence(qu'on retrouve d'ailleurs plus ou moins pour les autres zones) suggère une relation qui n'a pas été pleinement élucidée ; cette figure est-elle à l'origine ou au contraire le résultat du processus de réactions ? (On peut envisager de combiner les deux idées ; il a pu y avoir à l'origine une structure sédimentaire constituant une zone de faiblesse tectonique qui aurait contribué à localiser la surconcentration ; ultérieurement il se serait produit une désilicification, par effet combiné d'une circulation dans le plan de friction et d'un échauffement dû à la proximité des réacteurs, qui aurait souligné localement le relief).

Description par secteurs (se reporter aux numéros de la figure 3)

a) L'affleurement à la cote 373.5 était assez médiocre ; on y a trouvé du minerai argileux à plus de 10 % sans interruption sur 16 mètres, mais il n'y a que quelques passes de "faciès-pile" proprement dit (teneurs d'au moins 35 à 40 %) localisées à l'extrémité nord-ouest (1) ; c'est seulement dans cette extrémité qu'on a trouvé de l'uranium significativement appauvri (→ 0.63 %).

Non loin de l'affleurement se trouve un petit secteur (9) (sondages SC 64 à SC 63) comportant du minerai très riche et de l'uranium fortement appauvri : dans le sondage SC 61, l'appauvrissement isotopique va jusqu'à 0.484 %, et dans le SC 63 on atteint 0.408 % ; c'est le record pour la zone 1. La minéralisation est concentrée sur un peu plus d'un mètre d'épaisseur, et il y a du minerai à plus de 50 % ; ces sondages sont comparables à ceux de la portion de la zone 2 voisine de l'affleurement. Mais ce secteur est apparemment très petit ; déjà le SC 63 bis, à 50 cm du SC 63, est plus pauvre. Et un peu plus loin, les sondages SC 76, 77 et 78 sont très médiocres.

L'irrégularité observée se comprend mieux quand on examine les fronts voisins 111 et 108. En premier lieu, on constate que dans les deux cas le faciès-pile s'interrompt brutalement contre des accidents, les compartiments nord étant formés de grès (ces observations sont en bon accord avec les radiocarottages des sondages percutants qui mettent en évidence l'interruption de la passe riche, avec un décrochement comme indiqué sur la figure). Mais en outre, sur ces fronts apparaissent d'autres fractures (T) laminant le faciès-pile, de sorte que dans les deux cas, le compartiment sud ne comporte plus que des argiles de piles assez pauvres. En particulier, dans le cas du front 111, le compartiment nord-est est probablement en relation avec le petit secteur dont on vient de parler, alors que le compartiment sud se raccorde avec les argiles plus pauvres observées sur l'affleurement.

b) On sait, d'après les radiocarottages dans les trous de mine, que dans la partie exploitée avant la découverte du phénomène, il existait un secteur (3) immédiatement en amont de l'affleurement, comportant du minerai très riche et concentré et de l'uranium fortement appauvri (comme le montre le passage de ce minerai en usine). Ce secteur semble décalé par rapport à l'affleurement, et sa richesse contraste avec la médiocrité de ce dernier. Là encore, il y a vraisemblablement une fracture qui sépare deux compartiments. D'après la reconstitution de l'exploitation, ce secteur était certainement assez vaste car le tir du 10 juin 1971 a fourni un très gros tonnage d'uranium, et on sait qu'il est à l'origine d'environ 60 kg d'uranium 235 manquant. Or, vers le sud-est dans la région, (5), il ne semble y avoir eu que du minerai pauvre ; par contre on ne peut exclure qu'il s'étendait davantage vers le nord-ouest.

Il semble à peu près certain en tout cas qu'il se raccordait avec la "minipile" observée sur le parement de la carrière, (4). A cet endroit le faciès-pile se trouve coincé entre deux fractures distantes seulement d'un mètre, le laminage lui ayant donné une forme sigmoïde (on retrouve la même structure un peu plus loin sur le front du 8/9/75, mais cette fois le minerai riche a disparu : c'est la fermeture). On a trouvé une "queue" de réactions dans le minerai de la minipile. Le panneau (3) ne peut pas être limité par les fractures observées à cet endroit ; il est donc probable qu'il y a là aussi un décrochement comme indiqué sur la figure.

c) On est certain que les réacteurs continuaient au-dessus de la cote 381, car il y a eu un arrêt de près de trois mois entre l'exploitation des parties du gisement situées à l'amont et à l'aval de cette cote, ce qui a permis de distinguer leur contribution dans l'usine : environ 40 kg d'uranium 235 manquant proviennent de l'amont, et on ne sait pas très bien où les situer.

On connaît le sondage KN 47 (6) qui comportait du minerai très riche entre les cotes 384 et 385 ; malheureusement la quasi-totalité de ce minerai a été perdue ; les quelques débris qui en restent comportent de l'uranium peu appauvri ; ils témoignent cependant que les réacteurs ont été jusque là. (Il est possible qu'on ait perdu tout l'uranium fortement appauvri, il est possible aussi qu'on se trouve près de la fermeture, car les radiocarottages semblent montrer qu'en amont il n'y a plus de minerai riche). Par ailleurs on connaît du minerai riche dans les secteurs (7) et (8) situés plus au sud. On ne sait pas si le minerai a participé aux réactions et on ne sait pas faire le raccordement ; on peut suggérer là encore des structures en décrochements.

Un autre problème se pose : on est certain, d'après la date de la première apparition d'uranium anormal en usine, qu'il y avait un peu d'uranium appauvri au-dessus de la cote 388 (1 ou 2 kg d'U_5 manquant). Or on ne connaît nulle part du minerai riche au-dessus de cette cote. Il se peut qu'il ait échappé, mais une hypothèse plus probable est qu'il s'agit d'une contamination, analogue à celle qui a été observée à l'amont de la zone 3. (Il faut ajouter que l'exploitation a commencé à la cote 393, et qu'on a récolté très peu d'uranium dans les premiers mètres situés près de la surface, à cause des lessivages superficiels ; il n'est donc pas impossible que la contamination ait été en réalité plus importante).

d) Revenons à la partie de la zone qui subsistait en 1972. On trouve en (10) un secteur particulièrement pauvre ; les radiocarottages montrent d'ailleurs que la minéralisation est très irrégulière ; il est probable qu'il est compartimenté par des accidents qui laminent localement les argiles de pile. A titre indicatif, dans le SC 13 par exemple, l'appauvrissement isotopique reste en deça de 0.67 %. Sur la figure 2, on a tracé une limite de la zone de réaction qui ne va pas jusqu'à l'affleurement ; en réalité dans tout ce secteur, on trouve des argiles de piles, et la limite géologique est au-delà de l'affleurement (2). En outre, il semble qu'il y ait un minimum de réactions partout ; il n'y a donc pas une véritable interruption de la zone de réaction.

Le sondage oblique SI 2 a été foré dans la couche ; partant de l'affleurement pauvre, il rencontre rapidement du minerai plus riche et de l'uranium plus appauvri ; la continuité de la passe riche a été vérifiée

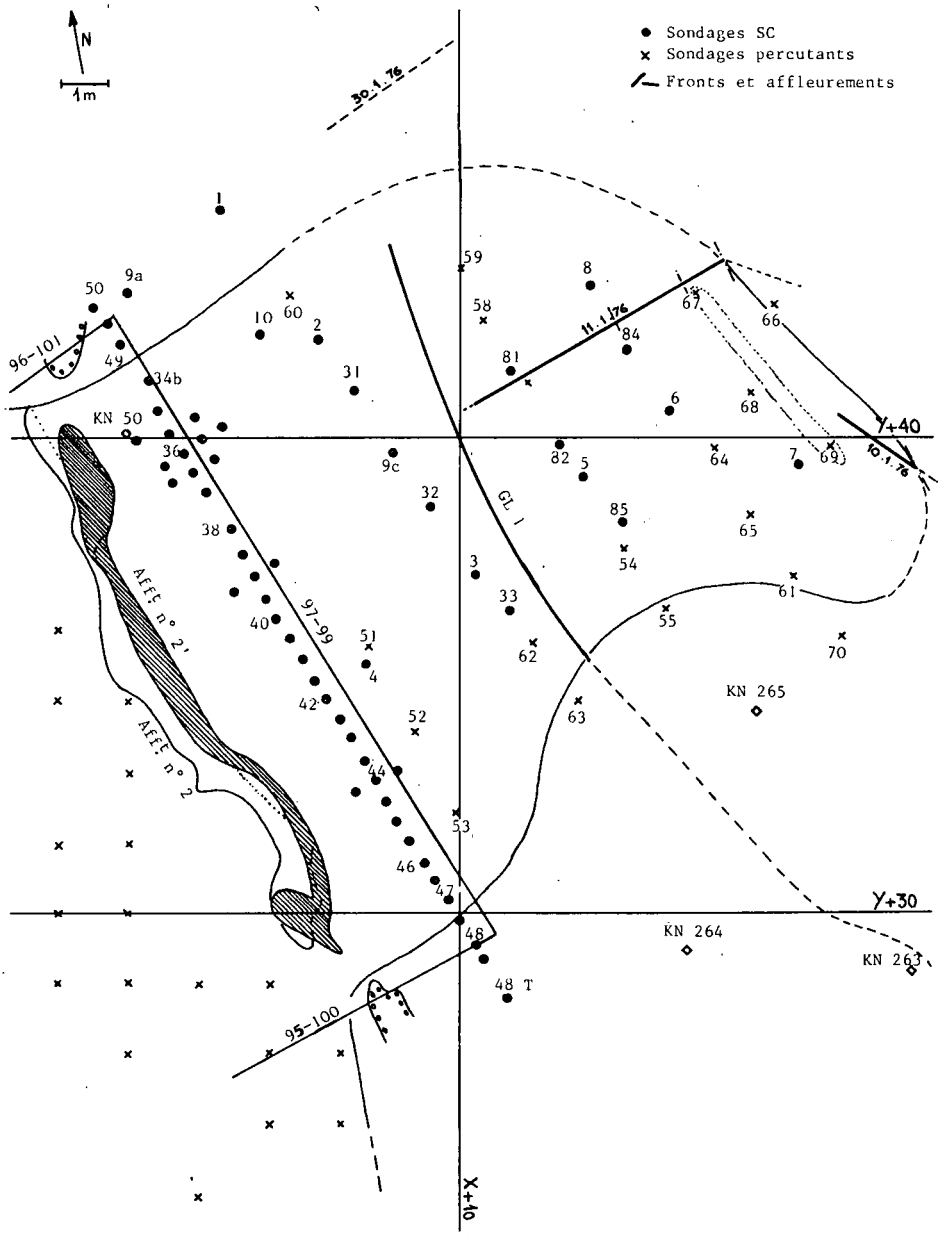


FIG.4. Zone 2: position des sondages et levés géologiques.

sur plus de quatre mètres. Les appauvrissements isotopiques sont très variables ; les maxima (de l'ordre de 0.50 %) ont été obtenus au voisinage des sondages SC 67 et SC 65. Ce secteur (11) a été peu étudié.

e) Le secteur (12) est particulièrement intéressant : on y trouve une grande quantité d'uranium au-dessus du réacteur proprement dit, le minerai ayant sur environ 1.50 m des teneurs comprises entre 5 % et 25 % ; d'ailleurs la passe riche parfois se dédouble. Cet uranium du toit est contaminé, et la teneur isotopique est presque partout de l'ordre de 0.68 % ; tout se passe comme s'il y avait eu contamination homogène et massive. D'autre part la minéralisation continue jusqu'aux grès ; on peut se demander si, la passe pélitique intermédiaire étant très mince dans ce secteur, on n'a pas minéralisé et désilicifié une grande épaisseur de grès du F_1B. Les sondages les plus étudiés de ce secteur sont le SC 20, le SC 30 et le SC 30 bis.

f) Dans la bordure (13) on trouve parfois du minerai riche ; par contre les bordures (14) et (15) sont pauvres et les appauvrissements isotopiques médiocres. Trois sondages de bordure, SC 24 SC 23 et SC 26, présentent un intérêt particulier : le SC 24 est encore gréseux ; dans le SC 23 le maximum de teneur se trouve dans une passe d'argiles broyées au milieu des grès ; dans le SC 26 le minerai est presque complètement argilisé, mais il subsiste des grès : il semble que ces sondages illustrent trois étapes successives du processus de formation du faciès-pile.

g) En principe, grâce aux radiocarottages des sondages percutants, la zone a été complètement "fermée" (bien que certains d'entre eux, notamment à la corne sud-est (SP 17, SP 31) aient traversé du minerai encore relativement riche). On a signalé dans [4] que l'exploitation a trouvé de l'uranium appauvri à l'aval de la zone 1, à un moment où on croyait avoir totalement dépilé cette zone ; on l'a attribué à une contamination géochimique récente. Toutefois on remarque que les sondages KN 270 et 272, qui comportent de l'uranium à teneur légèrement inférieure à la normale, ont traversé des grès riches (le KN 270 comporte deux mètres de minerai à plus de 10 %) et la majeure partie du tir 129 a rencontré du minerai relativement riche entre la zone 2 et la zone 1 ; le front 129 montre d'ailleurs des grès riches très désilicifiés. Il semble donc qu'il y avait, entre les deux zones, un couloir associé au processus de fracturation et enrichissement des grès. Dans ces conditions, on peut être tenté de remettre en question l'origine de l'uranium 235 manquant : ne s'agirait-il pas d'une petite portion de zone de réaction non localisée ? Le problème d'une éventuelle relation entre les zones 1 et 2 est à nouveau évoqué à propos de la zone 2.

ZONE 2 (figures 4 et 5)

Généralités

La zone 2 s'étage entre une cote voisine de 376 et la cote 358. Comme la zone 1, sa hauteur est donc de l'ordre de 18 mètres, et elle se trouve 9 mètres plus bas. Elle est située à la charnière du "dôme". Le pendage va en diminuant : il est de l'ordre de 45° dans la portion supérieure, et de 35° dans le bas. Cette zone est plus compacte et ramassée que la zone 1 ; on peut évaluer à environ 200 tonnes le poids d'uranium affecté par les réactions, et à 200 kg le déficit actuel en isotope 235. Comme pour la zone 1, la moitié environ a été exploitée avant 1972.

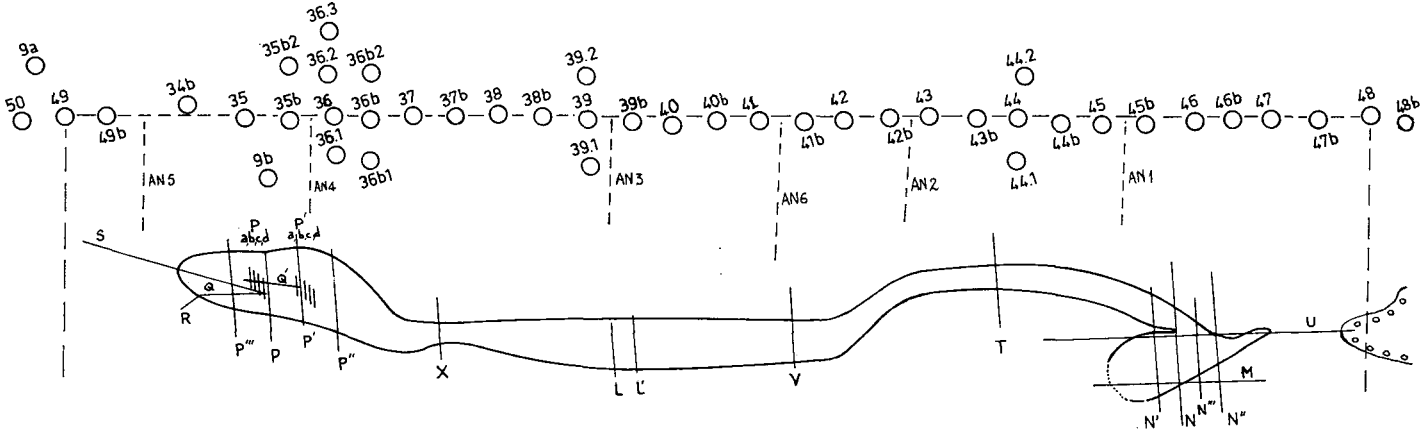


FIG.5. Détail de la zone 2 (limite de la partie conservée).

La limite d'exploitation au moment de la découverte du phénomène était à peu près à la cote 368 (affleurement n° 2) ; au cours des travaux d'élargissement, la zone a été raclée par inadvertance sur environ 50 cm, de sorte que le nouvel affleurement (n° 2') s'est trouvé à 367.5. L'ancien sondage KN 50, foré au cours de la prospection du gisement traversait la zone de réaction au voisinage de cet affleurement.

On sait qu'une portion de la zone 2 a été conservée en place [5] ; elle est comprise entre un plan horizontal à la cote 367.5, et un plan vertical qui recoupe les réacteurs environ deux mètres plus bas. Ce secteur a fait l'objet d'un échantillonnage extrêmement détaillé. Outre le KN 50, dont il ne restait d'ailleurs que des débris mal situés, on dispose pour cette zone, des renseignements ou échantillonnages suivants (voir les figures n° 4 et 5):

- affleurement n° 2 : cartes de teneurs - échantillonnages divers, plus 3 coupes 2 P, 2 L et 2 N ;
- affleurement n° 2' : carte de teneurs, levé géologique et échantillonnage correspondant ; plus 28 coupes : 2'L, 2'L', 2'M, 2'N, 2'N', 2'N", 2'N"' , 2'O, 2'P, 2'P', 2'P", 2'P"' , 2'Pa, 2'Pb, 2'Pc, 2'Pd, 2'P'_a, 2'P'_b, 2'P'_c, 2'P'_d, 2'Q, 2'Q', 2'R, 2'S, 2'T, 2'U, 2'V, 2'X (environ 800 échantillons ont été prélevés sur cet affleurement qui forme la limite supérieure de la partie conservée) ;
- 20 sondages percutants (SP 51 à SP 70) ;
- 63 sondages carottés verticaux : SC 1 à SC 10 (dont 3 sondages SC 9 d'indices a, b, c + SC 2 bis) - SC 31 à SC 33 - SC 35 à SC 50 (+ SC 34 bis à SC 49 bis, + SC 35 b2, 36/1, 36/2, 36/3, 36 b1, 36 b2, 39/1, 39/2, 44/1 44/2, 48 ter) - SC 81 à SC 84.
  51 de ces sondages sont paraffinés, une cinquantaine d'entre eux jalonnent, au pas de 50 cm, la portion conservée qui va de SC 49 à SC 48 ; sont situés en bordure de la zone de réaction et un peu à l'extérieur les sondages SC 1, SC 9a, SC 48 bis, 48 ter, 49, 49 bis et 50 ;
- 6 sondages subhorizontaux : An 1 à An 6, utilisés pour l'ancrage de la portion conservée ;
- levé géologique (et échantillonnage) des flancs de la portion conservée : fronts 95 à 97, 99 à 101 ;
- jalonnement à la cote 362 : affleurement GL 1 (qui se poursuit jusqu'à la zone 6) ;
- deux fronts avec levé géologique et échantillonnage dans la portion aval de la zone : fronts du 10/11 et du 11/1/1976 (+ observations des fronts du 24/1 et du 30/1/76).

Les sondages KN 264 et KN 265 sont situés, dans le minerai "normal", entre la zone 2 et la zone 6.

La zone 2 est très argilisée, elle le paraît même plus que la zone 1, du fait que les pélites du toit ont en moyenne une épaisseur plus grande ; cette épaisseur est généralement comprise entre 1 et 2 mètres ; mais il semble qu'en outre il y a eu des "bourrages" dans la portion aval de la zone où on a trouvé près de 4 mètres de pélites. Il ne reste jamais de grès de C_1 (sauf dans le sondage SC 8), et l'épaisseur totale d'argiles, du conglomérat du mur aux grès du F_1B, va de 4.50 m à 6.50 m.

La zone 2 se trouve dans l'axe du "dôme" ; sa géométrie semble commandée par un système de fractures "transversales" (N 140) qui ont

découpé des compartiments plus ou moins larges. On y rencontre de nombreuses petites flexurations, et des glissements couche sur couche ; il pourrait s'agir de réajustements postérieurs à la désilicification qui expliqueraient également l'accumulation des pélites (cf. [6] figure 12). Dans l'ensemble, bien que la tectonique ait probablement joué un rôle considérable dans la surconcentration par cisaillement, ses effets sont moins apparents que dans les autres zones.

La zone 2 est massive et compacte ; elle apparaît beaucoup moins irrégulière que la zone 1. Des quatre zones, c'est elle qui comporte le minerai le plus riche et les taux de réaction les plus élevés. Les accumulations d'uranium sont souvent énormes, et cet uranium est très concentré ; en général plus de 95 % de l'uranium se trouve rassemblé en une seule passe qui dans certains cas peut atteindre un mètre d'épaisseur. Les appauvrissements isotopiques de l'uranium sont souvent considérables ; les teneurs en 235 sont très souvent comprises entre 0.5 et 0.6 % et les valeurs inférieures à 0.5 % ne sont pas rares ; c'est dans cette zone que se trouve le record absolu d'appauvrissement isotopique : 0.292 %.

Description par secteurs

a) C'est surtout la portion conservée de cette zone 2 (figure 5) qui comporte du minerai riche et des taux de réaction élevés. Cette portion a fait l'objet non seulement d'un échantillonnage extrêmement abondant, mais aussi d'analyses très nombreuses. En affleurement, on a étudié en détail un grand nombre de coupes, avec souvent un échantillon tous les 2.5 cm ; il y a eu au total près de trois cents analyses isotopiques (voir le détail dans le tableau II). Particulièrement intéressante est la petite région jalonnée par la coupe 2'Q' et recoupée par dix autres, qui a été passée au peigne fin, et dans laquelle les appauvrissements isotopiques sont extraordinairement élevés [5].

On a également étudié en détail dans ce secteur un grand nombre de sondages SC (tableau I) : 25 ont été l'objet de radiométrie gamma, et dans 16 d'entre eux on a tracé la courbe d'appauvrissement isotopique. C'est le sondage SC 36 qui a été le plus étudié, ainsi que son environnement ; dans cette région la passe riche d'uranium est épaisse et compacte, et on observe une très bonne homogénéité. On rappelle que dans la série de sondages SC 38, 39, 40 la passe riche comporte deux maxima bien séparés (la partie la plus riche étant au mur) ; il y a un étranglement au niveau du SC 43, et une flexuration au niveau du SC 44 (cf. [2] figure 8) ; ces particularités ont également été observées sur l'affleurement, ce qui prouve qu'il s'agit de déformations affectant l'ensemble de la "couche".

Au nord-ouest, on retrouve assez brutalement du minerai gréseux et pauvre (SC 49 bis) ; au sud-est au contraire, la passe argileuse relativement riche se poursuit sur au moins deux mètres (SC 48 bis, 48 ter).

On a indiqué qu'un premier affleurement (n° 2) avait été dégagé au début de l'exploration, puis raclé par erreur. Deux des coupes étudiées sur cet affleurement posent de petits problèmes. La coupe 2 P comportait immédiatement au mur de la passe riche du minerai gréseux, dont on n'a pas trouvé l'équivalent sur l'affleurement 2' ; d'autre part, il est apparu que la fluence au contact était extrêmement faible, ce qui semble montrer que ce minerai a été déplacé postérieurement aux réactions (il est néanmoins fortement contaminé). On ne sait pas ce qu'il faut en penser. La coupe 2 L comportait une passe riche extraordinairement épaisse (140 cm à plus de 40 %) ;

un peu plus bas on a trouvé quatre fois moins d'uranium cumulé ; d'autre part l'effondrement du flux au voisinage de l'échantillon 409 est une particularité que l'on n'a pas retrouvée ailleurs, et qu'il eut été intéressant d'examiner plus en détail.

b) La partie de la zone 2 exploitée avant la découverte du phénomène a été assez bien repérée par les radiocarottages dans les trous de mine (sur la figure 4, les croix représentent des positions où une passe très riche a été mise en évidence) ; elle forme un ensemble massif, et ne pose pas les problèmes de reconstitution que l'on a rencontrés pour la zone 1. Une particularité est un décrochement vers le sud qui semble se produire immédiatement en amont de l'affleurement (la passe riche va jusqu'à Y = 18). Le passage du minerai en usine a été bien suivi ; l'essentiel a été exploité en décembre 1971 entre les cotes 373.5 et 368, et a fourni 75 kg d'uranium 235 manquant ; une contribution antérieure avait été obtenue en juin 1971 (environ 27 kg) entre 373.5 et une cote vraisemblablement voisine de 376. Dans tout cet ensemble, il semble que le minerai était extrêmement riche, et les taux de réaction très élevés.

c) A l'aval de la portion conservée, l'épaisseur de la passe riche va en diminuant et les taux de réaction sont moins élevés. On peut le suivre sur la série SC 32, SC 82 et SC 84 ; l'épaisseur de la passe à plus de 20 % décroît de 45 à 30 cm, la teneur maximale du minerai de 58 % à 47 %, l'appauvrissement isotopique de 0.49 à 0.61 %. Ont été étudiés en outre avec un certain détail SC 9c et SC 6. Toute cette partie aval de la zone 2 serait assez comparable à la zone 1 du point de vue de la richesse du minerai et des taux de réaction, mais l'uranium est plus concentré (teneurs plus élevées pour des accumulations moindres), et la régularité est beaucoup plus grande. Dans cette région, les épaisseurs de pélites du toit sont énormes. Le SC 8 possède la particularité d'avoir conservé des grès de C_1 de part et d'autre de la zone de réaction.

d) Au moment de la première reconnaissance du site, on a cherché à délimiter la zone par des sondages percutants ; mais il est apparu après coup que plusieurs problèmes subsistaient quant à ses limites précises et ses relations avec les zones voisines.

Pour ce qui est de la bordure nord, celle-ci est bien définie au niveau du sondage SC 49 bis, et on sait qu'elle passe entre SC 1 et SP 60 ; par contre le jalonnement GL 1 n'est pas "fermé", et le sondage percutant SP 59 est encore riche. Or un "front" approximatif a été observé le 30/1/76 au cours du dégagement du minerai (figure 4) ; il y avait encore du faciès-pile ; on en a même vu semble-t-il un peu plus loin ; la position n'a malheureusement pas pu être relevée avec précision, mais il semble certain que la zone comporte dans ce secteur une extension notable au-delà de la limite qui avait été primitivement fixée. En poursuivant dans la même direction, c'est-à-dire en allant vers la zone 1, le front 129 ne comporte plus de faciès-pile, mais on y trouve des grès riches fortement rubéfiés et désilicifiés (la teneur du minerai et son altération augmentant d'ailleurs vers l'amont) ; on a l'impression qu'on ne se trouve pas très loin d'une zone de réaction. Si on ajoute que le tir 129 a donné beaucoup de minerai riche et que l'origine de l'uranium 235 manquant dans le minerai traité à l'usine à la suite de ce tir n'est pas claire, on peut se demander s'il n'y a pas entre la zone 2 et la zone 1 un couloir qui non seulement aurait participé au processus de fracturation et d'enrichissement des grès, mais qui aurait peut être joué un rôle plus important dans la relation entre les deux zones.

e) En ce qui concerne la limite est, les sondages percutants SP 67 et SP 69 ont trouvé du minerai très pauvre (moins de 8 000 chocs) ; les fronts du 10/1/76 et 11/1/76 ont tous deux traversé la fermeture tectonique de la zone, mais cette limite se trouve au-delà de la ligne jalonnée par les deux percutants. Ou bien il faut mettre en cause la topographie, ou bien, compte tenu de la suite de décrochements observés sur les fronts, il faut admettre que les sondages en question ont traversé une petite portion fortement laminée où le faciès-pile tend à disparaître.

f) Enfin à la limite sud-est de la zone, la "fermeture" n'est pas complète, et on ne peut exclure un raccordement avec la zone 6. Notons d'abord que dans toute la bordure sud on trouve, entre la zone de réaction proprement dite et les grès, une bande assez large de minerai argileux relativement riche : elle s'étend en particulier de SC 47 bis à SC 48 ter, et on la trouve sur GL 1 de l'échantillon 1010 au 1020 ; dans cette portion on peut trouver des argiles à 20 ou 25 % et de l'uranium pratiquement normal. Le sondage KN 265 est essentiellement gréseux, mais il comporte de petites portions désilicifiées. Les sondages percutants SP 63, 55, 70 jalonnent cette portion moins riche, et jusque là la limite de la zone est donc assez bien définie, bien qu'elle comporte une série de transitions ; mais au-delà, c'est-à-dire au sud-est du SC 7, et à la suite du minerai du front du 10/1/76, on n'a pas d'indication. Or à l'extrémité la zone 6 n'est pas fermée non plus ; le tir 125 a trouvé du minerai riche en direction de la zone 2 ; il est très probable qu'il y a au moins un couloir argilisé entre les deux zones.

ZONE 5-6 (figures 6 et 7)

Généralités

La zone 5-6 se trouve immédiatement au sud-est de la zone 2 et en contrebas. Elle n'avait pas été entamée par l'exploitation antérieure, et a été découverte à l'occasion de la campagne de sondages de la fin de 1974. Initialement on a identifié une zone 5 traversée par le profil Y = 0, puis une zone 6 au voisinage de Y = 20 ; ultérieurement il est apparu que la zone 5 était plus vaste qu'on l'avait cru, et qu'elle se raccordait à la zone 6. Celle-ci conserve son individualité, elle se présente comme une bande étroite, en "tuyau de pipe", qui monte obliquement en direction de la zone 2 (et s'y raccorde peut-être).

L'ensemble s'étage entre la cote 359 et une cote voisine de 340, soit sur près de vingt mètres comme les deux précédentes (la zone 6 va de 359 à environ 350, la zone 5 proprement dite de 355 à 340) ; l'ensemble est en gros 18 mètres plus bas que la zone 2. Le pendage continue de changer de direction quand on va vers le sud, et s'accentue ; encore voisin de 40° dans l'extrémité nord, il est en moyenne de l'ordre de 45 à 48° dans le corps de la zone 5. Le poids d'uranium affecté par les réactions a été vraisemblablement de 170 à 180 tonnes, et le déficit en uranium 235 a été évalué à une centaine de kilos.

Les informations dont on dispose sont beaucoup plus réduites que pour les deux zones précédentes. Ce sont les suivantes (figure 6) :

- 9 sondages KN : les n° 242, 243, 245, 250, 256, 260, 261, 263 et 267 ;
- 6 sondages SC : n° 85 à 90 (non paraffinés) ;
- 3 jalonnements partiels : fin du GL 1 et GL 2 (+ GL 8 à l'aval de la zone) ;

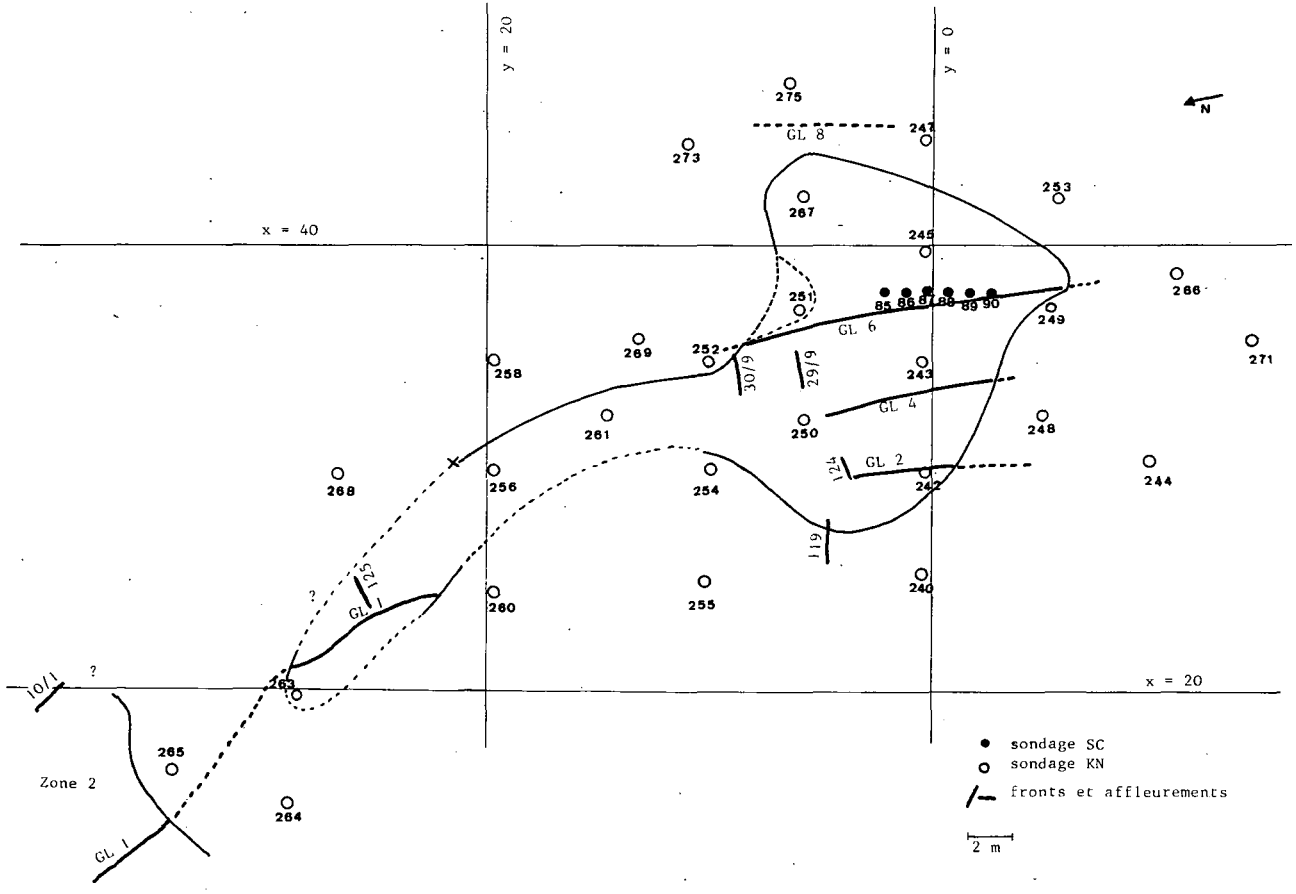


FIG.6. Zone 5–6: position des sondages et levés géologiques.

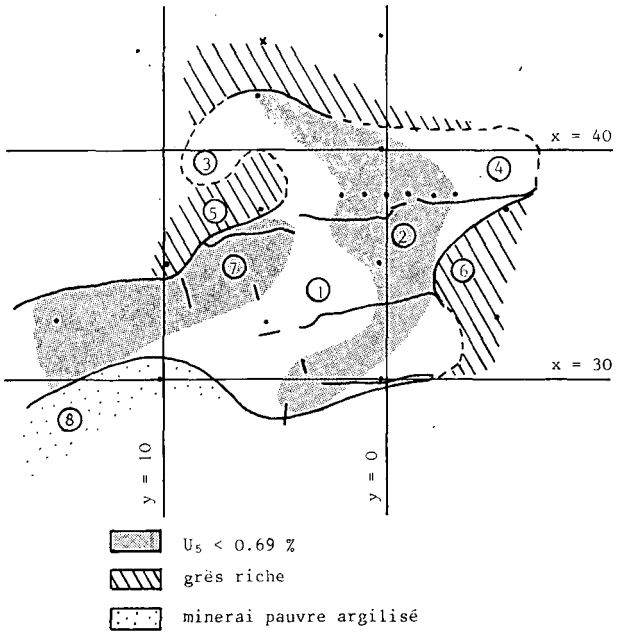


FIG.7. Zone 5–6: détail des secteurs.

- 2 affleurements : GL 4, GL 6 avec un échantillonnage relativement abondant;
- 5 fronts: n° 119, 124, 125, du 29/9/76 et du 30/9/76.

Quatre sondages de bordure présentent un intérêt particulier, car ils comportent une accumulation importante d'uranium dans les grès : ce sont KN 248, 249, 251 et 252. D'autre part les KN 254 et 260 (qui sont pauvres) présentent la particularité d'être complètement argilisés.

Dans la zone 5 proprement dite, il reste toujours des grès de C_1 au toit et au mur de la passe argilisée : celle-ci, dont l'épaisseur est de l'ordre du mètre, comporte une étroite bande de "faciès-pile" entourée d'argiles plus pauvres en uranium ; il peut rester deux ou trois mètres de grès moyen ou grossier dans l'intervalle compris entre les grès fins du mur et les pélites du toit. A l'entrée de la zone 6, la proportion des argiles s'accroît : si le sondage KN 261 comporte encore des grès de C_1, les sondages KN 256 et 263 sont complètement argilisés, et le front 125 comporte de même une grande épaisseur d'argiles. La zone 6 constitue donc une transition ; son extrémité est tout à fait semblable au bas de la zone 2.

Le suivi géologique d'un affleurement tel que GL 6 montre la présence d'un grand nombre de petits accidents qui provoquent des interruptions et des rejets du faciès-pile. Le front du 30/9 montre d'autre part qu'à

certains endroits, les couches peuvent être redressées à la verticale. Néanmoins à l'échelle de l'ensemble de la zone, la tectonique apparaît relativement calme, comme pour la zone 2, en ce sens qu'on n'y trouve pas l'analogue des grandes flexurations qui marquent les bordures de la zone 3-4 par exemple. Il est probable d'ailleurs qu'en partie au moins les accidents observés en affleurement sont le reflet d'une tectonique de réajustement postérieure à la désilicification (effondrements de petits compartiments). La zone, dans son ensemble, est vraisemblablement limitée par un système de fractures diagonales gauches et longitudinales, mais le caractère très fragmentaire des informations ne permet pas de les situer avec précision.

Les accumulations d'uranium sont très inférieures à celles des zones 1 et 2 ; elles sont de l'ordre de la moitié (elles ne dépassent pas 4 à 5 kg/dm^2 dans les sondages). Mais cet uranium est concentré dans une bande étroite ; les teneurs du faciès-pile avoisinent presque toujours 60 % ; les argiles adjacentes sont beaucoup moins riches, et les grès de C_1 résiduels sont peu minéralisés. Les quantités d'uranium sont très irrégulières comme le montrent les affleurements, et aussi la série de sondages SC 85 à SC 90.

Les appauvrissements isotopiques de l'uranium sont modestes ; les teneurs en 235 sont généralement au-dessus de 0.6 %, et dans toute une portion de la zone, elles sont supérieures à 0.69 %. Ce n'est que dans un petit secteur (front du 30/9, extrémité nord de l'affleurement GL 6) que l'on trouve des appauvrissements un peu plus grands ; le record est 0.517 %.

Description par secteurs

On se reportera à la figure 7 pour la numérotation des secteurs.

a) Comme on vient de le dire, il existe d'assez grandes portions de cette zone où les appauvrissements isotopiques sont très faibles. Sur la figure, on a indiqué en grisé celles où les teneurs en uranium 235 descendent au-dessous de 0.69 % ; on voit qu'il reste de larges surfaces en dehors, en particulier le couloir $(\overline{1})$, les KN 250 et 242, et une partie des affleurements. Ces portions ne sont pas à exclure de la zone car le minerai est argilisé, et on y trouve en général des "queues" de réactions.

b) Le secteur $(\overline{2})$, qui correspond en gros à la zone 5 primitive, inclut les sondages KN 267, 245 et 243 ; il est recoupé par la série SC 85 à 90 et par les trois affleurements, et il se prolonge jusqu'au front 119 qui a vu "l'ouverture" de la zone à partir d'une fracture majeure.

C'est un secteur assez médiocre ; la passe riche est toujours très mince. Les carottages des sondages sont de mauvaise qualité ; seul le SC 89 est en assez bon état, et il va être étudié plus en détail. Le KN 267 présente un intérêt particulier : il a recoupé le faciès-pile à la cote 341, qui est la plus basse que l'on ait trouvée pour l'ensemble des quatre zones ; dans ce sondage la proportion des fissions dans le plutonium semble voisine de 10 %, ce qui tendrait à prouver qu'à cet endroit la durée des réactions a été beaucoup plus courte que dans la zone 2.

c) Il est extrêmement dommage qu'on n'ait pas vu la fermeture de la zone à l'aval de cette cote 341 ; sur l'affleurement GL 8 (cote 338.4) on trouve au niveau de l'échantillon 2326 des grès assez riches (11 %) et de l'uranium normal, mais aussi une contamination en terres ra-

res de fission. Les tirs 192 et 187 confirment qu'il reste très peu de minerai riche à l'aval de la cote 341 mais indiquent que la zone s'étend latéralement : secteurs (3) et (4). Le secteur (4) a vraisemblablement très peu réagi, puisque la portion sud de l'affleurement GL 6 ne comporte que des appauvrissements isotopiques minimes, et qu'elle est bordée immédiatement à l'amont par des grès (sondage KN 249, qui pose d'ailleurs un problème de topographie : il ne peut être aussi près de l'affleurement). Le secteur (3) comporte une sorte de promontoire, à l'amont duquel on trouve également des grès assez riches ; il est probable que là aussi, les réactions et la désilicification se sont arrêtées au cours de leur progression.

Il est remarquable en effet que dans les secteurs (5) et (6), on trouve des grès riches avec des accumulations d'uranium, certes un peu inférieures à celles de la zone de réaction, mais néanmoins d'un ordre de grandeur comparable : sondages KN 251 et 252 d'une part, KN 248 et 249 d'autre part. Ces secteurs seraient donc à l'intérieur de la zone de surconcentration, mais à l'extérieur de la zone de réaction ; les sondages indiqués donneraient une idée de ce qu'était la couche C_1 après remobilisation de l'uranium et avant désilicification.

d) Le secteur (7), marqué par la portion nord de l'affleurement GL 6 et par les fronts du 29/9 et du 30/9, est celui où on a trouvé les plus forts taux de réaction ; c'est en fait le début de la zone 6. Le front du 30/9 est particulièrement intéressant au point de vue géologique car on y trouve toutes les transitions entre les grès très silicifiés et les argiles de piles, en passant par des grès partiellement désilicifiés ou déjà argilisés, et des argiles encore gréseuses. Les maxima d'appauvrissements isotopiques se trouvent le long d'un petit joint argileux dans l'axe du faciès-pile.

On note la présence du sondage KN 251, resté gréseux immédiatement à l'aval de l'affleurement GL 6 (là aussi il y a peut-être un petit problème de topographie).

e) La zone 6 proprement dite est fort mal connue, puisqu'elle n'est jalonnée que par les sondages KN 261 et 256, le front 125 et un morceau de l'affleurement GL 1. Le KN 256 est étudié un peu plus en détail. Comme on l'a dit on passe progressivement d'un encaissant gréseux à un encaissant complètement argilisé.

C'est une bande étroite, qui s'élève obliquement, avec un environnement très différent à l'amont et à l'aval. Les sondages KN 268, 258 et 269, situés à l'aval, qui ne comportent que du minerai pauvre, sont restés entièrement gréseux et l'uranium est normal. Au contraire les sondages KN 260 et 254, situés à l'amont, qui ne comportent également que du minerai pauvre, sont complètement argilisés, et l'uranium est légèrement appauvri (secteur (8) sur la figure 7). Il semble donc que la désilicification qui a accompagné la progression des réactions s'est faite préférentiellement vers l'amont, et on peut noter également que la contamination en uranium appauvri a lieu également plutôt en amont.

f) Il est dommage qu'on n'ait pas d'informations plus précises sur un éventuel raccordement entre les zones 6 et 2. Dans toute une portion de l'affleurement GL 1 on trouve des grès pauvres et une absence totale de réactions ; à ce niveau (cote 359 à 360) on est donc certain qu'il y a une interruption. D'ailleurs le KN 265 est preque entièrement gréseux, et le

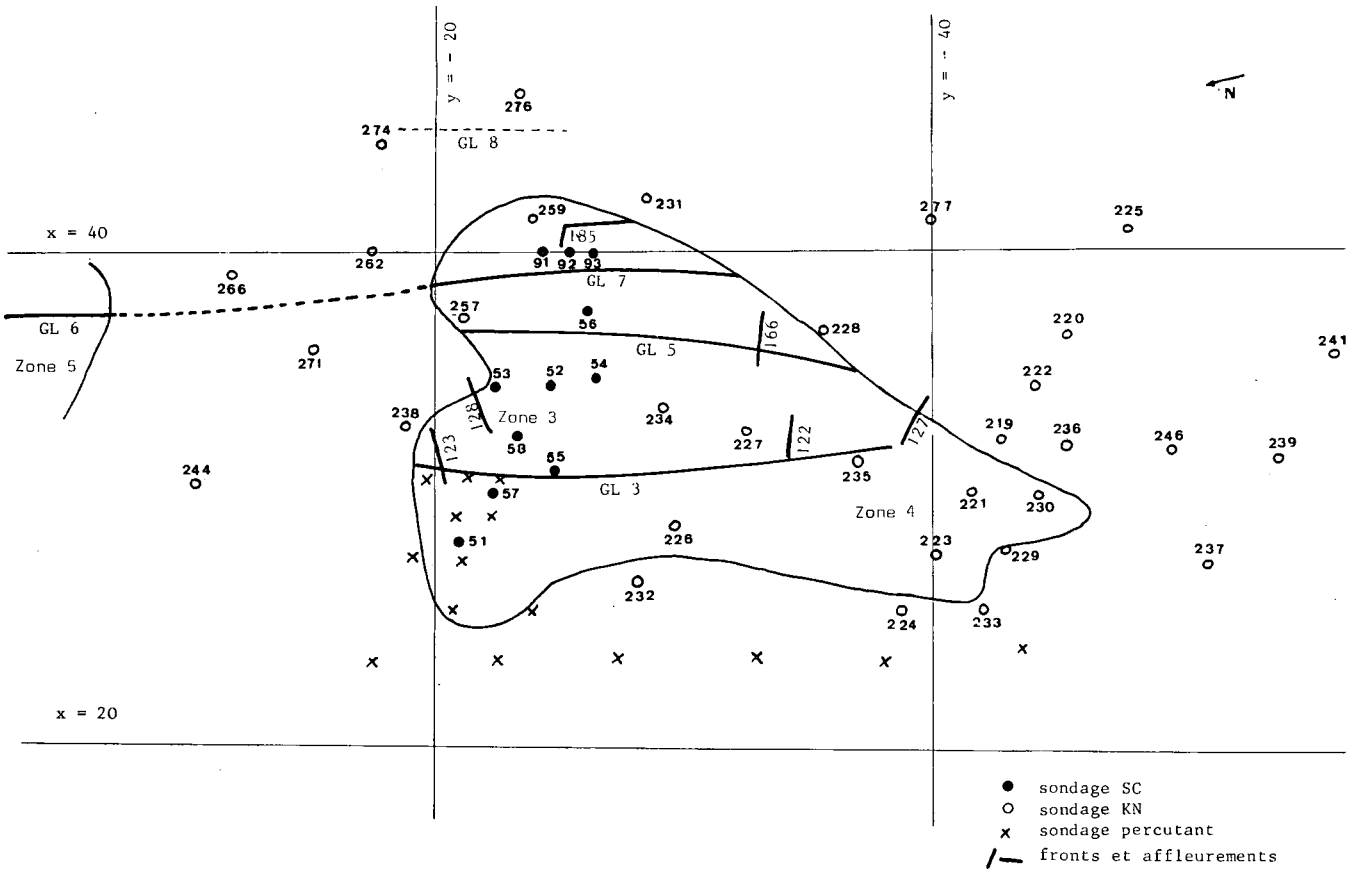


FIG.8. Zone 3–4: position des sondages et levés géologiques.

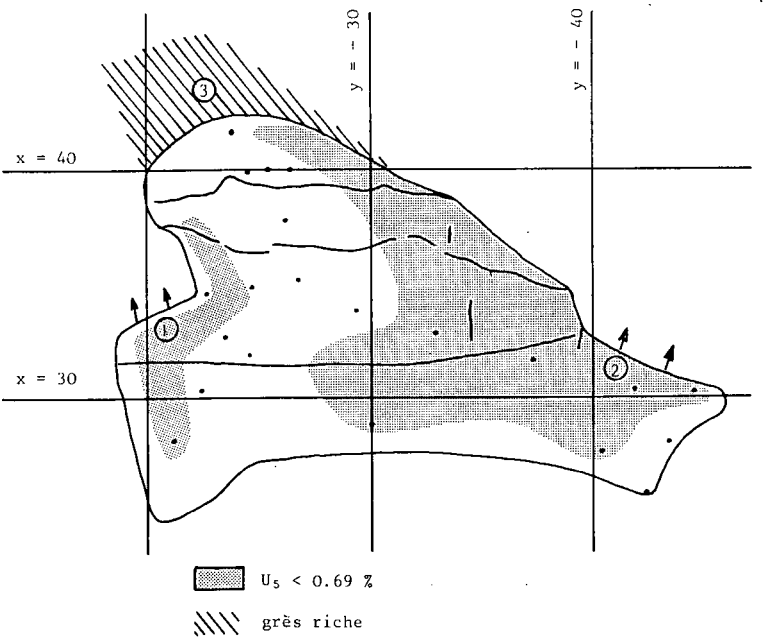


FIG.9. Zone 3–4: détail des secteurs.

KN 263 à l'extrémité de la zone 6 (dont une fois de plus la position ne paraît d'ailleurs pas très correcte par rapport à l'affleurement) ne comporte qu'une passe argilisée avec un encaissant gréseux. S'il y a raccordement, ce ne peut être que plus à l'aval.

On a observé la limite entre faciès-pile et conglomérat au profil y = 21 (marqué d'une croix sur la figure 6), mais plus au nord (front 125) la zone n'est pas "fermée", et on a noté que l'extrémité sud-est de la zone 2 n'a pas non plus été fermée. Or le tir 125 qui a exploité la portion située entre les cotes 360 et 356 a trouvé du minerai riche dans le prolongement de la zone 6. Il y a donc entre les deux zones un couloir qui a au moins été affecté par la surconcentration, et on ne peut exclure qu'il ait été argilisé.

ZONE 3-4 (figures 8 et 9)

Généralités

La zone 3-4, qui est la plus méridionale, est située à peu près entre les cotes 362 et 341. Comme les précédentes, elle s'étage donc sur une vingtaine de mètres ; elle est en gros au même niveau que la zone 5-6 ; elle monte légèrement plus haut. Elle est de forme assez massive ; on a estimé qu'elle comportait 180 à 190 tonnes d'uranium, et que sa contribution en uranium 235 manquant était de l'ordre de la centaine de kilos.

Cette zone est assez fortement flexurée et elle est limitée au sud par un accident majeur qu'on appelle le "dressant", de sorte que le faciès-pile est parfois redressé à la verticale ; mais en moyenne dans le centre, on peut estimer le pendage à environ 50 à 53°. On remarque que le pendage moyen augmente pour les quatre zones quand on va du nord au sud.

Cette zone n'a pas été touchée par l'exploitation avant la découverte du phénomène, mais l'extrémité nord-ouest, proche de l'affleurement, a été reconnue dès septembre 1973, à la suite d'une campagne de sondages percutants. On a alors délimité une zone 3, et lorsqu'on a trouvé la zone 4 à la fin de 1974, on a maintenu la distinction entre les deux zones. Ce n'est qu'à la suite du suivi géologique de l'exploitation qu'on a reconnu qu'elles devaient être intégrées toutes deux dans un ensemble plus vaste.

Bien que l'on dispose de beaucoup moins d'informations que pour les zones 1 et 2, cette zone est un peu mieux connue que la précédente. On dispose des sources suivantes (figure 8) :

- 11 sondages SC : n° 51 à 58 et n° 91 à 93, dont sept paraffinés (n° 52 à 58) ;
- 9 sondages KN : n° 221, 223, 226, 227, 230, 234, 235, 257, 259 ;
- un grand jalonnement GL 3, et deux affleurements étudiés en détail, GL 5 et GL 7. En particulier GL 5 comporte 15 coupes, et en tout près de 250 échantillons ;
- six fronts : n° 122 - 123 - 127 - 128 - 166 et 185 (ce dernier comportant également une petite portion relevée à la sole).

La figure 8 montre que la zone a été délimitée par un ensemble de sondages KN et par des percutants (EXP 13 à EXP 22, en amont, et EXP 25 à EXP 33 au voisinage de la zone 3). En outre le jalonnement GL 8 passe en aval à la cote 338.

Au point de vue sédimentologique cette zone ressemble beaucoup à la zone 5 : le faciès-pile forme en général une bande assez étroite, et il y a toujours des grès de C_1 de part et d'autre des argiles de piles. La plupart du temps, il est difficile de définir des épaisseurs normalement à la stratification, car les pendages sont très variables, et souvent différents suivant les limites de faciès.

La zone est limitée vers le sud par le "dressant", dont l'axe va du sud-ouest au nord-est. Le long de cet axe, le faciès-pile plonge à la verticale avant de disparaître. Cet accident majeur a provoqué par ailleurs de fortes flexurations. Au nord, la zone est limitée par un système de fractures diagonales droites et diagonales gauches ; dans deux compartiments voisins séparés par une fracture, les pendages peuvent être très différents, et on observe également dans ce secteur des portions subverticales.

Le suivi des affleurements montre d'autre part, comme pour la zone 5, des séries de petits décrochements ou rejets, qui sont vraisemblablement les témoins des réajustements postérieurs à la désilicification. On a donné dans [6] un bloc-diagramme schématique de l'ensemble de la zone de réaction (figure 9 de cette référence).

Les accumulations d'uranium, comme pour la zone 5-6, sont en moyenne très inférieures à celles des zones 1 et 2. Elles sont en outre très

variables, l'irrégularité rappelant parfois celle de la zone 1 : on peut le voir par exemple le long de l'affleurement GL 3, où les mesures radiométriques montrent des maxima successifs séparés par des portions beaucoup plus pauvres. Dans le faciès-pile, les teneurs parfois ne dépassent pas 40 %, parfois sont comprises entre 50 et 60 % ; les épaisseurs sont assez fortes par exemple dans le SC 52 ou le front 123, on trouve au contraire des passes très minces dans l'affleurement GL 7 ou dans la série SC 91 à 93. Les flexurations peuvent donner lieu à des épaisseurs fictivement très grandes : c'est ainsi que dans le KN 230, on trouve du minerai riche sur près de trois mètres, car à cet endroit la couche est subverticale.

Les appauvrissements isotopiques sont très médiocres ; on trouve de très grandes surfaces où la teneur en 235 est supérieure à 0.69 %, et la plupart du temps elle est au-dessus de 0.65 %. Elle ne s'abaisse au-dessous de 0.60 % que dans les bordures tectonisées nord et sud ; le record est de 0.514 % (dans le front 127).

Description par secteurs

a) Sur la figure 9 on a délimité, comme on l'avait fait sur la figure 7, les portions où la teneur en uranium 235 tombe au-dessous de 0.69 %. On voit qu'elles sont groupées en deux ensembles et qu'il reste en dehors une très large fraction de la zone ; l'existence d'un grand couloir entre les deux secteurs nord et sud justifie la distinction qui avait été faite au départ entre zones 3 et 4. Le regroupement en une zone unique s'impose cependant, puisque l'ensemble est argilisé et qu'on a trouvé un minimum de réactions partout.

L'existence de surfaces aussi vastes avec très peu de réactions pose un problème neutronique (si la criticité n'a pas été atteinte, les réactions auraient dû s'arrêter à plus courte distance des réacteurs proprement dits, et si elle l'a été, les réactions auraient dû continuer à cause de la destruction des poisons). On s'est demandé s'il ne s'agissait pas de vastes zones de contamination (il ne semble pas).

b) La zone 3 au sens restreint a été étudiée au départ au moyen d'un ensemble de sondages percutants et des sondages carottés SC 51 à 58. Cette zone est apparue fort médiocre, puisque seuls SC 51 et SC 52 comportaient un appauvrissement isotopique appréciable (0.65 %) ; les "cuttings" des EXP 27, 30 et 32 montraient des appauvrissements analogues, mais SC 55 plafonnait à 0.68 %, SC 56 à 0.69 %, les SC 57 et 58 étaient au-dessus de 0.70 %, et l'uranium de SC 53 et SC 54 était pratiquement normal. En fait on avait laissé échappé une petite portion, recoupée ultérieurement par l'extrémité nord de GL 3 et par le front 123, où les appauvrissements isotopiques sont nettement plus grands (0.58 % dans le front 123). Il est à noter d'ailleurs que les accumulations d'uranium dans SC 52 et SC 55 sont assez grandes ; la faiblesse des taux de réaction s'explique vraisemblablement par la médiocrité de l'environnement. (Ces deux sondages ont été utilisés pour l'étude des terres rares lourdes, en particulier le lutétium).

Au sud de la zone 3, on savait qu'il restait du minerai moyennement riche, mais la faiblesse des taux de réaction dans les derniers sondages, notamment dans le SC 54, laissait penser que les réactions s'arrêtaient. De même ultérieurement, on a pensé que le KN 234, dans lequel l'uranium 235 était au-dessus de 0.70 %, formait la bordure nord de la zone 4. Ce n'est que lorsqu'on a suivi les affleurements GL 3 et GL 5 qu'on a vu

qu'il n'y avait pas de véritable interruption. De la même façon il est apparu après le suivi de GL 7 que vers l'aval la zone de réaction allait au-delà du SC 56.

La morphologie de cette zone 3 est assez compliquée. Si on suit la série SC 51, 57, 58, 52, 56, on voit qu'il y a une flexuration marquée entre les SC 57 et 58 (6 mètres de différence de niveau entre les passes riches de ces deux sondages). Mais dans le compartiment situé plus au nord ((I) sur la figure 9), le faciès-pile reste d'abord plus haut, avant de plonger presque verticalement, comme le montre le front 128 qui marque la fermeture. Il y a donc vraisemblablement un décrochement entre les deux compartiments, et c'est probablement ce qui explique que le SC 53, qui est pourtant tout près du front 128 (aux incertitudes près de la topographie), contient de l'uranium pratiquement normal (0.7190 %) : sa passe riche est à un niveau différent.

C'est le long de cette portion subverticale qu'on trouve les taux de réaction les plus élevés (0.584 % dans le front 123, mais aussi 0.617 % dans le front 128). Immédiatement au nord, on retrouve des grès pauvres (KN 238).

Plus à l'aval, on a trouvé de l'uranium assez appauvri à l'extrémité nord du GL 5, mais le KN 257 qui contient pourtant du minerai riche (32 %) a de l'uranium pratiquement normal (0.7194 %).

c) La limite ouest, c'est-à-dire amont, de la zone n'est pas connue avec précision, bien qu'elle ait été jalonnée par un ensemble de percutants. Ce qui est à noter est que la bordure semble systématiquement contaminée. On a trouvé de l'uranium appauvri dans les cuttings du EXP 16 qui a recoupé du minerai à 10 % à la cote 363, c'est-à-dire plus haut que tous les réacteurs connus dans le voisinage (la zone 2 est à plus de quarante mètres) ; on en a trouvé de même dans les EXP 25 et 26, et aussi dans les KN 232, 224, 233 et 229 qui ne contiennent pas de minerai très riche (pour les derniers au moins, on ne peut pas exclure qu'il s'agisse de "queues" de réactions).

d) La zone 4 a été primitivement définie autour des KN 230, 223, 221, 235, 226 et 227, et elle a été jalonnée ensuite par le GL 3. Le KN 228 ne contenant que du minerai pauvre à teneur isotopique supérieure à 0.70 %, et le KN 231 étant normal, on ne pouvait soupçonner l'extension vers l'aval de cette zone jusqu'à ce qu'elle ait été recoupée par les affleurements GL 5 et GL 7 (et comme on l'a dit le KN 234 semblait constituer sa limite nord).

Le sondage le plus étudié a été le KN 230 qui recoupe du minerai riche sur près de 3 mètres [7]. Le KN 226 possède la particularité d'avoir des grès sains (c'est-à-dire peu altérés et peu désilicifiés) immédiatement au toit du faciès-pile : on a ramené une demi-carotte sur 1.50 m, et on l'a utilisée pour l'étude des inclusions fluides et celle des traces de fission dans les quartz.

L'existence du "dressant" est mise en évidence sur la série de sondages KN 219 à 225, où une très forte flexuration apparaît entre les KN 221 et 219. On le retrouve avec beaucoup de netteté sur le front 127, où on voit le faciès-pile plonger à la verticale avant de disparaître, le conglomérat intercalaire se retrouvant à la base. Ce front permet du même

coup de comprendre la situation du KN 230. Enfin la courbure de la ligne de niveau du GL 5 témoigne dans le même sens (pour GL 3, le tracé n'est pas représentatif d'une ligne de niveau, car la cote diminue vers le sud).

Il est remarquable que, de même que pour la limite nord, c'est dans ces portions de bordure fortement marquées par la tectonique et souvent subverticales (2), que se trouvent les maxima de taux de réaction : dans le KN 230, l'appauvrissement isotopique atteint 0.522 %, dans le front 127 : 0.514 %, dans le front 166 : 0.578 %.

e) Comme pour la zone 5-6, la fermeture aval de la zone n'est pas bien connue. L'affleurement GL 7 est très médiocre (sauf à son extrémité sud), et il en est de même des trois sondages SC 91 à 93. Le KN 259 contient du minerai à 46 % mais l'appauvrissement isotopique est très faible. Plus en aval, le jalonnement GL 8 à la cote 338 a trouvé des grès riches sur près de dix mètres (18 % dans l'échantillon GL 2302, uranium normal), et les tirs 192, 185 et 187 montrent qu'il y a effectivement des accumulations notables d'uranium, vraisemblablement dans des grès (c'est-à-dire non concentré par désilicification) dans le secteur marqué (3) sur la figure 9 (qui va jusqu'au KN 231 : minerai gréseux 10 %, uranium normal). Il semble donc bien que là aussi, la zone de surconcentration de l'uranium déborde la zone des réactions nucléaires, celles-ci ne s'étant pas propagées dans la totalité du domaine, et la désilicification ne s'étant pas produite à l'aval.

Dans ces conditions le levé 185 (front et affleurement) présente un intérêt particulier. Malheureusement la topographie comporte des ambiguïtés et on ne sait pas ce qui se passe immédiatement en aval. A la sole (qui pourrait être à la cote 340.5) on a observé un peu de faciès-pile, se fermant au contact d'un conglomérat (l'uranium est appauvri : 0.668 %) ; le front montre seulement un faciès argilisé pauvre. Il semble qu'on soit extrêmement près de l'extrémité aval de la zone de réaction.

BILAN DE L'ECHANTILLONNAGE

Les échantillons ont été prélevés soit directement dans la carrière, soit sur des sondages. En principe à tout échantillon est attribué un n° d'ordre ; en fait on a deux numérotations en parallèle : échantillonnage "pile" : exemple n° 401, n° 2302, et échantillonnage "géologique", affecté du sigle GL : exemple GL 802, GL 2302. Un échantillon est entièrement défini par son numéro, mais il est utile de préciser sa situation (par exemple sondage SC 44, front 127, etc.).

Un échantillon prélevé sur le terrain a un poids très variable, généralement compris entre 50 et 500 g ; lorsqu'il provient d'un sondage, si le carottage est de mauvaise qualité, il peut se présenter comme un prélèvement de terrain, c'est-à-dire avec des fragments non situés les uns par rapport aux autres, et avec une cote approximative. A l'inverse, dans le cas des sondages paraffinés, on attribue à l'échantillon une longueur définie, généralement 5 cm, on procède à un découpage longitudinal et à des tronçonnages, et les fragments sont situés de manière précise. D'une manière générale, on attribue des indices aux fragments : par exemple n° 1421/4. Certaines portions peuvent être broyées et homogénéisées, on conserve alors généralement des témoins sous forme de morceaux.

On a prélevé environ 2500 échantillons de terrain, et le nombre d'échantillons prélevés sur les sondages est actuellement du même ordre ;

ce nombre s'accroît constamment, puisque les numéros ne sont attribués qu'au moment du découpage, et que de nombreux sondages n'ont encore fait l'objet que d'échantillonnages très partiels.

On dispose d'un répertoire où chaque numéro d'échantillon renvoie à un sondage (ou une coupe ou un front, etc.), et d'un fichier où pour chaque sondage (coupe, front, ...) est reportée la liste des échantillons, avec leur localisation et éventuellement d'autres détails. Dans le cas des sondages paraffinées, des plans de découpage indiquent de manière précise la provenance des échantillons. Pour chaque sondage, on dispose du "log" (description sommaire par faciès), et du radiocarottage. Rappelons enfin que les résultats des dosages et analyses isotopiques d'uranium ont été regroupés dans [2][3] et [7].

Au total, on peut répartir les échantillons en six catégories :

1. Echantillons prélevés indépendamment du phénomène pile et en particulier sondages KN anciens (< KN 219) et sondages OK (les échantillons ne sont pas nécessairement répertoriés).

2. Echantillons prélevés sur les affleurements dégagés au moment de la découverte
   - affleurements n° 1, n° 2 et 2' (voir plus haut liste des "coupes")
   - front de la "minipile".

3. Sondages SC non paraffinés (37)
   - sondages d'exploration : zone 1 : SC 11 à 23, SC 25
     zone 2 : SC 1 à 6, 8, 9a, 9b, 9c
     zone 3 : SC 51
   - sondages "géologiques" : SC 0, SC 48 bis et 48 ter
   - aval des zones 3 à 5 : SC 85 à 93.

4. Sondages SC paraffinés (92)
   zone 1 : SC 24, 26 à 30, 61 à 78, 21 bis, 30 bis, 63 bis
   zone 2 : SC 7, 10, 31 à 33, 35 à 50, 81 à 84
   SC 2 bis, 34 bis à 47 bis, 49 bis
   SC 35/b2, 36/1-2-3, 36/b_1-b_2, 39/1-2, 44/1-2
   zone 3 : SC 52 à 58
   sondages inclinés : SI_2, An 1 à An 6.

5. Sondages KN du secteur pile (59)
   KN 219 à KN 277.

6. Echantillonnage géologique au cours de l'exploitation (échantillons GL)
   - affleurements :
     zone 2-6 : affleurement GL 1
     zone 5 : " GL 2, GL 4, GL 6
     zone 3-4 : " GL 3, GL 5, GL 7
     aval zones 3-4-5 : affleurement GL 8
   - fronts
     zone 1 : fronts 108, 111, 116
     zone 2 : fronts 95 à 97, 99 à 101, fronts du 10/1, du 11/1
     zone 6 : front 125
     zone 5 : fronts 119, 124, fronts du 29/9 et du 30/9
     zone 3-4 : fronts 122, 123, 127, 128, 166, 185
     hors pile : fronts 110, 112, 120, 129, du 24/1, du 30/1.

Les tableaux I à IV rassemblent un certain nombre de renseignements (voir annexe).

a) Le tableau I est consacré aux sondages SC. On donne pour ceux qui ont été paraffinés (92 sur 129) les longueurs correspondantes : celle-ci peut varier de 0.40 m à 4.80 m, soit 1 à 12 passes, mais elle est le plus souvent de l'ordre de 2 à 3 mètres, soit 5 à 7 passes. En tout, on a réalisé 560 carottes paraffinées.

Dans le cas de sondages ordinaires, on a fait généralement des prélèvements ponctuels (voir : nombre d'échantillons) ; dans quelques cas seulement on a pu transporter des portions de carottes (colonne 4). 54 sondages paraffinés ont été approvisionnés ; les 38 autres sont en totalité à Mounana ; on n'a d'ailleurs fait venir à Saclay que les passes jugées les plus intéressantes, c'est-à-dire le coeur ; les portions adjacentes n'ont été jointes que dans un petit nombre de cas. Au total il y a actuellement 166 passes paraffinées à Saclay; toutes ont fait l'objet au moins d'une mesure radiométrique. Un certain nombre ont été découpées longitudinalement en demi et quart de carottes, puis tronçonnées ; on indique en colonne 6 la longueur découpée. Une fraction des tronçons est ensuite broyée et analysée ; lorsqu'il n'y a pas de découpage longitudinal, on a fait éventuellement des prélèvements ponctuels.

On indique le nombre de numéros d'échantillons attribués, et le nombre d'analyses isotopiques d'uranium, ce dernier chiffre donnant une idée du degré de détail avec lequel le sondage a été étudié. Dans la dernière colonne on donne une indication sur les autres études : G : analyse géochimique ou observations pétrographiques ; AI : analyses isotopiques d'éléments autres que l'uranium.

b) Le tableau III est consacré aux sondages KN.

Une majorité de ces sondages se trouve à l'extérieur des zones de réaction ; on a indiqué par le signe G dans la troisième colonne ceux qui sont restés entièrement gréseux (ou du moins dans lesquels le maximum de teneur en uranium se trouve encore dans un grès) ; ceux, marqués A, pour lesquels la portion riche a été analysée, ont traversé ou une zone de réaction ou sa bordure. Dans chaque sondage la teneur en uranium a été mesurée à l'endroit du maximum de radiocarottage : on a indiqué ceux pour lesquels cette teneur dépasse 5 ou 10 % ; on note qu'il y a beaucoup de sondages gréseux riches. Enfin on donne une indication sur l'appauvrissement isotopique de l'uranium. L'échantillonnage a été purement ponctuel, sauf pour le KN 230, pour lequel on a pu ramener environ 6 mètres de carottes ; on donne pour chaque sondage le nombre d'échantillons et le nombre d'analyses isotopiques.

c) Les tableaux II et IV sont relatifs à l'échantillonnage carrière. Pour les affleurements n° 1, 2 et 2', on a distingué des "coupes" ; le tableau IV détaille l'échantillonnage "GL". On a ramené en général les échantillons au fur et à mesure de leurs prélèvements ; cependant une grande partie des échantillons GL est encore à Mounana ; le reste est partagé entre Saclay et Strasbourg. On indique là encore le nombre d'analyses isotopiques pour chaque coupe, ou pour chaque front ou affleurement.

Annexe

TABLEAU I - Sondages SC

Numéro du sondage	Zone	Longueur paraffinée	Longueur ramenée en France	Radiométrie γ	Longueur découpée	Nombre d'échantillons	Nombre analyses isotop.	Autres études[a]
SC 0	entre 1 et 2					12	1	G
SC 1	2					12	-	
SC 2	"					6	2	
SC 2 bis	"	2.80m	-		-	-	-	
SC 3	"					9	6	
SC 4	"					-	-	
SC 5	"					4	3	
SC 6	"					27	11	G
SC 7	"	1.20m	0.50m	x	0.50m	10	4	
SC 8	"					3	3	
SC 9a	"					1	1	
SC 9b	"		1.20		1.80	11	11	
SC 9c	"		2.70		1.80	17	14	
SC 10	"	1.05	-		-	-	-	
SC 11	1		1.10			13	5	G
SC 12	"					5	4	
SC 13	"					5	4	
SC 14	"					9	5	
SC 15	"		0.90			9	6	
SC 16	"					6	5	
SC 17	"					2	1	
SC 18	"					1	1	
SC 19	"					3	3	
SC 20	"		8.00		4.20	72	27	G.AI
SC 21	"					9	11	
SC 21bis	"	4.00	1.60	x	1.20	24	6	
SC 22	"					22	8	G
SC 23	"					15	1	
SC 24	"	1.20	0.70	x		1	-	
SC 25	"					6	4	
SC 26	"	2.25	0.50	x	-	1	1	
SC 27	"	2.00	1.20	x	-	1	1	
SC 28	"	3.90	-		-			
SC 29	"	2.00	1.20	x	0.95	19	3	
SC 30	"	4.40	2.80	x	2.80	44	17	AI
SC 30bis	"	4.40	2.80	x	2.80	44	17	G.AI
SC 31	2	4.70	-		-			
SC 32	"	3.00	0.85	x	0.50	9	4	
SC 33	"	2.00	-		-			
SC 34bis	"	1.95	1.20	x	0.45	10	5	AI
SC 35	"	2.25	1.40	x	0.675	14	7	
SC 35bis	"	3.80	1.20	x	1.20	25	15	AI
SC 35 b2	"	2.40	1.20	x	1.20	26	10	
SC 36	"	2.45	2.45	x	2.05	57	60	AI+

SC 36-1	2	2.10m	0.80m	x	0.80m	13	5	
SC 36-2	"	1.95	0.90	x	0.72	13	5	
SC 36-3	"	2.25	1.00	x	-	-	-	
SC 36bis	"	1.40	1.00	x	0.60	13	5	
SC 36 b1	"	1.60	-		-	-	-	
SC 36 b2	"	2.40	1.20	x	-	-	-	
SC 37	"	2.50	1.25	x	0.80	17	8	
SC 37bis	"	1.90	-		-	-	-	
SC 38	"	3.05	1.60	x	1.60	33	14	
SC 38bis	"	2.20	-		-	-	-	
SC 39	"	2.75	1.25	x	1.25	25	14	AI
SC 39-1	"	0.50	-		-	-	-	
SC 39-2	"	2.30	-		-	-	-	
SC 39bis	"	1.75	-		-	-	-	
SC 40	"	2.95	2.95	x	1.45	29	11	
SC 40bis	"	1.70	-		-	-	-	
SC 41	"	2.60	1.45	x	-	-	-	
SC 41bis	"	1.70	-		-	-	-	
SC 42	"	2.45	0.80	x	0.625	12	6	
SC 42bis	"	2.00	-		-	-	-	
SC 43	"	2.35	1.20	x	0.70	15	5	
SC 43bis	"	2.50	-		-	-	-	
SC 44	"	2.95	2.95	x	2.95	58	33	AI
SC 44-1	"	2.90	-		-	-	-	
SC 44-2	"	2.70	-		-	-	-	
SC 44bis	"	3.05	-		-	-	-	
SC 45	"	3.15	0.65	x	-	-	-	
SC 45bis	"	1.05	-		-	-	-	
SC 46	"	2.00	0.80	x	0.40	9	4	
SC 46bis	"	1.30	0.40	x	-	1	-	
SC 47	"	1.60	0.80	x	-	1	1	
SC 47bis	"	1.60	0.30	x	-	1	1	
SC 48	"	2.00	0.40	x	-	1	1	
SC 48bis	"	0	-		-	15	1	G
SC 48ter	"	0	-		-	9	-	G
SC 49	"	1.60	0.80	x	-	1	-	
SC 49bis	"	1.90	1.20	x	-	2	-	
SC 50	"	2.20	-		-	-	-	
SC 51	3	0	1.20		0.55	11	5	
SC 52	"	1.65	1.20	x	1.20	24	10	AI
SC 53	"	0.85	0.85	x	-	2	1	
SC 54	"	1.30	0.90	x	-	1	1	
SC 55	"	2.40	1.20	x	1.20	25	5	AI
SC 56	"	0.80	0.40	x	-	1	1	
SC 57	"	3.60	0.40	x	-	1	1	
SC 58	"	2.00	0.80	x	-	1	1	
SC 61	1	2.10	1.60	x	1.60	33	18	AI
SC 62	"	2.80	-		-	-	-	
SC 63	"	3.60	1.60	x	-	23	16	AI
SC 63bis	"	1.10	0.80	x	-	-	-	
SC 64	"	2.40	-		-	-	-	
SC 65	"	3.20	1.20	x	-	-	-	
SC 66	"	3.60	-		-	-	-	

SC 67	1	2.40m	-		-	-	-	
SC 68	"	2.40	1.60m		-	-	-	
SC 69	"	2.40	1.20	x	-	-	-	
SC 70	"	3.60	-		-	-	-	
SC 71	"	4.00	-		-	-	-	
SC 72	"	2.40	1.60	x	0.20m	-	-	
SC 73	"	4.80	-		-	-	-	
SC 74	"	2.40	0.40	x	-	-	-	
SC 75	"	2.20	-		-	-	-	
SC 76	"	1.60	-		-	-	-	
SC 77	"	3.00	-		-	-	-	
SC 78	"	2.00	-		-	-	-	
SC 81	2	2.05	-		-	-	-	
SC 82	"	2.05	0.85	x	0.40	7	4	
SC 83	"	1.60	-		-	-	-	
SC 84	"	2.40	0.80	x	0.40	7	4	
SC 85	5	0	-		-	3	1	
SC 86	"	0	-		-	9	2	
SC 87	"	0	-		-	1	1	
SC 88	"	0	-		-	8	1	
SC 89	"	0	1.20	x	0.60	25	5	
SC 90	"	0	-		-	7	1	
SC 91	3	0	-		-	1	1	
SC 92	"	0	0.50	x	-	11	1	
SC 93	"	0	0.50	x	-	11	1	
SI 2	1	6.20	4.40	x	2.30	38	12	
An 1	2	1.20	-		-	-	-	
An 2	"	1.20	-		-	-	-	
An 3	"	1.20	1.20	x	-	-	-	
An 4	"	1.10	0.70	x	-	-	-	
An 5	"	0.40	-		-	-	-	
An 6	"	1.60	-		-	-	-	

[a] Voir texte.

TABLEAU II - Affleurements primitifs

Coupe	Nombre d'échant.	Nombre d'analys.	Coupe	Nombre d'échant.	Nombre d'analys.	Coupe	Nombre d'échant.	Nombre d'analys.
1 U	20	1	2'O	20	1	2'P'_c	10	.
1 V	20	1	2'P	36	25	2'P'_d	10	.
2 L	20	44	2'P'	37	22	2'Q	9	6
2 N	20	19	2'P"	48	8	2'Q'	15	10
2 P	15	22	2'P"'	48	4	2'R	10	10
2'L	64	12	2'P_a	10	4	2'S	37	22
2'L'	13	.	2'P_b	10	4	2'T	23	7
2'M	20	.	2'P_c	10	4	2'U	56	.
2'N	68	24	2'P_d	10	4	2'V	31	.
2'N'	28	10	2'P'_a	10	4	2'X	18	.
2'N"	49	.	2'P'_b	10	4	Minipile	24	2
2'N"'	25	.				ech. géol	40	.

TABLEAU III - Sondages KN

Numéro du sondage	Localisation	Grès ou argile[a]	Minerai riche[b]	^{235}U[c]	Nombre d'échantillons	Nombre analyses isotop.
KN 219	aval zone 4	G		LC	1	1
KN 220	"	G	x	N	9	1
KN 221	zone 4	A	xx	A	5	1
KN 222	aval zone 4	G		LC	5	1
KN 223	zone 4	A	xx	A	20	7
KN 224	amont zone 4	G		LC	7	1
KN 225	aval zone 4	G		N	3	1
KN 226	zone 4	A	xx	A	23	6
KN 227	"	A	xx	A	9	5
KN 228	bordure aval zone 4	A	x	C	9	1
KN 229	bordure amont zone 4	A	xx	C	1	1
KN 230	zone 4	A	xx	A	30	16
KN 231	aval zone 3-4	G	xx	N	11	1
KN 232	amont zone 4	G		C	1	1
KN 233	bordure amont zone 4	A	xx	C	3	1
KN 234	zone 3-4	A	xx	A	17	2
KN 235	zone 4	A	xx	A	8	2
KN 236	bordure aval zone 4	G		C	1	1
KN 237	sud zone 4	G	x	N	1	1
KN 238	nord zone 4	G		LC	1	1
KN 239	sud zone 4	G		N	1	1
KN 240	amont zone 5	G		N	1	1
KN 241	sud zone 4	G	x	N	1	1
KN 242	zone 5	A	xx	A	2	1
KN 243	"	A	xx	A	6	3
KN 244	entre zones 5 et 3	G		N	1	1
KN 245	zone 5	A	xx	A	10	4
KN 246	sud zone 4	G		N	1	1
KN 247	aval zone 5	G	x	N	1	1
KN 248	bordure sud zone 5	G	xx	N	2	1
KN 249	"	G	xx	C	7	1
KN 250	zone 5	A	xx	A	3	1
KN 251	bordure nord zone 5	G	xx		1	
KN 252	"	G	xx	C	2	1
KN 253	aval zone 5	G	x	N	1	1
KN 254	bordure zone 5-6	A		C	1	1
KN 255	amont zone 5	G	x	N	1	1
KN 256	zone 6	A	xx	A	8	4
KN 257	bordure zone 3	A	xx	LC	5	1
KN 258	aval zone 6	G		N	1	1
KN 259	zone 3-4	A	xx	A	17	2
KN 260	bordure amont zone 6	A		C	1	1
KN 261	zone 6	A	xx	A	1	1
KN 262	nord zone 3-4	G	x	N	1	1
KN 263	zone 6	A	xx	A	1	1

KN 264	entre zones 6 et 2	G		N		1
KN 265	"	G		C	1	1
KN 266	entre zones 5 et 3	G	x	N	1	1
KN 267	zone 5	A	xx	A	10	4
KN 268	aval zone 6	G		LC	1	1
KN 269	"	G	x	N	1	1
KN 270	entre zones 1 et 2	G	x x	LC	1	1
KN 271	entre zones 5 et 3	G		(N)	1	1
KN 272	entre zones 1 et 2	G		LC	2	1
KN 273	aval zone 5	G		N	1	1
KN 274	aval zone 3	G		N	1	1
KN 275	aval zone 5	G		LC	1	1
KN 276	aval zone 3	G	x	N	2	1
KN 277	aval zone 4	G		LC	1	1
OK 84bis	Oklelobondo	A	xx	A	24	4

[a] G ou A: maximum de teneur dans un grès ou dans une argile.

[b] Minerai riche: x : 5 à 10%
xx : t > 10%.

[c] Uranium-235: A : uranium appauvri ($U_5 < 0.70\%$)
C : U contaminé ou légèrement appauvri ($U_5 > 0.70\%$)
LC : U légèrement contaminé: 0.7184 - 0.7195
N : U normal: $U_5 \geqslant 0.7196$.

TABLEAU IV - Echantillonnage géologique

Affleurement ou front	Situation	Nombre d'échantillons	Nombre d'échant. en france	Nombre d'analyses isotopiq.	Autres études
Affleurement GL 1	zones 2 à 6	75	75	11	x
" GL 2	zone 5	27	25	4	
" GL 3	zone 3-4	108	108	12	
" GL 4	zone 5	124	54	3	
" GL 5	zone 3-4	249	139	11	
" GL 6	zone 5	114	114	15	x
" GL 7	zone 3-4	86	86	7	x
" GL 8	aval zone 5	32	31	1	x
Fronts 95 à 97	zone 2	132	-		
" 99 à 101	"	73	-		
" 108	zone 1	10	-		
" 110	amont zone 6	6	-		
" 111	zone 1	28	-		
" 112	amont zones 3-5	8	-		
" 116	zone 1	51	2		
" 119	zone 5	37	28	1	
" 120	amont zone 6	21	-		
" 122	zone 4	59	32	2	
" 123	zone 3	26	16	3	
" 124	zone 5	24	10	1	
" 125	zone 6	43	18	1	
" 127	zone 4	38	11	2	
" 128	zone 3	24	4	2	
" 129	nord zone 2	15	-		
" 166	zone 3-4	73	73	3	
" 185	"	56	56	1	
Front du 10/1/76	zone 2	11	4	2	
" du 11/1/76	"	51	26	3	x
" du 24/1/76	nord zone 2	14	-	-	
" du 30/1/76	"	8	-	-	
" du 29/9/76	zone 5	17	3	2	
" du 30/9/76	"	81	81	7	x

REFERENCES

[1] BOYER, R.L., NAUDET, R., PFIFFELMANN, J.-P., «Exploration des foyers de réaction», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 67.

[2] NAUDET, R., FILIP, A., RENSON, C., «Distribution détaillée de l'uranium à l'intérieur des amas», Ibid., p. 83.

[3] NAUDET, R., RENSON, C., «Résultats des analyses systématiques de teneurs isotopiques de l'uranium», Ibid., p. 265.

[4] GAUTHIER-LAFAYE, F., RUHLAND, M., WEBER, F., «Analyse tectonique du gisement d'Oklo», Ibid., p. 103.
[5] NAUDET, R., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/1.
[6] GAUTHIER-LAFAYE, F., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/3.
[7] NAUDET, R., RENSON, C., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/4.

DISCUSSION

V.A. PCHELKIN: A-t-on déterminé la teneur moyenne en ^{235}U par zones?

R. NAUDET: Précisons d'abord que dans la plupart des zones on constate en général une accumulation d'uranium plus grande, et de l'uranium plus concentré quand on va vers l'amont. La zone dans laquelle les appauvrissements sont les plus grands est la zone 2, dans laquelle on a trouvé d'abord les records absolus; on est même descendu à 0,3%. En amont de cette zone 2, qui est la portion conservée, l'affleurement était plus riche que la ligne de sondage qui vient un peu après, et là on a de l'uranium très concentré et des appauvrissements qui sont souvent de l'ordre de 0,4 ou 0,5%. L'aval de la zone 2 est déjà moins riche, et dans l'ensemble de la zone 1 on a une ou deux petites régions où on retrouve des appauvrissements assez élevés, jusqu'à 0,42% je crois. Ces valeurs sont comparables à celles de la zone 2, mais il y a une vaste portion où elles se situent aux environs de 0,6%. Dans la zone 5–6, qui est une zone intermédiaire, le record est de 0,51%, mais ce résultat est assez localisé; la plupart du temps les chiffres se situent vers 0,6%, ou rarement au-dessous. Dans la zone 3–4, la moins appauvrie, c'est aux extrémités, c'est-à-dire dans les bordures le long du dressant et le long de la série de fractures, que l'on observe la plus grosse accumulation d'uranium. On a quelques appauvrissements un peu élevés, mais en moyenne on trouve environ 0,65%.

ETUDES PETROLOGIQUES
(Séance II)

PETROLOGICAL STUDIES
(Session II)

Président (Chairman): R.E. JACKSON

ETAT DES ETUDES GEOLOGIQUES ENTREPRISES EN FRANCE SUR LE GITE D'OKLO DEPUIS LE COLLOQUE DE LIBREVILLE

F. WEBER
Université Louis Pasteur,
Institut de géologie,
Centre de sédimentologie et géochimie
de la surface (CNRS),
Strasbourg, France

Résumé–Abstract

ETAT DES ETUDES GEOLOGIQUES ENTREPRISES EN FRANCE SUR LE GITE D'OKLO DEPUIS LE COLLOQUE DE LIBREVILLE.

Les problèmes posés à la suite du Colloque de Libreville peuvent être regroupés sous quatre rubriques: genèse des gisements et des surconcentrations; niveau d'enfouissement atteint par la série; températures durant les réactions et effets de celles-ci; perturbations postérieures aux réactions. Ils ont été abordés dans un esprit pluridisciplinaire par des études pétrographiques et minéralogiques classiques (Cogéma, Fontenay-aux-Roses; Centre de sédimentologie et géochimie de la surface, Strasbourg), par l'étude des inclusions fluides (Centre de recherches pétrographiques et géochimiques, Nancy), par l'étude des matières organiques (Institut français du pétrole, Rueil; Cerchar, Verneuil-en-Halatte) et par l'étude des traces de fission (Laboratoire René Barnas, Orsay).

STATUS OF GEOLOGICAL STUDIES UNDERTAKEN IN FRANCE ON THE OKLO DEPOSIT SINCE THE LIBREVILLE SYMPOSIUM.

The questions posed since the Libreville symposium can be grouped under four headings: origin of the deposits and the over-concentrations; degree of burial reached by the series; temperatures attained during the reactions, and effects of the reactions; perturbations subsequent to the reactions. These questions have been the subject of multidisciplinary investigations, including conventional petrographic and mineralogical investigations (Cogéma, Fontenay-aux-Roses and the Centre for Sedimentology and Geochemistry of the Surface, Strasbourg), a study of fluid inclusions (Centre for Petrographic and Geochemical Research, Nancy), studies of organic material (French Institute of Petroleum, Rueil, and Cerchar, Verneuil-en-Halatte) and a study of fission traces (René Barnas Laboratory, Orsay).

Le Colloque de Libreville a marqué une étape importante dans les études géologiques d'Oklo. Comme le soulignait M. Naudet [1] en conclusion de la table ronde sur les Sciences de la Terre, ce colloque consacrait la rencontre entre

physiciens et géologues qui découvraient le profit qu'ils pouvaient tirer respectivement des travaux des uns et des autres. Néanmoins, si les géologues avançaient un certain nombre d'idées sur la mise en place de l'uranium et sur l'environnement des réacteurs au moment de leur fonctionnement, le tout était encore au stade d'hypothèses très incertaines. En ce qui concerne les effets des réactions nucléaires sur les sédiments encaissants on commençait tout juste à se rendre compte que certaines particularités des zones de réaction pourraient s'expliquer par les réactions nucléaires elles-mêmes. Les données analytiques sur les réacteurs étaient déjà abondantes mais il manquait au géologue à cette époque, d'une part une bonne connaissance du contexte, d'autre part d'avoir vu les réacteurs. En effet, jusqu'en 1975 les mauvaises conditions d'affleurement des zones 1 et 2, à la sole de la carrière, ne permettaient pas d'observations géologiques correctes. L'exploitation des zones de réaction, de 1975 à 1977, a donc été l'élément essentiel qui a permis de faire progresser les connaissances géologiques sur les réacteurs d'Oklo. Au cours de cette exploitation des fronts de taille corrects, montrant des situations variées, ont pu être observés et décrits [2, 3].

Néanmoins les données de terrain ne pouvaient à elles seules répondre aux nombreuses questions que l'on se posait en 1975. Il fallait donc poursuivre les travaux de laboratoire dans les voies qui avaient été tracées avant le colloque et en ouvrir de nouvelles. Certains domaines, telle l'étude des traces de fission ou l'étude des matières organiques, étaient peu avancés ou mêmes n'avaient été qu'effleurés; d'autres, telle l'étude des inclusions fluides, offraient pour Oklo des possibilités entièrement nouvelles. Ces études furent confiées à des organismes spécialisés, Laboratoire René Barnas pour l'étude de traces de fission, Institut français du pétrole (IFP) et Centre d'études et recherches des charbonnages de France (Cerchar) pour l'étude des matières organiques, Centre de recherches pétrographiques et géochimiques (CRPG) du CNRS pour l'étude des inclusions fluides, les études géochimiques, minéralogiques et pétrographiques étant poursuivies au Laboratoire de minéralogie de la Compagnie générale des matières nucléaires (Cogéma) à Fontenay-aux-Roses et au Centre de sédimentologie et géochimie de la surface (CNRS) à Strasbourg.

Les problèmes posés au colloque de 1975 peuvent être regroupés sous quatre rubriques:

- genèse des gisements et des surconcentrations ayant conduit aux masses critiques dans lesquelles se sont déclenchées les réactions nucléaires;
- niveau d'enfouissement atteint par la série avant, pendant et après les réactions nucléaires;
- températures atteintes durant les réactions et effets de ces dernières sur le minerai lui-même et les terrains encaissants;
- perturbations postérieures aux réactions susceptibles d'avoir modifié la géométrie des amas et la distribution des éléments chimiques issus des réactions.

GENESE DES GISEMENTS ET DES SURCONCENTRATIONS

Les observations sur le terrain et les études sur l'environnement géologique des réacteurs dont Gauthier-Lafaye et al. ont présenté les résultats [2] ont montré clairement que, à la suite d'un mouvement tectonique, des remobilisations d'uranium ont entraîné la formation de surconcentrations au sein d'un gisement préexistant. Le minerai «banal» d'Oklo où l'uranium est associé aux matières organiques est le témoin de ce gisement initial. Les minerais gréseux riches à hématite, liés à des couloirs de cisaillement, voire à des brèches tectoniques, sont les témoins de surconcentrations restées sous-critiques; ils nous donnent l'image de ce que devaient être les zones de réaction avant le déclenchement du phénomène.

L'association étroite entre la pechblende et les matières organiques dans le minerai banal d'Oklo amène inévitablement à attribuer un rôle aux matières organiques dans la genèse du gisement. Il était donc souhaitable de caractériser ces matières organiques pour tenter de répondre aux questions suivantes:

- S'agit-il de matières organiques autochtones ou de matières organiques migrées?
- Quel était le degré d'évolution de ces matières organiques lors de leur mise en place dans le gisement?
- Y a-t-il un lien de parenté entre les matières organiques de la couche C1 et celles de la formation FB qui constitue une roche-mère possible?

Le rôle des matières organiques dans la genèse des surconcentrations est plus incertain. Leur absence presque totale dans les zones de réaction peut s'expliquer à la fois par les effets neutroniques et thermiques. Dans les minerais riches gréseux (teneur en U de 10 à 20%) les teneurs en carbone organique paraissent assez capricieuses, mais il est sans doute trop tôt pour se prononcer car l'étude détaillée de ce type de minerai reste à faire.

La recherche, par la technique des inclusions fluides, du ou des fluides ayant transporté ou remobilisé l'uranium pouvait également être tentée. Les travaux pétrographiques et métallogéniques n'ont pas permis jusqu'ici d'identifier une venue de silice indubitablement associée à la minéralisation uranifère; la caractérisation des fluides associés aux différentes étapes de la diagenèse permet cependant une première approche.

NIVEAU D'ENFOUISSEMENT ATTEINT PAR LA SERIE

Le problème du niveau d'enfouissement atteint par la série a été posé en 1975 par l'étude des minéraux phylliteux [4] et par celle des matières organiques [5]; une profondeur d'enfouissement de l'ordre de 4000 à 5000 m avait été avancée.

L'analyse des matières organiques, comme celle des phyllites, ne renseigne que sur l'état de diagenèse maximal atteint par la série; les étapes antérieures

sont effacées et l'histoire postérieure ne laisse plus de trace. Seule l'étude des inclusions fluides couplée avec une bonne connaissance pétrographique de la série offre la possibilité de retrouver différentes étapes de l'évolution diagénétique du sédiment.

Connaître le niveau d'enfouissement n'est pas suffisant et ce n'est d'ailleurs pas forcément la notion la plus aisément accessible. Il faut atteindre la température, le gradient thermique et la pression des fluides. La détermination du gradient exige d'étendre l'étude à une épaisseur de terrain suffisante, d'où la nécessité de choisir des sondages profonds. Les études sur les matières organiques et celles sur les inclusions fluides peuvent difficilement être entreprises sur le même matériel, les niveaux riches en matières organiques étant plutôt argileux, donc impropres à l'étude des inclusions fluides, tandis que les niveaux gréseux bien silicifiés sont souvent dépourvus de matières organiques. Deux sondages furent donc choisis (fig.1):

- le sondage BA 2, situé à une vingtaine de kilomètres au sud-est d'Oklo, qui recoupe toute la formation FA sur une puissance de près de 1000 m, pour l'étude sur les inclusions fluides;
- le sondage OK 21, situé dans le secteur d'Oklo, qui recoupe les formations pélitiques du FB sur une épaisseur de 470 m et le sommet du FA sur 85 m, pour l'étude des matières organiques; cette dernière fut abordée selon deux voies différentes: mesure des pouvoirs réflecteurs (Cerchar) et approche chimique par pyrolyse et analyse élémentaire du kérogène (IFP).

TEMPERATURES DURANT LES REACTIONS ET EFFETS DE CELLES-CI

Les seules indications que l'on possédait en 1975 d'un effet thermique des réactions nucléaires consistaient en la présence:

- d'uraninite[1] dans les zones de réaction au lieu de pechblende dans les autres parties du gisement;
- d'illite de type 2 M_1 dans les zones de réaction ou plus exactement à leur proximité immédiate, au lieu du type 1 Md dans les terrains encaissants du Francevillien.

Ces indications laissaient une assez grande incertitude sur les températures atteintes dans le cœur des réacteurs. Au cours de la table ronde [1] Geffroy s'était montré très prudent, en l'absence d'autre «thermomètre géologique», sur la signification de l'uraninite en tant qu'indicateur de température élevée; le remplacement de mica de type 1 Md par des micas de type 2 M n'indique pas

[1] A la suite de Geffroy [6] nous réservons le terme *uraninite* au faciès à contours cristallins du minéral cubique à UO_2 dominant, le terme de *pechblende* désignant le faciès collophorme du minéral.

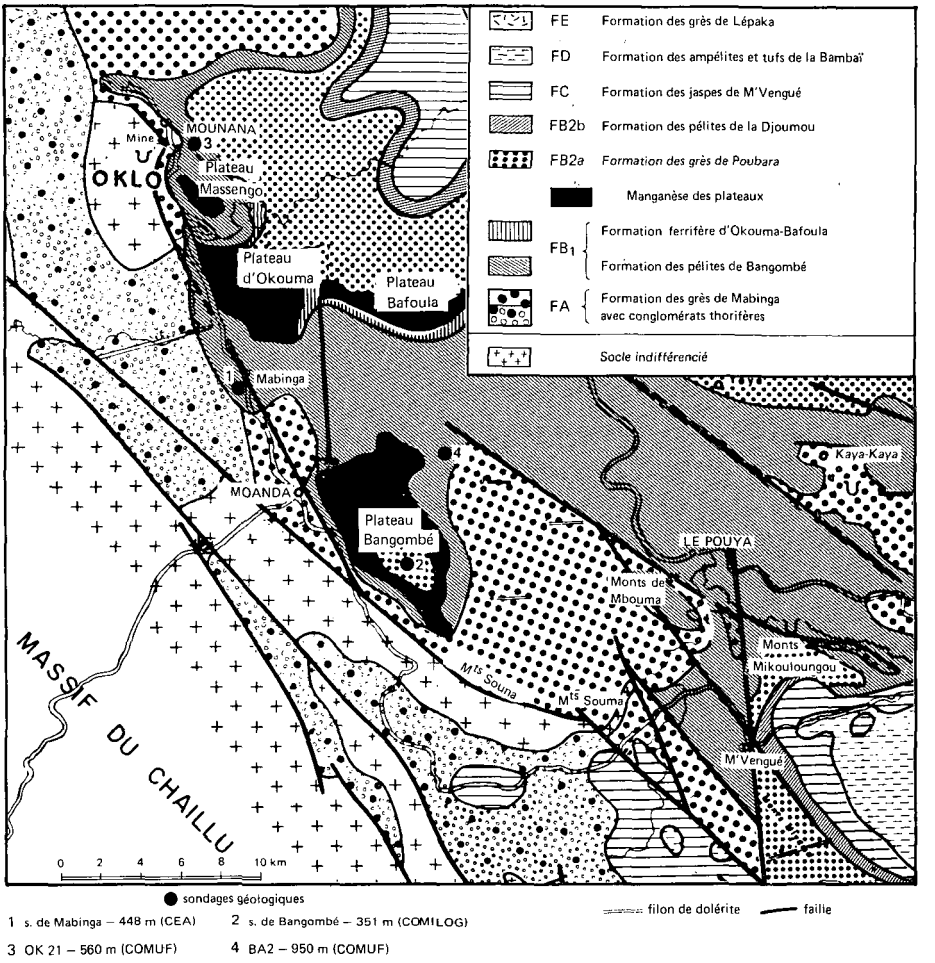


FIG.1. Situation des sondages étudiés.

forcément une température très élevée car la transformation est réalisée aux alentours de 250°C. Aussi les géologues, qui se seraient attendus à trouver une véritable auréole de métamorphisme de contact, estimaient que des températures de l'ordre de 300 à 350°C n'avaient pas été atteintes dans le cœur des réacteurs.

D'un autre côté, la nature de la gangue des réacteurs et des argiles qui en forment les épontes paraissait très énigmatique; Dran et al. [7] avaient montré que l'on ne retrouvait pas, dans les argiles du cœur, les dégâts d'irradiation auxquels

on pouvait s'attendre, compte tenu des fluences mesurées par d'autres méthodes. Il était donc admis que les argiles du cœur avaient recristallisé après l'arrêt des réactions; ceci était d'une certaine manière confirmé par les études pétrographiques [8], qui avaient montré que les argiles du cœur avaient cristallisé postérieurement à l'uraninite. Mais comment expliquer l'absence de quartz et la composition chimique particulière des zones de réaction, qui s'avérait en définitive très différente de celle d'un sédiment pélitique normal? Certes le flux neutronique pouvait d'une certaine manière rendre compte de la destruction des minéraux initiaux du sédiment, notamment du quartz; mais, outre que l'explication n'était valable que pour le cœur des réacteurs et non pour les épontes, on ne voyait pas pourquoi des minéraux initiaux n'avaient pas recristallisé, peut-être avec une texture différente et selon une autre disposition, après l'arrêt des réactions.

Tenter de résoudre le problème des températures avec la technique des inclusions fluides pouvait apparaître téméraire du fait de l'absence de quartz (support indispensable des inclusions!) dans le minerai des réacteurs; l'opération fut néanmoins tentée en recherchant des grès et des filonnets de quartz le plus près possible des cœurs et, la chance aidant, les «fluides chauds» des réacteurs furent effectivement découverts, ainsi que nous le montrent Openshaw et al. [9].

Une autre démarche devait être tentée par l'étude des matières organiques [10, 11] dans l'environnement des réacteurs. L'absence presque totale de matières organiques dans le cœur des réacteurs, aussi constante et aussi significative que celle du quartz, posait elle aussi un problème. Par contre, dans l'environnement immédiat des réacteurs les matières organiques sont par endroits très abondantes et se présentent parfois en remplissage de fractures évoquant une migration. On pouvait donc penser que les matières organiques avaient été volatilisées par l'échauffement du réacteur, ce qui se traduirait par des structures analogues à celle du coke dans les matières organiques de l'environnement immédiat.

Il fallait enfin reprendre d'une façon plus détaillée l'inventaire minéralogique et pétrographique des réacteurs et de leurs abords. Naudet [12], se basant sur une étude systématique de Geffroy, a montré que la présence d'uraninite était effectivement liée d'une manière très stricte au minerai entré en réaction et non pas à la teneur en uranium. La signification de l'uraninite en tant qu'indicateur de température était ainsi renforcée. Une meilleure connaissance de la répartition des argiles et en particulier des polymorphes des micas a permis de distinguer clairement les destructurations dues aux dégâts d'irradiation des recristallisations résultant d'effets thermiques ou hydrothermaux.

C'est donc avec des idées entièrement nouvelles qu'il faut reconsidérer les résultats pétrographiques et géochimiques antérieurs. Fort de l'existence du «fluide chaud» et des importantes remobilisations observées on peut apprécier l'importance des transformations hydrothermales qui ont non seulement affecté les épontes mais qui ont, en quelque sorte, modelé le «minerai de pile» lui-même [13].

LES PERTURBATIONS POSTERIEURES AUX REACTIONS

On sait que des perturbations postérieures aux réactions ont eu lieu; la meilleure illustration en est donnée par la migration du plomb [14–17]. Quatre types de phénomènes peuvent être invoqués:

- une tectonique tardive,
- une activité volcanique ou subvolcanique,
- des transformations diagénétiques tardives,
- les altérations superficielles récentes.

L'étude de ces différents points n'a pas été prioritaire dans les programmes de recherche entrepris depuis 1975, les données les concernant restent donc encore très fragmentaires.

Tectonique tardive

On sait que l'épisode tectonique majeur est antérieur à la mise en place des surconcentrations et au déclenchement des réactions nucléaires et que depuis cette époque les choses sont restées à peu près en place. Toutefois, Gauthier-Lafaye [3] a montré l'existence d'une tectonique de tassement liée au fonctionnement des réactions nucléaires elles-mêmes; par ailleurs il est difficilement concevable que, même dans un craton stable, la région n'ait subi le contrecoup d'aucun événement tectonique depuis près de 2 milliards d'années; enfin, la remontée du bassin jusqu'au niveau d'érosion actuel n'a pu se faire sans petits réajustements. Rappelons qu'une étude par autoradiographie effectuée en 1973 au laboratoire de Fontenay-aux-Roses (Bordereau n° 4366)[2] faisait apparaître un déplacement de quelques centimètres de la minéralisation de part et d'autre d'une petite fracture dans l'échantillon n° 476 du sondage SC 11. Les fronts de taille ont révélé des déformations beaucoup plus importantes du minerai riche des zones de réactions: flexuration, plissement (front 111), fracturation, souvent sur des failles inverses avec chevauchement (front du 11.1.76). Il serait intéressant, dans la mesure où l'échantillonnage effectué le permet, de déterminer par l'analyse des courbes de fluence si ces déformations sont antérieures ou postérieures aux réactions nucléaires.

Activité volcanique ou subvolcanique

Tant que le problème de l'âge de la réaction n'aura pas été définitivement résolu, il se posera celui de l'antériorité des réactions nucléaires et du volcanisme de N'Goutou. Ce dernier pourrait traduire le passage d'un «panache chaud» du

---

[2] *Cette étude avait été complétée par une étude de la répartition de l'uranium par la méthode des traces de fission provoquée.*

manteau [18] avec les conséquences thermiques que cela pourrait avoir pour l'ensemble de la série. Plus proches d'Oklo sont les filons de dolérite datés d'environ 1000 MA. Rappelons qu'un de ces filons traverse le gisement à 150 m au sud des réacteurs. A part un effet de «cuisson» très limité de terrains encaissants, l'action de ces filons sur les sédiments paraît faible. Il faut toutefois reconnaître que l'on n'a pas étudié les effets possibles d'un hydrothermalisme résultant soit d'arrivée d'eaux juvéniles accompagnant la mise en place des filons, soit de la mise en mouvement des eaux connées réchauffées par la lave. Certaines migrations d'éléments pourraient être liées à cet événement; notons que dans le gisement un enrichissement en uranium est observé à proximité de la dolérite.

Diagenèse tardive

L'interprétation des transformations diagénétiques tardives est liée à l'interprétation de la chronologie tant relative qu'absolue des différents événements qui ont affecté la série. La mise en place du ciment dolomitique dans les grès du FA est le dernier événement diagénétique connu. On sait que cette diagenèse carbonatée est postérieure aux silicifications et à la cristallisation des phyllites. Le fluide qui l'accompagne a été étudié par Openshaw et al. [9]. On ignore l'importance des remobilisations consécutives à cette diagenèse tardive.

Altérations superficielles récentes

La position des réacteurs relativement proche de la surface, 40 à 80 m avant ouverture de la carrière, conduit à envisager la possibilité d'altérations superficielles, sous un climat où l'on sait que ces altérations peuvent être très profondes. Il faut souligner que la rivière Lékidi, qui détermine le niveau de base local, coule à la cote 370 m; au-dessus de cette altitude les altérations risquent donc d'être importantes. Or c'est à peu près la cote de l'affleurement des zones 1 et 2 lors de la découverte du phénomène (374 m pour la zone 1 et 368 m pour la zone 2).

Il faut également souligner que sous le climat du Gabon les altérations sont très rapides et que le minerai de pile (ou tout au moins sa gangue) et les argiles qui lui sont associées paraissent particulièrement fragiles vis-à-vis des altérations. On a en effet constaté que les argiles étaient compactes et avaient une bonne tenue sur les fronts de taille fraîchement ouverts alors que sur les affleurements qui étaient restés exposés à l'air pendant plusieurs mois les argiles devenaient très plastiques. Parallèlement on a observé des transformations minéralogiques notables: augmentation de la proportion de kaolinite, apparition de minéraux à U^{6+} (uranopillites, uranocircite, etc.), altération de la galène en anglésite.

Les âges apparents très jeunes trouvés par la méthode K-Ar sur les échantillons partiellement kaolinisés des épontes des zones de réaction nous avaient conduit

en 1975 [19] à conclure que la kaolinite résultait d'une altération récente. Cette affirmation devrait être nuancée: perte d'argon radiogénique, kaolinisation et altération climatique ne sont pas nécessairement liés d'une manière aussi étroite. Il y a perte d'argon radiogénique dans tous les phyllosilicates directement exposés aux fortes radioactivités des minerais riches. Si la proportion de kaolinite augmente effectivement avec l'intensité de l'altération on la retrouve néanmoins en placage sur les plans de fracture, dans des faciès très peu altérés, jusqu'à une profondeur de 300 m sous la surface topographique. A cette profondeur on trouve en outre, et même en abondance, de la coffinite, également considérée par Geffroy [6] comme un minéral de reprécipitation récente. Malheureusement les datations géochronologiques qu'il avait suggéré en 1975 de faire sur ce minéral n'ont pas été entreprises.

Il semble donc qu'il faille envisager pour la formation de la kaolinite et de la coffinite une interprétation moins simple que celle qui avait été formulée en 1975. Sans vouloir minimiser le rôle de l'altération superficielle récente il faut sans doute prendre en compte des circulations profondes dans les zones fracturées. Ces circulations pourraient avoir été provoquées par un épisode tectonique. En fait il y a là un sujet d'étude qui n'a pratiquement pas été abordé et dont l'importance est pourtant primordiale pour interpréter la migration de Pb, les «pollutions» du gisement par l'uranium appauvri en ^{235}U et la dissémination des produits de fission.

CONCLUSION

Pour conclure deux points peuvent être soulignés:

1) Ce n'est qu'au mois de février 1977 que l'exploitation des zones de réaction s'est achevée, et ce n'est qu'après la fin de cette exploitation, lorsque l'on a pu disposer de tous les documents de terrain, que le schéma tectonique dans lequel s'inscrit le processus de surconcentration a été réellement compris. Or ceci est le cadre dans lequel doivent s'inscrire les hypothèses de travail qui guident toutes les études géologiques sur Oklo.

2) Les études ont été très focalisées sur les réacteurs eux-mêmes et leur environnement immédiat; on a ainsi appris beaucoup de chose sur les conditions dans lesquelles se sont déclenchées les réactions et sur les effets de celles-ci sur les terrains encaissants et le minerai lui-même. Les idées que l'on se faisait initialement sur Oklo s'en sont trouvées profondément modifiées, mais de grands pans restent dans l'ombre et de nombreux problèmes, tels ceux liés aux migrations tardives d'éléments (p. ex. le plomb), ne pourront être résolus qu'en élargissant le champ géographique d'investigation.

REFERENCES

[1] Compte rendu de la Table ronde sur les aspects Sciences de la Terre, Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 605.

[2] GAUTHIER-LAFAYE, F., et al., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/2.

[3] GAUTHIER-LAFAYE, F., ibid., IAEA-TC-119/3.

[4] WEBER, F., GEFFROY, J., LE MERCIER, Marcelle, «Synthèse des études minéralogiques et pétrographiques des minerais d'Oklo, de leurs gangues et des roches encaissantes», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienna (1975) 173.

[5] CASSOU, A.-M., CONNAN, J., CORREIA, M., ORGEVAL, J.-J., «Etudes chimiques et observations microscopiques de la matière organique de quelques minéralisations uranifères», Ibid., p. 195.

[6] GEFFROY, J., «Etude microscopique des minerais uranifères d'Oklo», Ibid., p.133.

[7] DRAN, J.C., MAURETTE, M., PETIT, J.C., DROZD, R., HOHENBERG, C., DURAUD, J.P., LE GRESSUS, C., MASSIGNON, D., «A multidisciplinary analysis of the Oklo uranium ores», Ibid., p.223.

[8] LE MERCIER, Marcelle, «Etude pétrographique des roches prélevées dans les zones de réaction», Ibid., p.153.

[9] OPENSHAW, R., et al., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/9.

[10] VANDENBROUCKE, Mireille, et al., Ibid., IAEA-TC-119/10.

[11] ALPERN, B., Ibid., IAEA-TC-119/11.

[12] NAUDET, R., Résumé des observations sur la répartition entre l'uraninite et la pechblende, Note interne CEA (1976).

[13] GAUTHIER-LAFAYE, F., WEBER, F., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/8.

[14] HAGEMANN, R., LUCAS, M., NIEF, G., ROTH, E., Mesures isotopiques du rubidium et du strontium et essai de mesures de l'âge de la minéralisation de l'uranium du réacteur naturel fossile d'Oklo, Earth Planet. Sci. Lett. 23 2 (1974) 170.

[15] LANCELOT, J.R., VITRAC, A., ALLEGRE, C.J., The Oklo natural reactor: age and evolution studies by U-Pb and Rb-Sr systematics, Ibid. 25 2 (1975) 189.

[16] RUFFENACH, J.C., MENES, J., DEVILLERS, C., LUCAS, M., HAGEMANN, R., Etudes chimiques et isotopiques de l'uranium, du plomb, et de plusieurs produits de fission dans un échantillon de minerai du réacteur naturel d'Oklo, Ibid., **30** 1 (1976) 94.

[17] DEVILLERS, C., RUFFENACH, J.-C., MENES, J., LUCAS, Monique, HAGEMANN, R., NIEF, G., «Age de la minéralisation de l'uranium et date de la réaction nucléaire», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 293.

[18] KARCHE, J.P., VACHETTE, M., Migration des complexes subvolcaniques à structure annulaire du Niger, C.R. Hebd. Acad. Sci., Sér. D 282 (1976) 2033.

[19] WEBER, F., BONHOMME, M., Données radiochronologiques nouvelles sur le Francevillien et son environnement, Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 17.

ETUDES MINERALOGIQUES ET PETROGRAPHIQUES EFFECTUEES A STRASBOURG SUR LES REACTEURS NATURELS D'OKLO

F. GAUTHIER-LAFAYE, F. WEBER
Université Louis Pasteur,
Institut de géologie,
Centre de sédimentologie et de géochimie de la surface (CNRS),
Strasbourg, France

Résumé–Abstract

ETUDES MINERALOGIQUES ET PETROGRAPHIQUES EFFECTUEES A STRASBOURG SUR LES REACTEURS NATURELS D'OKLO.

Les études pétrographiques et minéralogiques ont permis de mettre en évidence autour des zones de réaction des auréoles caractérisées par la nature des minéraux phylliteux qu'elles renferment. Ce sont, de l'extérieur vers le cœur: illite 1Md et chlorite ferrifère (sédiment normal), illite $2M_1$, chlorite magnésienne et kaolinite, illite 1M et chlorite vermiculite. On y observe des figures de dissolution des quartz détritiques qui disparaissent dans l'auréole à illite 2M, ou dans l'auréole à chlorite magnésienne, selon que l'encaissant est plus ou moins gréseux. Cette zonéographie serait due à l'effet conjugué du bombardement neutronique et d'une altération hydrothermale due au déclenchement, par les réactions nucléaires, d'un siphon thermique.

MINERALOGICAL AND PETROGRAPHIC INVESTIGATIONS AT STRASBOURG ON THE OKLO NATURAL REACTORS.

Petrographic and mineralogical investigations have revealed the presence around the reaction zones of aureoles characterized by the nature of the phyllitic minerals which they enclose. Running from the outside towards the core, these are: illite 1Md and ferriferous chlorite (normal sediment), illite $2M_1$, magnesium chlorite and kaolinite, illite 1M and vermiculite chlorite. Detritic quartz dissolution figures are observed which disappear in the illite 2M aureole or in the magnesium chlorite aureole, depending on the degree of sandiness of the country rock. This zonal structure could be attributable to the combined effect of neutron bombardment and hydrothermal alteration due to the action of a thermal syphon triggered off by the nuclear reactions.

La matrice argileuse qui constitue à la fois la gangue du minerai riche des zones de réaction et ses épontes a été l'objet de plusieurs études antérieures [1, 2]; mais s'il avait été établi que ces argiles ne pouvaient être assimilées à un dépôt sédimentaire, leur origine restait énigmatique. De nombreux échantillons ont été

recueillis au cours de l'exploitation des zones de réaction; l'étude de ces échantillons et des compléments d'étude sur des sondages anciens permettent d'avancer une hypothèse de formation de ces argiles.

1. DESCRIPTION PETROGRAPHIQUE ET MINERALOGIQUE

Deux cas sont à considérer selon que le minerai entré en réaction est situé dans un encaissant gréseux (zones 3–4 et 5–6) ou dans un encaissant pélitique. Dans le premier cas les argiles sont en contact direct avec les grès, dans le second cas on observe un faciès de transition argileux à structure sédimentaire conservée.

A titre d'exemple nous analyserons succinctement le front 122 (zone 3–4) pour illustrer le cas de l'encaissant gréseux et le front du 11.1.76, complété par le sondage SC 6, voisin, pour illustrer le cas de l'encaissant pélitique. Ces deux fronts ont déjà fait l'objet d'une description structurale [3].

1.1. Zones de réaction à encaissant gréseux (zones 3–4 et 5–6)

1.1.1. Description pétrographique du front 122 (fig. 1 à 3)

Le sommet des *grès fins du mur* (C1a-b) se trouve à environ 50 cm sous la zone de réaction. Dans ces grès fins (échantillons 743 à 745) on observe au microscope une alternance de lits argileux micacés et de lits silteux plus riches en quartz détritiques. Les lits argileux ont l'aspect habituel des sédiments pélitiques du sommet du FA qui ont été décrits précédemment [3]. On peut cependant noter une légère corrosion des quartz qui s'entourent d'un fin liseré phylliteux plus clair que la matrice. Dans les lits silteux les quartz sont fortement nourris, ce qui a conduit par endroit à une texture engrenée, mais parallèlement on observe une corrosion des auréoles de nourrissage, partiellement remplacées par de l'argile. Ces figures de désilicification s'accentuent beaucoup au sommet de ce niveau ainsi que dans les grès quartzite à grain moyen des séquences (C1c-d-e) qui surmontent les grès fins. Au contact des grès fins de C1a-b et des grès quartzite de C1c-d-e, on observe une intense fracturation associée à une minéralisation uranifère.

Au sommet des bancs de grès à grain moyen les auréoles de quartz ont pratiquement entièrement disparu et des golfes de corrosion apparaissent dans les grains détritiques eux-mêmes. Ces derniers, auréolés d'une frange sériciteuse de 10 à 20 μm d'épaisseur, sont dispersés dans une abondante matrice argileuse constituée principalement de chlorite. Au contact des argiles qui bordent la zone de réaction on peut voir quelques grains de quartz en voie d'épigénie complète par la séricite (annexe 1, photo 4). Les argiles sont constituées d'un fond chloriteux assez homogène dans lequel on peut distinguer des reliquats de micas détritiques entièrement chloritisés. C'est la chlorite de type 1 décrite par Le Mercier [1].

Dans le minerai riche lui-même on trouve les différents aspects décrits antérieurement dans les zones 1 et 2 [1, 4]. Il faut noter cependant l'abondance de la séricite, parfois cristallisée en grand sphérolite. L'hématite, assez abondante, se présente sous les aspects décrits par Le Mercier ([1], photos 11, 12 et 13). Dans la matrice argileuse de la passe riche il n'est généralement plus possible de reconnaître de structure sédimentaire résiduelle.

Au toit de la zone de réaction, la transition paraît plus rapide: On passe brutalement d'un grès dans lequel les figures de désilicification sont encore discrètes (éch. 801) à une argile chloriteuse (éch. 800) à structure peu nette, mais qui paraît plutôt dériver d'un ancien niveau pélitique (ou finement gréseux) car les reliquats de micas détritiques chloritisés y sont très abondants.

1.1.2. Nature des minéraux phylliteux

Dans les grès fins du mur (éch. 743 à 745) et dans les grès quartzite à grains moyens de C1c-d-e (éch. 746, 747, 764, 765) on a une association chlorite-illite, cette dernière étant généralement dominante; la kaolinite est accessoire. L'illite est de type $2M_1$. Les rapports d'intensité des raies de la chlorite 001/002, ~ 0,2 à 0,3, indiquent un minéral relativement ferrifère dans les grès fins et à la base des grès quartzite; ils s'élèvent au sommet des grès quartzite, ce qui traduit une tendance de la chlorite à devenir plus magnésienne lorsque l'on se rapproche de la zone de réaction. Au-dessus des grès quartzite, dans les argiles qui bordent au mur la zone de réaction (éch. 748), l'illite disparaît presque entièrement au profit d'une association chlorite magnésienne-kaolinite.

Une disposition symétrique peut être observée au toit entre l'échantillon 801, qui est un grès à illite $2M_1$, et les échantillons 799 et 800, argiles à chlorite magnésienne et kaolinite bordant la zone de réaction.

Dans le minerai riche lui-même, l'illite est assez généralement la phyllite dominante. Elle est associée à une chlorite en voie de vermiculitisation dont l'espacement basal s'écrase vers 12 à 13 Å après chauffage à 490°C. Les valeurs anormalement élevées du rapport 001/002, qui atteint 3 et 4 dans certains échantillons, sont sans doute en relation avec cette altération qui résulte peut-être d'une désorganisation du réseau sous l'effet du rayonnement. Le type d'illite n'a pu être déterminé que sur l'échantillon 753, il s'agit d'illite 1M. La kaolinite est toujours très accessoire dans les échantillons du cœur.

1.2. Zones de réaction à encaissant pélitique (zones 1 et 2)

1.2.1. Description pétrographique du front du 11.1.76 (fig. 4 et 5)

A environ 1 m au mur de la zone de réaction on observe un faciès (éch. 983 et 986) qui macroscopiquement offre l'aspect d'un grès fin pélitique normal des séquences a et b de la couche C1 (grès fins du mur). Au microscope ces

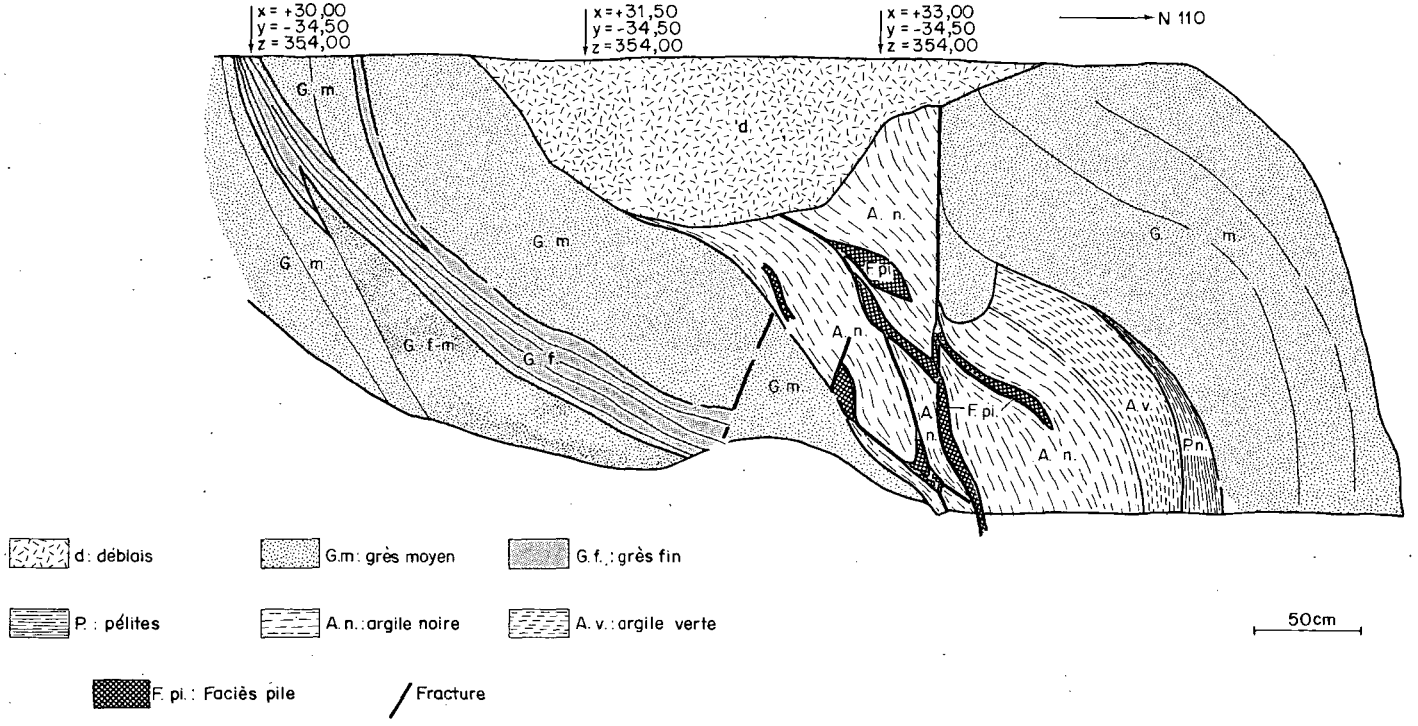


FIG.1. Front 122, zone 3–4, levé géologique.

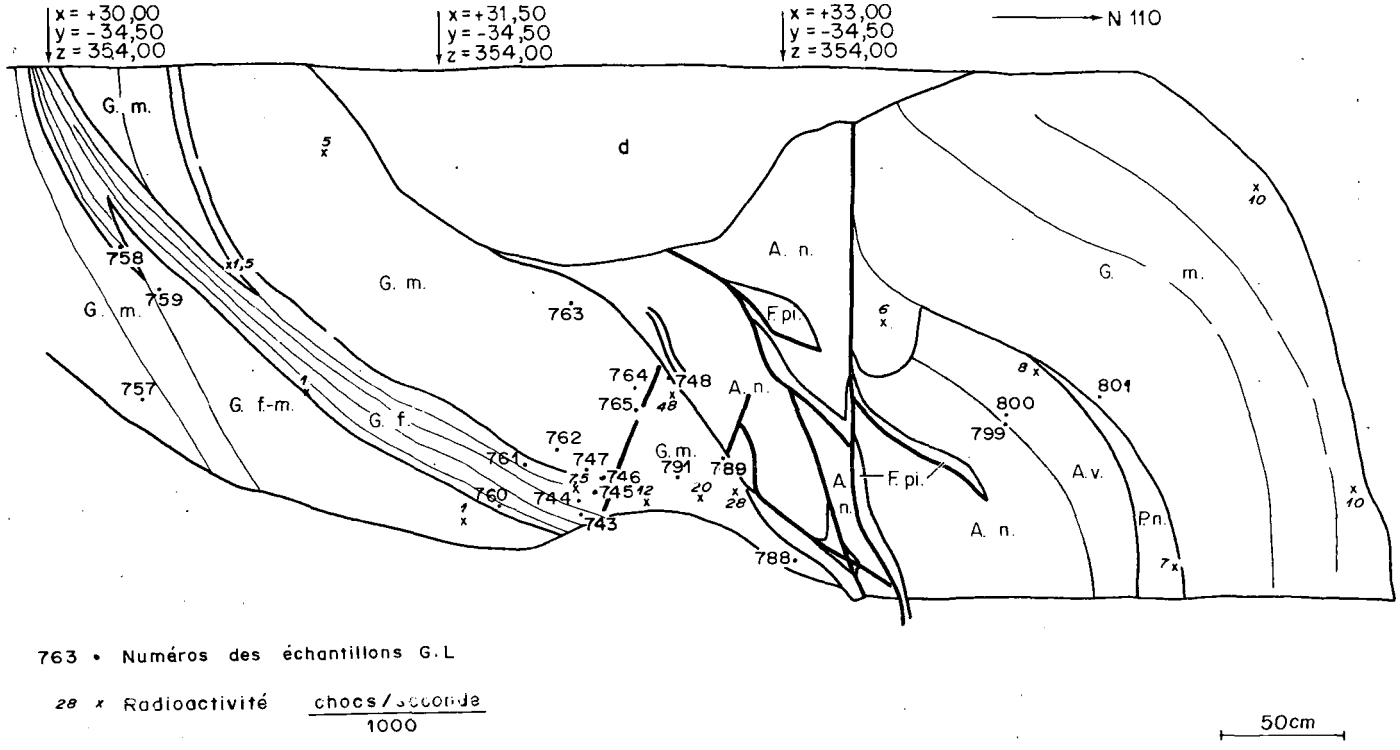


FIG.2. Front 122, situation des échantillons GL et plan compteur.

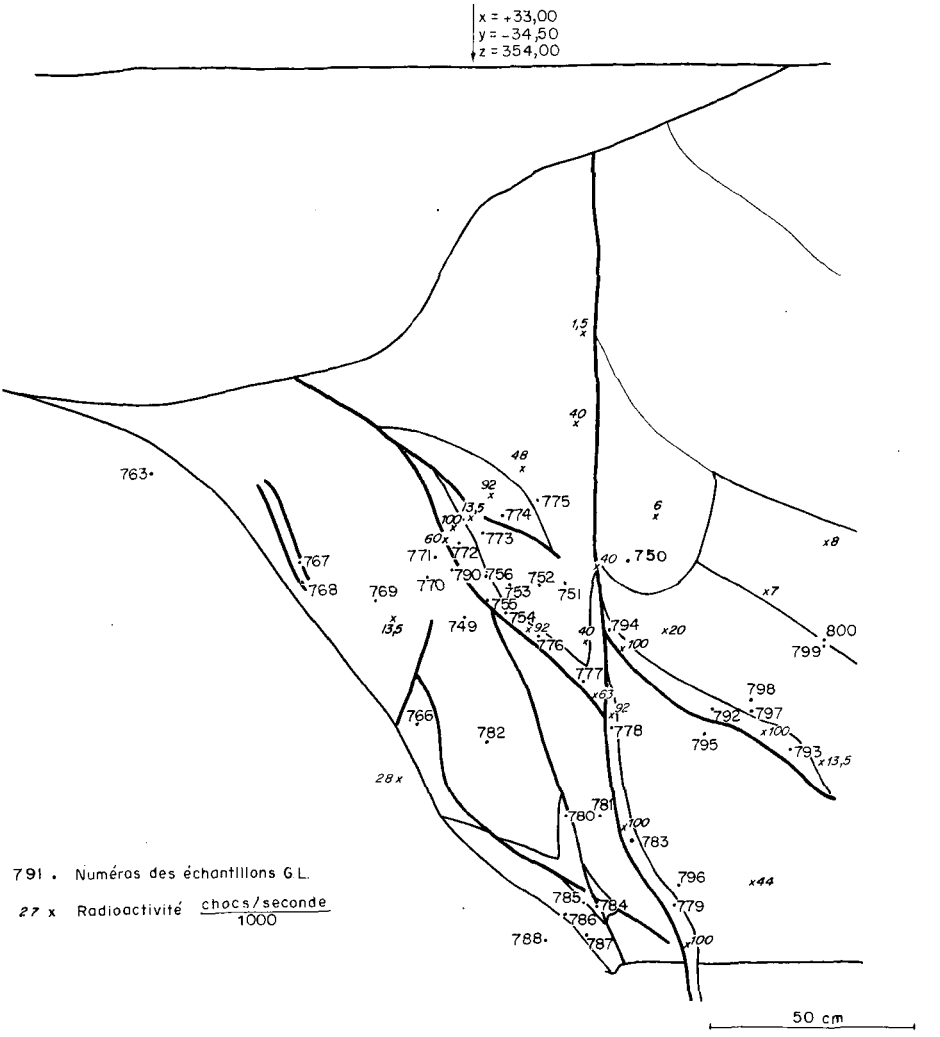


FIG.3. Front 122, agrandissement de la zone de pile.

échantillons présentent encore, à l'observation en lumière naturelle, l'aspect habituel des grès fins pélitiques. Dans une matrice phylliteuse fine se détachent de grandes lamelles de biotite plus ou moins dégradées et des granules claires d'apparence détritique qui se disposent en microséquences granoclasées. Les biotites détritiques disposées en désordre à la base des microséquences s'ordonnent parallèlement au litage au sommet de celles-ci. L'observation en lumière polarisée montre que la matrice est essentiellement sériciteuse. Les granules claires d'apparence détritique sont également constituées de séricite, comme si les quartz détritiques avaient été entièrement épigénisés.

Le sondage SC 6, assez proche du front du 11.1.76, nous montre la transition entre ce faciès et les grès fins du mur qui présentent en fait, sur une puissance de l'ordre de 2 m, une alternance de grès plus ou moins fins et de pélites. A 70 cm au mur du minerai riche, on observe, dans un grès fin pélitique (éch. 232), l'apparition d'un très fin liseré sériciteux autour des quartz qui paraît constituer l'amorce de leur remplacement par la séricite. Parallèlement on observe une chloritisation des micas détritiques.

En se rapprochant du minerai riche on trouve une roche argileuse, verte, compacte et litée (éch. 978 à 982) qui paraît dériver du faciès précédent par une intense chloritisation. La matrice évolue vers un fond chloriteux cryptocristallin presque isotrope tandis que les micas recristallisent en grands cristaux de chlorite à teinte de polarisation bleu-lavande du premier ordre. Les nids sériciteux, fantômes des anciens quartz détritiques, résistent mieux à la chloritisation générale. Ce sont les petits nodules sériciteux décrits par Le Mercier ([1], p. 154) dans le faciès chloriteux. A l'observation en lumière naturelle leur couleur plus claire maintient l'apparence sédimentaire de la roche (annexe 1, photo 3). Les mêmes faciès ont été repérés dans le sondage SC 6 (éch. 1230 et 1231).

A moins de 40 cm du minerai riche, on passe sans transition à un faciès complètement différent: une argile très compacte de couleur rougeâtre qui, au microscope, montre un fond sériciteux cryptocristallin très homogène avec hématite en grains et leucoxène (annexe 1, photo 5). Ce dernier minéral apparaît au centre de plages d'aspect nodulaire dépourvues d'hématite analogues à celles décrites par Le Mercier ([1], éch. 448, fig.13).

Au contact du minerai riche et dans le minerai riche lui-même le fond phylliteux est plus largement cristallisé; de larges cristaux de séricite réapparaissent, souvent perpendiculaires aux cristaux d'uraninite [1] (annexe 1, photo 2); aucune structure sédimentaire résiduelle n'est visible. Il en est de même pour la passe «stérile» qui sépare les «deux» – le dédoublement de la passe riche résulte en fait d'un chevauchement lié à une tectonique tardive de tassement [3] – passes riches du front du 11.1.76 (éch. 956). Dans le minerai riche (éch. 972, 975, 954 et 985) on observe fréquemment des lacis globulaires ou allongés de fibres d'hématite, analogues à ceux décrits par Le Mercier ([1], fig. 11 et 12). Ces amas d'hématite sont toujours au cœur de nodules dépourvus d'uraninite qui comportent une auréole claire dépourvue à la fois d'hématite et d'uraninite, ces deux minéraux n'étant jamais en contact direct (annexe 1, photo 1).

La passe riche est surmontée par une bande chloriteuse de 50 cm d'épaisseur à laquelle font suite les pélites du toit de C1, plissées. Dans la partie est du front subsiste, dans ces argiles chloriteuses, un témoin de grès à ciment chloriteux dans lequel on observe des figures de dissolution des auréoles de nourrissage des quartz analogues à celles décrites sur le front 122.

Dans le sondage SC 6 par contre, on observe, immédiatement au toit du minerai riche, une brèche dont les éléments sont des fragments de pélite chloritisés, mais parfaitement identifiables (éch. 1227 et 1228). De grandes plages d'uraninite

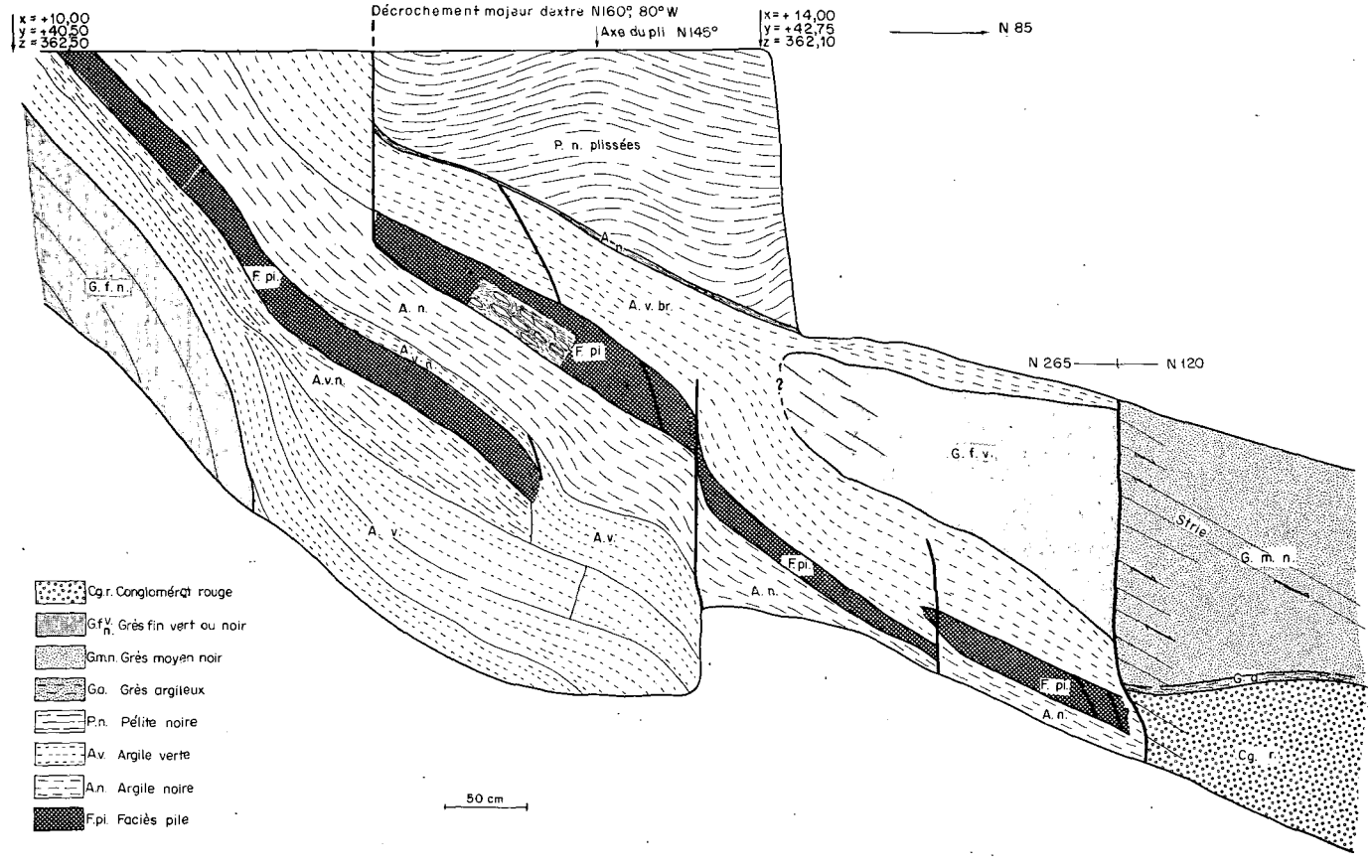


FIG. 4. Front du 11.1.76, zone 2, levé géologique.

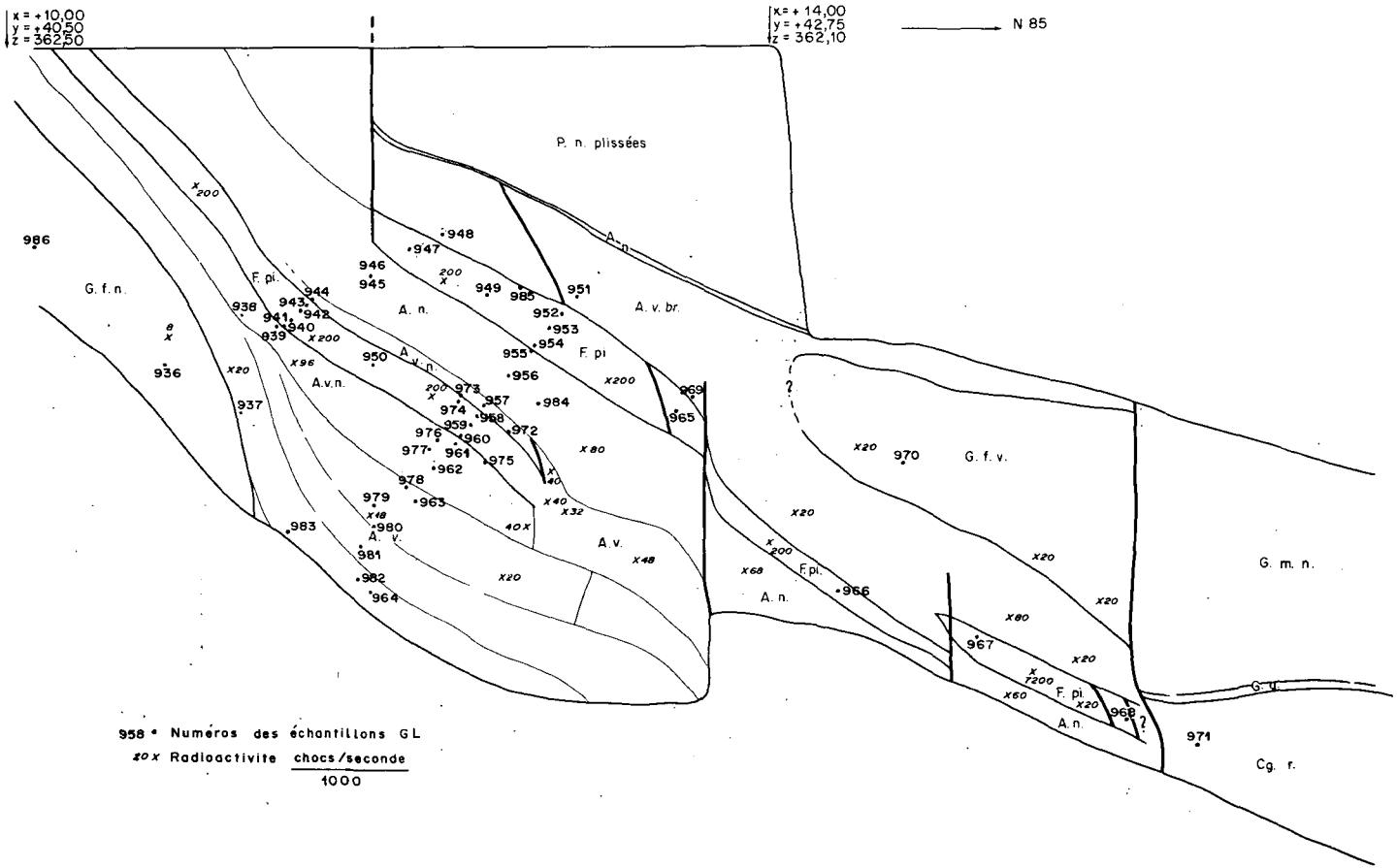


FIG.5. Front du 11.1.76, situation des échantillons GL et plan compteur.

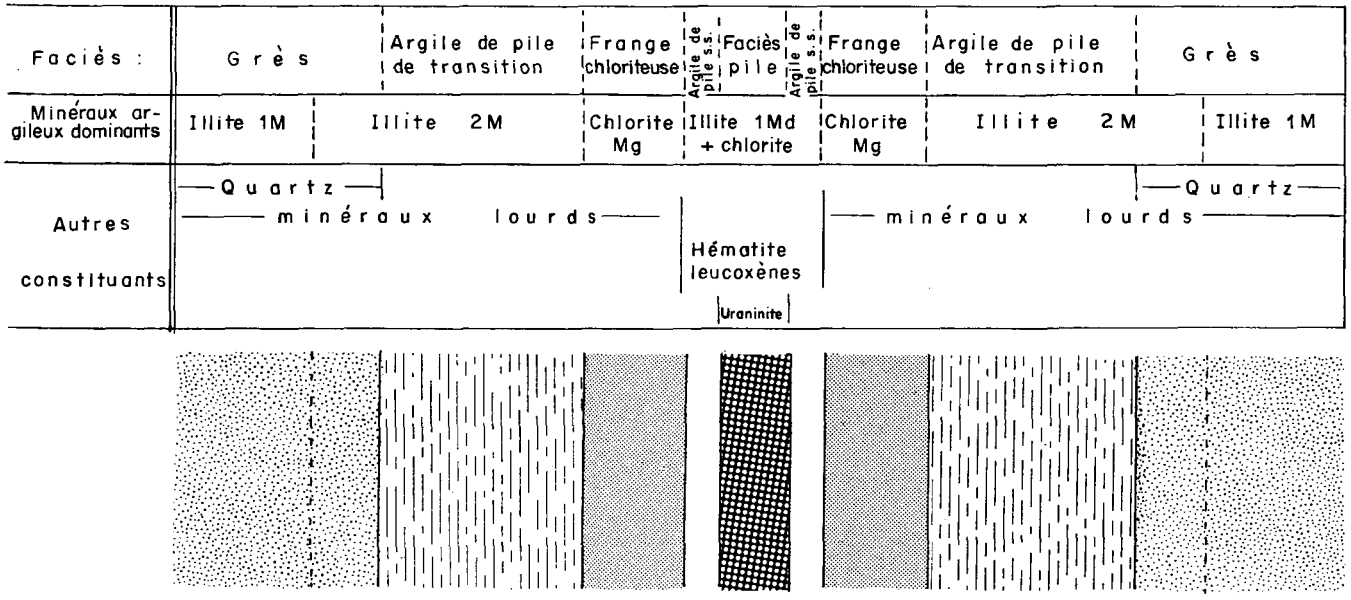


FIG. 6. Répartition schématique des minéraux au voisinage des zones de réaction.

ont cristallisé, postérieurement à la formation de la brèche entre les éléments de celle-ci. Au-dessus apparaissent les pélites du toit sous leur faciès normal (éch. 1224, 1225 et 1226), puis les grès du FB (éch. 1223).

1.2.2. Nature des minéraux phylliteux

Dans les sédiments normaux encaissant la zone de réaction (sondage SC 6) les phyllites sont une illite dans laquelle le type 1Md est largement dominant et une chlorite ferrifère (rapport d'intensité (001)/(002) = 0,1 à 0,3). Dans les niveaux franchement pélitiques l'illite est toujours le minéral phylliteux principal, sinon unique. La chlorite est abondante dans les niveaux gréseux, notamment dans le conglomérat du mur et dans les grès FB.

Les pélites et grès fins séricitisés prélevés à la base du front du 11.1.76 ainsi que l'échantillon 1232 du SC 6 sont constitués d'un assemblage d'illite de type $2M_1$ et de chlorite apparemment plus magnésienne que celle des sédiments encaissants (I(001)/I(002) = 0,3 à 0,5). La kaolinite est accessoire.

Dans les faciès chloritisés, tant au mur de la zone de réaction (éch. 936, 978 à 982 sur le front du 11.1.76, 1230 et 1231 dans le sondage SC 6) qu'à son toit (éch. 951 sur le front du 11.1.76, 1227 et 1228 dans le sondage SC 6) l'illite est en quantité généralement trop faible pour que la variété polymorphe puisse être identifiée. Toutefois dans l'échantillon 982 il s'agit encore d'illite $2M_1$. Dans ces faciès la kaolinite est souvent assez abondante; sa proportion décroît dans les échantillons les plus éloignés de la zone de réaction. La kaolinisation affecte aussi bien les micas chloritisés, ainsi que l'avait déjà signalé Le Mercier [1], que la matrice chloriteuse. Des placage de kaolin blanc se déposent également dans les fractures et les diaclases. La chlorite présente les mêmes caractères que précédemment (I(001)/I(002) = 0,3 à 0,5), la raie basale (001) est stable au chauffage (14,2 à 14,3 Å). L'illite est à nouveau le minéral argileux le plus abondant dans le minerai riche ainsi que dans les argiles cryptocristallisées à hématite qui le bordent au mur. Dans ces dernières le type dominant est toujours 1 M (éch. 956, 962, 976 et 977); il n'a pas pu être déterminé dans le minerai riche lui-même. On trouve également l'illite 1 M au mur de la zone riche dans le sondage SC 6 (éch. 1229). La chlorite présente la même anomalie que celle des faciès riches du front 122, résultant peut-être d'une désorganisation du réseau sous l'effet du rayonnement: écrasement vers 13 Å de la raie basale (001) au chauffage, rapport I(001)/I(002) anormalement élevé.

2. RECAPITULATION DES FACIES OBSERVES, LEUR INTERPRETATION

2.1. La minéralogie

On peut définir, en fonction de la nature des phyllites, plusieurs auréoles autour des zones de réaction, les minéraux phylliteux dominant étant, de la périphérie vers le cœur (fig.6):

TABLEAU I. ANALYSES CHIMIQUES DE LA FRACTION INFERIEURE A 2 μm DES PRINCIPAUX FACIES DECRITS

Ech.	Provenance	Nature	SiO_2	Al_2O_3	MgO	CaO	Fe_2O_3	FeO	Mn_3O_4	TiO_2	BaO	SaO	Na_2O	K_2O	Perte à 1000°C	Somme
1224	SC 6, 4,9 m	Sédiment normal: illite 1Md et trace de quartz (env. 5%)	53,0	29,7	1,17	< 0,2	1,8		0,013	0,57	0,32	0,02	0,48	7,39	5,26	99,91
983	F.11.1.76	Illite $2M_1$ + chlorite Mg	46,5	31,4	2,01	< 0,2	1,38	1,55	0,021	0,22	0,41	< 0,01	0,23	8,50	5,94	98,36
962	F.11.1.76	Illite 1M proche minerai riche + chlorite	47,3	29,5	3,05	0,3	5,40	0,72	0,085	0,14	0,37	0,01	1,58	6,05	4,12	98,63
544	KN 220, 16,97 m	Chlorite Fe + illite 1M (40%) + quartz (15%)	48,4	22,4	2,24	0,3	2,59	10,0	0,082	0,44	0,18	< 0,01	0,81	3,03	5,16	95,64
936	F.11.1.76	Chlorite Mg + kaolinite	32,5	24,6	18,0	0,2	4,3	7,2	0,060	0,17	0,06	0,02	0,20	0,4	11,90	99,61

– l'illite 1Md et la chlorite ferrifère (sédiment normal),
– l'illite $2M_1$,
– la chlorite magnésienne,
– l'illite 1M et la chlorite-vermiculite.

La nature des phyllites dans les sédiments normaux de l'environnement de C1 a été confirmée par un très grand nombre d'analyses effectuées dans le gisement d'Oklo et son environnement au sens large [5]. Le caractère ferrifère de la chlorite est très accusé (tableau I).

L'auréole à illite $2M_1$ apparaît généralement à une distance de l'ordre de 1,50 m de la zone de réaction. Toutefois, dans le sondage SC 22 l'illite $2M_1$ apparaît à plus de 2 m au toit de la zone de réaction tandis qu'au mur elle apparaît à moins de 1 m. Lorsque l'encaissant est gréseux le quartz subsiste dans toute l'auréole à $2M_1$ tandis qu'il disparaît dans la partie interne de l'auréole lorsque l'encaissant est pélitique (zones 1 et 2). La disparition du quartz peut également être observée lorsque l'auréole à illite $2M_1$ se développe dans un niveau de grès fins pélitiques intercalé dans les grès de C1, sommet de C1g par exemple; c'est le cas du sondage SC 23 en zone 3–4. La transition entre l'auréole à illite $2M_1$ et l'auréole à chlorite magnésienne est toujours rapide. Cette dernière est bien développée lorsque l'encaissant est pélitique, elle est plus réduite lorsque l'encaissant est gréseux; en ce cas la disparition du quartz coïncide approximativement avec le passage illite $2M_1$ → chlorites magnésiennes. Toutefois des résidus gréseux à ciment chloriteux peuvent subsister dans l'auréole à chlorite magnésienne. La composition chimique des chlorites de cette auréole tranche nettement sur celle des chlorites des sédiments normaux (tableau I). Il faut noter que c'est dans l'auréole à chlorite magnésienne que la kaolinite est la plus abondante. Nous pensons qu'il s'agit d'une altération secondaire; en effet, la kaolinisation se manifeste en premier lieu par l'apparition de placages de kaolin dans la diaclase et la fracture; lorsqu'elle affecte la matrice chloriteuse et les micas chloritisés, elle s'accompagne d'une oxydation du fer sous forme de goethite ou autres hydroxydes.

Parallèlement à l'augmentation des teneurs en uranium à l'approche du coeur on observe la réapparition de l'illite et une modification de la composition des chlorites, qui deviennent plus ferrifères. Ces deux phénomènes sont très bien illustrés par les analyses chimiques publiées par Branche et al. [6]. Les variations du rapport $(FeO+MgO)/K_2O$ traduisent les variations du rapport chlorite/illite, celles du rapport FeO/MgO traduisent les modifications de la composition chimique des chlorites lorsque l'on pénètre dans le coeur (fig.7). Le type d'illite n'a que rarement pu être identifié, il semble que l'on ait le plus souvent une illite de type 1M. Elle se distingue de l'illite 1Md des sédiments normaux par une teneur plus faible en potassium, la présence de sodium, et des teneurs plus élevées en fer et magnésium (tableaux I, II et III). Cependant l'illite de type $2M_1$ persiste parfois dans le coeur (sondage SC 22) mais les raies caractéristiques de ce polymorphe (114), ($11\bar{4}$), (023) et (025) sont beaucoup moins nettes que dans les

TABLEAU II. COMPOSITION CHIMIQUE DES ILLITES ESTIMEE APRES CORRECTION DES IMPURETES

Ech.	Nature	Correction	SiO_2	Al_2O_3	MgO	CaO	Fe_2O_3	FeO	Na_2O	K_2O	H_2O
1224	Illite 1Md sédiment normal	5% quartz	51,2	31,7	1,2	–	1,9	–	0,5	7,9	5,6
983	Illite $2M_1$ éponte zone 2	10% chlorite	49,6	33,1	–	–	1,0	0,9	0,3	9,8	5,3
962	Illite 1M éponte minerai	10% chlorite	49,1	30,4	2,3	0,3	5,6	0,4	1,7	6,5	4,0

TABLEAU III. FORMULE STRUCTURALE DES ILLITES

Ech.	Nature	Tétraèdre		Octaèdre				Interfoliaire		
		Si	Al	Al	Fe(III)	Fe(II)	Mg	K	Na	Ca
1224	Illite 1Md sédiment normal	3,36	0,64	1,81	0,09	–	0,12	0,66	0,06	–
983	Illite $2M_1$ éponte zone 2	3,29	0,71	1,87	0,05	0,05	–	0,83	0,04	–
962	Illite 1M, éponte minerai riche	3,22	0,78	1,56	0,27	0,02	0,23	0,54	0,22	0,02

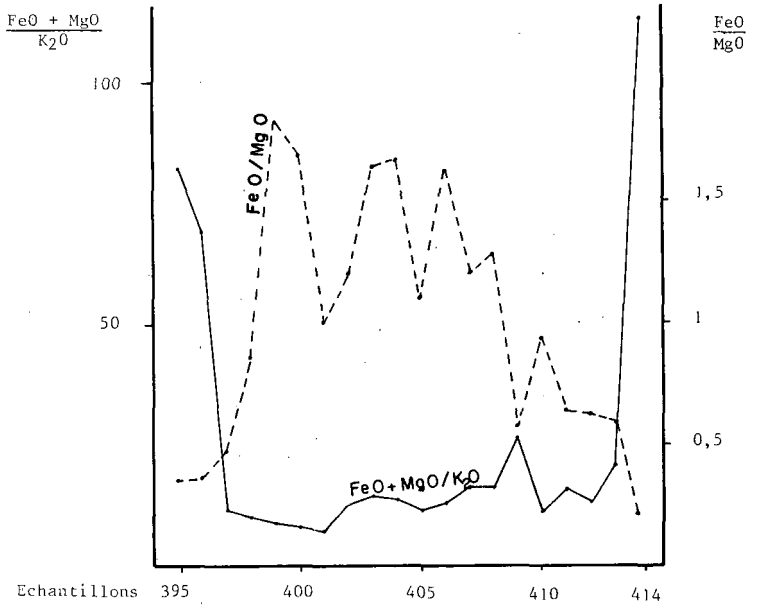


FIG. 7. Rapports (FeO+MgO)/K_2O et FeO/MgO de la coupe 2L (zone de réaction 2).

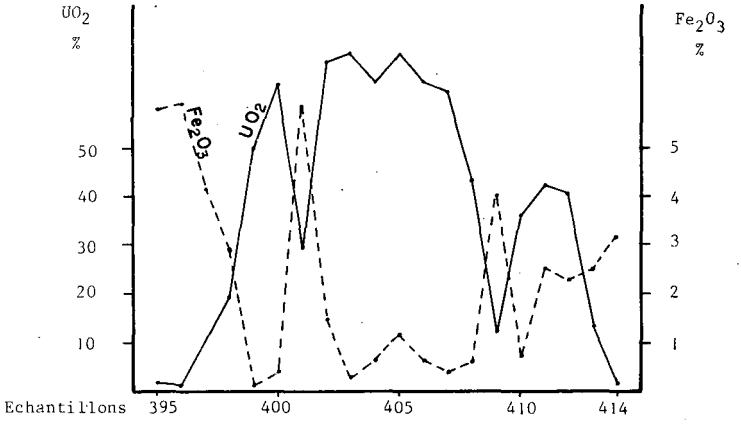


FIG.8. Teneurs en UO_2 et Fe_2O_3 de la coupe 2L (zone de réaction 2).

illites $2M_1$ des épontes. Il faut également noter que l'hématite, absente dans les auréoles extérieures, apparaît à faible distance du cœur et dans celui-ci, son apparition coïncidant à peu près avec le début de l'auréole à illites 1M et chlorite. Dans le cœur elle présente une forte corrélation négative avec l'uraninite, ce que traduit, dans une certaine mesure, la corrélation $Fe_2O_3 - UO_2$ (fig.8).

2.2. Les structures microscopiques

L'auréole à illite $2M_1$ apparaît toujours dans des sédiments, grès ou pélites dont non seulement l'apparence est normale, mais dont la structure microscopique est conservée. Toutefois, l'apparition des premiers indices de désilicification et de remplacement des quartz par la séricite coïncide avec la transformation des illites 1Md en illite $2M_1$. Les figures de désilicification s'accentuent lorsque l'on va vers la partie interne de l'auréole. Lorsque l'encaissant est pélitique les quartz disparaissent dès l'auréole à illite $2M_1$, ils sont épigénisés par de la séricite; la structure de la roche est conservée et se maintient encore dans l'auréole à chlorite magnésienne jusqu'à une très faible distance du minerai riche. Par contre lorsque l'encaissant est gréseux les quartz disparaissent et la structure s'effondre au passage de l'auréole à illite $2M_1$ à l'auréole à chlorite magnésienne. Mais il faut noter que dans ce cas l'auréole à chlorite magnésienne est très peu développée: l'effondrement de la structure se fait toujours très près du minerai riche, c'est-à-dire à moins de 30 à 40 cm de celui-ci.

2.3. Essai de bilan géochimique

Ces observations montrent, aux épontes des zones de réaction, une transformation des terrains encaissants par dissolution ou épigénie des quartz. En zones 1 et 2 les terrains encaissant les zones de réaction sont les grès fins du mur et les pélites du toit, le minerai riche de la zone de réaction occupant la place de toutes les séquences gréseuses de C1 (C1c-b) avec réduction de puissance correspondante. Dans les zones 3–4 et 5–6 les séquences gréseuses de C1 subsistent partiellement, mais elles sont incomplètes, le minerai riche occupant la place des séquences manquantes ou tronquées [5].

Les dissolutions de quartz observées à l'éponte des zones de réaction, jointes à des arguments d'ordre géométrique et structural [3], ont suggéré l'hypothèse que le minerai des zones de réaction résulterait d'une désilicification des séquences gréseuses de la couche C1. La gangue argileuse de ce minerai serait une argile résiduelle, de désilicification des grès, plus ou moins transformée. Les données actuelles sont encore trop incomplètes pour établir un bilan précis de cette transformation, néanmoins quelques ordres de grandeur peuvent être établis.

TABLEAU IV. COMPOSITION CHIMIQUE ESTIMEE DES PRINCIPAUX FACIES

	PF	SiO_2	Al_2O_3	MgO	FeO	Fe_2O_3	K_2O
Sédiment normal: grès fin pélitique	4,5	60	24	1,0	3,5	3,5	5,5
Grès et conglomérats de C1	1	92	3,0	0,3	2,2	2,2	0,5
Estimation de C1 (Ch) avec 10% de grès fins	1,3	89	5	0,4	2,3	2,3	1
Faciès à illite 2M	6	47	32	2	1,5	1,5	8
Faciès à chlorite magnésienne	12	32	24	20	5	5	0,5
Gangue du minerai de la zone 2	12	38	23	10	10	4	1,5

2.3.1. Les grès C1 et le minerai riche des zones de réaction

Les séquences gréseuses et conglomératiques de C1 contiennent-elles assez d'argile pour justifier de la gangue argileuse des zones de réaction? En effet, en dépit des teneurs en uranium atteignant 40 à 60%, l'argile occupe 80 à 90% du volume du minerai dans le cœur des zones de réaction du fait de la densité très élevée de l'uraninite, voisine de 10. Les grès et conglomérats de la couche C1 contiennent en moyenne de l'ordre de 10% d'argile et leur puissance est de l'ordre de 5 m. La dissolution complète du quartz de ces grès les réduirait à un niveau d'argile de 50 cm. Il faut toutefois tenir compte du fait que les séquences gréseuses de C1 renferment toujours des niveaux de grès fins pélitiques dont la puissance cumulée est généralement de plusieurs décimètres et qui, eux, sont constitués pour 70 à 80% de phyllites. Il apparaît donc qu'un minerai de cœur à gangue argileuse d'une puissance réelle de 0,5 à 1 m renferme une quantité d'argile qui est *du même ordre de grandeur* que celle de l'ensemble des séquences gréseuses de la couche C1 normale.

Cependant, les argiles des zones de réaction sont d'une nature très différente de celle des grès de C1; le bilan est donc fort différent selon les éléments considérés. Le rapport des teneurs de la gangue des zones de réaction à celles de la couche C1 (tableau IV) est de 4,6 à 7,7 pour Al_2O_3 selon la proportion de grès fins que l'on attribue à la couche C1 (entre 0 et 10%), de 6,5 à 7 pour Fe, de 1,5 à 3 pour K_2O et de 25 à 33 pour MgO. Les valeurs des rapports de Al_2O_3 et Fe sont

compatibles avec la réduction d'épaisseur observée (1/5 à 1/10). La différence observée entre ces deux éléments, si tant est qu'elle soit significative, pourrait traduire, soit un léger départ d'alumine, soit un apport de fer, soit les deux. Les rapports de MgO montrent que la quantité de magnésium initialement présente ne peut en aucun cas expliquer le MgO présent dans le minerai du réacteur: un apport de magnésium doit être envisagé. A l'opposé, le rapport de K_2O montre que cet élément a été en partie évacué avec la silice.

2.3.2. Les grès fins pélitiques et les argiles d'éponte

Le bilan des argiles d'éponte, en zones 1 et 2, est plus aisé puisque nous avons vu que la structure microscopique de la roche est conservée, ce qui montre que la transformation s'est faite sans grande variation de volume. La simple comparaison des analyses chimiques pondérales donne dans ce cas une assez bonne estimation du bilan, les éventuelles variations de densité étant négligées.

Comparé aux grès fins pélitiques des sédiments normaux, le faciès à chlorite magnésienne se caractérise par un déficit en silice et potassium et un très net excédent en fer et surtout en magnésium. L'alumine est stable.

Egalement comparé aux grès fins pélitiques des sédiments normaux, le faciès à illite 2M se caractérise par un déficit en silice, moins important toutefois que dans la zone à chlorite magnésienne, un excédent en alumine, potassium et peut-être magnésium, pour ce dernier élément l'écart n'étant toutefois pas significatif. Le fer est à peu près stable.

2.3.3. Le bilan global

– **Si.** La silice est évidemment l'élément qui a été évacué le plus massivement, la dissolution du quartz dans les séquences gréseuses de la couche C1 étant la cause principale de la réduction de puissance. Le déficit persiste dans les épontes mais il s'atténue dans la zone la plus externe.

– **Mg.** L'autre fait marquant est l'excédent de magnésium qui se manifeste aussi bien dans le cœur que dans les épontes; il ne s'agit donc pas d'un simple transfert d'une auréole à l'autre mais d'un apport extérieur.

– **Fe.** De même le bilan global du fer doit être excédentaire quoique d'une manière moins massive: dans le cœur il y aurait plutôt excédent que déficit, l'auréole à chlorite magnésienne étant quant à elle certainement excédentaire en fer.

– **K.** Le bilan du potassium est moins clair puisqu'il est déficitaire dans les auréoles internes (cœur et zone à chlorite magnésienne) et excédentaire dans l'auréole la plus externe à illite $2M_1$. Il est toutefois peu probable que les 2 à 3% de potassium excédentaires de l'auréole à illite $2M_1$ compensent les 5% manquants dans l'auréole à chlorite; il faudrait en effet que l'auréole à illite 2M soit deux fois

plus épaisse que les auréoles à chlorite, ce qui ne paraît pas être le cas. Comme il y a en plus déficit dans le cœur, le bilan global du potassium est certainement déficitaire.

– **Al.** Le bilan de l'aluminium paraît relativement équilibré comparé à celui des autres éléments mais son état précis est difficile à établir. Nous avons vu qu'un léger déficit est envisageable dans le cœur tandis qu'il y a excédent dans l'auréole externe. Doit-on envisager un apport extérieur d'alumine ou tout simplement un transfert du cœur vers la périphérie?

CONCLUSION

La gangue argileuse des zones de réaction résulte d'une désilicification des grès de la couche C1 (c-h). Dans les zones 1 et 2 cette désilicification atteint en outre les grès fins du mur (C1a-b) et les pélites du toit (base du FB) qui constituent alors les épontes de la zone de réaction. Elle s'accompagne, tant dans le minerai riche lui-même qu'à ses épontes, de transformations chimiques et minéralogiques des argiles initiales. Ces transformations paraissent liées au fonctionnement des réactions nucléaires. En effet, si l'on observe bien des amorces de désilicification dans le minerai riche hors des zones de réaction [5], la désilicification n'y est jamais totale et l'on n'y constate pas les transformations chimiques (apport de Mg) et minéralogiques (chloritisation, transformation d'illite 1Md en illite $2M_1$) observées dans les zones de réaction. Assez curieusement l'effet thermique le plus net, qui est la transformation des illites 1Md en illite $2M_1$, ne se manifeste généralement que dans l'auréole la plus externe et non dans le cœur. Il est probable que tant que duraient les réactions, la gangue destructurée par le bombardement neutronique ne pouvait recristalliser et ce n'est qu'après l'arrêt des réactions que les argiles ont pu recristalliser dans le cœur, au sein d'une boue aluminosilicatée amorphe, en voie de refroidissement. Au contraire, dans les épontes, à une distance trop grande pour subir l'effet des neutrons, les minéraux phylliteux ont pu enregistrer l'effet thermique des réactions. Cet effet thermique ne se manifeste toutefois qu'à une distance relativement faible du cœur: 1,5 à 2 m, ce qui est très peu compte tenu de la quantité de chaleur dégagée au cours des réactions. Ceci montre que l'évacuation de chaleur devait se faire plus par circulation d'eau dans les fractures que par conduction à travers les terrains encaissants. On peut penser que les réactions nucléaires ont déclenché un véritable siphon thermique drainant, à travers les fractures, les eaux de la nappe des grès. Ces eaux devaient être minéralisées, et en particulier contenir du magnésium qui, pour des raisons qui restent à élucider, s'est fixé dans la gangue du minerai et ses épontes, induisant la cristallisation des chlorites magnésiennes.

REFERENCES

[1] LE MERCIER, Marcelle, «Etude pétrographique des roches prélevées dans les zones de réaction», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 153.
[2] WEBER, F., GEFFROY, J., LE MERCIER, Marcelle, «Synthèse des études minéralogiques et pétrographiques des minerais d'Oklo, de leurs gangues et des roches encaissantes», Ibid., p. 173.
[3] GAUTHIER-LAFAYE, F., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/3.
[4] GEFFROY, J., «Etude microscopique des minerais uranifères d'Oklo», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 133.
[5] GAUTHIER-LAFAYE, F., et al., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/2.
[6] BRANCHE, G., CHANTRET, F., GUILLEMAUT, A., POUGET, R., «Données chimiques et minéralogiques sur le gisement d'Oklo», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 119.

Annexe 1

MICROPHOTOGRAPHIES

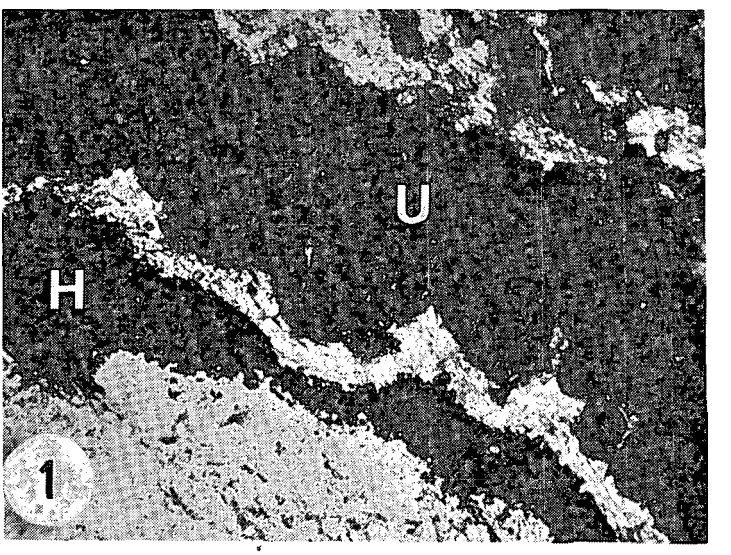


PHOTO 1. Lame mince. LP X 80. Echantillon GL 972b provenant du front du 11.1.76 situé en zone de réaction 2. Minerai riche à uraninite (U) et liseré d'hématite (H).

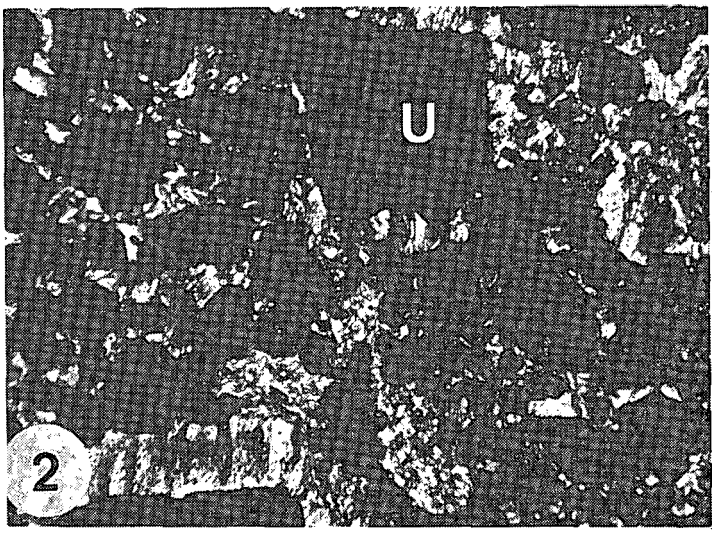


PHOTO 2. Lame mince. LPA X 120. Echantillon GL 985a provenant du front du 11.1.76. Séricite cristallisant perpendiculairement aux faces des cristaux d'uraninite (U).

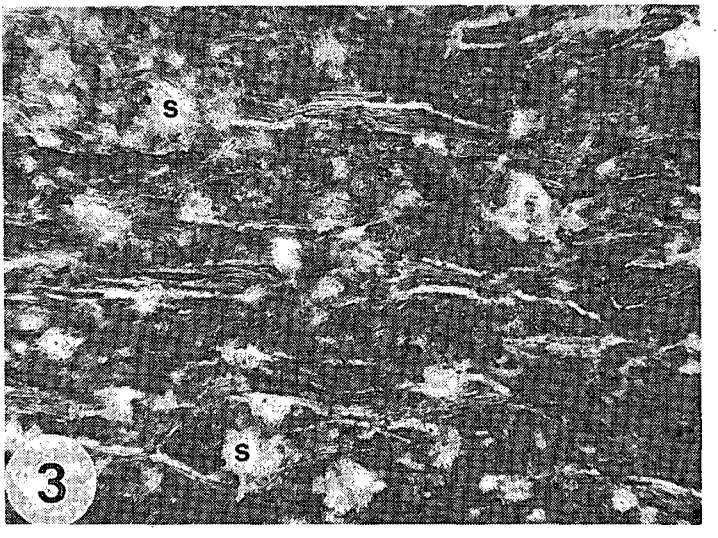


PHOTO 3. Lame mince. LP X 60. Echantillon GL 980a provenant du front du 11.1.76. Auréole à chlorite magnésienne; l'ancien litage stratigraphique est marqué par l'alignement des micas; les taches blanches sont d'anciens grains de quartz détritique remplacés par de la séricite (S).

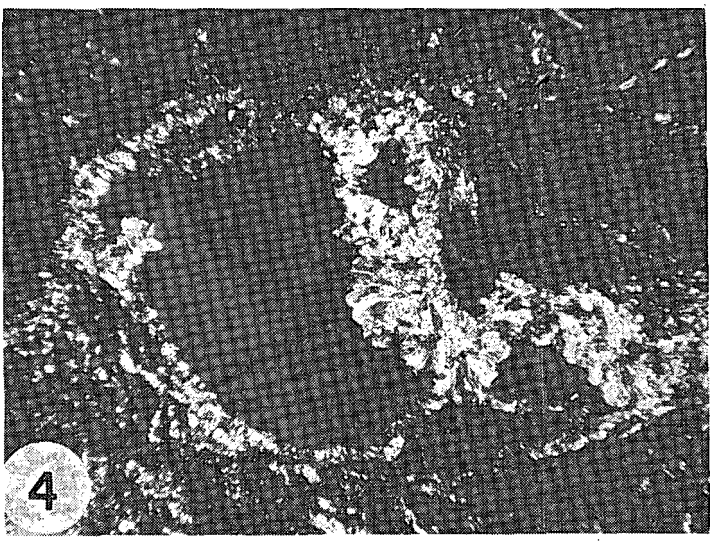


PHOTO 4. Lame mince. LPA X 60. Echantillon GL 748b provenant du front 122 situé en zone de réaction 3–4. Grain de quartz dissous et remplacé par de la séricite; le fond sombre est constitué de chlorite.

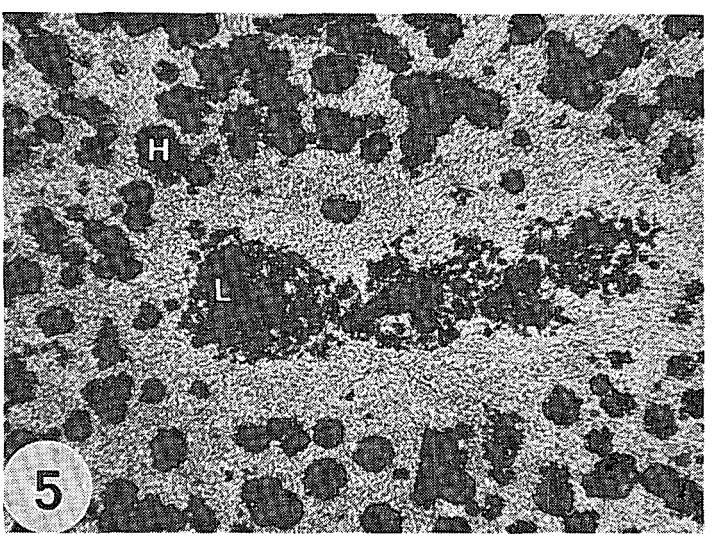


PHOTO 5. Lame mince. LP X 120. Echantillon GL 962b provenant du front du 11.1.76. Auréole à illite 1M et chlorite; séricite cryptocristalline; un amas de leucoxène (L) est entouré d'hématite (H).

Annexe 2

ANALYSE DES MINERAUX DES ARGILES AUX RAYONS X

(Légende: voir p. 225)

FRONT DE TAILLE 122

Zone de réaction 3–4

		Minéraux argileux								Observations
		Estimation quantitative			Illite-séricite			Chlorite		
N° GL	Lithologie	K	I	Ch (c-v)	002/001	Crist.	Polym.	001/002	Chauf. 490°C	
743	g. fin	12	41	47	0,55	5,0	$2M_1$	0,21	14	Q
744	g. fin	7	75	18	0,59	6,0	$2M_1$	0,27	14	Q
745	g. fin	3	95	2	0,47	6,0			14	Q
746	g. fin	13	59	28	0,23	5,0		0,32	14	Q
747	g. my. fin	14	39	47	0,26	6,0		0,23	14	Q
748	g. my.	35	5	60		5,5		0,52	14	Q
749	Argile	4	59	37	0,18	4,9		1,17	13,8	U
750	g. my.	9	35	56	0,27	5,0	$2M_1$	0,51	14	Q
751	Pel. n.	10	30	60	0,43	4,5		1,51	14	Q-U
752	Pel. n.	2	72	26	0,24	5,2		4,17	12,9	Q-U
753	Arg. n.	3	82	15	0,11	4,5	1M	2,0	12,7	U
754	Min. riche		75	25	0,22	5,0		4,4	12,9	U
755	Min. riche		85	15	0,1	4,5		2,2		U
756	Min. riche	7	70	23	0,18	5,0		3,37	12,7	U
764	g. my.	5	40	55	0,22	4,8	$2M_1$	0,43	14	Q
765	g. my.	7	75	18	0,20	6,7	2M	1,18	14	Q
767	Min. riche	5	89	6	0,10	5		2,72	12,9	U
768	Pel. n.	2	90	8	0,10	5,7		3,05	13	U-Q
769	Arg. n.	5	58	37	0,21	5,2		1,55	13,6	U
770	Arg. n.	7	69	24	0,22	6,1		3,0	13	
771	Arg. n.	6	75	19	0,18	6,7		3,81	13	U
792	Min. riche	3	81	6	0,12	5,0		1,50	12,9	U-Q
797	Argile	4	71	27	0,16	5,7		2,91	13	U
798	Arg. n.	5	86	9	0,16	8,0		1,50	13	U
799	Arg. v.	15		85				1,19	13,8	U
800	Arg. v.	25	3	72				0,98	14	
801	g. my.	6	64	30	0,28	4,0	2M	0,46	14,6	Q

FRONT DE TAILLE DU 11.1.76

Zone de réaction 2

		Minéraux argileux								Observations
		Estimation quantitative			Illite-séricite			Chlorite		
N° GL	Lithologie	K	I	Ch (c-v)	002/001	Crist.	Polym.	001/002	Chauf. 490°C	
936	Arg. n.			100				0,48	14	
951	Arg. v.	46		54				1,03	13,9	
952	Min. riche	5	73	22	0,12	4,5		1,42		U
953	Min. riche	4	83	13	0,05	4,7		1,18		U
954	Min. riche	2	84	14	0,17	5,0		2,47	13,1	U
955	Arg. v. r.	6	75	19	0,20	4,8		2,56	13,1	U
956	Arg. n.	18	50	32	0,22	4,8	1M	1,84	13,2	U
960	Min. riche		88	12	0,11	5,0		1,08		U
962	Arg. v. r.	5	86	9	0,26	5,0	1M	2,04	13,2	
969	Arg. v.	7	40	53	0,21	5,0		1,67	13,2	U
970	g. my. fin	10		90				0,25	14,6	Q
971	Cgl. r.	17	77	6	0,12	5,0		0,95		Q-U
972	Arg. v. n.	5	81	14	0,16	4,8		2,5	13,2	U
974	Min. riche		88	12	0,10	4,1		0,91	15	U
975	Arg. v. r.		86	14	0,15	4,5		2,11	13,3	U
976	Arg. n.		91	9	0,23	4,9	1M	1,76	13,7	
977	Arg. v. r.	10	77	13	0,26	4,9	1M	1,70	13,5	
978	Arg. v. n.	26	12	62	0,24	4,1		0,52	14	
979	Arg. v.	34	17	49	0,38	3,5		0,48	14	
980	Arg. n.	40	9	51	0,37	4,1		0,49	14	
981	Arg. n.	17		83				0,41	14	
982	Arg. n.	2	7	91	0,29	3	$2M_1$	0,44	14	
983	Arg. n.	3	77	20	0,47	5	$2M_1$	0,32	14	
985	Min. riche	7	52	41	0,21	4,5		2,36	13	U
986	Arg. n.	9	42	49	0,54	3	2M	0,36	14	

SONDAGE SC 6

Zone de réaction 1

N° COMUF	Cote (m)	Lithologie	Minéraux argileux								Observations
			Estimation quantitative			Illite-séricite			Chlorite		
			K	I	Ch (c-v)	002/001	Crist.	Polym.	001/002	Chauf. 490°C	
1223	2,70	g. FB		50	50	0,45	5	1M	0,27	14,2	Q
1224	4,90	Pel. v.		100		0,49	7,5	1M			Q
1225	6,0	Pel. n.		60	40	0,64	8,5	1M	0,12	14	Q
1226	7,40	Pel. n.		90	10	0,47	7	1M		14,2	Q
1227	8,90	Arg.	30	20	50	0,31	4		0,52	14	
1228	9,10	Arg.	45	15	40	0,24	5,5	1M		13,9	U
859	9,30	Min. riche				0,22	5,0		1,11	13,4	U
860	9,40	Min. riche		73	27	0,16	5,0		1,24	13,5	U
869	9,60	Min. riche		100		0,08	4,5	1M			
1229	9,70	Arg.	30	30	40	0,31	4,5	1M	0,64	13,5	
1230	10,10	Arg.	25	15	60	0,42	5,0		0,45	14	
1231	10,20	Arg.	15	10	75				0,37	14	
1232	10,55	g. fin.		70	30	0,47	6,0	$2M_1$	0,49	14	Q
1233	10,95	g. my.			100				0,23	14	Q
1234	12,20	Pel. v.		75	25	0,49	5,5	1M	0,34	14	Q
1235	12,50	Pel. v.		100				1M			Q
1236	12,60	Cgl.	10	20	70	0,43	4,7	1M		14	Q

SONDAGE SC 22

Zone de réaction 1

N° COMUF	Cote (m)	Lithologie	Minéraux argileux: Estimation quantitative K	I	Ch (c-v)	Illite-séricite: 002/001	Crist.	Polym.	Chlorite: 001/002	Chauf. 490°C	Observations
1237	3,30	g. FB		85	15			$2M_1$		13,5	Q
1238	3,80	Arg.		100		0,18	5,5	$2M_1$			
1239	5,60	Arg.		80	20			$2M_1$	0,54	13,8	
789	6,00	Min. riche		90	10	0,16	5,5	$2M_1$		13,0	U
790	6,15	Min. riche		90	10	0,23	6,5	$2M_1$		13,0	U
792	6,50	Min. riche		80	20		4,0			13,0	U
793	6,60	Min. riche		90	10	0,29	5,5	$2M_1$			U
1240	7,00	Arg.	30		70				0,45	13,6	
1241	7,50	g. fin		90	10			$2M_1$		14	Q
1242	7,90	g. fin		55	45			1M	0,19	14	Q
1244	9,60	Pel.		95	5			1M			Q
1245	9,70	Cgl.	10	10	80		5		0,3	14	Q

LEGENDE

– *Lithologie:* Arg. = argile; Pel. = pélite; g. = grès; Min. = minerai; Cgl. = conglomérat; my. = moyen; n. = noir; v. = vert; r. = rouge.

– *Estimation quantitative* d'après les rapports d'intensité des raies K(001), I(001), Ch(002) sur préparations orientées de la fraction $< 2\ \mu m$; K = kaolinite; I = illite (et autres minéraux à 10 Å); Ch = chlorite; c-v = interstratifié irrégulier chlorite-vermiculite à dominance de feuillets de chlorite.

– *Variétés polymorphes de l'illite* déterminées d'après les raies (112) et $(11\bar{2})$ ou (114) et $(11\bar{4})$ sur poudre désorientée; Crist. = indice de cristallinité de l'illite: largeur à mi-hauteur de la raie (001); $2M_1$ ou 1M = mélange d'illite $2M_1$ et 1M à 2M dominante ou 1M dominante; $\underline{2M_1}$ ou $\underline{1M}$ = illite $2M_1$ ou 1M exclusive.

– *Chauf. 490*°C = position de la raie (001) de la chlorite après chauffage à 490°C.

– Q = quartz; U = uraninite (ou pechblende).

DISCUSSION

B. POTY: A Strasbourg il y a deux ans vous nous avez dit que vous aviez trouvé de la biotite près des zones de réaction. Pensez-vous encore que cette biotite soit liée aux réacteurs?

F. WEBER: Non. Jusque dans la zone à chlorite des sédiments, qui sont donc déjà très transformés, on trouve des biotites chloritisées. Mais quand on fait l'analyse correcte des structures de ces sédiments, on constate que ce sont bien des biotites détritiques qui ont été chloritisées, probablement par des fuites hydrothermales.

D.G. BROOKINS: La présence de chlorite magnésienne associée à la formation du minerai d'uranium s'observe aussi dans les minerais à basse température et basse pression du plateau du Colorado (Etats-Unis). Séparées du minerai, les chlorites sont plus riches en fer; au fur et à mesure que le minerai se forme, une réaction faisant intervenir de la montmorillonite authigénique, du chlorate de fer et de la matière organique ainsi que des solutions contenant de l'uranium et du vanadium, produit du minerai uranifère mélangé à de la pyrite et de la chlorite magnésienne (contenant du vanadium), et à un autre type de carbone. Ainsi il existe une corrélation entre le magnésium et l'uranium dans certains gisements à basse température aussi bien que dans les gisements à température élevée. Cette observation est valable pour toute une gamme de cas, depuis les venues uranifères aux températures et pressions les plus basses jusqu'aux gisements uranifères filoniens à température élevée.

F. WEBER: Je ne cherche pas à démontrer des températures élevées par l'existence des chlorites magnésiennes; je constate simplement que ces chlorites ont cristallisé à Oklo au voisinage des réacteurs et uniquement à leur voisinage et j'en conclus que ce doit être sous l'effet des circulations hydrothermales induites par la réaction nucléaire. En dehors de l'environnement immédiat des réacteurs les chlorites ont en effet un rapport Fe/Mg beaucoup plus élevé. Je ne pense pas, cependant, que ceci se produirait de la même manière dans n'importe quel gisement où il y aurait un réacteur nucléaire; on ne peut absolument pas poser l'équation chlorite magnésienne = réacteur nucléaire, ni chlorite magnésienne = hydrothermalisme. Ces chlorites se sont formées tout simplement parce que les eaux connées des sédiments gréseux étaient magnésiennes; je rappelle que certains niveaux ont un ciment dolomitique, cristallisé plus tard il est vrai. Ces eaux magnésiennes circulant sur une boue aluminosilicatée, amorphisées par le bombardement neutronique, ont favorisé, après l'arrêt de la réaction, la néoformation de chlorites. On constate que la quantité de MgO ainsi fixé par les chlorites est considérable, de l'ordre de 1000 kg par mètre carré de couche, ce qui montre que la circulation d'eau a été très intense.

Rosemary J. VIDALE: La chlorite magnésienne est présente en abondance dans des gisements uranifères qui ne renferment pas de réacteurs naturels.

F. WEBER: J'ai traité ce point dans ma réponse aux remarques de M. Brookins.

Rosemary J. VIDALE: Vous avez montré des grains de mica parallèles en bordure de grains d'uraninite dans les zones de réaction. Ce type de texture s'observe dans les roches métamorphiques où de petites fissures se font formées (voir par exemple le travail de Ramsay). Le mica aurait-il pu remplir de petites fissures présentes dans les roches des réacteurs?

F. WEBER: Les cristaux d'uraninite des zones de réaction ne sont généralement pas fissurés; c'est plutôt autour des cristaux que l'on observe cette disposition des cristallites de mica perpendiculairement aux cristaux d'uraninite.

B. POTY: Je voudrais revenir sur le problème des chlorites magnésiennes associées à ces faciès de pile. Je pense que ces chlorites magnésiennes sont également extrêmement caractéristiques de gisements comme ceux de Jabiluka et Rabbit Lake. Et ce qui est important, c'est qu'à Jabiluka les géologues considèrent que la quantité de chlorite magnésienne précipitée est fonction de la quantité d'uranium précipité. Il existe probablement un mécanisme commun expliquant la précipitation de la chlorite et la précipitation de la pechblende. Ce n'est donc pas par hasard que de la chlorite magnésienne se trouve à proximité des fortes concentrations en uranium dans les zones de réaction d'Oklo.

F. WEBER: C'est une question dont l'étude n'est pas terminée. Je tends à croire qu'il s'agit d'une coprécipitation, mais je pense que même dans ce cas-là la précipitation des chlorites est un mécanisme lié au fonctionnement des réacteurs, alors que dans les minerais riches on n'observe pas cet effet.

P.R. SIMPSON: Beaucoup de vos illustrations de matière argileuse montrent une tache brun foncé d'opacité variable dont vous n'avez pas fait mention dans votre présentation. S'agit-il de matière organique? S'il en est ainsi, celle-ci paraît être relativement abondante dans les matériaux que vous avez étudiés et présentés ici.

F. WEBER: Je n'ai pas particulièrement étudié ces inclusions opaques. La quantité de matières organiques, abondantes dans les sédiments, diminue lorsque l'on s'approche du cœur des réacteurs, où leur teneur est très faible ($<0,2\%$). Je pense que la plupart des inclusions brunâtres auxquelles vous faites allusion sont des hydroxydes de fer dus à une légère altération récente.

R. HAGEMANN: Pouvez-vous préciser la température de transition entre illite 1M et illite 2M?

F. WEBER: Malheureusement les données de la littérature ne sont pas très précises: entre 200 et 400°C (Velde). La température n'est pas le seul facteur qui entre en ligne de compte. Dans les conditions d'une diagenèse normale on admet généralement que cette transformation s'effectue aux alentours de 250°C.

R. BROUSSE: L'hypothèse de transformations par voie hydrothermale doit sans doute être précisée, car: 1) des remplacements centripètes des quartz par de la séricite existent en milieu non hydrothermal tel que celui du tonstein carbonifère de France; 2) en milieu hydrothermal tel que celui des aires géothermiques, les eaux dissolvent d'autant plus de silice qu'elles sont plus chaudes (thermomètre Si) mais alors les quartz diminuent de volume sans être transformés en séricite périphérique.

F. WEBER: Ce n'est que dans la partie très extérieure des auréoles dues aux transformations hydrothermales autour des réacteurs que l'on observe le remplacement des quartz par de la séricite. Bien entendu des faits similaires peuvent être observés dans la diagenèse profonde dans des conditions qui ne sont pas «hydrothermales» dans le sens que les géologues donnent généralement à ce terme mais qui impliquent des mécanismes similaires: circulation d'eaux chaudes. Au cœur des réacteurs, où régnaient les températures les plus élevées, c'est bien entendu une dissolution totale des quartz que l'on observe, avec la réduction de volume correspondante.

URANIUM SOLUBILITIES IN THE OKLO REACTOR ZONES

C.J. DUFFY
University of California,
Los Alamos Scientific Laboratory,
Los Alamos, New Mexico,
United States of America

Presented by Rosemary J. Vidale

Résumé–Abstract

LES SOLUBILITES DE L'URANIUM DES ZONES DE REACTION D'OKLO.

On a avancé l'hypothèse que la composition isotopique de l'uranium des grains d'uraninite des zones de réaction d'Oklo pourrait se présenter selon une répartition par zones. On pourrait s'attendre à trouver une composition plus naturelle dans les bordures de ces grains, puisque les solutions qui pénètrent dans la zone de réaction à partir du gisement non appauvri peuvent transporter de l'uranium naturel. On a examiné plusieurs grains d'uraninite au moyen d'une microsonde ionique capable de donner une réponse sur une bordure d'une épaisseur de 10 μm. Cet instrument, dont la précision est d'environ 5%, n'a permis de déceler aucune répartition par zones. L'absence de ce phénomène dans la composition isotopique des grains d'uraninite peut être due à la faible solubilité de l'uraninite du gisement d'Oklo, qui réduit à presque rien les déplacements d'uranium. Les calculs de la solubilité de l'uraninite en équilibre avec des ions d'uranium, l'oxyde et l'hydroxyde d'uranium, et des ions carbonés en solution aqueuse paraissent confirmer cette hypothèse. Ces calculs indiquent que lorsque O_2 et CO_2 sont en équilibre avec l'assemblage solide constitué par la magnétite, l'hématite et le graphite les molalités d'uranium total dans la gamme de pH de 5 à 6,8 sont inférieures à 10^{-9}. Dans ces conditions, et en l'absence d'autres espèces aqueuses d'uranium, la quantité d'uranium déplacée ne devrait pas suffire à entraîner une répartition par zones décelable dans l'uraninite de la zone de réaction.

URANIUM SOLUBILITIES IN THE OKLO REACTOR ZONES.

It was hypothesized that uraninite grains in the reactor zones at Oklo might show zonation with respect to the isotopic composition of the uranium. A more nearly natural composition might be expected in the rims of such grains since solutions moving into the reactor zones from the undepleted ore zone would carry natural uranium. Several uraninite grains were examined by means of an ion microprobe capable of resolving a rim of 10 μm width. Within the approximately 5% precision of the instrument no zoning was detected. The absence of detectable zoning in the isotopic compositions of the uraninite grains might be caused by low solubility of uraninite in the Oklo ore body resulting in insignificant uranium transport. That this is a reasonable assumption is borne out by solubility calculations for uraninite in equilibrium with uranium ions and uranium oxide, hydroxide, and carbonate ions in aqueous solution. These calculations indicate that if O_2 and CO_2 are in equilibrium with the solid assemblage magnetite, haematite, and graphite total uranium molalities in the pH range from 5 to 6.8 are less than 10^{-9}. Under these conditions, and assuming no other important aqueous uranium species, uranium transport would be insufficient to produce observable zoning in the reactor zone uraninite.

The relative stability of the Oklo reactor system over a period of 1800 million years has considerable significance for the modern problem of the disposal of radioactive wastes. Some of the factors which must have affected the stability of the Oklo reactor zones are the exposure of the deposit to moving solutions, the rates of dissolution of the solid phases, the equilibrium solubilities of the solid phases, particularly uraninite, and the degree of saturation of the solution when entering the reactor zones.

The maintenance of uraninite-rich lenses within a lower-grade pitchblende deposit is hardly surprising. Considering the generally more soluble nature of pitchblende relative to uraninite, it seems probable that the solutions entering the reactor zones were supersaturated with respect to uraninite. The incoming uranium should, however, have had a natural isotopic composition in contrast to that of the reactor zones. The result of an influx of a solution supersaturated, or even saturated, with natural uranium should have been the formation of rims with more natural uranium isotopic composition on the uraninite grains of the reactor zones.

Having realized the possibility for the formation of zoned grains, four grains from sample 1421/5 were examined for $^{235}U/^{238}U$ using an ion microprobe. Bulk analysis of the sample had given a value of 0.0053 for $^{235}U/^{238}U$. The ion probe gave a mean value of 0.00522 with a standard error of 0.00004 for 27 spots from three of the grains all of which had average dimensions of around 250 μm. A fourth grain with approximately 1000 μm average dimension gave a value of 0.00500 ± 0.00006 for 14 spots.

Spot size for the analysis was 10 μm with approximately half the spot centres being within 15 μm of the grain boundaries. Three analyses were performed on each spot. The average standard error of these analyses was 0.0003. There was no statistically significant difference among the measured compositions of the various spots within any given grain.

The absence of detectable zoning could be explained by homogenization of the uraninite grains by solid diffusion. This possibility seems remote owing to the generally slow nature of solid diffusion at the temperatures which may be expected to have prevailed for most of the reactor zones' existence. However, the data are lacking for a definitive assessment of this possibility. A second possibility, which seems more open to examination, is that very little uranium was transported into the reactor zones. Factors which would effect the amount of uranium transported are the solubility of the pitchblende, the fluid flow-rate, and degree of equilibration between the pitchblende and the uraninite and the moving fluid.

None of these factors can be well defined at present. Even the solubility of pitchblende is unattainable since no good Gibbs energy data exist for this phase. In fact, the solubility of pitchblende may be rather variable depending on its crystallinity. Nevertheless, some interesting observations can be made by approximating pitchblende with uraninite, and using 1 bar, 298.15 K thermodynamic data.

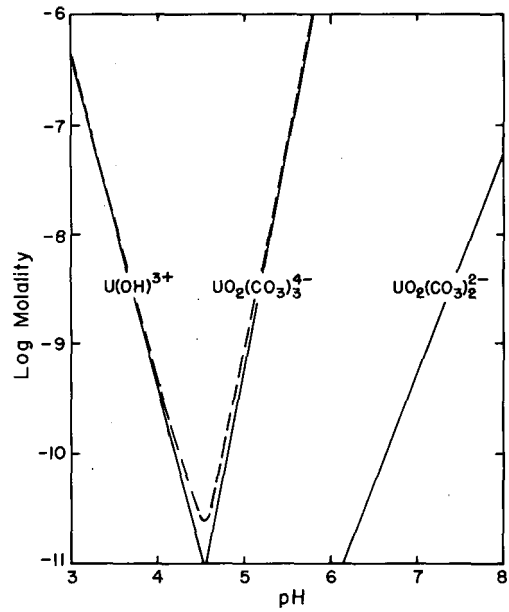


FIG.1. The solubility of uraninite in aqueous solution at 298.15 K, $f_{O_2} = 10^{-67}$, $f_{CO_2} = 125$. The solid lines are concentrations of individual species, the dashed line is total uranium.

The aqueous ions which have been considered are U^{3+}, U^{4+}, UO_2^+, UO_2^{2+}, $UO_2(OH)^+$, $(UO_2)_2(OH)_2^{2+}$, $(UO_2)_3(OH)_5^+$, $U(OH)^{3+}$, $UO_2CO_3^0$, $UO_2(CO_3)_2^{2-}$, and $UO_2(CO_3)_3^{4-}$. One bar, 298.15 K Gibbs energies for these ions and for uraninite can be found in Refs [1] and [2]. Additional thermodynamic data used in this paper are from Ref.[3]. For the conditions considered here only UO_2^+, $U(OH)^{3+}$, $UO_2(CO_3)_2^{2-}$, and $UO_2(CO_3)_3^{4-}$ are important aqueous species.

Figures 1 to 3 give the solubility of uraninite as a function of pH for three different values of f_{O_2} and f_{CO_2}. The equilibrium $C + O_2 = CO_2$ has been used to define f_{CO_2} as a function of f_{O_2}, where graphite has been used as the state of carbon. Such a constraint will give maximum values for equilibrium f_{CO_2}. The significance of these figures may be appreciated by noting that at a total molality of uranium in solution of 10^{-9}, assuming a deposit 1 m thick in the direction of flow with 5% connected porosity, and a fluid flow-rate of 1 m/a for 1800 million years, only 2 g U/cm^2 of cross-section would be transported into the deposit. This compares with approximately 100 g U in a volume 1 cm square and 1 m long with 30 wt% uranium.

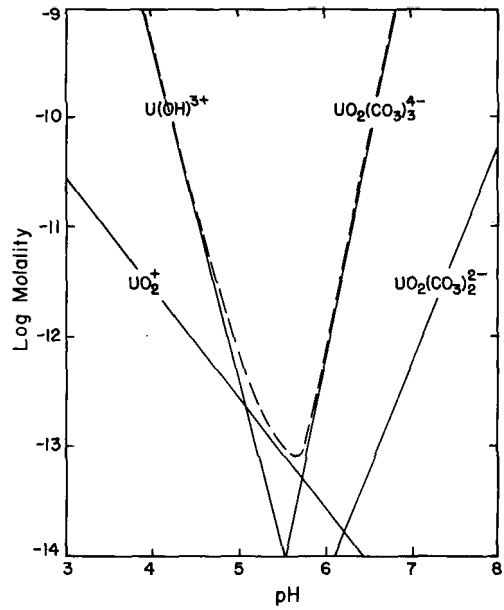


FIG.2. The solubility of uraninite in aqueous solution at 298.15 K, $f_{O_2} = 10^{-69}$, $f_{CO_2} = 1.25$. The solid lines are concentrations of individual species, the dashed line is total uranium.

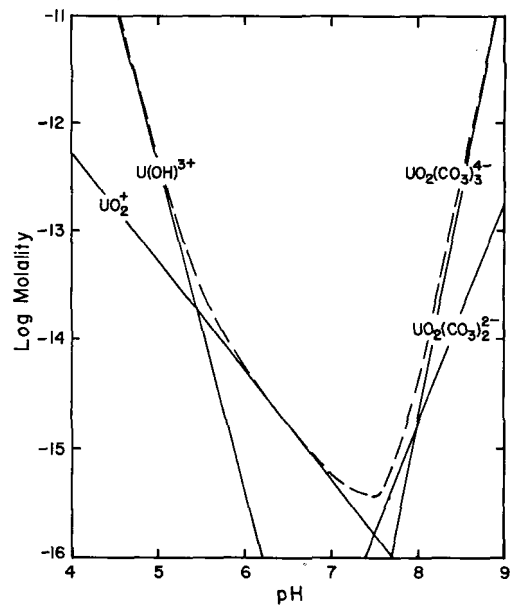


FIG.3. The solubility of uraninite in aqueous solution at 298.15 K, $f_{O_2} = 10^{-72}$, $f_{CO_2} = 0.00125$. The solid lines are concentrations of individual species, the dashed line is total uranium.

For the conditions shown in Figs 1 to 3, the area with total uranium molality below 10^{-9} is bounded at low pH by $U(OH)^{3+}$ solubility and is independent of the fugacity of O_2 or CO_2. At high pH this region is bounded by the solubility of uranyl carbonate ions. Unlike $U(OH)^{3+}$, the uranyl carbonate solubilities are highly dependent on the fugacities of CO_2 and to a lesser extent O_2. If uraninite deposition and stabilization at Oklo is dependent upon reduction owing to oxidation of organic material, the problem of possible CO_2 generation must be given serious consideration. It is, however, evident that if the fugacity of O_2 can be kept below 10^{-69} there is an appreciable pH range were equilibrium constraints indicate negligible uranium solubilities. That this is an obtainable O_2 fugacity may be seen by observing that this is the f_{O_2} imposed by haematite-magnetite equilibrium at 298 K.

REFERENCES

[1] FUGER, J., OETTING, F.L., The Chemical Thermodynamics of Actinide Elements and Compounds, Part 2: The Actinide Aqueous Ions, IAEA, Vienna (1976).

[2] LANGMUIR, D., APPLIN, K., "Refinement of the thermodynamic properties of uranium minerals and dissolved species, with application to the chemistry of ground waters in sandstone-type uranium deposits", Short Papers of the US Geol. Survey Uranium-Thorium Symp. (CAMPBELL, J.A., Ed.), US Geol. Survey Circular 753 (1977) 57.

[3] ROBIE, R.A., WALDBAUM, D.R., Thermodynamic properties of minerals and related substances at 298.15°K and one atmosphere pressure and at higher temperatures, US Geol. Survey Bull. 1259 (1968).

DISCUSSION

B. POTY: Nous avons effectué des mesures de solubilité d'uraninite synthétique dans des solutions aqueuses de 200 à 600°C à 1 kilobar en présence de tampons hématite-magnétite, nickel-nickel oxydé, quartz-magnétite-fayalite (technique des capsules de platine). Les résultats, pour les conditions de fonctionnement du réacteur d'Oklo (~ 500°C, 1 kilobar, présence de sulfates, peut-être de carbonates) et avec le tampon hématite-magnétite, sont de l'ordre de quelques centaines de ppm d'uranium par litre de solution. Ces valeurs de $n \times 10^{-3}$ mol/l sont donc 10^6 fois supérieures aux vôtres.

Nous pensons comme vous que l'oxydation de la matière organique a dû produire du CO_2, mais nous ne l'avons pas encore détecté dans les inclusions fluides.

Enfin l'uranium a été peu mobile à Oklo. S'il a été peu mobile, compte tenu de ces solubilités, c'est probablement parce que les solutions ont peu circulé.

P.R. SIMPSON: La matière carbonée montre une forte affinité pour l'uranium, et un facteur d'enrichissement de 10 000 à 1 a été rapporté[1] pour l'uranium de l'eau concentré par échange cationique avec des acides humiques insolubles. Ceci peut conduire à des concentrations importantes d'uranium à partir de solutions pauvres. En conséquence, des données de solubilité, prises indépendamment, peuvent constituer une base solide pour le calcul d'enrichissements éventuels à partir de solutions de compositions différentes.

Rosemary J. VIDALE: En fait, ce n'est peut-être pas la solubilité de l'uraninite que l'on devrait mesurer, autrement dit cette solubilité n'est pas le facteur décisif quand on est en présence de matières organiques.

P.R. SIMPSON: Je crois que la solubilité de l'uraninite est vraiment importante et tout concourt à indiquer que l'uraninite était fortement soluble dans les eaux qui entraient dans ce gisement. Mais des concentrations de 10 000 à 1 sont très importantes quand on est à la recherche de gisements économiquement exploitables.

[1] SZALAY, A., Cation exchange properties of humic acids and their importance in the geochemical enrichment of UO_2^{++} and other cations, Geochim. Cosmochim. Acta 28 (1964) 1605.

THE HIGHEST TEMPERATURES RECORDED BY THE OKLO MINERAL PHASE ASSEMBLAGES AND ROCK TEXTURES

Rosemary J. VIDALE
University of California,
Los Alamos Scientific Laboratory,
Los Alamos, New Mexico,
United States of America

Résumé–Abstract

LES TEMPERATURES MAXIMALES ENREGISTREES PAR LES ASSEMBLAGES DE PHASE ET LES TEXTURES DES ROCHES D'OKLO.

On constate dans les zones de réaction 2 et 5 et jusqu'à au moins 4 m au-delà des limites de la zone 2 des assemblages de phase pélitiques contenant de la biotite qui indiquent que la température minimale de ces régions a été d'environ 400°C. Les textures des roches donnent à penser que des températures encore plus élevées ont peut-être été atteintes à l'intérieur des réacteurs.

THE HIGHEST TEMPERATURES RECORDED BY THE OKLO MINERAL PHASE ASSEMBLAGES AND ROCK TEXTURES.

Biotite-bearing pelitic phase assemblages are observed in reactor zones 2 and 5 and up to at least 4 m outside zone 2, indicating a minimum temperature in these regions of about 400°C. Rock textures suggest that still higher temperatures may have been reached within the reactors.

The mineral phase assemblage observed in a rock is a function of its bulk chemistry and of its environment through time, specifically its history of temperature, pressure, and imposed chemical potentials. Pelitic compositions such as those found in the phyllitic groundmass of nearly all of the Oklo rock types can be particularly useful as temperature indicators and moderately useful for pressure. Both temperature and pressure, however, may have reached maxima and subsequently dropped, tending to produce a sequence of retrograde mineral a phases. The problem then becomes one of searching for any surviving islands of higher grade mineral assemblages. Such higher grade assemblages will indicate minimum conditions that that part of the rock must have reached at some time in the past.

Four sample traverses that go to or into the reactor zones have been studied and are listed in Table 1. There are two additional samples near zone 5 and two inside zone 2.

New biotite-bearing pelitic phase assemblages are commonly observed close to and inside of the reactor zones. Table 2 gives typical electron microprobe analyses of the coarser biotite grains. Significant amounts of K_2O, MgO, and FeO have been lost from the biotite mineral matrices leaving skeletons rich in SiO_2 and Al_2O_3. Muscovite and chlorite are similarly depleted. Figure 1A shows a residual region of muscovite-biotite schist in sample #2184. This small island is surrounded by shear zones composed primarily of muscovite and chlorite.

(text continued on p. 240)

TABLE 1. DATA ON SAMPLE TRAVERSES

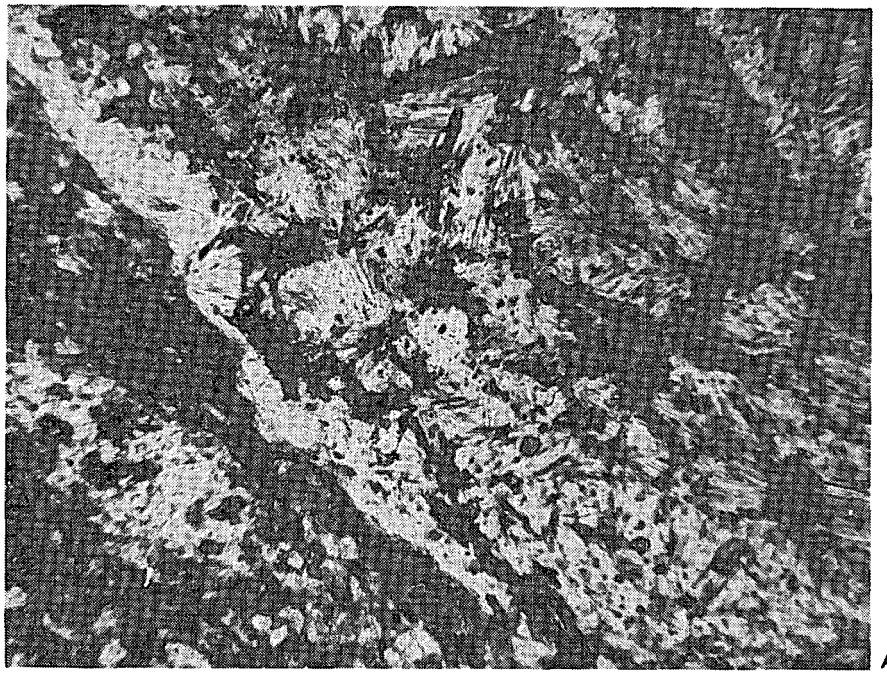
Traverse	Sample Location	COMUF #	Rock Type[a]	Highest Temperature Mineral in New Pelitic Phase Assemblage
Across zone 5	1 m. below lower edge	2181	gres fin	chlorite[b]
	.25 m " " "	2183	argile verte	chlorite
	.75 m above " "	2184	facies-pile	biotite
	near reactor center	2186	" "	biotite
	.75 m below upper edge	2190	" "	chlorite
	.5 m above " "	2192	conglomerat	chlorite
	1.5 m " " "	2194	gres argileux	chlorite[b]
	2.0 m " " "	2195	gres moyen	chlorite[b]
Near zone 5	3 m outside	2200	moyen congl.	chlorite
	1.5 m outside	2161	gres moyen	chlorite
Northwest Edge of zone 2	1 m outside	2430	sandstone	chlorite
	.5 m outside	2429	sandstone	chlorite
	.5 m outside	2428	sandstone	chlorite
	2 m inside	1899/5	facies-pile	minor biotite
	2 m inside	1421/5	facies-pile	minor biotite
Southeast Edge of zone 2	4 m outside	1022	sandstone	minor biotite
	3 m outside	1021	fault breccia	minor biotite
	2 m outside	1017	" "	biotite
	1 m outside	1013	" "	biotite
	reactor edge	1009	extreme "	chlorite
Southwest Edge	3.5 m outside	2292	fault breccia	chlorite
	2.5 m outside	2283	" "	chlorite
	2 m outside	2282	" "	minor biotite
	.5 m inside	1755	facies-pile	chlorite
Inside zone 2		2374	facies-pile	biotite
		1183	" "	biotite

[a] French name assignments used where known, otherwise, name derived from texture in thin section.

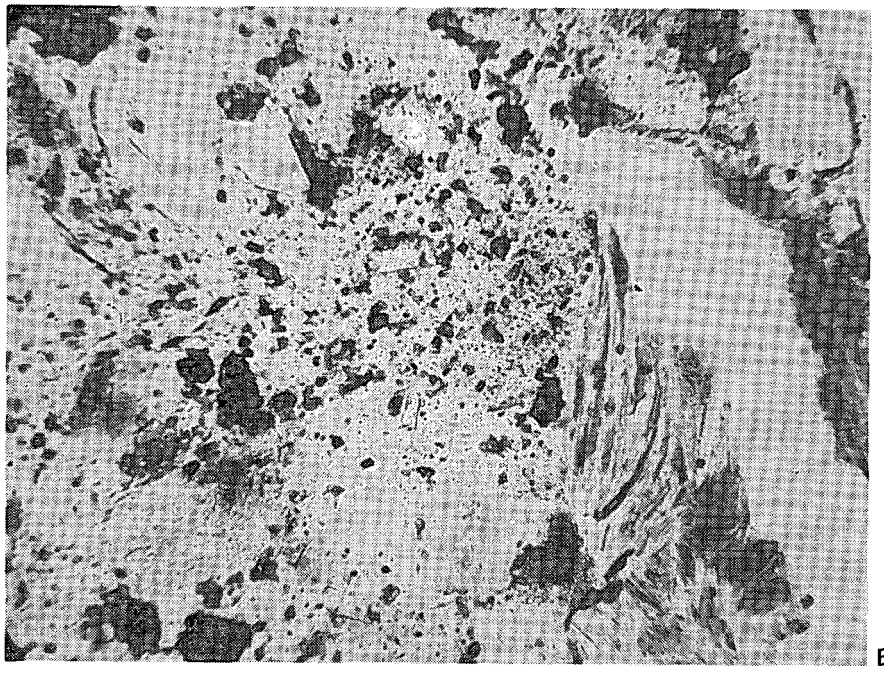
[b] A pleochroic brown Fe-rich muscovite is also present.

TABLE 2. TYPICAL BIOTITE ELECTRON MICROPROBE ANALYSES IN WEIGHT PER CENT

Sample #	2184	2184	2190	1899/5	1421/5	1421/5	2374	2374	1183	1183
SiO_2	38.46	38.55	37.54	37.19	37.98	37.73	37.10	35.57	37.26	38.73
TiO_2	0.07	0.08	0.06	0.07	0.11	0.65	0.07	0.04	0.05	0.04
Al_2O_3	23.54	21.87	28.44	24.70	25.71	25.08	21.16	22.70	24.30	24.85
FeO	14.23	20.98	11.64	10.39	10.74	10.58	19.80	16.06	20.26	16.31
MnO	0.05	0.08	0.07				0.50	0.52	0.19	0.13
MgO	1.09	0.85	1.35	12.89	12.42	13.16	4.21	6.72	6.47	6.25
CaO	0.16	0.30	0.22	0.15	0.30	0.25	0.10	0.16	0.28	0.21
Na_2O	0.06	0.07	0.06	0.10	0.09	0.07	0.11	0.08	0.04	0.07
K_2O	4.63	2.42	1.12	0.47	0.49	0.52	3.10	1.34	1.75	1.45
F	0.28	0.00	0.39				0.30	0.00	0.26	0.53
Cr_2O_3	0.02	0.07	0.03				0.02	0.00	0.01	0.04
Total	82.59	85.27	80.92	85.96	87.84	88.04	86.47	83.19	90.87	88.61

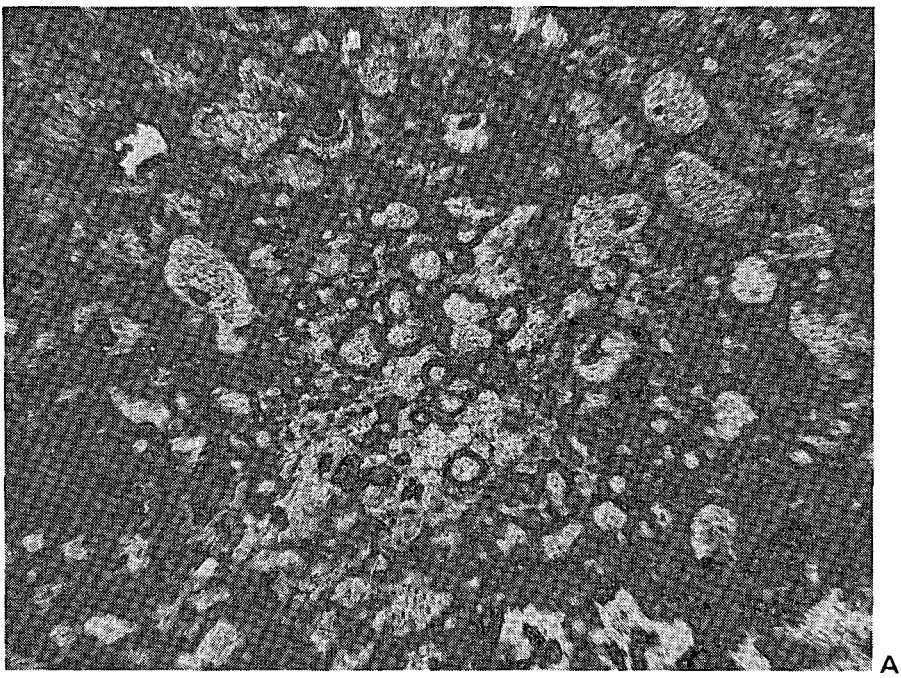


A



B

FIG. 1. A. Muscovite (white in photo) and biotite (light grey) schist region bordered by lower-grade fine-grained assemblages at lower left (sample #2184, 220X). B. Pseudomorphs after fibrolitic sillimanite in lower right and upper left of photo (sample #2282, 220X).



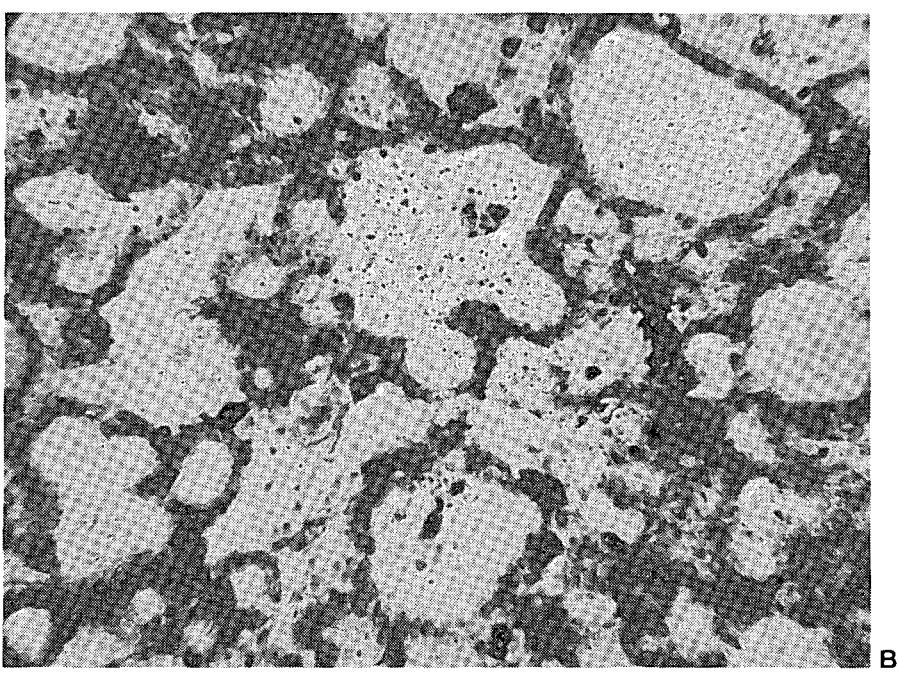


FIG.2. A. Curious blobby textures in reactor zone 2 sample (#1421/5, 88X). B. Higher magnification of right central region above (#1421/5, 220X).

Figure 1B shows typical pseudomorphs of fibrolitic sillimanite observed in sample #2282. Their present chemical composition is that of chlorite (e.g., large mass at lower right) or kaolin (smaller mass in upper left). Sample #2282 includes both probable detrital material and angular breccia fragments. The metamorphic grade of the fragments ranges from low temperature greenschist facies phyllites to altered high temperature amphibolite facies schists. The most recent faulting thus postdated a metamorphic event. The sillimanite may have been introduced in detritus or breccia or it may have formed nearby and later retrograded. The Al_2O_3-SiO_2 composition of sillimanite may have helped preserve its texture.

Temperatures above 400°C are indicated by the biotite-bearing pelitic assemblages that are observed in reactor zone 5 and that begin as much as 4 m. outside of reactor zone 2 ([1] Winkler, 1974). Detrital mica disappears approximately concurrently with the appearance of biotite. No garnet or good chlorite pseudomorphs of garnet are observed. The absence of garnet suggests pressures below 4 kilobars. Fibrolitic sillimanite formation would require temperatures of at least 600°C under relatively shallow (less than 7 km) conditions.

The fact that temperatures of at least 400°C were encountered several meters outside of reactor zone 2 suggests that higher temperatures may have been reached in the reactor's interior. Relict textures in the reactor zone rock also suggest temperatures near or a little above the minimum melting point (650-700°C). Strong chemical zonation characteristic of high temperatures is observed in both zones 5 and 6, e.g. regions of fine-grained muscovite rimmed by biotite or chlorite and the reverse. Figure 2 shows curious globular features in zone 2 that resemble immiscible viscous felsic melt in a more fluid mafic melt. Other reactor zone textures (e.g. samples #2374 and #1183) suggest possible plastic flow. Temperatures above 600°C may have been reached within the reactors.

REFERENCE

[1] WINKLER, H.G.F., Petrogenesis of Metamorphic Rocks, Springer-Verlag, New York (1974).

DISCUSSION

B. POTY: Votre communication me paraît très importante car elle nous donne certaines limites de pression et température pour la réaction nucléaire. L'apparition de biotite en bordure des réacteurs n'est pas surprenante. Par contre la découverte de sillimanite dans les pélites de la zone 2 est d'un intérêt exceptionnel. En effet les études d'inclusions fluides (Openshaw et al., IAEA-TC-119/9, présents comptes rendus) nous donnent des limites de température assez larges, de 380°C à plus de 600°C, parce que l'on ne connaît pas les relations entre la pression des fluides et la pression des solides. L'apparition de la sillimanite dans la zone 2 nous obligerait à considérer que la pression des fluides était très proche de la pression des solides et à ramener les limites des températures des réactions nucléaires à des valeurs comprises entre 450°C et plus

de 600°C. Il est donc très important de déterminer si la sillimanite s'est bien formée durant la réaction nucléaire. Pouvez-vous prouver qu'elle ne peut absolument pas être détritique?

Rosemary J. VIDALE: On trouve plusieurs morceaux, frais et en bon état, de sillimanite fibrolitique dans un fragment qui semble provenir d'une brèche de zone de cisaillement. Le fragment n'a aucune texture détritique. Ce qui me paraît problématique est le mélange de types métamorphiques différents représentés dans les fragments de la brèche.

F. WEBER: Etes-vous certaine que la biotite que vous avez observée est néoformée et qu'il ne s'agit pas de reliquats de biotites détritiques?

Rosemary J. VIDALE: On observe que la biotite détritique s'altère et disparaît progressivement au fur et à mesure que l'on s'approche des zones de réaction dans les quatre traverses. La biotite nouvelle est d'abord très petite; sa taille augmente à l'intérieur des zones de réaction (quelque 10 μm de largeur). Elle ne paraît pas être un pseudomorphe d'une biotite plus ancienne ou une altération quelconque d'une telle biotite.

R. BROUSSE: La fibrolite peut être regardée comme métastable très aisément. N'est-il pas téméraire de fixer à 650°C sous faible pression la limite de stabilité de la sillimanite?

Rosemary J.VIDALE: J'ai dit que pour la sillimanite il faut une température de 600°C, et plus probablement de 650°C pour une profondeur relativement faible (moins de 7 km). Pour la sillimanite massive il faudrait 650°C d'après la courbe univariante de Richardson, Gilbert et Bell et aussi celle de Holdaway. Les travaux théoriques (Zen) et expérimentaux (Holdaway, Newton) visant à évaluer les effets des déplacements n'ont pas sensiblement modifié la courbe dans ce domaine de températures et de pressions. Quelquefois cependant, on observe de la sillimanite fibrolitique avant la variété massive sur le terrain (p. ex. dans le Dutchess County, N.Y., Etats-Unis).

R. BROUSSE: Pour déterminer les fantômes ayant perdu Ca, Mg, etc., et les attribuer à des biotites plutôt qu'à des stipnomélanes, n'avez-vous pas dû faire jouer un rôle prédominant au rapport Si/Al en attribuant, a priori, une même non-mobilité aux deux ions?

Rosemary J. VIDALE: Je me suis fondée en grande partie sur la quantité de K_2O dans le mica brun pléochroïque. Cette quantité, qui a atteint jusqu'à 5%, était en général supérieure à 3%. Si/Al caractérisait aussi la biotite.

APPLICATION OF Eh-pH DIAGRAMS TO PROBLEMS OF RETENTION AND/OR MIGRATION OF FISSIOGENIC ELEMENTS AT OKLO

D.G. BROOKINS
Department of Geology,
University of New Mexico,
Albuquerque, New Mexico,
United States of America

Résumé–Abstract

L'APPLICATION DES DIAGRAMMES Eh-pH AUX PROBLEMES DE RETENTION ET/OU DE MIGRATION DES ELEMENTS FISSIOGENIQUES A OKLO.

Un des problèmes cruciaux que pose le réacteur naturel d'Oklo est celui du rapport entre la rétention et la migration des éléments fissiogéniques. Les diagrammes Eh-pH peuvent faciliter le traitement de ce problème parce que l'on connaît les contraintes Eh-pH sous lesquelles s'est formé le minerai d'uranium d'Oklo. L'uranium s'est déposé à basse température et sous faible pression; on peut donc prendre 25°C et 1 atmosphère comme données thermodynamiques pour la construction des diagrammes. Les diagrammes Eh-pH des éléments pour lesquels Z est compris entre 39 et 52 indiquent que les éléments à tendance lithophile ou oxyphile (Y, Zr, Nb, Rh, Sn) devraient avoir été retenus alors que, parmi les éléments à tendance chalcophile (Mo, Pd, Ag, Cd, Tc, Ru, In, Sb, Te), seuls ceux qui peuvent exister sous forme de sulfures ou d'oxydes (± carbonate) auraient dû être retenus. La rétention de tous ces éléments à l'exception de Cd et Mo est prévue et conforme aux mesures effectuées; il y a eu migration de Cd et Mo dans des conditions de stabilité du sulfate. La charge, le rayon ionique et l'électronégativité des éléments des terres rares sont voisins de ceux de U^{4+} et les indications recueillies attestent, conformément à l'interprétation de Eh-pH, une rétention quasi totale. On a également constaté la présence de Pu, Np et d'une certaine quantité d'Am; les diagrammes Eh-pH paraissent indiquer que ces éléments ont été retenus dans un gîte de pechblende cependant que Bi chalcophile ainsi que Pb formé à partir de U et de Th se sont rediffusés par endroits tout en restant retenus. Les constatations confirment également ces prévisions. Les diagrammes Eh-pH ne présentent pas une utilité particulière pour les éléments alcalins, alcalino-terreux et les halogénures bien que Ba (et par conséquent Ra) sous forme de baryte manifeste un vaste champ de stabilité. On prévoit une migration de Rb, Sr, Br et I, dont l'étendue est inconnue.

APPLICATION OF Eh-pH DIAGRAMS TO PROBLEMS OF RETENTION AND/OR MIGRATION OF FISSIOGENIC ELEMENTS AT OKLO.

One of the key problems associated with the Oklo Natural Reactor is that of retention versus migration of fissiogenic elements. Eh-pH diagrams are useful in examining this problem because the Eh-pH constraints for the formation of the Oklo uranium ore are known. The uranium was deposited under low temperature and pressure conditions; hence, 25°C, 1 atm thermodynamic data can be used for the construction of the diagrams. Eh-pH diagrams for elements from Z = 39 to 52 indicate that elements with lithophile or oxyphile tendencies (Y, Zr, Nb, Rh, Sn) should have been retained while, of the elements with chalcophile

tendencies (Mo, Pd, Ag, Cd, Tc, Ru, In, Sb, Te), only those species which can exist both as sulphide or oxide (± carbonate) phases should have been retained. Retention of all these elements except Cd and Mo is predicted and consistent with measurements; Cd and Mo migrated under sulphate-stable conditions. The rare-earth elements (REE) are close in charge, ionic radius and electronegativity to U^{4+}, and data consistent with Eh-pH interpretation indicate nearly complete retention. Pu, Np and some Am were also produced and Eh–pH diagrams suggest retention of these elements in host pitchblende while chalcophile Bi, plus Pb formed from U and Th, were locally redistributed but nevertheless retained. The data again support these predictions. Eh-pH diagrams are not especially useful for alkali, alkaline earth or halide elements although Ba (and thus Ra) as barite exhibits a wide stability field. Migration of Rb, Sr, Br, I is predicted, although to what extent is not known.

INTRODUCTION

The Oklo natural reactor, Republic of Gabon, was operative for some 500 000 years at about 1.8 billion years ago [1]. The reactor fuel consisted of a mixture of ^{235}U(93%), ^{238}U(3%) and ^{239}Pu (4%) [1,2]. It has been demonstrated that many of the fissiogenic products, plus those produced by neutron capture (i.e. Pu, Am), did not migrate extensively if at all from the host pitchblende and associate gangue environment. The summaries presented [1,3] indicate extensive loss of fissiogenic Kr and Xe, migration of an uncertain degree of alkali, alkaline earth and halide elements, and migration of some chalcophile elements (Mo, Cd).

Eh-pH diagrams have been used with considerable success by many investigators to investigate geological problems [4]; it is this approach which shall be attempted here. Eh-pH diagrams are best used where the temperature and pressure were close to 25°C and at low pressures, one main reason being the abundance of thermochemical data for these conditions and a paucity of data for higher temperatures and pressures. With this in mind, the setting of the Oklo deposit becomes of extreme importance. Chauvet [5], Pfiffelmann [6] and Weber [7] have stressed the probable low-temperature and low-pressure conditions for the low-grade ore at Oklo, and Chauvet [5] has argued for formation of the high-grade ore from the low-grade ore at essentially the same low-temperature and low-pressure conditions. Weber [7] has further pointed out similarities between the low-grade Oklo ore and uranium ore from the Colorado Plateau despite their great difference in geological age.

The lines of evidence arguing for low-temperature and low-pressure conditions for the formation of the Oklo uranium ore are thus: (a) Preservation of fossil algae in the host Francevillian series; (b) preservation of disordered IMd illite which yield K-Ar dates essentially identical to Rb-Sr dates [1]; (c) presence of primary low-temperature, low-pressure gangue minerals [1]; (d) various lines of evidence for the Colorado Plateau, USA, uranium ore indicating low temperatures and low pressures [3]. Further, Eh-pH constraints for the Colorado Plateau uranium deposits are known [3].

Thus, low-temperature and low-pressure conditions can safely be assumed in discussion of the Oklo uranium ore and gangue minerals. Where locally high temperatures may have been obtained in the reactor ores, Eh-pH conditions are unknown, but the mineralogical studies [1] indicate overall low-temperature and low-pressure conditions. Brookins [3] has used Eh-pH diagrams in discussing the uranium deposits of the Grants Mineral Belt of the Colorado Plateau. Figure 1 is a modified version of the system U-C-S-Si-H-O for 25°C, 1 atm pressure conditions.[1] The area designated as "uranium ore" in Fig.1 is defined by an approximate range in Eh from -0.05 to 0.45, and in the pH range from about 7 to 8.5. This area includes part of the boundary between pyrite and haematite, both of which have been identified as primary phases at Oklo [1]. Further, pHs lower than about 7 would allow dissolution of some of the carbonate phases which are present and pH conditions greater than 8.5 would allow minerals not noted in the Oklo deposits to form. Hence the small area designated as "U ore" in Fig. 1 should be used for subsequent Eh-pH diagrams. Further assumptions are: (a) Activity of dissolved sulphur = 10^{-3}; (b) activity of dissolved carbon = 10^{-2}; (c) activity of dissolved iron = 10^{-6}; (d) activity of dissolved silica = $10^{-3.5}$ (i.e. quartz saturation). For the activities of aqueous species of elements shown in subsequent diagrams, values of 10^{-6} and 10^{-8} have been used; the former is based on reasonable estimates for many metal ions in naturally occurring aqueous systems [4], and the latter based on the very small amount of fissiogenic elements produced in some instances. While I readily admit these values can be questioned, they are satisfactory for use in attempting to use Eh-pH diagrams to predict either retention or migration for the elements considered. (Figures 1–21, and the data for the figures, are modified from manuscripts by the author that are now in press (Chem. Geol.)).

Of extreme importance is the mineral assemblage identified here as a zone or retention. The work of Havette et al. [8] has shown that some elements are indeed contained within the host pitchblende yet others, not obviously present within pitchblende, are nevertheless restricted to the immediate environment surrounding the pitchblende as indicated by spark-source mass-spectrographic analysis [1]. Thus, for present purposes I shall define the zone of retention as not only the host pitchblende but also the gangue minerals in the immediate vicinity of the pitchblende, especially sulphides, carbonates, oxides-hydroxides, clay minerals, and possibly sulphates. Vein sulphides have been demonstrated to contain abundant radiogenic lead [9] and thus should also contain other fissiogenic chalcophile elements. Should they escape from host pitchblende, some lithophile and oxyphile elements will show a greater affinity for oxides-hydroxides or carbonates, or possibly be adsorbed by clay minerals. With reference to Eh-pH diagrams then, those elements for which hypothetical solid phases exist, both

[1] Figures are presented in the Annex.

above and below the pyrite-haematite fence (Fig. 1) in the pH range of 7 to 8.5, are those for which arguments of retention can be made. Similarly, should aqueous species be present above or below (or both) the pyrite-haematite fence, then a prediction of migration may be made. A further consideration is that of solid solution which, for simplicity, will not be shown on the Eh-pH diagrams given here, but which may actually allow some elements to be retained which might otherwise migrate. These elements will be discussed in turn as will the role of clay mineral adsorption.

Yttrium and the rare-earth elements (REE)

The Eh-pH diagram for yttrium is shown as Fig. 2. Because of similar ionic radii, electro-negativities, and identical charge, this diagram is applicable for the REE as well. Were one to base predictions for retention based on just the Y_2O_3:Y^{3+} equilibria alone, then a strong argument for migration could be made. The presence of a wide stability field of $Y_2(CO_3)_3$, however, shows that Y^{3+} is only released at pH = 5.5 when the carbonate species dissolves.

In the case of yttrium and the REE, however, a major factor is the high degree of ionic substitution of Y and REE for U^{4+} in host pitchblende. This is supported by earlier reports of virtual 100% retention of REE at OKLO [1].

Lithophile and oxyphile elements (Zr, Nb, Rh, Sn – Figs 3–6)

Zirconium as either $ZrSiO_4$, ZrO_2 or in host pitchblende (i.e. Zr^{4+} for U^{4+}) argue for retention at Oklo. This is consistent with measurements reported in 1975 [1]. An argument can be made for $ZrSiO_4$ as host, or possibly as (U, Zr)SiO_4 since coffinite has been identified in the ore zones.

Niobium, too, is predicted to be retained owing to the large stability field of Nb_2O_5. At Oklo, there is not only a good chance for retention in host pitchblende but also in oxide-hydroxide phases in gangue minerals.

Rhodium as the native element and Sn as the oxide occupy wide areas in Eh-pH space (Figs 4, 5) and thus their retention is predicted.

Chalcophile elements (Mo, Pd, Ag, Cd, Tc, Ru, In, Sb, Te – Figs 7–16)

Of the elements with chalcophile tendencies, only Mo and Cd (Figs 7 and 8) systems exhibit no stable phase above the pyrite-haematite fence (see Fig. 1) in the pH range 7 to 8.5. Mo_3O_8 is stable at pH less than 5.5 and Cd $(OH)_2$ only above pH = 9.5 – 10.0. Hence, prediction of migration of these species is made for conditions likely at Oklo. This is consistent with the data of Frejacques et al. [10] for Mo, and DeLaeter and Rosman [11] for Cd. What is not clear, however, is whether or not these elements might be close to the reactor zones once reducing conditions were again encountered.

Technetium behaviour at Oklo is uncertain. The Eh-pH diagram (Fig. 9) would indicate retention, yet the thermochemical data are not as complete as desirable. Frejacques et al. [10] have presented arguments for migration of fissiogenic ^{99}Tc but more recent work (Maeck et al.[2]) argues for either partial retention or local redistribution. The Eh-pH diagram for rhenium species is included here to help examine this problem (Fig. 10) since technetium and rhenium exhibit similar geochemistry. The rhenium diagram indicates stability fields for ReS_2 and ReO_2 in the pH and Eh range of interest; and it can thus be argued that Tc, too, should have been retained at Oklo. Thus, the slight excesses of ^{99}Ru formed from ^{99}Tc may indicate local migration of Tc whereas ^{99}Ru depletion indicates some redistribution.

Ruthenium is of interest for many reasons. Its low crustal abundance and very different fissiogenic isotopes relative to normal isotopic composition make it useful for searching for other natural fission reactors, investigating ruthenium geochronometric techniques, etc. At Oklo several investigators [1] have argued for local migration but overall retention. This is consistent with the Eh-pH diagram (Fig. 11) where RuS_2 is stable in the pyrite field and RuO_2 in the haematite field. Further, Ru^{4+} can substitute for Fe^{3+}, Ti^{4+}, etc.

Spark-source mass-spectrographic data [1] and predictions from the Eh-pH diagram (Fig. 12) indicate that palladium retention is probable. PdS or PdS_2 are stable in the sulphide field and $Pd(OH)_4$ (i.e. probably as PdO_2 in nature but no free energy data are available for PdO_2) in the haematite field. Further, due to similar ionic radii, some Pd^{2+} (if formed) might be found in host pitchblende substituting for U^{4+}.

Silver retention at Oklo has been documented [11], a conclusion entirely compatible with Fig. 13 where large stability fields for Ag_2S and native Ag are noted over the Eh and pH range of interest. Further, because of its large ionic radius, some Ag^+ may be incorporated into radiogenic-Pb-rich galena found in veins surrounding and cutting pitchblende.

The diagrams for In, Sb and Te (Figs 14–16) are discussed together, primarily because of lack of spark-source mass-spectrographic data. Based on Figs 14–16 all these species should be retained in or near the host pitchblende, yet measured data are not available to test this prediction.

Bismuth and lead (Fig. 17)

The Eh-pH diagram for Bi is shown as Fig. 17. Under high pH conditions Bi may be present as the native metal, as the mineral bismite (Bi_2O_3), or as the mineral bismuthinite (Bi_2S_3), depending on Eh. In the Eh-pH range of interest

---

[2] IAEA-TC-119/35, these Proceedings.

at Oklo, bismuthinite is of prime importance since the boundary between Bi_2S_3 and BiO^+, which is roughly parallel to the boundary between pyrite and haematite (Fig. 1), occurs at a slightly higher position in Eh-pH space. Hence, Bi_2S_3 is more stable than pyrite under slightly oxidizing conditions. This is important since Frejacques et al. [10] suggest that Bi may have migrated in appreciable quantities, basing their argument on the fact that radiogenic Pb has been quite mobile at Oklo. As the ionic radii of Bi^{3+} (1.10 Å) and Pb^{2+} (1.26 Å) are quite different, it can also be argued that Bi may behave independently of Pb. Certainly if widespread remobilization of Bi did occur then one would not expect it to be present in those areas of the reactor zones where excess ^{235}U and ^{232}Th are noted. Further, the ionic radius of Bi^{3+} is such that, even under slightly oxidizing conditions, it may have been retained in the pitchblende structure (i.e., for U^{4+}) to a greater extent than Pb^{2+}.

Lead redistribution is to be expected for reasons discussed above, but this redistribution should be local as demonstrated by the work of Lancelot et al. [9], and the fact that in the pH range of interest PbS is stable in the sulphide field and $PbSO_3$ in the sulphate field (Fig. 7.26e in Ref. [4]).

Plutonium

The diagram for Pu species is shown as Fig. 18. When compared with the diagram for U species (Fig. 1) it is evident that PuO_2 shows remarkable stability. The only non-carbonate aqueous species worth considering are Pu^{3+} and PuO_2^{2+}, both of which exhibit moderately wide stability fields at pH values less than 7. The species PuO_2^+ is metastable with respect to PuO_2^{2+}; and Pu^{4+} is not shown since its stability field, when PuO_2 is taken as the solid phase in equilibrium with it, occurs at pH values less than 1 [12, 13]. Brookins [13], citing data from Cleveland [12], has proposed that, should Pu(OH) be the stable solid phase, then Pu^{4+} may occur at pH values up to 3.5. Pu^{4+}, however, breaks down to Pu^{3+} and PuO_2^{2+} (as well as some PuO_2^+) but the solution still contains 67% Pu^{4+} after breaking down. Figure 18 is thus somewhat oversimplified by not including Pu^{4+} but this is justified because PuO_2 is stable with respect to $Pu(OH)_4$.

There are several known carbonate complexes of Pu, but of these only the complexes $PuO_2(CO_3)_2^{2-}$ and $PuO_2CO_3OH^-$ fall within the stability field of water and these only at high Eh values (over a wide range of pH). While these species may be important in very high P_{CO_2} environments it is unlikely that they were important at Oklo.

That PuO_2 should exhibit a wide stability range as shown in Fig. 18 is especially true for Oklo where Frejacques et al. [10] have demonstrated that Pu produced is almost entirely contained within UO_2 grains. An almost ideal solid solution exists between PuO_2 and UO_2 at high temperatures (see Fig. 2196 in Levin et al. [14]) and the ionic radii of Pu^{4+} and U^{4+} are nearly identical. At

low temperatures, such as at Oklo, some U(IV) may oxidize to U(VI) such that the resultant pitchblende is structurally weak. The Pu(IV) formed remains unoxidized so that even if the pitchblende should be altered it is highly probable that the Pu(IV) will remain behind as PuO_2.

Neptunium (Fig. 19)

The Np species are shown in Fig. 19. Only NpO_2, NpO_2^+, Np^{4+}, Np^{3+} and some NpO_2^{2+} are likely in the water stability field. Np_2O_3 has not been synthesized and would probably fall below the lower stability limit for water by analogy with Pu_2O_3 behaviour. Np^{4+} and NpO_2^{2+} may occur in natural waters but only at extremely low pH values.

For discussion of Oklo ores, Np is of extreme importance because of the very long half-life of ^{237}Np (2.14×10^6 a). From crystal chemical considerations one can postulate that Np(IV), like Pu(IV), should be retained within host pitchblende grains because Np^{4+} is similar in ionic radius to both Pu^{4+} and U^{4+}, providing U(IV)–U(VI) oxidation did not cause extensive damage to the crystal structure.

Regardless of U migration, however, Np as NpO_2 exhibits a wide stability range in terms of pH and the dioxide is stable to relatively high Eh values as well (certainly well above the haematite-pyrite boundary – Fig. 1).

Americium and europium (Figs 20, 21)

Am and Eu exhibit similar chemistries as either Am^{3+} or Eu^{3+} and may safely be discussed together. The Eh-pH diagrams for Am and Eu species for which reliable thermodynamic data exist are shown as Figs 20 and 21. Am (III) occurs as both Am^{3+} and Am $(OH)_3$, while Am (IV) occurs as AmO_2. Eu (III) occurs as Eu^{3+} and $Eu(OH)_3$, and Eu (II) as Eu^{2+} occupies a small field within the confines of the water stability field.

First inspection of Fig. 20 would suggest that, at pH values from 5.2 to 5.9 and at Eh values from near 0 to –0.35, migration of ^{241}Am may occur owing to solubility of $Am(OH)_3$. Were one dealing solely with the system Am-O-H this may well be the case, but at Oklo one must also consider the well-documented fact that the REE have been essentially 100% retained. Thus, inspection of Fig. 21 shows that the field of $Eu(OH)_3$ persists to pH near 7, depending on the chosen activity of Eu^{3+}. Further, unlike many REE, $Eu(OH)_3$ is stable with respect to Eu_2O_3. Finally, for REE for which thermodynamic data for carbonate species exist, the sequence for trivalent REE is, from high pH to low pH: M_2O_3 (or $M(OH)_3$): $M_2(CO_3)_3$: M^{3+} with M^{3+} stable at pH values of 6 or less.

Thus, several mechanisms can be postulated to explain the necessary ^{241}Am retention at Oklo: (a) Am (III) : U(IV) substitution due to similar ionic radii;

(b) as $Am(OH)_3$; (c) a mix crystal of $(Eu, Am)_2(CO_3)_3$; (d) a combination of (b) or (c) of the above. Certainly in a carbonate-buffered system such as that postulated for Oklo then the necessary pH for retention of Eu (and thus Am) as a carbonate is probable.

Alkali, alkaline earth, and halide elements

Several investigators [1] have shown that there has been extensive movement of alkali, alkaline earth, and halide elements at Oklo. In the case of Rb, Sr and possibly Cs, small amounts of fissiogenic material have been retained in the material admixed with pitchblende; how much younger, normal Rb, Sr, Cs have been added as diluents has not been determined. Further, Brookins (unpub.) has found fissiogenic Rb in low-grade uranium ore with normal 235/238 ratios, thus indicating migration of the fissiogenic Rb from some other location to the site where the sample was found. The data for Ba are difficult to interpret owing to the large amounts of the normal element present; Naudet [15] has suggested that some fissiogenic Ba is present and Brookins et al. [16] have argued for the presence of excess ^{135}Ba and ^{137}Ba as evidence for retention of both ^{135}Cs and ^{137}Cs for approximately 25 million years (minimum value) although presence of fissiogenic ^{138}Ba could not, owing to dilution with normal Ba, be demonstrated. Data for iodine suggest extensive loss and bromine has not been investigated. This is unfortunate as fissiogenic Br is isotopically very different from normal Br and thus future study of Br systematics would allow estimates of total halide migration to be made. For all the alkali, alkaline earth, and halide elements, however, Eh-pH diagrams are not useful.

Discussion and conclusions

The discussion for each element for which an Eh-pH diagram has been constructed has been made earlier and will only be briefly repeated here. Further, the predictions of retention versus migration based on Eh-pH diagrams are presented in Table I along with a tabulation of comments concerning retention-migration based on measurements. In general, the agreement is very good.

For elements with electronegativities, ionic radii and charge equal or close to uranium (IV) (i.e. Y, REE, Zr, Nb, Rh, Sn, Pu, Np, Am), retention in host pitchblende, or very local redistribution of some of the oxide-hydroxide or carbonate gangue minerals, is entirely predictable and consistent with measurement.

For elements with strongly chalcophile tendencies, i.e. Mo, Cd, Ag, Tc, Ru, In, Sb, Te, Bi, Pd, retention as either sulphide or in carbonate (or possibly oxide-hydroxide or adsorbed on clay minerals) is made for all except Mo and Cd. These

TABLE I. COMPARISON OF PREDICTED AND OBSERVED BEHAVIOUR OF FISSIOGENIC ELEMENTS AT OKLO

Element	Prediction[a]	Observation[b]
Y, REE	Retention	Retention
Zr, Nb	Retention	Retention, some local redistribution
Mo, Cd	Some migration	Some migration
Tc	Retention or local redistribution	Some migration
Ru	Retention	Some migration; local redistribution
Rh, Ag, Pd	Retention	Retention
In, Sb, Sn, Te	Retention	Data lacking
Bi, Pb	Retention	Local redistribution
Np, Pu, Am	Retention	Retention

[a] From Eh-pH diagrams.
[b] Spark-source mass-spectrographic data [1].

two elements do not form any stable compound above the pyrite-haematite fence and thus migration would be predicted, as is apparently the case. Data are, however, lacking for In and Sb.

Alkali and alkaline earth migration has taken place at Oklo although when, and to what degree, is uncertain. Data previously published [1], and unpublished information (Brookins), indicate that local redistribution may have been important relative to complete removal of these elements. Data for the halides are similarly difficult to interpret pending investigation of bromine systematics. Only Kr and Xe were apparently significantly removed from the Oklo ores and their gangue minerals.

For application to waste from man-made reactors the present study, in conjunction with other studies ([1] and paper IAEA-TC-119/26[3]), indicate that the gangue minerals (including sulphides, some sulphates, oxides-hydroxides, carbonates, clay minerals) acted as effective agents in preventing widespread migration of the fissiogenic elements not retained in the host pitchblende. These data can then be used to argue positively for investigation of shales for possible waste repositories in tectonically stable areas.

[3] These Proceedings.

ACKNOWLEDGEMENTS

I have benefitted by fruitful discussion of many of the topics presented with various staff members of the Los Alamos Scientific Laboratory (LASL); I especially wish to acknowledge G.A. Cowan, K.E. Apt, J.P. Balagna, E.R. Bryant, R. Vidale. LASL, through DOE funding, provided partial financial support for this study.

REFERENCES

[1] INTERNATIONAL ATOMIC ENERGY AGENCY, The Oklo Phenomenon (Proc. Symp. Libreville, Gabon, 1975), IAEA, Vienna (1975) 647 pp.
[2] COWAN, G.A., A natural fission reactor, Sci. Am. 235 (1976) 36.
[3] BROOKINS, D.B., The Grants Mineral Belt, New Mexico: Comments on the coffinite-uraninite relationship, probable clay mineral reactions, and pyrite formation, New Mexico Geol. Soc. Spec. Publ. 6 (1976a) 158.
[4] GARRELS, R.M., CHRIST, C.G., Solutions, Minerals and Equilibria, Harper and Row, New York (1965) 450.
[5] CHAUVET, R.J., in The Oklo Phenomenon (Proc. Symp. Libreville, Gabon, 1975), IAEA, Vienna (1975) 53–66.
[6] PFIFFELMANN, J.P., Ibid., pp. 37–52.
[7] WEBER, R., Une série précambrienne du Gabon: le Francevillien, sédimentologie, géochimie, relations avec les gîtes minéraux, Ph. D. Thesis, Strasbourg (1969) 328.
[8] HAVETTE, Andrée, NAUDET, R., SLODZIAN, G., in The Oklo Phenomenon (Proc. Symp. Libreville, Gabon, 1975), IAEA, Vienna (1975) 463–78.
[9] LANCELOT, J.R., VITRAC, A., ALLEGRE, C.J., The Oklo natural reactor: age and evolution studies by U-Pb and Rb-Sr systematics, Earth Plan. Sci. Lett. 25 (1975) 189–96.
[10] FREJACQUES, C., BLAIN, C., DEVILLIERS, C., HAGEMANN, R., RUFFENACH, J.C., in The Oklo Phenomenon (Proc. Symp. Libreville, Gabon, 1975), IAEA, Vienna (1975) 509–26.
[11] DE LAETER, J.R., ROSMAN, D.J.R., Ibid., pp. 425–36.
[12] CLEVELAND, J.M., The Chemistry of Plutonium, Gordon and Breach Sci. Pubs., New York (1970) 653 pp.
[13] BROOKINS, D.G., Shale as a repository for radioactive waste: the evidence from Oklo, Environmental Geol. 1 (1976b) 225–69.
[14] LEVIN, E.M., ROBBINS, C.R., McMURDIE, H.F., Phase diagrams for ceramists, 1969 Suppl. Am. Ceram. Soc. Inc. (1969) 625.
[15] NAUDET, R., Summary report on the Oklo Phenomenon, Bull. Inf. Sci. Tech. (Paris), No. 193 (1974) (Eng. trans.) 7–85.
[16] BROOKINS, D.G., LEE, M.J., MUKHOPADHYAY, B., BOLIVAR, S.L., in The Oklo Phenomenon (Proc. Symp. Libreville, Gabon, 1975), IAEA, Vienna (1975) 401–14.

Annex

FIGURES 1 – 21

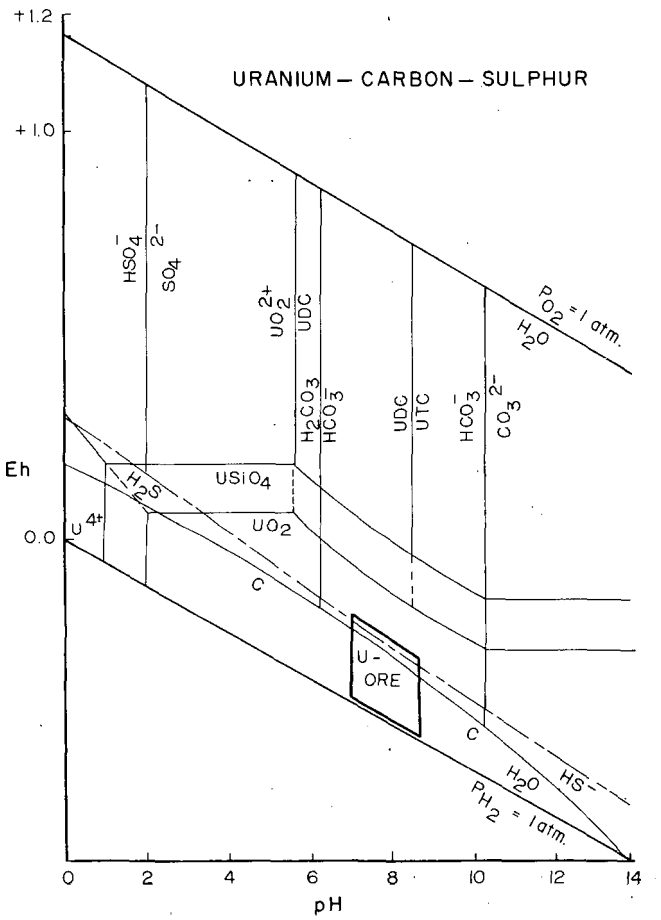


FIG.1. Eh-pH diagram for part of the system U-S-Si-O-H-Fe. Assumed activities: $U = 10^{-6}$, $Fe = 10^{-6}$, $S = 10^{-3}$.

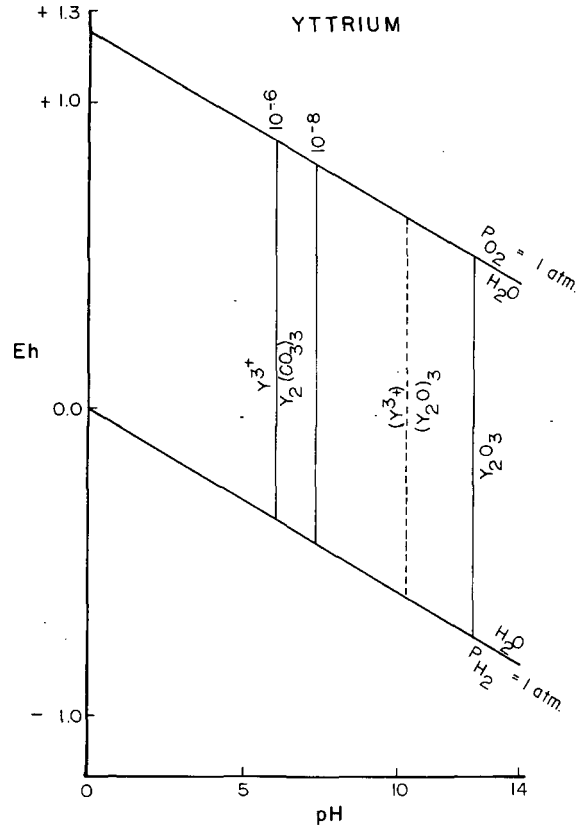


FIG.2. Eh-pH diagram for part of the system Y-C-O-H. Assumed activities: $C = 10^{-3}$, $Y = 10^{-6}$ or 10^{-8} (shown as -6 and -8).

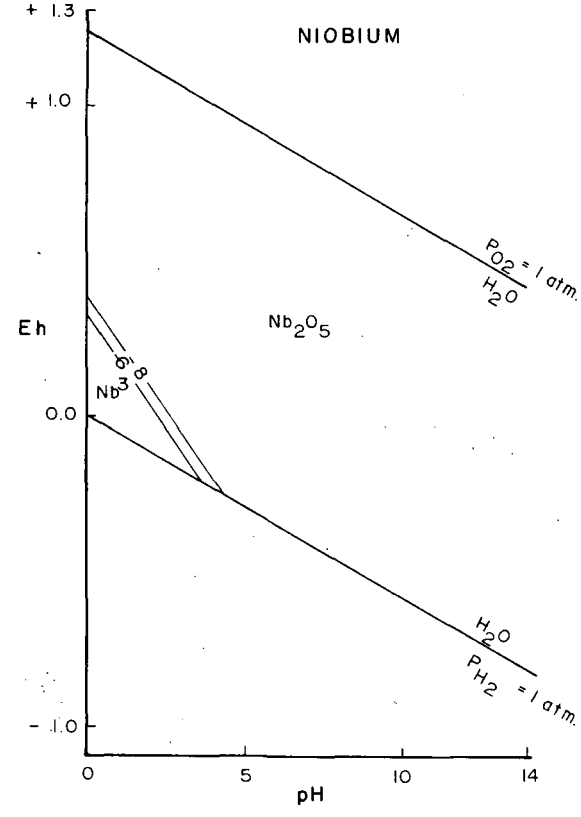


FIG.3. Eh-pH diagram for part of the system Nb-O-H. Activity of dissolved Nb = 10^{-6} or 10^{-8} (shown as -6 and -8).

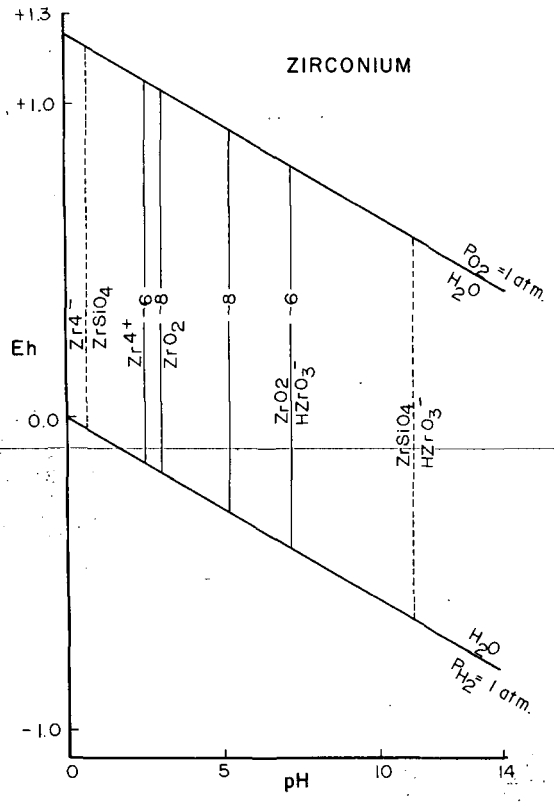


FIG.4. Eh-pH diagram for part of the system Zr-Si-O-H. Activity of dissolved Zr = 10^{-6} or 10^{-8} (shown as -6 and -8); Si = $10^{-3.5}$.

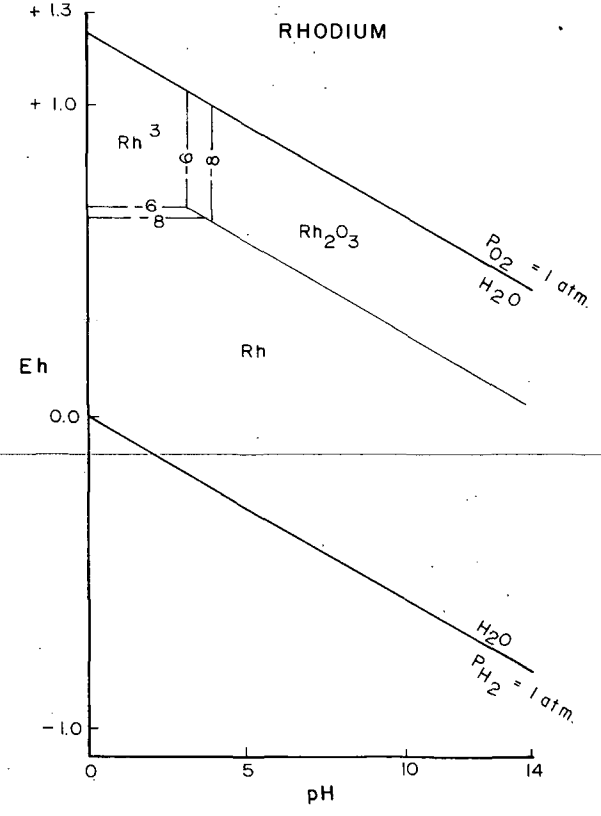


FIG.5. Eh-pH diagram for part of the system Rh-O-H. Activity of dissolved Rh = 10^{-6} or 10^{-8} (shown as -6 and -8).

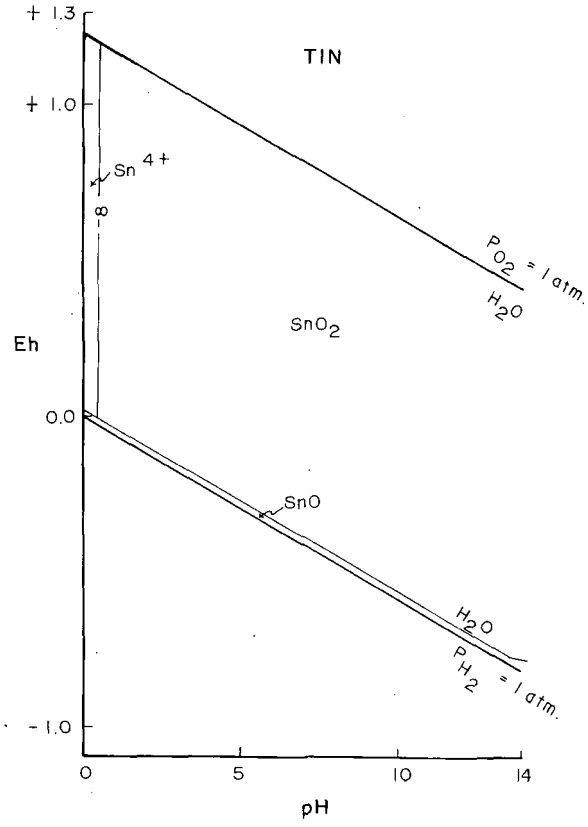


FIG. 6. Eh-pH diagram for part of the system Sn-O-H. Activity of dissolved Sn = 10^{-8} (shown as -8).

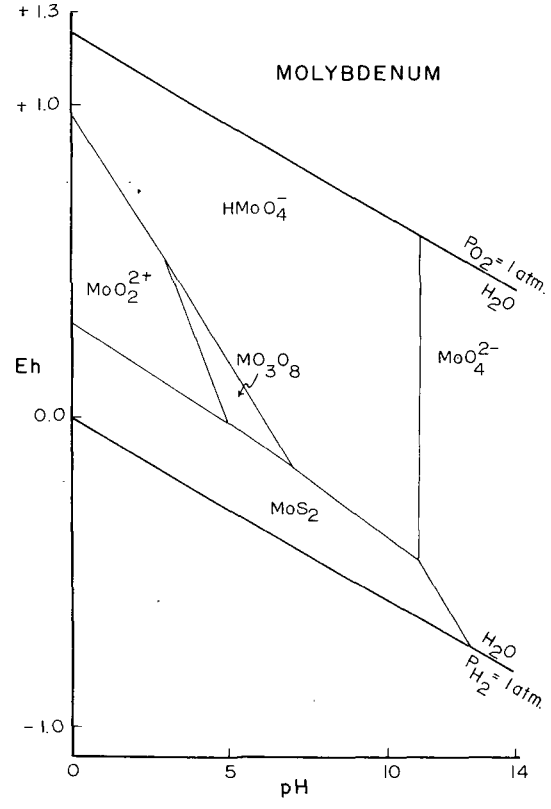


FIG. 7. Eh-pH diagram for part of the system Mo-S-O-H. Activity of dissolved Mo = 10^{-6} or 10^{-8}; S = 10^{-3}.

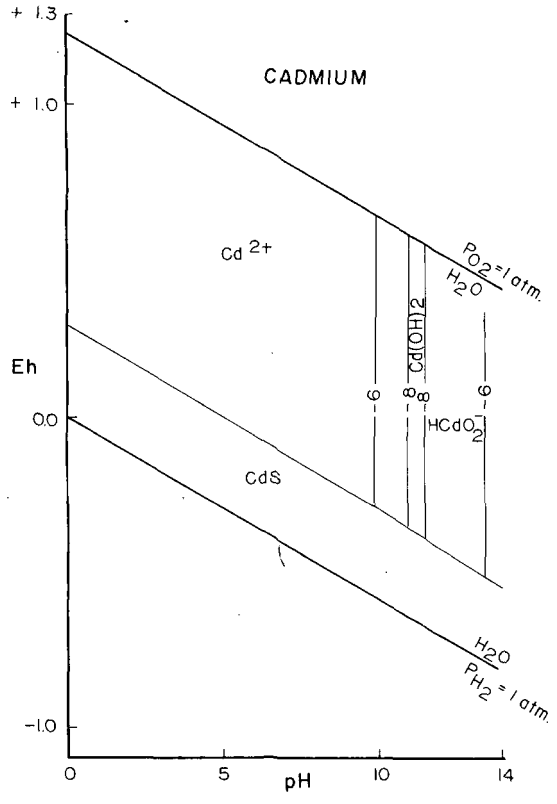


FIG.8. Eh-pH diagram for part of the system Cd-S-O-H. Activity of dissolved Cd = 10^{-6} or 10^{-8} (shown as -6 and -8); S = 10^{-3}.

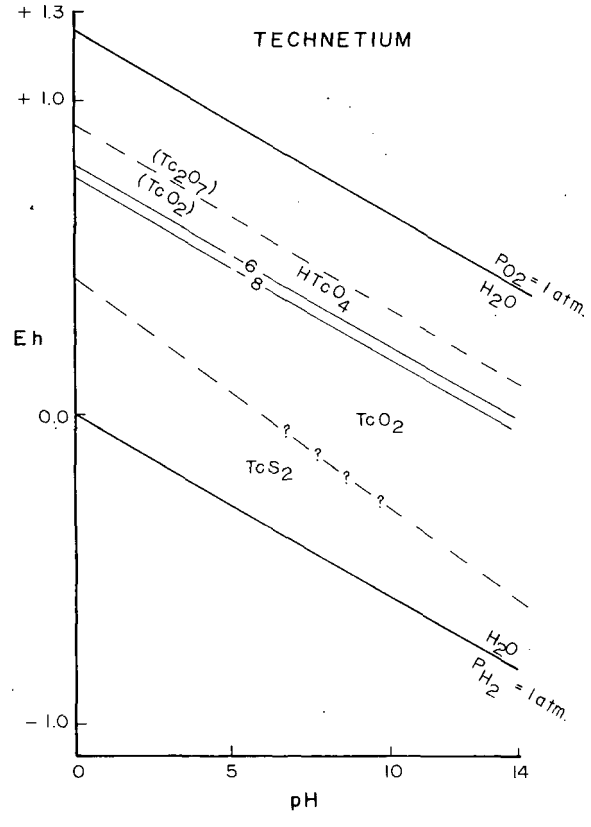


FIG.9. Eh-pH diagram for part of the system Tc-S-O-H. Activity of dissolved Tc = 10^{-6} or 10^{-8} (shown as -6 and -8); S = 10^{-3}.
Note: *$HTcO_4$ dissociates to $H + TcO_4^-$ but free-energy data are not available for TcO_4^-. Therefore, TcO_4^- can be considered the dominant species in the field designated by $HTcO_4$.*

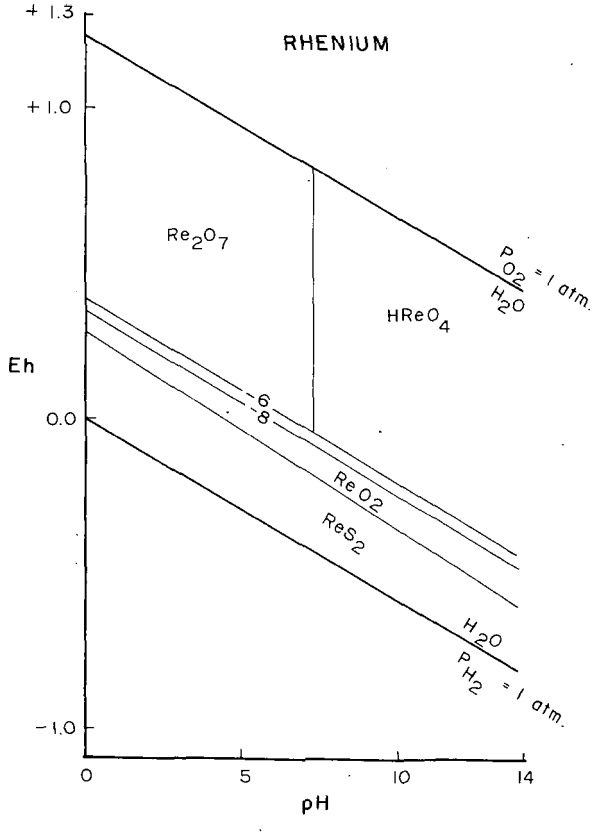


FIG. 10. Eh-pH diagram for part of the system Re-S-O-H. Activity of dissolved Re = 10^{-6} or 10^{-8} (shown as -6 and -8); $S = 10^{-3x}$.

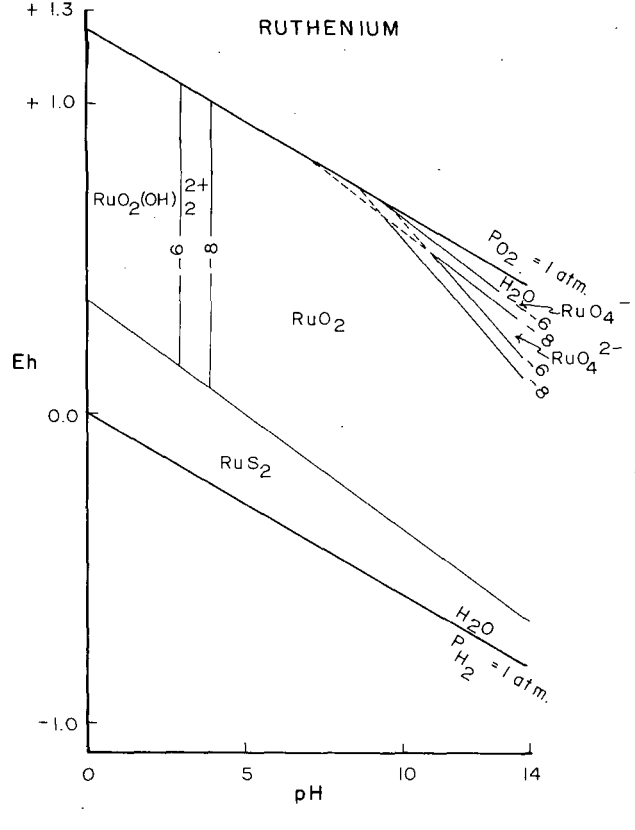


FIG. 11. Eh-pH diagram for part of the system Ru-S-O-H. Activity of dissolved Ru = 10^{-6} or 10^{-8} (shown as -6 and -8); $S = 10^{-3}$.

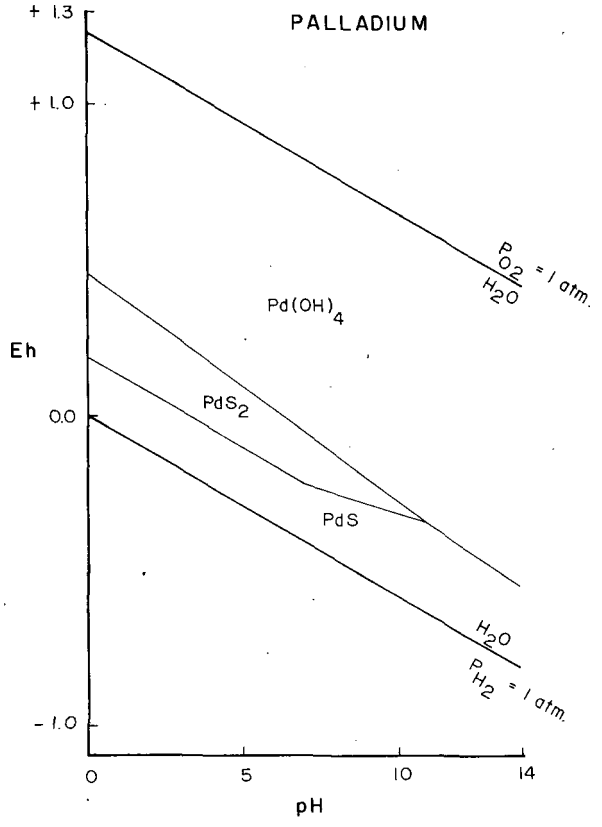


FIG.12. Eh-pH diagram for part of the system Pd-S-O-H. $S = 10^{-3}$.

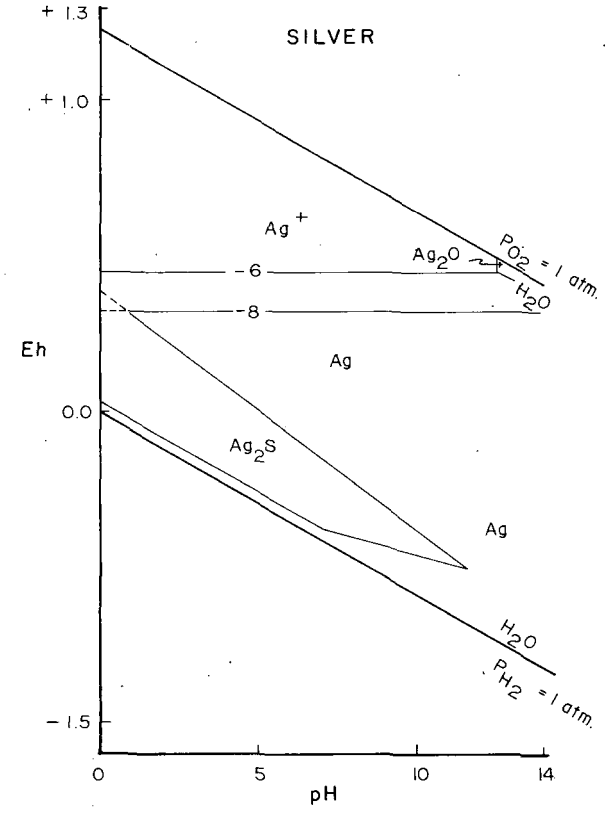


FIG.13. Eh-pH diagram for part of the system Ag-S-O-H. Activity of dissolved Ag = 10^{-6} or 10^{-8} (shown as - 6 and - 8); $S = 10^{-3}$.

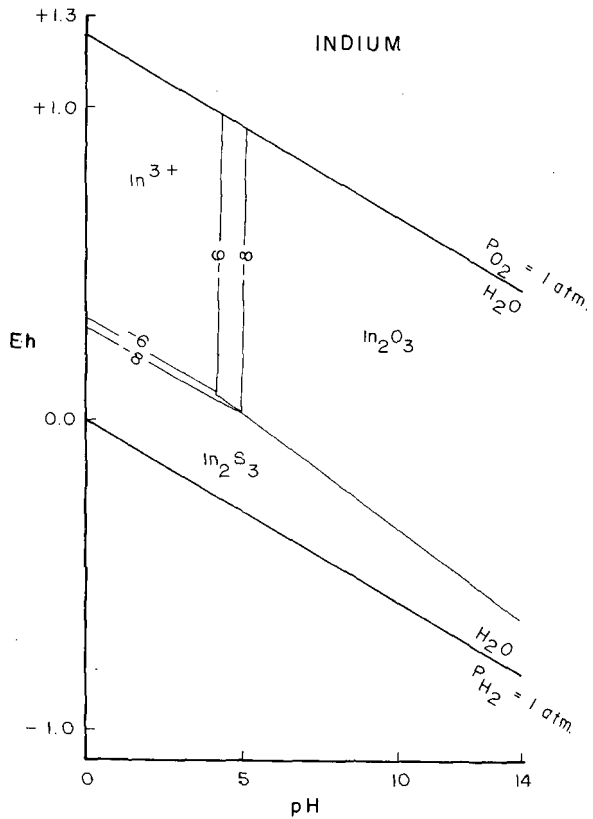


FIG. 14. Eh-pH diagram for part of the system In-S-O-H. Activity of dissolved In = 10^{-6} or 10^{-8} (shown as -6 and -8); S = 10^{-3}.

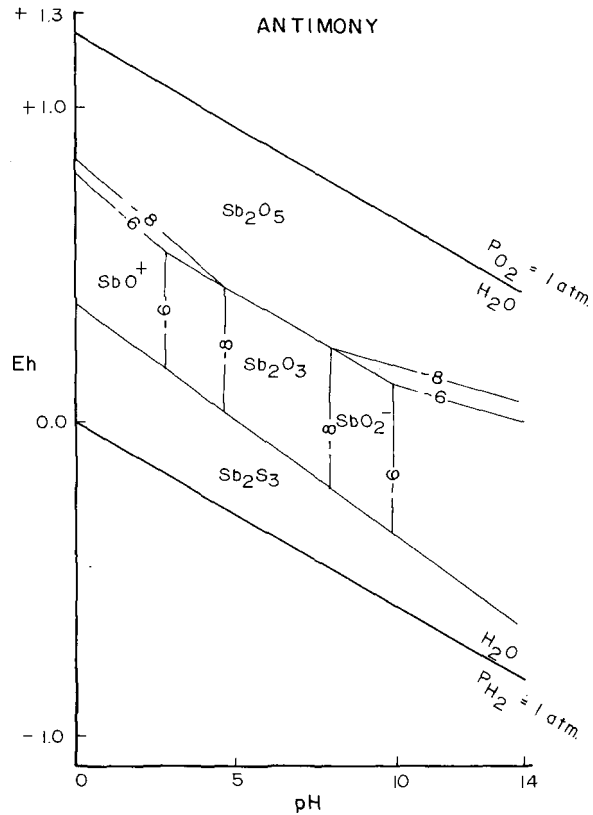


FIG. 15. Eh-pH diagram for part of the system Sb-S-O-H. Activity of dissolved Sb = 10^{-6} or 10^{-8} (shown as -6 and -8); S = 10^{-3}.

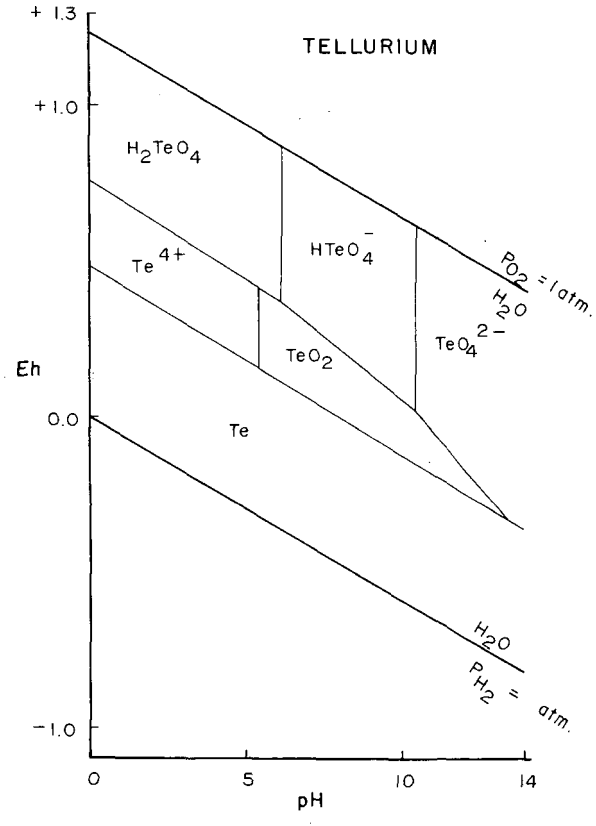


FIG.16. Eh-pH diagram for part of the system Te-O-H. Activity of dissolved Te = 10^{-8}.

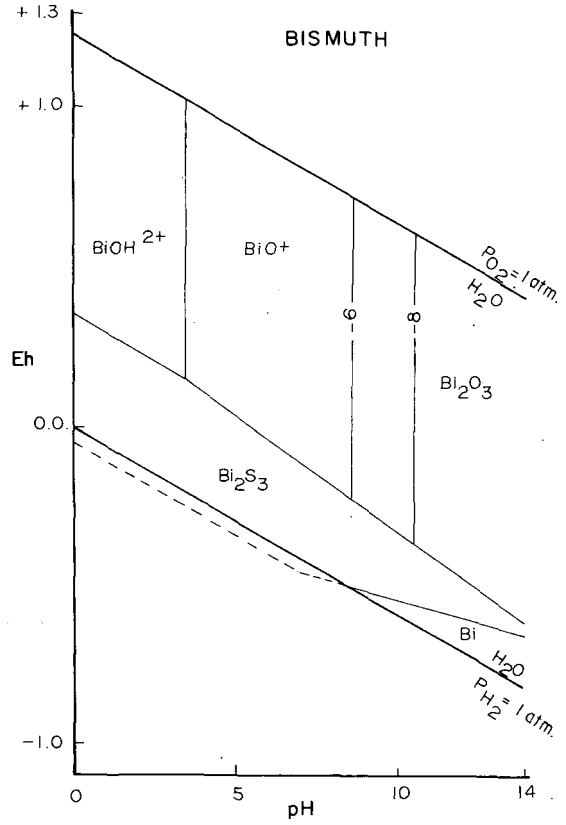


FIG.17. Eh-pH diagram for bismuth. Activity of dissolved Bi species assumed to be either 10^{-6} or 10^{-8} (shown as -6 and -8).

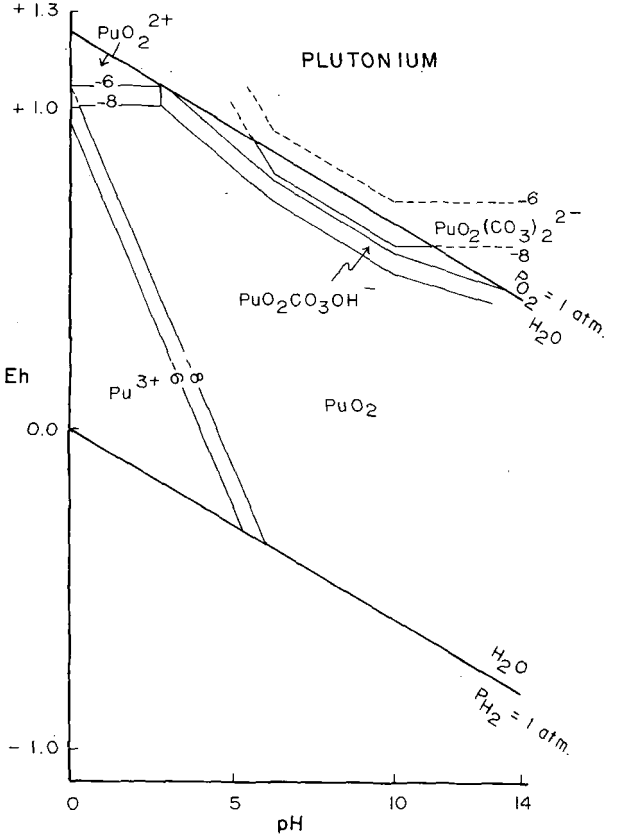


FIG.18. Eh-pH diagram for plutonium. Activity of total dissolved Pu species assumed to be either 10^{-6} or 10^{-8} (shown as - 6 and - 8).

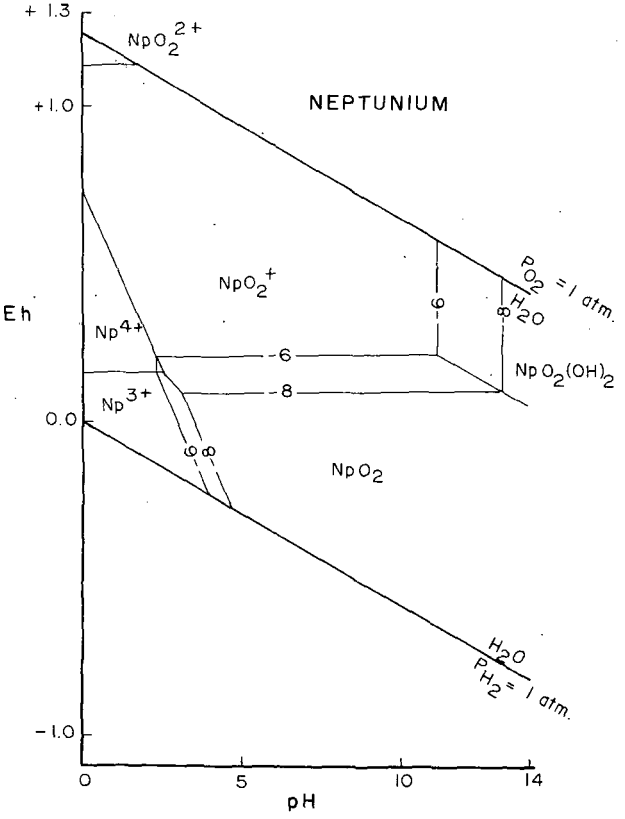


FIG.19. Eh-pH diagram for neptunium. Activity of dissolved Np species assumed to be either 10^{-6} or 10^{-8} (shown as - 6 and - 8).

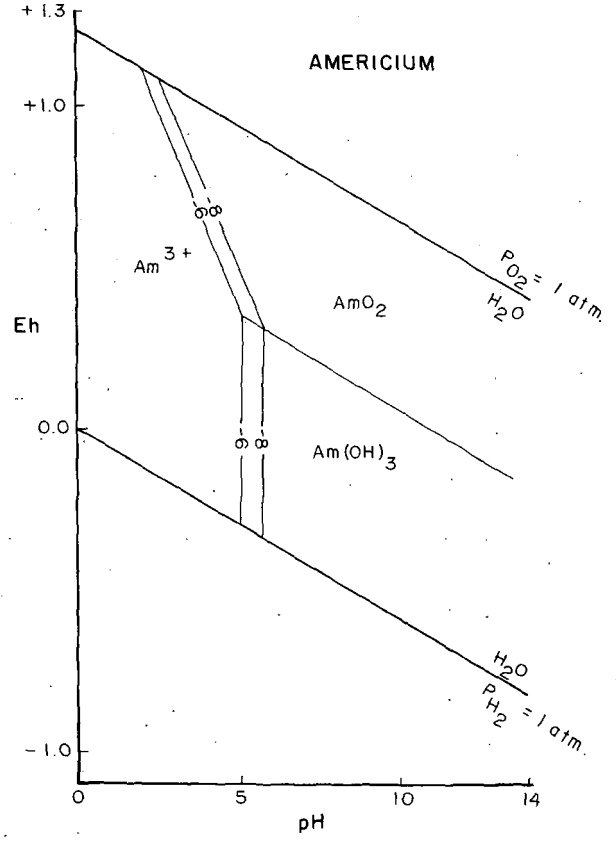


FIG.20. Eh-pH diagram for americium. Activity of dissolved Am species assumed to be either 10^{-6} or 10^{-8} (shown as -6 and -8).

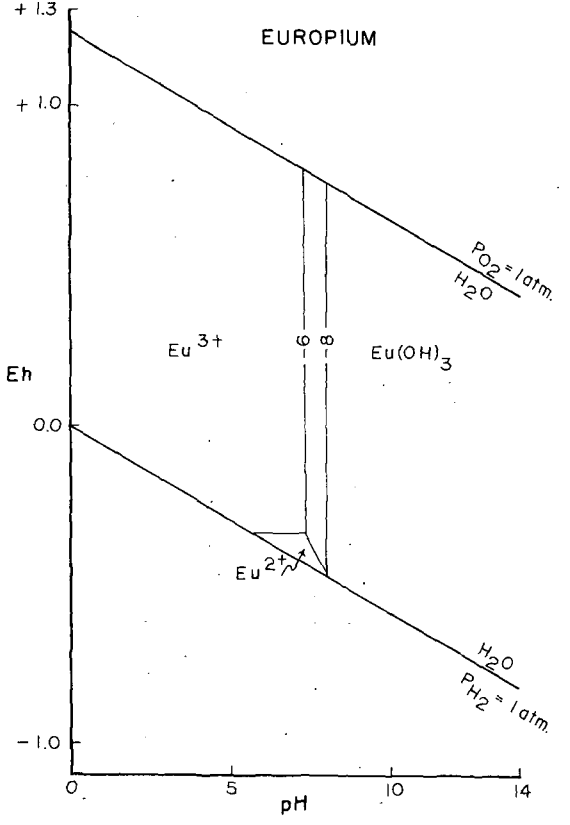


FIG.21. Eh-pH diagram for europium. Activity of dissolved Eu species assumed to be either 10^{-6} or 10^{-8} (shown as -6 and -8).

DISCUSSION

B. POTY: Les diagrammes Eh-pH montrant le champ de stabilité des différentes espèces en solution sont d'une très grande utilité pour connaître le mouvement des éléments en solution. Toutefois ces diagrammes sont généralement construits pour 25°C et 1 bar. Pensez-vous qu'ils puissent être extrapolés aux températures et pressions de fonctionnement des réacteurs (450 à 650°C et 1 à 0,8 kilobar) et même à celles de leur environnement au moment de la réaction (240°C à 180°C et 1 à 0,8 kilobar)?

D.G. BROOKINS: On a montré que l'influence de la pression sur les phases condensées aussi bien que sur les phases aqueuses est faible – dans certains cas même jusqu'à des centaines de bars. On a utilisé des températures atteignant 150°C pour la construction de *quelques* diagrammes Eh-Ph; le seul effet en est une altération des *pentes* des courbes mais *pas des aires relatives des champs pour les différentes espèces.* Cependant si les eaux étaient oxygénées, les diagrammes pourraient varier considérablement en fonction de pO_2. Les diagrammes tels qu'ils sont présentés peuvent s'appliquer aux minerais de basse teneur et peut-être même aux zones de bordure mais presque certainement *pas* aux zones des réacteurs proprement dites.

A.T. JAKUBICK: Ma première question concerne la rétention des nucléides qui sont sortis de la pechblende-hôte et se trouvent maintenant dans les minerais de la gangue. Je voudrais savoir si vous avez des données ou des idées sur les types de mécanismes de fixation qui sont entrés en jeu pendant la longue histoire géologique du réacteur d'Oklo. A mon avis les mécanismes habituels d'échange ionique ne peuvent pas donner une explication satisfaisante. Bien qu'on ait pu observer une certaine migration, la rétention a été néanmoins beaucoup plus considérable que celle qui aurait dû résulter de l'échange ionique. Ainsi, il existe d'autres mécanismes de fixation que devront aussi prendre en compte les études actuelles de simulation de la migration à partir d'un site de dépôt de déchets nucléaires.

D.G. BROOKINS: Dans le cas des produits qui se trouvent encore essentiellement dans les minerais dont on peut considérer la teneur comme élevée, les études faites par la méthode des images ioniques et par spectrographie de masse à étincelles ont indiqué la présence de la matière fissiogénique dans des substances comme les minerais argileux, les phases oxydique et hydroxydique, et les carbonates. Les capacités d'adsorption de ces substances sont donc suffisantes pour retenir de nombreux nucléides en migration.

Quand nous avons effectué la lixiviation des quelques échantillons (et il n'y en avait que quatre) dont les rapports $^{235}U/^{238}U$ étaient normaux, trois de ces quatre échantillons ont paru receler un peu de rubidium fissiogénique, ce qui indique que cette matière faiblement adsorbée n'a certainement pas migré très loin. Cependant, en raison de la dilution et compte tenu des données de la

spectrographie de masse à étincelles, nous ne sommes pas en mesure de présenter un bilan matière.

A.T. JAKUBICK: Je voudrais faire une brève observation sur l'applicabilité pratique des résultats qu'on peut tirer des diagrammes de stabilité pour la gestion des déchets nucléaires. Sans aucun doute les taux Rédox/pH permettent de prédire les conditions de stabilité de la pechblende et aussi celles de la rétention/migration des nucléides libérés de ces grains particuliers. Ainsi les résultats sont plus applicables à l'étude du meilleur conditionnement des déchets qu'à celle du confinement le plus favorable à une élimination définitive. Premièrement, il ne faut pas oublier que nombre de nucléides, entre autres le très important plutonium, ne se sont pas échappés des minerais-hôtes et n'ont pu par conséquent migrer à travers le confinement. Par ailleurs, nous savons que les déchets nucléaires se trouveront dans une matrice très différente de la pechblende si bien qu'il y aura: a) un mécanisme de libération (et un mécanisme chimique) tout à fait différent; b) une capacité différente de lixiviation, et, par suite, c) une activité ionique différente. Comme la validité des diagrammes dépend des espèces chimiques libérées et de l'activité ionique du système, il est douteux qu'ils soient applicables à des cas autres que celui d'Oklo. On ne peut pas tirer de conclusions *directes* du phénomène d'Oklo à propos de la capacité de rétention du confinement des déchets. L'avantage principal d'une étude basée sur la stabilité chimique est la détermination des conditions physico-chimiques correspondant aux observations faites à Oklo. Ces dernières, quant à elles, peuvent faciliter l'interprétation des études de migration faites au laboratoire en vue d'isoler les déchets dans des formations géologiques.

D.G. BROOKINS: Le fait que les matières ont eu 1800 MA pour migrer et que la plupart d'entre elles sont toujours en place confère à Oklo une valeur inestimable. En ce qui concerne les matériaux dans lesquels on va probablement enfermer les déchets, un milieu réducteur dans un champ stable de pyrites par exemple, la plupart des espèces libérées seront sous forme réduite et seront ainsi sujettes dans une certaine mesure aux limitations que leur imposent ces diagrammes.

PHASES FLUIDES CONTEMPORAINES DE LA DIAGENESE DES GRES, DES MOUVEMENTS TECTONIQUES ET DU FONCTIONNEMENT DES REACTEURS NUCLEAIRES D'OKLO (GABON)

R. OPENSHAW, M. PAGEL, B. POTY
Centre de recherches pétrographiques
et géochimiques,
Equipe de recherche sur les équilibres
entre fluides et minéraux,
Vandœuvre-lès-Nancy, France

Résumé–Abstract

PHASES FLUIDES CONTEMPORAINES DE LA DIAGENESE DES GRES, DES MOUVEMENTS TECTONIQUES ET DU FONCTIONNEMENT DES REACTEURS NUCLEAIRES D'OKLO (GABON).

L'étude conjointe des inclusions fluides et de la pétrographie des grès du FA à Oklo permet une évaluation des conditions de température et de pression des différentes diagenèses. Elle permet également de fixer dans le temps la formation et le fonctionnement des réacteurs naturels par rapport aux événements géologiques. Les conditions de la diagénèse siliceuse, comme celles de la formation de la structure tectonique d'Oklo à son début, sont évaluées à environ 240°C et 1000 bar. La diagenèse carbonatée, qui est postérieure au fonctionnement des réacteurs naturels, se serait produite vers 180°C et 800 bar. Durant la réaction nucléaire, la densité des fluides et les contraintes de pression (entre 1000 et 800 bar) suggèrent que les solutions aqueuses auraient été portées à des températures comprises entre 450 et au moins 600°C.

FLUID PHASES CONTEMPORANEOUS WITH SANDSTONE DIAGENESIS, TECTONIC MOVEMENTS AND FUNCTIONING OF THE OKLO NUCLEAR REACTORS (GABON).

A joint study of the fluid inclusions and petrography of the sandstones in the FA at Oklo enables us to estimate the temperature and pressure conditions for the various diageneses. It also enables us to fix the time of the formation and functioning of the natural reactors, in relation to the geological events. The conditions for the siliceous diagenesis, just as for the formation of the Oklo tectonic structure at the beginning, are estimated at approximately 240°C and 1000 bar. The carbonate diagenesis, which comes after the functioning of the natural reactors, would appear to have occurred at about 180°C and 800 bar. The density of the fluids and pressure stresses (between 1000 and 800 bar) suggests that, during the nuclear reaction, the aqueous solutions may have reached temperatures between 450 and at least 600°C.

INTRODUCTION

Dans la plupart des processus géologiques la phase fluide joue un rôle essentiel. Cette phase fluide, conservée dans de petites cavités intracristallines, peut être étudiée en particulier dans les minéraux transparents.

L'étude de ces inclusions fluides permet d'obtenir des données sur la composition chimique originale des fluides ainsi que sur leur densité ce qui peut dans certains cas conduire à une estimation assez précise des températures et des pressions au moment où les inclusions se sont formées. L'identification des différentes générations de fluides piégés dans les cristaux et de leurs relations avec certains processus apporte ainsi une aide considérable à la compréhension des phénomènes géologiques.

A Oklo, le modérateur du flux de neutrons dans les réacteurs naturels est très probablement l'eau (1). La pression des fluides étant essentiellement fonction de la profondeur d'enfouissement des réacteurs et de la perméabilité des terrains, on peut considérer en première approximation qu'elle est restée constante. Lorsque la température s'élève, durant la réaction, la densité de l'eau s'abaissera donc jusqu'à une valeur où les neutrons n'étant plus suffisamment ralentis l'intensité des réactions de fission diminuera. La température s'abaissera, et la pression restant constante, la densité de l'eau s'élèvera et les neutrons seront à nouveau ralentis. C'est un processus de ce type qui a vraisemblablement entretenu les réactions nucléaires à Oklo durant des centaines de milliers d'années sans qu'elles deviennent explosives (1).

L'essentiel du travail présenté ici concerne la mise en évidence du fluide qui a joué ce rôle de modérateur, et sa caractérisation physico-chimique. Mais cette caractérisation a nécessité l'étude de tous les fluides associés aux différents épisodes géologiques ayant affecté les roches du gisement d'Oklo. Il en résulte donc également des données sur la diagenèse siliceuse des grès, la formation des filonnets et filons de quartz ou quartz et carbonates, la diagenèse carbonatée des grès enfin. De plus quelques données préliminaires sur le dépôt de l'uranium et le mouvement des hydrocarbures ont été obtenues.

METHODES D'ETUDE DES INCLUSIONS FLUIDES

Les méthodes d'étude des inclusions fluides peuvent être classées en deux catégories : les méthodes destructives et les méthodes non destructives (2).

Dans les méthodes non destructives, l'inclusion fluide est observée sous le microscope. Dans un premier type de manipulation on observe les changements de phases provoqués par le chauffage et le refroidissement des fluides inclus (3) (4) (5). La température de fusion permet d'apprécier la concentration en sels dissous et parfois la composition chimique du ou des fluides, présents dans l'inclusion. La température d'homogénéisation donne généralement une température minimale de formation et sa densité (4).

D'autres méthodes également non destructives utilisent la fluorescence, ou la spectroscopie Raman (6) pour déterminer certains constituants.

Dans les méthodes destructives, les fluides sont libérés, soit en chauffant le minéral hôte jusqu'à ce que la pression à l'intérieur de l'inclusion soit suffisante pour entraîner sa fracturation (décrépitation), soit mécaniquement en broyant ou en écrasant le minéral. Si les fluides sont libérés dans le vide sous forme de gaz, ceux-ci peuvent être analysés par chromatographie en phase gazeuse, spectrométrie de masse ou par des méthodes volumétriques.

Le minéral peut également être écrasé sous microscope dans des liquides variés qui dissolvent sélectivement les composés ou réagissent avec eux (7) (8). Le minéral peut être également écrasé dans de l'eau distillée et les ions présents en solution dosés par des méthodes d'analyse chimique variées (9) (10).

Cette présentation des techniques est volontairement sommaire. Pour plus de détails, le lecteur pourra se reporter aux différentes publications spécialisées sur ce sujet, notamment (2) (3) (11).

PRESENTATION DES RESULTATS

Diagenèse siliceuse des grès

Les grès du Francevillien ont subi une cimentation siliceuse que l'on observe en lames minces sous forme d'un nourrissage des grains de quartz détritique (photo 1, fig. 1). (12) (13) a montré sur l'exemple des grès Athabasca que l'étude détaillée de ce type de grès silicifié permet de distinguer :

1 - Les inclusions antérieures à la diagenèse, inclusions liées à la formation de la roche mère et à son histoire postérieure (altérations, érosion, transport, dépôt et éventuellement événement ayant affecté les grès avant la diagenèse siliceuse). Ces inclusions sont observées exclusivement dans le grain détritique.

2 - Les inclusions contemporaines de la diagenèse siliceuse. Ces inclusions peuvent être observées à la fois à la limite entre le grain détritique et l'auréole de nourrissage (photo 2, fig. 1) et dans l'auréole de nourrissage elle-même. Elles peuvent être primaires, c'est-à-dire disposées suivant les zones de croissance, ou secondaires, c'est-à-dire formées lors de la cicatrisation de fractures.

3 - Les inclusions postérieures à la silicification diagénétique. Ces inclusions se disposent en plans sécants sur les zones de croissance et les grains détritiques, et correspondent à des fractures cicatrisées postérieures. Ces inclusions sont susceptibles d'apporter des données très intéressantes comme nous le verrons dans cette étude.

Ces trois types d'inclusions ont été représentés sur la figure 2.

Les inclusions primaires contemporaines de la diagenèse siliceuse ont été étudiées dans trois échantillons du sondage BA2 situé à l'Est du plateau de Bangombé à 25 km environ d'Oklo. Leur taille est comprise entre 5 et 10 µm. Elles sont constituées de deux phases fluides : une bulle de vapeur (occupant 3 à 5% du volume de la cavité) et une solution aqueuse. Les données microthermométriques sont reportées sur la fig. 3 et le tableau I. On constate que les valeurs varient avec la profondeur : la salinité, estimée d'après l'abaissement du point de fusion et les données expérimentales du système H_2O-NaCl (5), augmente avec la profondeur alors que la température d'homogénéisation moyenne décroît.

Un échantillon du gisement d'Oklo (OK 761) prélevé à 1 mètre de la zone 2 contient des inclusions dont la température moyenne de la fusion est de - 3,2°C (soit 5,5 % eq. poids NaCl) et la température moyenne d'homogénéisation de 152°C.

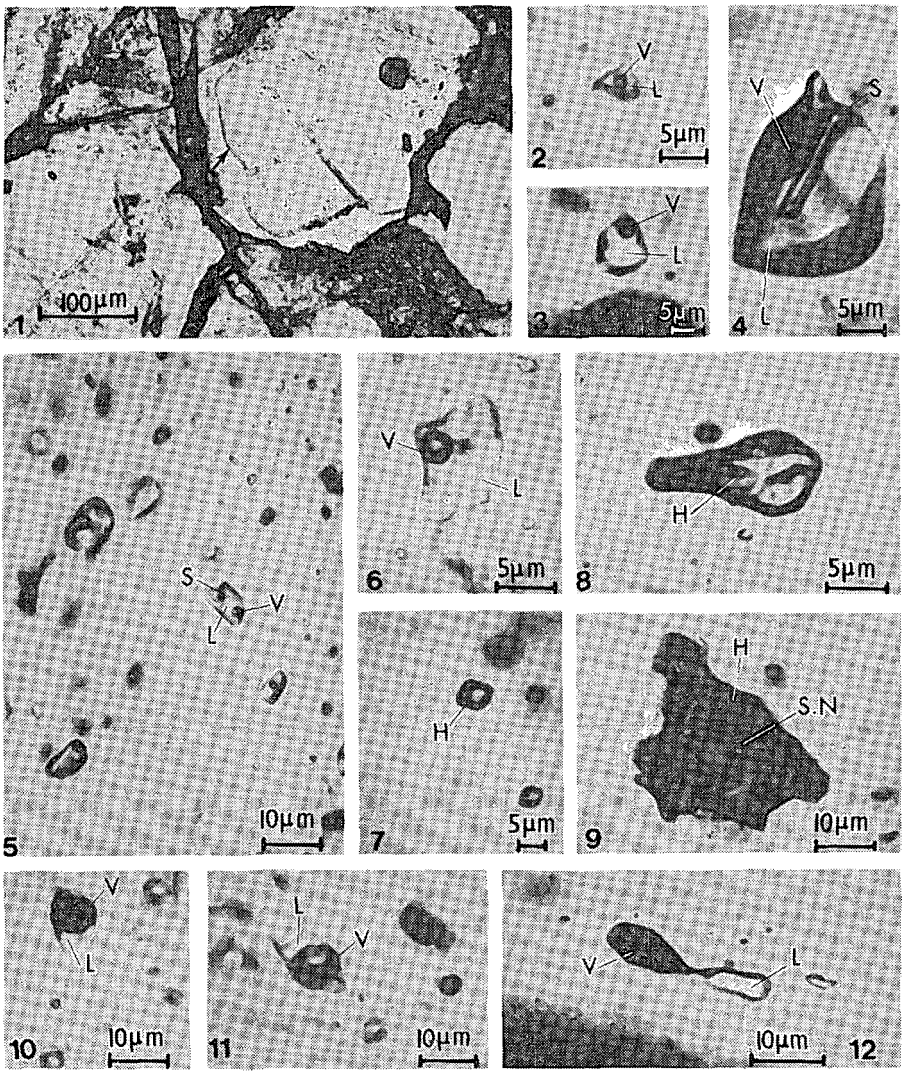


FIG.1. Planche photographique.

Diagenèse carbonatée

Les grès du FA et du FB montrent parfois une cimentation dolomitique tardive. Les inclusions des dolomites (photo 3, fig. 1) sont à deux phases fluides (bulle de vapeur et solution aqueuse) et leur taille est comprise entre 5 et 15 µm. Elles ont été étudiées dans un échantillon de sondage de Mabinga (MAB, cote 123,90 m).

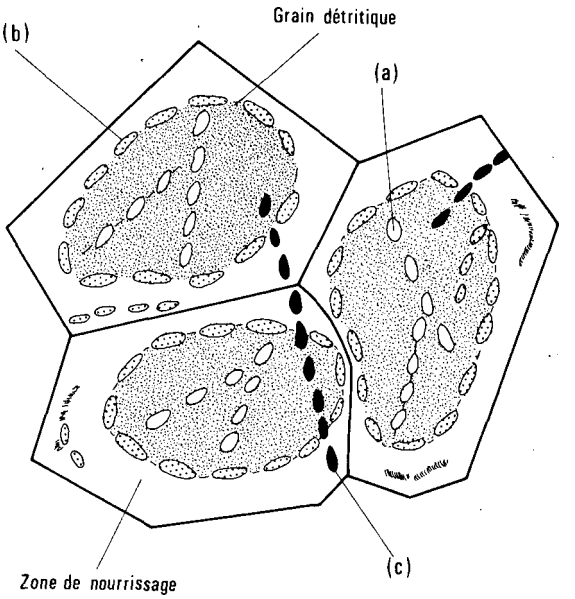


FIG.2. Différentes générations d'inclusions fluides dans les grès silicifiés: (a) inclusions contenues dans le grain détritique de quartz et antérieures à la silicification diagénétique; (b) inclusions contemporaines de la silicification diagénétique des grès; (c) inclusions postérieures à la silicification diagénétique et contenues à la fois dans le grain détritique et la zone de nourrissage.

La température de fusion des solutions est très basse, comprise entre - 33°C et - 25,8°C. Ces températures sont plus basses que celles de l'eutectique du système NaCl - H_2O et indiquent la présence de cations bivalents tels que Ca^{++} et Mg^{++}. Les températures d'homogénéisation sont relativement constantes et la température moyenne pour 16 inclusions est de 112°C.

Filonnets et filons de quartz ou quartz et carbonates

Divers filonnets et filons de quartz ont été échantillonnés dans lesquels des inclusions aqueuses à deux phases fluides sont abondantes (photos 4, 5, 6, fig. 1).

Certains (MP-OK-47-48, BP 77-63) sont des filonnets sécants dans le grès grossier intercalaire de la couche C_1. Ils ont été décrits par (14) et paraissent liés à la formation de la structure du gisement d'Oklo : dôme, dressant et crochon. L'échantillon BP 77-63 a été prélevé dans le crochon à environ 50 mètres de la zone 1. Il paraît très peu contaminé par les fluides de la réaction nucléaire. Une étude microthermométrique sommaire montre que les fluides contenus dans cet échantillon sont très comparables à ceux de MP-OK-47. L'analyse

TABLEAU I. DONNEES MICROTHERMOMETRIQUES SUR LES INCLUSIONS FLUIDES CONTEMPORAINES DE LA SILICIFICATION DIAGENETIQUE DANS TROIS ECHANTILLONS DE GRES DU SONDAGE BA2

Les chiffres entre parenthèses indiquent le nombre d'inclusions étudiées.

Référence des échantillons	T_F inférieure	T_F supérieure	T_F moyenne	Salinité en équivalent poids NaCl	T_H inférieure	T_H supérieure	T_H moyenne
BA2 - 112,70	- 2,5°C	- 0,7°C	- 1,9°C(15)	3,5	+ 121,4°C	+ 188,2°C	+ 159°C (20)
BA2 - 632,90	- 4,0°C	- 2,8°C	- 3,6°C(19)	6,1	+ 136,7°C	+ 157,0°C	+ 149°C (20)
BA2 - 930,80	- 6,7°C	- 4,9°C	- 5,7°C(32)	8,8	+ 111,4°C	+ 171°C	+ 148°C (45)

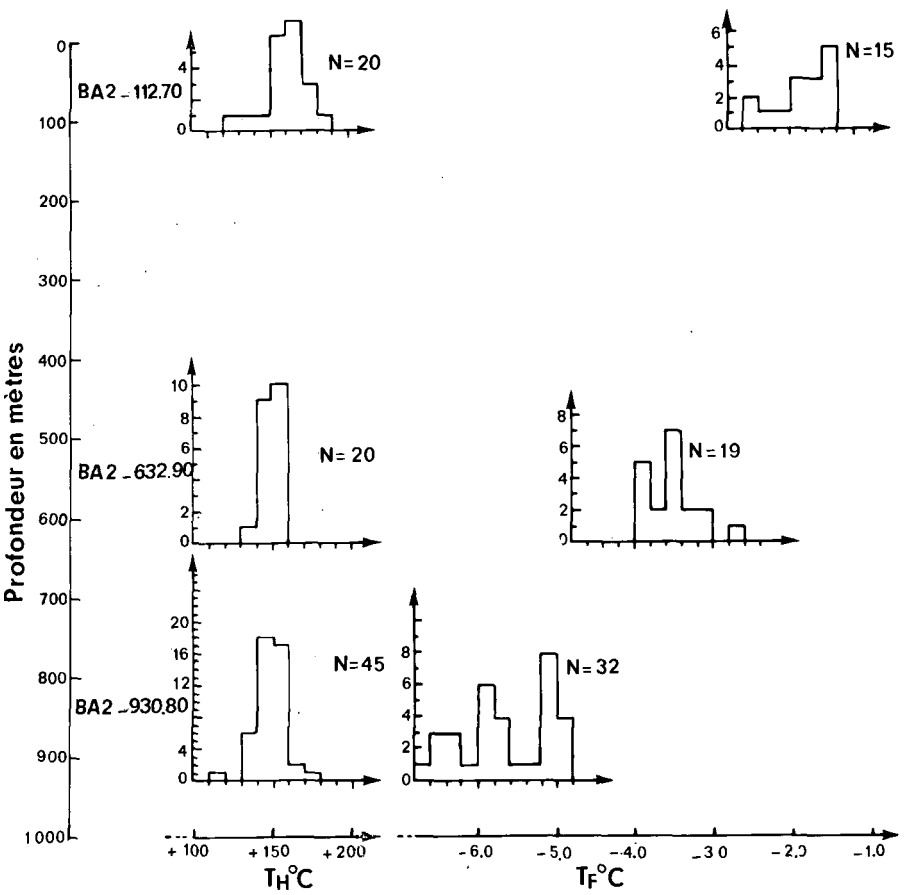


FIG.3. Histogrammes des températures de disparition de la bulle de gaz et des températures de fusion des inclusions fluides en bordure des grains détritiques de quartz dans des échantillons prélevés à différentes profondeurs (sondage BA2). (N = nombre d'inclusions étudiées.)

chimique des ions dissous dans la phase aqueuse montre une remarquable constance des rapports K/Na (0,054 $\pm$ 0,007) pour 7 échantillons (cf. tableau II). Ce rapport est beaucoup plus faible que celui trouvé dans les échantillons contaminés par les fluides de la réaction nucléaire (MP-OK-47-48 et FOO).

D'autres filonnets de quartz prélevés dans le sondage BA2 sont les témoins d'une fracturation qui n'a pu être datée. Les fluides inclus dans le quartz montrent des températures d'homogénéisation relativement basses (113°C) (fig. 4), et ceux inclus dans les carbonates des concentrations en sels très élevées (tableau III).

Le filon de quartz et sulfures FOD, de puissance très supérieure aux précédents, est lié à la formation du dressant.

TABLEAU II. ANALYSES CHIMIQUES DE LESSIVAGES AQUEUX DE QUARTZ PURIFIES ET BROYES

n° analyse	Réf. échantillon	Résultats des analyses de lessivage en ppm						Rapports atomiques			
		Na	K	Ca	Mg	Cl	SO_4	K/Na	Cl/Na	SO_4/Cl eq	$\frac{\text{cations}}{\text{anions}}$ (eq)
852	BP-77-63	0.880	0.070	0.020	0.000	2.30	0.24	0.047	1.69	0.08	0.59
854	"	1.075	0.100	0.065	0.010	2.14	0.06	0.055	1.29	0.02	0.87
855	"	1.820	0.170	0.130	0.020	3.46	0.19	0.055	1.23	0.04	0.90
856	"	1.315	0.110	0.115	0.015	2.66	0.14	0.049	1.31	0.04	0.86
857	"	1.620	0.150	0.115	0.000	3.15	0.27	0.054	1.26	0.06	0.85
859	"	1.450	0.135	0.040	0.000	3.22	0.39	0.055	1.44	0.09	0.69
860	"	1.585	0.170	0.120	0.020	3.16	0.30	0.063	1.31	0.07	0.85
718	BA2-621,30	0.895	0.090	0.210	0.025	1.86	0.39	0.059	1.35	0.15	0.89
719	"	1.165	0.085	0.270	0.030	2.74	1.16	0.043	1.52	0.31	0.68
851	"	1.380	0.055	0.600	0.036	3.30	0.13	0.023	1.55	0.03	0.99
715	MP-OK-48	1.005	0.160	0.120	0.040	2.66	0.53	0.094	1.71	0.15	0.66
716	"	1.085	0.205	0.215	0.060	2.94	1.51	0.111	1.76	0.38	0.60
717	MP-OK-47	0.740	0.115	0.365	0.030	3.40	0.47	0.091	2.98	0.10	0.53
673	FOD	2.020	0.415	2.250	0.240	11.40	8.30	0.121	3.66	0.54	0.47
674	"	0.970	0.225	0.740	0.100	4.28	6.50	0.136	2.86	1.12	0.36
720	"	1.315	0.320	2.420	0.235	9.70	8.00	0.143	4.78	0.61	0.47
721	"	2.175	0.430	2.785	0.310	12.40	7.00	0.116	3.69	0.42	0.55

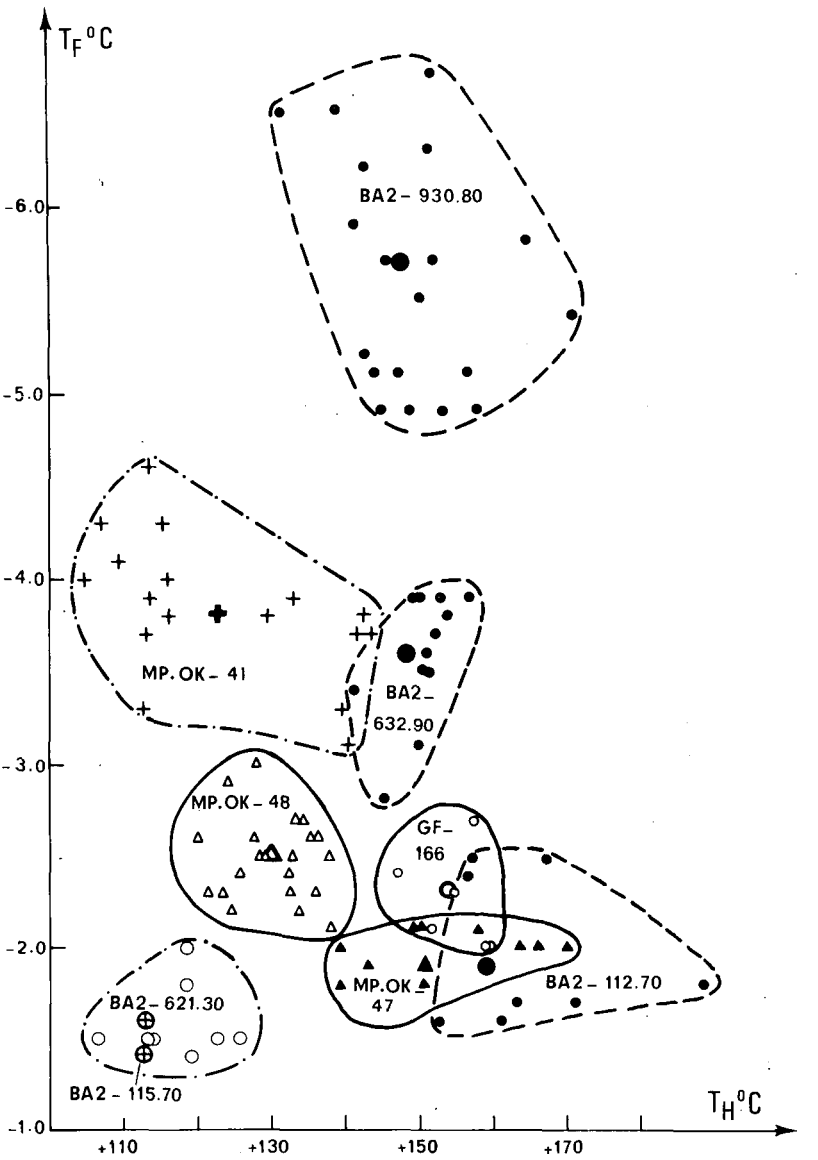


FIG.4. Diagramme T_H-T_F pour les trois échantillons de grès silicifiés du sondage BA2 et pour les filons de quartz dans et autour du gisement d'uranium d'Oklo.

TABLEAU III. DONNEES MICROTHERMOMETRIQUES SUR LES INCLUSIONS FLUIDES DES FILONS DE QUARTZ ET QUARTZ-CARBONATE

Les chiffres entre parenthèses indiquent le nombre d'inclusions étudiées.

Référence des échantillons	T_F inférieure	T_F supérieure	T_F moyenne	Salinité en équivalent poids Nacl	T_H inférieure	T_H supérieure	T_H moyenne
BA2 - 115,70 Quartz	- 1,6°C	- 1,1°C	- 1,4°C*(7)	2,6	+ 100,3°C	+ 125,7°C	+ 113°C (17)
BA2 - 115,70 Carbonate	- 38,8°C	- 29,0°C	- 32,7°C(32)	-	+ 97,6°C	+ 115,1°C	+ 106°C (20)
BA2 - 621,30 Quartz	- 2,0°C	- 1,3°C	- 1,6°C*(5)	2,9	+ 108,2°C	+ 118,8°C	+ 113°C (27)
MP-OK-41	- 4,6°C	- 3,1°C	- 3,8°C (17)	6,4	+ 105,0°C	+ 143,4°C	+ 123°C (17)
Quartz	- 20,4°C	- 15,8°C	- 17,2°C (8)	20,8	+ 102,6°C	+ 147,3°C	+ 132°C (8)
MP-OK-47 Quartz	- 2,1°C	- 1,6°C	- 1,9°C (16)	3,5	+ 121,0°C	+ 181,6°C	+ 152°C (29)
MP-OK-48 Quartz	- 3,0°C	- 2,1°C	- 2,5°C (26)	4,4	+ 120,1°C	+ 138,2°C	+ 130°C (26)
GF 166	- 2,7°C	- 2,0°C	- 2,2°C (6)	4	+ 147,3°C	+ 160,3°C	+ 155°C (7)
Quartz	- 35°C	- 12,8°C	- 25,5°C (23)	-	-	-	-
FOD Quartz	- 3,4°C	- 0,5°C	- 1,7°C (5)	3,1	+ 108,4°C	+ 125,2°C	+ 120°C (5)

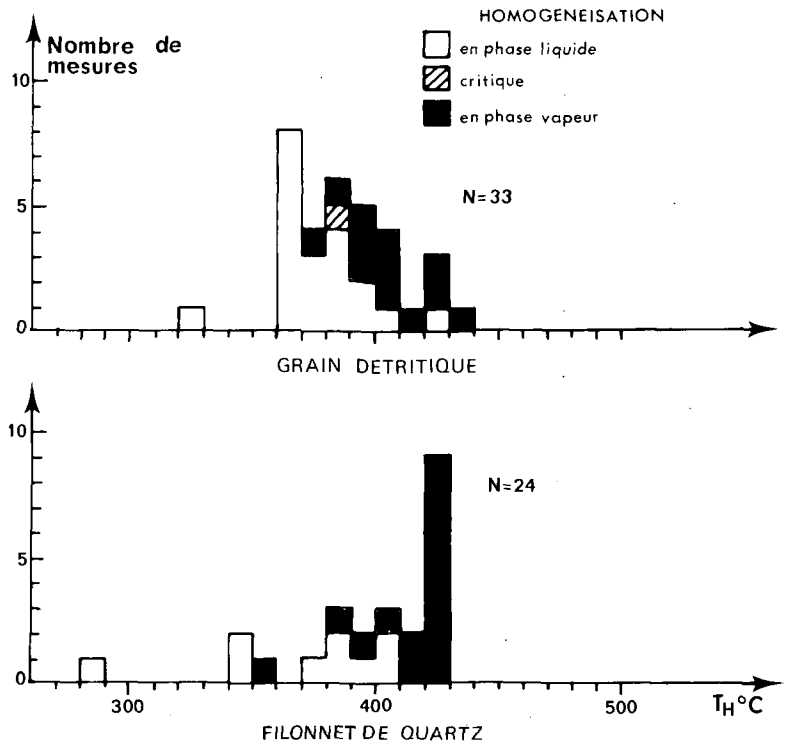


FIG.5. Comparaison entre les températures d'homogénéisation des inclusions situées dans un filonnet de quartz et dans le grès encaissant au contact de la zone 4 (échantillon MP-OK-14-3).

Enfin, des cristaux de quartz géodique ont fourni des inclusions fluides à température d'homogénéisation élevée (155°C) (fig. 4) et d'autres types d'inclusions à hydrocarbures qui seront décrits ultérieurement.

Réactions nucléaires naturelles

L'examen microscopique d'un grand nombre d'échantillons autour des zones de réaction, dans le gisement d'Oklo et dans son environnement régional, a permis de mettre en évidence dans les grès et filons de quartz autour des zones de réaction uniquement des plans d'inclusions où ces dernières se caractérisent par une grosse bulle de vapeur (40 à 80 % du volume du total de l'inclusion). Ces inclusions ont un diamètre compris entre 5 et 12 microns, présentent des formes arrondies ou ovoïdes (photos 10-11, fig. 1) et sont parfois reliées entre elles par des petits canalicules (photo 12, fig. 1). Ces plans d'inclusions ont été observés à la fois dans les grains de quartz détritique, dans leur auréole de nourrissage, et dans les veinules de quartz du banc de grès intermédiaire de la couche C1.

TABLEAU IV. DONNEES MICROTHERMOMETRIQUES SUR QUATRE ECHANTILLONS DU SONDAGE KN 226

Les chiffres entre parenthèses indiquent le nombre d'inclusions étudiées.

Echantillons	Distance à la zone de pile	T_H moyenne en phase liquide	T_H moyenne en phase vapeur	T_H moyenne	T_F moyenne (homogénéisation en phase liquide)	T_F moyenne (homogénéisation en phase vapeur)
MP-OK-14-1	0 à 7 cm	346°C (10)	423°C (7)	378°C		
MP-OK-14-3	23 à 27 cm	359°C (20)	406°C (12)	377°C	- 3,6°C (13)	- 4,0 (8)
		368°C (9)	411°C (15)	395°C	- 4,1°C (5)	
MP-OK-14-4	27 à 34 cm	384 °C (8)	415°C (5)	396°C	- 3,2°C (6)	- 3,5°C (5)
MP-OK-14-9	86 à 105 cm	362°C (11)	440°C (17)	409°C	- 4,2°C (10)	- 4,6°C (23)

En lame épaisse (150 à 200 µm), dans les grès près des zones de réaction, les auréoles de nourrissage sont difficilement reconnaissables. Une intense désilicification s'observe dans ceux-ci (14). Toutefois afin de pouvoir étudier les inclusions dans les grains détritiques, des inclusions d'un même échantillon ont été caractérisées à la fois dans les grains de quartz détritique et dans une veinule de 2 à 3 millimètres d'épaisseur (échantillon MP-OK-14-3) pour vérifier qu'elles n'appartenaient pas à l'histoire du quartz antérieure au dépôt des grès. Sur la fig. 5 et dans le tableau IV on constate que les températures d'homogénéisation et les températures de fusion sont très comparables ce qui permet de conclure que ces inclusions se sont formées postérieurement à la silicification.

L'échantillon MP-OK-48 apporte des renseignements supplémentaires sur l'époque de formation de ces inclusions. Les plans d'inclusions à grosse bulle de vapeur sont interrompus au niveau d'une deuxième silicification marquée par le dépôt de plaquettes hexagonales rouges (hématite probable). Cette seconde génération de quartz contient des inclusions primaires dont les caractéristiques microthermométriques sont très différentes des inclusions contenues dans le quartz de base.

La température de fusion, basse, varie considérablement (- 14,5°C à - 46,9°C) (moyenne - 27,5 pour 10 inclusions) et les températures d'homogénéisation sont comprises entre + 107,3°C et + 206,8°C (moyenne + 145°C pour 10 inclusions).

Dans la plupart des cas, pour un même plan d'inclusions, certaines s'homogénéisent en phase liquide tandis que d'autres s'homogénéisent en phase vapeur. Pour quelques exemples, des homogénéisations critiques ont été observées. Sur les figures 5 et 6 on constate que les températures d'homogénéisation en phase liquide sont généralement inférieures aux températures d'homogénisation en phase vapeur pour des températures de fusion comparables avec toutefois un certain recouvrement. Dans un certain nombre de plans, des phénomènes d'étranglement sont nettement visibles (photo 12) avec parfois persistance d'un petit canal.

Ayant mis en évidence un fluide associé aux réactions nucléaires, il s'avérait nécessaire de répondre aux deux questions suivantes :

- Les caractéristiques de ce fluide varient-elles selon les différentes zones de réaction ?

- Comment ces caractéristiques évoluent-elles lorsqu'on s'éloigne des zones de réaction ?

L'étude microthermométrique montre que les températures de fusion, sensiblement constantes pour les inclusions d'un même plan, varient d'un plan à l'autre, d'un échantillon à l'autre et d'une zone de réaction à l'autre (fig. 6-7). Ces données impliquent la circulation de plusieurs fluides, de chimisme variable, dans les zones de réaction. La zone 2 se caractérise par des températures de fusion et des températures d'homogénéisation beaucoup plus variables que dans les autres zones.

Afin de comprendre l'évolution des phases fluides à partir des zones de réaction naturelle, un échantillonnage continu sur une longueur de 1 mètre a été réalisé dans le sondage KN 226. Les variations observées ne paraissent pas significatives (tableau IV).

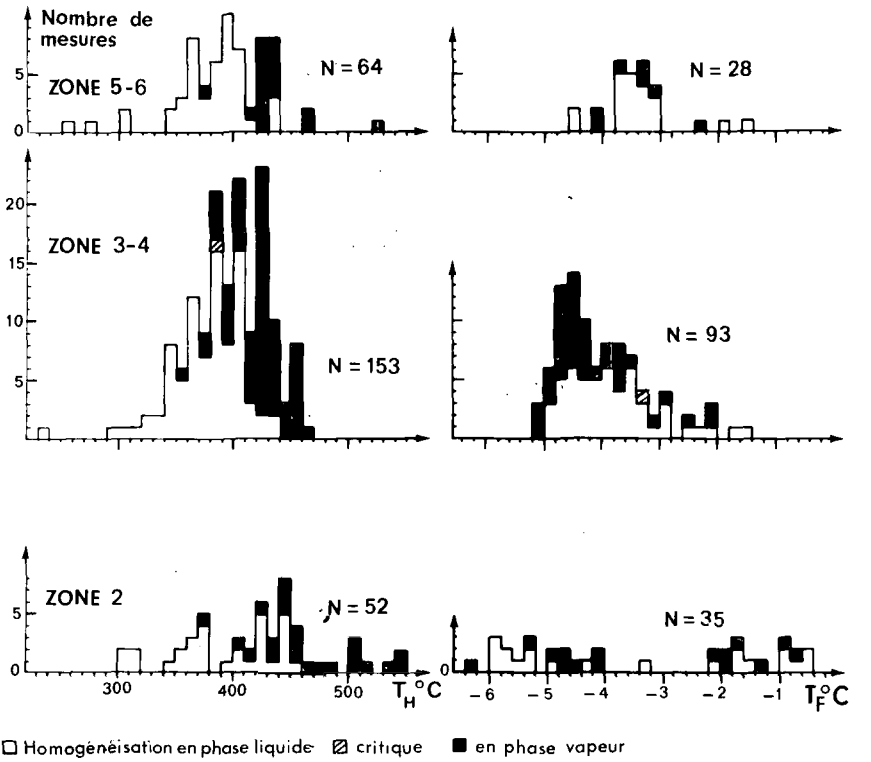


FIG. 6. Histogrammes des températures de disparition de la bulle de gaz et des températures de fusion des inclusions fluides situées autour des zones de réaction nucléaire naturelle.

Des données microthermométriques sur l'échantillon FOD, situé à 30 mètres de la zone 3, dans le dressant montrent que ce fluide est détectable sur d'assez grandes distances dans les zones d'ouverture.

Dans les zones de réaction, le quartz est quasiment absent (14), toutefois un filonnet a été découvert en zone 4 (éch. GL 824). Dans celui-ci, 3 générations de quartz ont été mises en évidence. La première contient des inclusions à une ou deux phases comparables à celles que l'on retrouve dans les filons de quartz à l'échelle régionale. La seconde contient des petits sphérules noirs (5 à 7 μm) et des minéraux hexagonaux rouges (hématite probable). La troisième génération présente un contact irrégulier avec la précédente : un épisode de corrosion se localise entre ces 2 générations. Cette troisième génération contient des solides submicroscopiques et probablement des inclusions fluides inétudiables.

Le fluide caractéristique des zones de réaction a été observé principalement dans la seconde génération et dans des plans recoupant les générations 1 et 2. Les températures de fusion sont comprises entre - 12.4°C et - 20.4°C pour des températures d'homogénéisation en phase liquide très variables, de + 134.8°C à + 448.4°C.

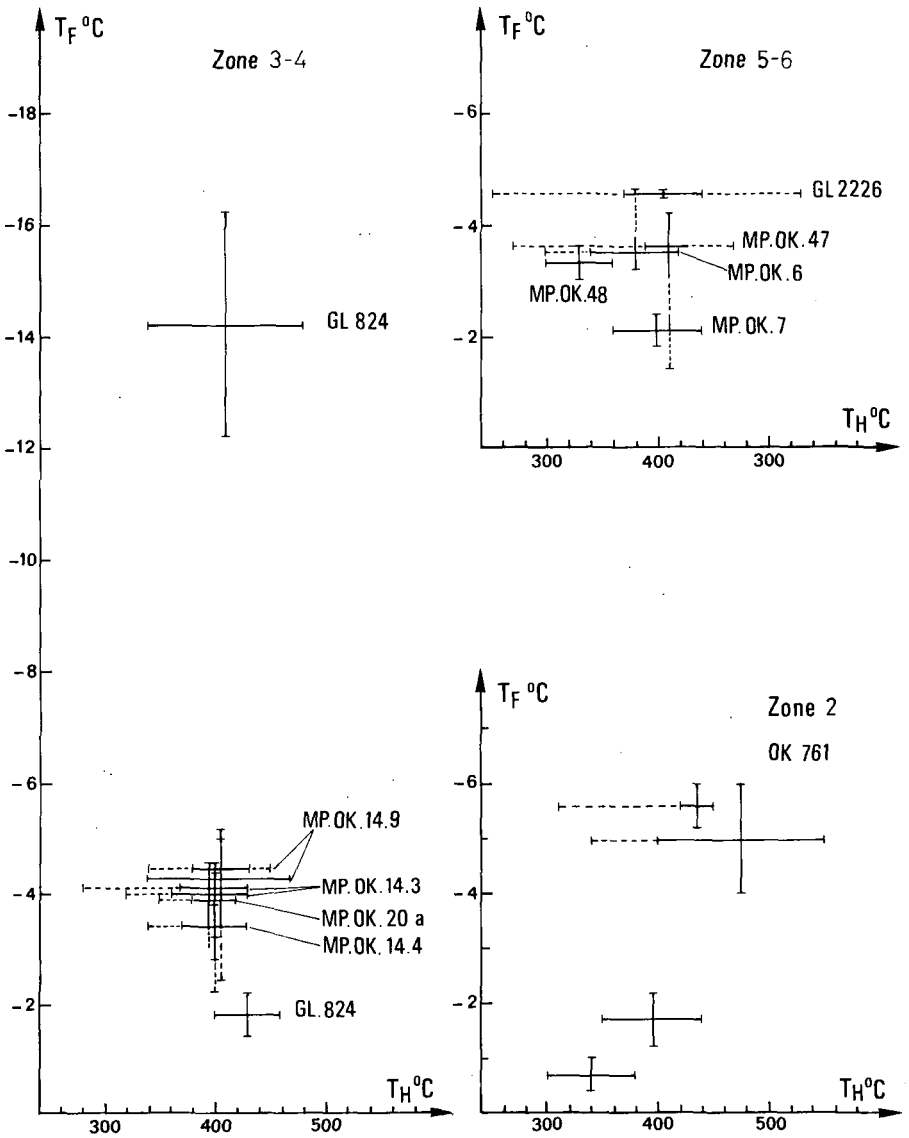


FIG. 7. Diagramme T_H-T_F pour les inclusions fluides caractéristiques des zones de réaction (plan d'inclusions par plan d'inclusions).

AUTRES DONNEES

Inclusions contemporaines du cisaillement des grès

Selon (14) une partie de la concentration en uranium s'est effectuée lors d'un épisode de cisaillement que l'on observe à l'échelle de l'affleurement mais aussi à l'échelle de la lame mince sous l'aspect d'un réseau dense de fractures cicatrisées parallèles qui recoupent les grains détritiques des grès.

Les inclusions liées à ces plans de cisaillement sont de très petite taille, au maximum 10 µm, et comportent deux phases fluides (solution aqueuse et bulle de vapeur). Dans l'échantillon OK 761, les températures d'homogénéisation sont comprises entre + 132,4°C et + 181,6°C avec une moyenne de + 155°C pour 26 inclusions. Les températures de fusion varient de - 2,5°C à - 3,5°C (moyenne : - 3,1°C pour 30 inclusions) d'où une salinité moyenne de 5,3 % équivalent poids NaCl. Ces données microthermométriques montrent que ce fluide est très comparable à celui trouvé dans les auréoles de silicification des grès et dans les filonnets de quartz.

Inclusions à hydrocarbures

Les inclusions à hydrocarbures n'ont été observées que dans un seul échantillon (GF 166) où elles représentent la majorité des inclusions. Elles sont le plus souvent disposées en plan. On observe parfois des inclusions qui contiennent un mélange eau-hydrocarbures en proportions variables. Celles-ci résultent de l'intersection de plans d'inclusions à hydrocarbures par des plans d'inclusions aqueuses à une phase. D'autres plans ne contiennent que des inclusions aqueuses (cf. tableau III pour les résultats microthermométriques). Au moins 3 types d'inclusions à hydrocarbures peuvent être distingués.

Type I : Grosses inclusions (15-40 µm) de forme irrégulière, de teinte jaune et souvent entourées par de très nombreuses petites inclusions. Les observations microthermométriques sont très difficiles sur ce type d'inclusions (photo 9, fig. 1).

Type II : Grosses inclusions (15-40 µm) de forme irrégulière. Au refroidissement, on observe une démixtion de deux fluides qui après réchauffement s'homogénéisent entre - 45°C et - 30°C (photo 8, fig. 1).

Type III : Petites inclusions (2-10 µm) avec des formes de cristaux négatifs très nettes. Ces inclusions démixtent à basse température entre une phase liquide et une phase gazeuse. Les températures d'homogénéisation en phase liquide se situent entre - 20°C et - 12°C (photo 7, fig. 1).

Inclusions décrépitées

(15) a montré que lorsque la pression augmentait à l'intérieur d'une inclusion, on pouvait aboutir à une décrépitation aussitôt suivie d'une cicatrisation, ce qui conduit à des inclusions de formes très caractéristiques. Ce phénomène est généralement attribué à une phase postérieure d'élévation de température ou de décompression de l'environnement extérieur. Ces inclusions sont extrêmement rares et n'ont été observées que dans l'échantillon 2200 où des plans entiers présentent des inclusions vidées et très ramifiées. Prélevée sur le même front de taille, la géode GF 166 montre des inclusions à hydrocarbures (type I) qui pourraient avoir subi ce même phénomène.

INTERPRETATIONS ET DISCUSSIONS

Estimation des conditions de température et de pression

L'augmentation, avec la profondeur, de la salinité des solutions aqueuses contemporaines du début de la diagenèse siliceuse est très nette (fig. 3). Des résultats comparables ont été obtenus par (16) sur les eaux de gisement dans les forages pétroliers. (12)(13) a également mis en évidence, sur ce même type d'inclusion fluide, une augmentation de la salinité avec la profondeur dans les grès Athabasca (province du Saskatchewan, Canada). L'augmentation, linéaire avec la profondeur, de la concentration des eaux de type chloruré-calcique quel que soit l'environnement sédimentaire initial (16) semble donc générale.

Les températures d'homogénéisation des inclusions à deux phases fluides contemporaines du début de la silicification sont élevées, supérieures à 150°C et se retrouvent à des distances de plusieurs dizaines de kilomètres. Ceci implique que l'élévation de température soit causée par un enfouissement régional et non pas par la présence d'aires géothermiques d'extension limitée.

Une estimation précise des conditions P, T de cette silicification se heurte à plusieurs problèmes. Il n'est pas certain que la silicification ait débuté partout au même moment bien que l'accroissement régulier de la salinité soit en faveur de cette hypothèse.

Par contre, un décalage dans le temps expliquerait très bien la température trouvée pour l'échantillon BA2-112,70, température supérieure de 10°C à celles des 2 autres échantillons plus profonds du sondage BA2. Les isochores des solutions aqueuses à différentes P et T ne sont connues que dans le système H_2O-NaCl pur (17) (18). Or, d'autres sels, $CaCl_2$, ou Na_2SO_4 par exemple, modifient la pente des isochores. L'analyse des ions dans les lessivages aqueux des quartz des filons suggère qu'à Oklo, la quantité de ces sels est loin d'être négligeable.

Les températures d'homogénéisation donnent une température minimale de formation et la position de l'isochore ou courbe Pression Température. La seule mesure de température que l'on possède à Oklo résulte de l'analyse chimique des ions dissous dans les inclusions des filonnets de quartz (échantillon BP 77-63). Le rapport K/Na de ces solutions est de 0,054 ± 0,007 pour 7 mesures. Si l'on considère que ce rapport K/Na était tamponné par les échanges d'alcalins entre les feldspaths des grès et la solution, on peut employer le thermomètre proposé par (10), et calibré avec précision par (19). Ce thermomètre, extrapolé vers les basses températures, indique une température de 238 ± 17°. L'isochore défini pour ces filonnets (fig. 8) donne alors pour cette température une pression de 1070 bars.

Cette pression correspond à un enfouissement. Si on considère que les roches sont totalement imperméables, elle sera celle de la colonne de roches susjacentes. Ces roches sont malheureusement pour l'essentiel disparues à l'heure actuelle. La contribution des couches du FB, FC, FD et FE qui ne dépasse probablement pas 700 à 800 mètres (20) ne peut guère excéder 170 bars. Une sédimentation dolomitique a succédé à celle que nous observons actuellement mais il est difficile d'en estimer l'épaisseur. Si l'on postule que la densité moyenne des roches disparues est voisine de 2,6, l'épaisseur totale des sédiments au-dessus de la couche C_1 au moment de la formation du dôme est de l'ordre de 4300 mètres si les séries sont très imperméables, et plus

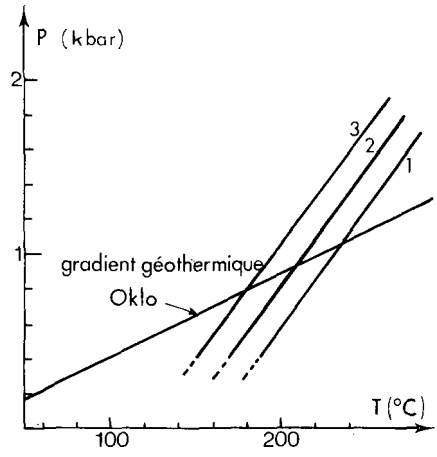


FIG.8. Détermination des conditions de pression et température pour les événements géologiques majeurs. 1 – Isochore pour les fluides contemporains de la formation des premiers filonnets de quartz et du début de la silicification diagénétique. 2 – Isochore pour le fluide contemporain de la formation du filonnet de quartz MP-OK-48. 3 – Isochore pour le fluide contemporain de la diagenèse carbonatée. Les isochores ont été tracés d'après les données de [17] modifiées par [18].

élevée si elles ne le sont pas, c'est-à-dire si la pression n'est pas lithostatique. Un exemple de relation entre pression des fluides et profondeur pris dans (21) a été reporté sur la fig. 9. On voit sur cette figure qu'une pression hydrostatique conduirait à des enfouissements de l'ordre de 10 000 mètres ce qui paraît difficilement concevable.

Dans l'hypothèse d'une pression lithostatique, le gradient géothermique aurait été de 50°C/km ce qui n'est pas surprenant pour un bassin subsident avec volcanisme associé.

Cette température et cette pression de formation des premiers filonnets de quartz liés à la formation du dôme sont vraisemblablement valables pour la diagenèse siliceuse des grès (cf. tableau I), et semblent s'accorder avec la forte proportion de mica 2M à la base du sondage BA2 (22). D'autres filonnets (MP-OK-48) se sont formés à température plus basse. Ceci signifie que les mouvements tectoniques qui ont formé dôme, dressant et crochon se sont étalés dans le temps durant une baisse de température liée vraisemblablement à une remontée de tout l'édifice.

Cette remontée est encore plus nette si l'on considère la dolomitisation des grès. Cette dolomitisation est tardive (20, 22) et les données microthermométriques montrent que les fluides qui lui sont associés sont à la fois moins chauds et plus concentrés en sels. Si l'on postule que le gradient géothermique n'a pas changé, cette dolomitisation se serait produite vers 180°C et 800 bars.

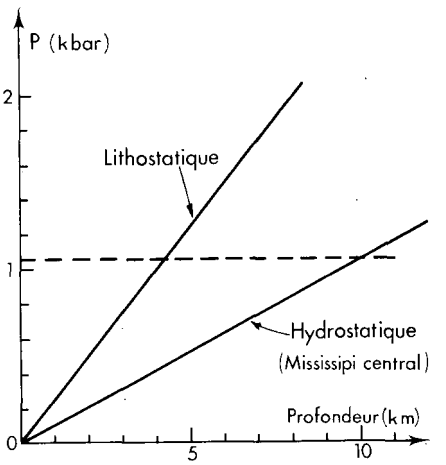


FIG.9. Relation entre la pression et la profondeur, d'une part dans un régime lithostatique et d'autre part dans un régime hydrostatique. La ligne pointillée indique la pression de formation des premiers filons de quartz.

LES ZONES DE REACTION NATURELLE

Les études géochronologiques mises en oeuvre n'ont pas abouti à distinguer nettement dans le gisement d'Oklo entre sédimentation, diagenèse(s), concentration(s) en uranium et fonctionnement des réacteurs. L'un des apports majeurs de l'étude des inclusions fluides est de montrer que les zones de réaction ont fonctionné après la diagenèse siliceuse et la formation des filonnets de quartz mais avant la seconde silicification dans les filons (MP-OK-48) et la diagenèse carbonatée. La salinité des fluides impliqués dans les zones de réaction est très comparable à celle des fluides à partir desquels les quartz des filons se sont formés.

Les filons de quartz se forment lors d'une tectonique d'ouverture liée à la formation du dôme (14) et les concentrations d'uranium conduisant aux réacteurs ont dû se former dès cette époque. Les premiers filons formés témoignent des conditions PT proches de la diagenèse siliceuse. D'autres témoignent de conditions moins sévères : la température avait baissé de quelques dizaines de degrés. La pression à laquelle les réacteurs ont fonctionné est donc encadrée par celle des premiers filonnets de quartz(BP 77-63) soit 1070 bars et celle de la diagenèse dolomitique que l'on peut estimer à 800 bars.

Les températures d'homogénéisation du fluide caractéristique des zones de réaction, à la fois en phase liquide ou en phase gazeuse, peuvent s'interpréter de trois manières :

1 - Toutes les inclusions étudiées n'étaient pas étanches et il s'est produit des microfuites (23,24).

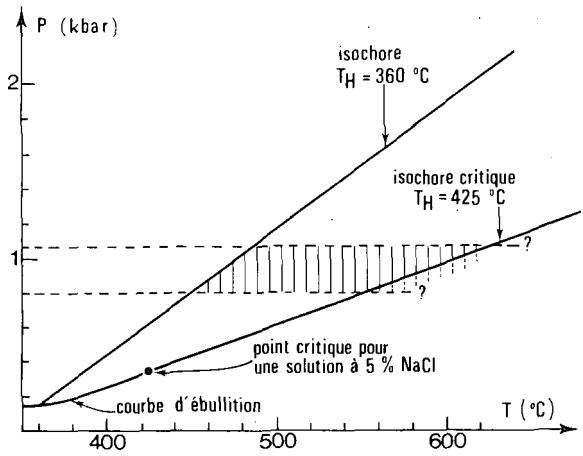


FIG.10. Limites des conditions de pression et température pendant le fonctionnement des réacteurs nucléaires naturels d'Oklo. La ligne pointillée supérieure correspond à la pression de formation des filons de quartz les plus profonds tandis que la ligne pointillée inférieure correspond à la pression lors de la dolomitisation. Les isochores ont été tracés à partir des données de [17] avec une extrapolation pour l'isochore critique.

2 - Au moment du piégeage la solution est à l'ébullition ce qui implique une séparation entre une phase liquide et une phase vapeur.

3 - Après le piégeage, il se produit des recristallisations qui modifient l'homogénéité initiale. C'est le phénomène d'étranglement des inclusions (25).

Ces différents cas seront examinés. Des vérifications expérimentales (26) ont montré que le manque d'étanchéité est limité aux inclusions proches de la surface externe des cristaux. De plus nos résultats sont très reproductibles et l'on n'observe jamais les fentes signalées par (24). Sans l'exclure totalement pour certaines inclusions, ce phénomène ne peut expliquer la configuration actuelle des résultats. La possibilité d'ébullition est intéressante car elle a été évoquée par (1). Cette ébullition implique deux choses. D'une part, les températures d'homogénéisation en phase liquide et en phase gazeuse doivent être identiques et d'autre part, du fait de la partition des composés dissous entre phase vapeur et phase liquide, les salinités pour les deux types d'inclusions doivent être différentes et en accord avec les résultats expérimentaux de (27). On en a de très beaux exemples dans le cas des porphyres cuprifères (28). Ce n'est pas le cas à Oklo et ceci se comprend d'autant mieux que la pression fluide au moment du fonctionnement des zones de réaction était très supérieure à la pression critique (cf. fig. 10). La troisième possibilité est en partie confirmée par les nombreux étranglements visibles en lame épaisse (photo 12, fig. 1) et par les salinités assez constantes dans une fracture cicatrisée. Il semble que le phénomène d'étranglement soit caractéristique des phénomènes dans lesquels les conditions P, T varient rapidement.

La température d'homogénéisation qui doit servir de base à la construction des isochores se situe donc entre la température d'homogénéisation la plus basse et la température d'homogénéisation la plus élevée et plus vraisemblablement dans le domaine où se regroupent le plus grand nombre de données car toutes les inclusions n'ont pas probablement été affectées par ce phénomène d'étranglement.

Pour aboutir aux températures de formation, il faut donc ajouter une correction due à la pression, pression qui comme nous l'avons vu était au début d'environ 1000 bars. Cette correction est de l'ordre de 100° (fig. 10). Pour les zones 3–4 et 5–6, on aboutit donc à des températures voisines de 450-600°C. Autour de la zone 2, les températures atteintes sont vraisemblablement de l'ordre de 600°C. Cette différence est intéressante puisque cette zone a le plus fortement réagi (29). Ces températures sont compatibles avec les données de (14) qui évalue la production totale de chaleur à 60 millions de calories par gramme de minerai entré en réaction. Cette quantité de chaleur peut être suffisante pour élever la température de 200°C dans un volume un million de fois plus grand que celui du minerai situé en réaction.

Toutefois, si les fluides ont fortement circulé, la pression était hydrostatique et les températures d'homogénéisation seront très proches des températures de fonctionnement des réacteurs. L'étude des inclusions fluides seule ne permet pas de choisir entre ces deux régimes de pression des fluides.

Nos résultats indiquent également que la chaleur n'est pas dissipée principalement par conduction mais par des circulations de solutions aqueuses. D'une part, la composition chimique de la solution varie et d'autre part, ce fluide a été retrouvé assez loin des zones de réaction dans une zone très ouverte, le dressant.

CONSEQUENCES DE CE MODELE POUR LA GENESE DES CONCENTRATIONS URANIFERES

Un résultat important de cette étude réside dans la démonstration d'une origine profonde de la première silicification des grès. Comme les études de minerais (30) (14) tendent à montrer que l'uranium apparaît après cette première silicification, on doit en déduire que les concentrations économiques en uranium à Oklo ne peuvent pas être le résultat de phénomènes de surface (31) mais sont liées à des processus de diagenèse profonde. Les cisaillements des grains détritiques de C1 considérés par (14) comme contemporains de la concentration économique en uranium contiennent des fluides identiques à ceux de la diagenèse. Il en résulte que la source de l'uranium ne doit pas être recherchée dans le socle du Chaillu - il serait apparu plus tôt - mais dans les tufs dont la dévitrification a dû être accélérée par cette diagenèse.

La couche C1 d'Oklo apparaît alors comme un chenal perméable oxydé au mur d'une formation réductrice : les pélites et ampélites du FB. Le processus de réduction serait lié à la compaction des pélites riches en matières sulfurées qui ont vraisemblablement diffusé H_2S vers le bas, réduisant les complexes d'ion uranyle. Le fait qu'on n'observe pas de "roll" à Oklo montre que la réduction est un phénomène contemporain de la circulation des solutions minéralisantes et non pas antérieur .

Un dernier apport enfin de l'étude des inclusions fluides à Oklo concerne la forme sous laquelle l'uranium a dû être transporté. Contrairement aux études réalisées sur d'autres gisements d'uranium (32) (33) (34) (35), le CO_2 ne paraît pas être un constituant significatif de ces solutions. Seuls

paraissent importants les anions Cl et SO_4 (tableau II). Nous savons que les anions chlore (36) ne complexent pas l'uranium. Il en résulte que l'uranium, à Oklo, a vraisemblablement été transporté sous forme d'uranyl-sulfates.

REFERENCES

(1) - NAUDET R. (1975) - Mécanismes de régulation des réactions nucléaires. In "Le phénomène d'Oklo". IAEA, Vienne, pp. 589-601.

(2) - ROEDDER E. (1972) - Composition of fluid inclusions. Data of Geochemistry, U.S. Geol. Survey Prof. Paper, 440 JJ, 164 p.

(3) - ERMAKOV N.P. (1950) - Recherches sur les solutions minéralisantes. Univ. Charkov, 460 p., et Pergamon Press, New York, 1965.

(4) - ROEDDER E. (1962) - Studies of fluid inclusions. I - Low temperature application of a dual-purpose freezing and heating stage. Econ. Geol., 57, pp. 1045-1061.

(5) - ROEDDER E. (1963) II - Freezing data and their interpretation. Econ. Geol., 58, 2, pp. 167-211.

(6) - ROSASCO G.J., ROEDDER E. and SIMMONS J.H. - Laser-excited Raman spectroscopy for non destructive partial analysis of individual phases in fluid inclusions in minerals. Science, 190, 557 (1975).

(7) - DEICHA G. (1950) - Essais par écrasement de fragments minéraux pour la mise en évidence d'inclusions de gaz sous pression. Bull. Soc. fr. Mineral. Crystallo., 73, pp. 439-445.

(8) - ROEDDER E. (1970) - Application of an improved crushing microscope stage to studies of the gases in fluid inclusions. Schweiz. Min. Petr. Mitt., 50, pp. 41-58.

(9) - ROEDDER E., INGRAM B. and HALL W.E. (1963) - Studies of fluid inclusions. III - Extraction and quantitative analysis of inclusions in the milligram range. Econ. Geol., 58, pp. 353-374.

(10) - POTY B., STALDER H.A. and WEISBROD A.M. (1974) - Fluid inclusions studies in quartz from fissures of Western and Central Alps. Bull. Suisse Miner. Petr. vol. 54, pp. 717-752.

(11) - WEISBROD A., POTY B. et TOURET J. (1976) - Les inclusions fluides en géochimie-pétrologie : tendances actuelles. Bull. Soc. Fr. Mineral. Cristallogr., 99, pp. 140-152.

(12) - PAGEL M. (1975) - Cadre géologique des gisements d'uranium dans la structure Carswell (Saskatchewan - Canada) "Etude des phases fluides". Thèse Spécialité 156 p., Nancy.

(13) - PAGEL M. (1975) - Détermination des conditions physico-chimiques de la silicification diagénétique des grès Athabasca (Canada) au moyen des inclusions fluides. C.R. Acad. Sci. Paris, t. 280, pp. 2301-2304.

(14) - GAUTHIER-LAFAYE F. (1977) - Oklo et les gisements d'Uranium du Francevillien. Thèse de 3ème cycle, Université Louis Pasteur, 81 p., Strasbourg.

(15) - LAEMMLEIN G.C. (1956) - Formation of fluid inclusions in minerals and their use in geological thermometry. Geochemistry, pp. 630-642.

(16) - DICKEY P.A (1968) - Increasing concentration of subsurface brines with depth. Chem. Geol. 4, 4, pp. 361-370.

(17) - LAEMMLEIN G.C. and KLEVTSOV P.V. (1961) - Relations among the principal thermodynamic parameters in a part of the system H_2O-NaCl. Geochemistry, pp. 148-158.

(18) - POTTER R.W. (1977) - Pressure corrections for fluid inclusion homogenization temperatures based on the volumetric properties of the system NaCl-H_2O. Jour. Research U.S. Geol. Survey, Vol. 5, N° 5, pp. 603-607.

(19) - LAGACHE M. and WEISBROD A. (1977) - The system : two alkali feldspars-KCl-NaCl-H_2O at moderate to high temperatures and low pressures. Contrib. Mineral. Petrol. 62, pp. 77-101.

(20) - WEBER F. (1969) - Une série précambrienne du Gabon : le Francevillien, Sédimentologie, géochimie. Relations avec les gîtes minéraux associés. Mém. Serv. Carte Géol. Als. Lorr. 28, 328 p.

(21) - CARPENTER A.B., TROUT M.L. and PICKETT E.E. (1974) - Preliminary report on the origin and chemical evolution of Lead - and Zinc rich oil field brines in Central Mississippi. Econ. Geology, v. 69, N° 8, pp. 1191-1206.

(22) - WEBER F., GEFFROY J., LE MERCIER M. (1975) - Synthèse des études minéralogiques et pétrographiques des minerais d'Oklo, de leurs gangues et des roches encaissantes. In "Le phénomène d'Oklo". IAEA Vienne, pp. 173-193.

(23) - SKINNER B.J. (1953) - Some considerations regarding liquid inclusions as geologic thermometers : Econ. Geology, V. 48, p. 541-550.

(24) - LARSON L.T., MILLER J.O., NADEAU J.E., ROEDDER E. (1973) - Two sources of error in low temperature inclusion homogenization determination, and corrections on published temperatures for the east Tennessee and Laisval deposits. Econ. Geology, Vol. 68, N° 1, pp. 113-116.

(25) - LAEMMLEIN G.C. and KLIYA M.O. (1952) - Characteristics of healing of a crack in a crystal under conditions of declining temperature. Dok. Akad. Nauk. S.S.S.R., V. 87, 6, pp. 957-960.

(26) - ROEDDER E. and SKINNER B.J. (1968) - Experimental evidence that fluid inclusions do not leak. Econ. Geol., V. 63, pp. 715-730.

(27) - SOURIRAJAN S. and KENNEDY G.C. (1962) - The system H_2O-NaCl at elevated temperatures and pressures. Amer. J. Sci., 2, pp. 115-141.

(28) - ETMINAN H. (1967) - Le porphyre cuprifère de Sar Cheshmeh (Iran). Rôle des phases fluides dans les mécanismes d'altération et de minéralisation. Thèse Etat, Sciences de la Terre, Institut National Polytechnique de Lorraine, Nancy, 249 p.

(29) - NAUDET R. et RENSON C. (1975) - Résultats des analyses systématiques de teneurs isotopiques de l'uranium. In "Le phénomène d'Oklo". IAEA, Vienne, pp. 265-291.

(30) - GEFFROY J. (1975) - Etude microscopique des minerais uranifères d'Oklo. In "Le phénomène d'Oklo". IAEA, Vienne, pp. 133-151.

(31) - CHAUVET R.J. (1975) - Description du gisement d'uranium d'Oklo. In "Le phénomène d'Oklo". IAEA, Vienne, pp. 53-65.

(32) - LEROY J., POTY B. (1969) - Recherches préliminaires sur les fluides associés à la genèse des minéralisations en uranium du Limousin (France). Miner. Deposita, Berlin, 4, 395.

(33) - CUNEY M. (1975) - Les conditions de dépôt de l'uranium dans le gisement uranifère des Bois Noirs Limouzat (Forez, Massif Central Français) 3ème réunion annuelle des Sciences de la Terre, Montpellier, p. 116.

(34) - PAGEL M. et JAFFREZIC H. (1977) - Analyses chimiques des saumures des inclusions du quartz et de la dolomite du gisement d'uranium de Rabbit Lake (Canada). Aspect méthodologique et importance génétique. C.R. Acad. Sc. Paris, t. 284, Série D, pp. 113-116.

(35) - NAUMOV G.B. (1961) - Some physicochemical characteristics of the behavior of uranium in hydrothermal solutions. Geochemistry, pp. 127-147.

(36) - NGUYEN TRUNG C. et POTY B. (1977) - Solubilité de UO_2 en milieu aqueux à 500°C et 1 Kilobar, 5ème réunion annuelle des Sciences de la Terre, Rennes, p. 352.

Annexe 1

ORIGINE DES ECHANTILLONS CITES DANS LE TEXTE

En dehors du gisement d'Oklo

Sondage BA2 situé à environ 25 km d'Oklo, à l'est du Plateau de Bangombé

- BA2 - 112,70 ; BA2 - 632,80 ; BA2 : 930,80 : grès silicifiés
- BA2 - 115,70 : filonnet à quartz-calcite dans grès
- BA2 - 621,30 : filonnet à quartz dans grès (puissance centimétrique).

Sondage MAB situé à environ 20 km d'Oklo (Mabinga)

- MAB - 123,90 : grès à ciment siliceux et dolomitique. Equivalent latéral des horizons minéralisés.

Sondage BO-45 (Gisement de Boyindzi)

- MP-OK-41 : filonnet à quartz-calcite - 219,20 à 219,40 m.

Dans le gisement d'Oklo

FOD : filon à quartz automorphes issu du dressant, à la cote 365, à l'aplomb de la zone 3. Puissance décimétrique.

BP 77-63 : filonnets de quartz de puissance centimétrique, dans des grès grossiers, prélevés dans le crochon.

Zone 2 :

- OK 761 : conglomérat C_1 situé à 1 m de la zone de pile.

Zone 3–4 :

- MP-OK-14 (1 à 9) Sondage KN 226 - De 0 à 105 cm de la zone de pile.
- MP-OK-20 a - Sondage SC 57, 14, 20 à 14,35 m, filonnets de quartz dans grès fin.
- GL 824 - Front 123 - filonnet de quartz dans le faciès pile.
- GL 166 - Front 166 - géode à quartz - 1,40 m de la zone de pile.

Zones 5–6 :

- MP-OK-6 - Sondage KN 243 (21,10 m). Filonnet de quartz dans grès, 1 m de la zone de pile.
- MP-OK-7 - Sondage KN 245 (25,25 m). Grès. Contact immédiat de la zone de pile.
- MP-OK-47 - Sondage KN 249 (19,55 m). Filon à quartz automorphe.
- MP-OK-48 - Sondage KN 249 (20,15 m). Filon à quartz automorphe.
- GL 2200 - Front du 30.09.76. Grès. 75 cm de la zone de pile.
- GL 2226 - Front du 30.09.76. Filon de quartz. 25 cm de la zone de pile.

Annexe 2

DONNEES MICROTHERMOMETRIQUES

T_F °C	T_H °C
Diagenèse siliceuse des grès	
BA2 112,70	
- 1,9	-
- 2,0	-
- 1,7	16,32
- 1,6	-
- 1,7	171,3
- 1,8	188,2
- 1,6	152,9
-	161,5
-	164,8
-	135,7
- 1,6	161,4
- 1,6	-
- 1,9	-
-	150,0
- 1,6	-
-	152,2
-	149,3
-	170,5
-	176,8
-	164,8
-	151,6
- 2,4	156,5
- 2,5	157,1
- 2,1	121,4
- 2,5	167,1
-	165,5
BA2 632,90	
-	148,8
- 3,9	150,1
-	146,7
-	136,7
- 3,4	141,1
- 3,6	-
-	147,5
-	140,0
- 3,6	-
- 2,8	145,6
-	154,5
- 4,0	-
- 3,1	150,2
- 3,9	149,7
- 3,5	150,5
- 3,9	157,0
- 3,9	153,2
-	149,7
- 3,6	151,6
- 3,6	-
- 3,5	151,1
- 3,1	-
- 3,7	152,4
- 3,8	154,0
-	146,0
- 3,5	-
- 3,4	-
BA2 930,80	
- 5,5	150,3
-	145,0
- 4,9	153,6
- 6,5	-
- 6,3	-
-	155,4
- 4,9	149,1
- 4,9	145,1
-	152,3
-	130,2
-	146,0
-	138,7
- 4,9	158,2
- 5,9	152,2
-	155,5
-	147,0
- 5,8	164,8
-	154,5
- 6,0	-
- 5,9	141,8
- 6,5	139,1
-	156,9
- 5,9	111,4
- 5,7	146,0
-	154,2
-	156,8
- 5,1	144,5
- 5,2	143,0
- 6,3	151,5
- 5,9	-
-	133,0
- 5,1	147,5
- 5,1	157,0
- 5,1	-
- 5,4	171,0
-	145,6
- 5,8	-
-	159,1
- 5,7	152,2
-	148,9
-	146,3
-	145,3
-	162,2
- 6,5	131,6
- 6,7	152,1
- 6,2	143,3
- 5,1	147,5
- 5,1	144,5
- 5,2	143,0
- 6,3	151,5
- 5,9	-
-	133,0
OK 761	
- 3,7	156,4
-	153,5
-	143,5
- 2,8	155,0
Diagenèse carbonatée des grès	
MAB 123,9	
-	110,5
-	112,0
-	112,5
-	111,0
- 32,3	101,9
- 31,9	102,5
-	102,1
-	101,9
- 31,1	115,1
- 33,0	112,6
- 32,6	-
- 31,5	110,5
- 26,3	-
-	110,3
- 25,8	-
-	113,1
-	128,6
-	127,8
-	124,9
- 32,6	
Filons de quartz et quartz carbonate	
BA2 115,70	
-	110,9
-	101,4
-	117,4
- 1,5	125,7
-	100,3
- 1,4	-
-	114,6
-	110,8
-	118,9
- 1,4	119,2
-	110,1
- 1,6	-
- 1,1	-
-	115,0
-	112,0
-	106,7
- 1,5	106,7
-	109,1
- 1,5	122,9
-	114,7

** Fracture tardive

BA2 621,30	
-	108,5
-	109,1
- 1,3	-
-	108,6
-	109,0
-	114,3
-	110,7
-	116,1
-	113,9
-	109,2
-	109,2
-	109,2
- 1,5	113,5
-	110,7
-	112,9
-	115,8
-	115,4
-	108,2
-	114,1
-	109,5
-	117,2
-	113,8
-	115,8
-	117,9
- 1,5	114,2
-	114,3
- 1,8	118,8
- 2,0	118,6
- 15,3**	-
- 16,9**	54,7
- **	40,9
MP OK 47	
- 1,9	143,0
-	121,0
- 1,8	139,5
-	151,5
- 2,0	139,4
-	170,6
- 1,8	-
- 2,1	158,2
- 2,0	163,8
-	144,4
-	136,3
- 2,0	166,2
- 2,0	-
- 1,6	146,0
-	161,0
- 2,0	153,5
-	155,0
-	133,8
- 2,0	170,1
-	162,5
- 2,0	139,5
-	130,5
-	158,2

- 2,1	149,8
- 2,0	-
-	155,4
-	156,7
- 2,1	150,1
-	181,6
-	146,1
- 1,8	150,6
-	140,2

MP OK 48

- 2,7	134,4
- 2,9	124,3
- 2,7	133,3
- 2,2	124,9
- 2,5	129,4
- 2,3	-
- 2,3	123,7
- 2,3	121,6
- 2,5	128,8
- 2,4	132,5
- 2,4	125,9
- 2,5	137,9
- 3,0	128,2
- 2,6	120,1
-	126,6
- 2,6	135,5
- 2,1	138,2
- 2,6	136,5
- 2,3	136,3
- 2,6	127,9
- 2,5	133,0
- 2,2	134,0
- 2,2	124,7
- 2,4	-
- 2,3	124,3
-	134,6
- 2,5	132,9
- 2,3	132,9

2ème génération de quartz

- 46,9	144,2
- 25,7	165,0
- 23,7	144,2
- 24,5	206,8
- 24,6	135,4
- 23,4	107,3
- 15,8	147,0
- 24,4	140,3
- 14,5	138,3
- 33,7	124,0

MP OK 41

- 3,3	112,9
- 3,7	113,5
- 3,8	116,5
- 3,8	129,9
- 3,9	113,7
- 4,0	116,2
- 4,3	113,1
- 4,3	107,3
- 4,0	105,0
- 4,6	113,7
- 4,1	109,6
- 3,3	140,0
- 3,7	143,4
- 3,7	142,0
- 3,8	142,7
- 3,1	140,6
- 3,9	133,3
- 20,4	102,6
- 17,1	140,3
- 19,5	109,5
- 16,4	141,1
- 16,3	140,5
- 16,1	139,6
- 16,2	135,3
- 15,8	147,3

FOD quartz

- 3,4	108,4
- 1,9	125,2
- 0,5	121,3
- 1,6	121,5
- 1,9	123,2

MP OK 20

- 26,0	116,3
- 21,6	100,1
- 26,9	115,0
- 26,1	-
- 27,9	-

GF 166

- 7,2	-
- 6,9	-
- 33,9*	-
- 30,8*	-
- 12,8*	-
- 35,0	-
- 29,5	-
- 26,1	-
- 32,3	-
- 20,6*	-
- 18,1*	-
- 19,6*	-
- 20,5*	-
- 24,6	-
- 13,8*	-
- 32,0*	-
- 31,8*	-
- 19,8*	-
- 21,2*	-
- 27,3*	-
- 25,6*	-
- 24,2*	-
- 21,7*	-
- 33,9*	-
- 31,6*	-

* Fusion métastable (sans bulle de vapeur)

- 2,3	155,0
- 2,1	151,8
- 2,4	147,3
- 2,0	159,8
- 2,0	160,3
- 2,7	157,6
-	150,5
- 2,6	135,5
- 3,7	148,3
- 3,2	134,5

GF 166 Hydrocarbures

-	- 44
-	- 44
-	- 45
-	- 15
-	- 28,5
-	- 15,1
-	- 45
-	- 31,9
-	- 16,0
-	- 16,5
-	- 19,9
-	- 14,5
-	- 15,9
-	- 20,9
-	- 13,5
-	- 24,9
-	- 38,5

BA2 11S.70 (carbonate)

-	115,1
- 29,6	-
- 30,5	-
-	105,2
-	100,2
- 31,0	105,0
-	97,6
-	107,2
- 33,6	-
- 32,7	-
- 33,7	112,0
-	105,2
-	104,3
- 35,9	102,8
- 29,0	-
- 31,5	108,6
- 30,6	111,4
- 30,5	106,0
-	108,4
-	114,5
-	101,6
-	102,3
-	104,8
-	104,8
38,8	-
38,0	102,9

Cisaillements dans les grès OK 761

-	132,4
- 3,2	145,6
- 3,2	148,9
- 3,5	149,4
-	155,4
- 3,3	-
- 3,2	-
- 3,5	157,6
- 3,3	-
- 3,5	-
- 3,3	146,8
-	153,7
- 2,6	156,4
-	148,1
- 3,1	156,8
- 3,1	-
- 3,1	162,5
- 3,2	180,6
- 3,3	174,6
- 2,8	-
-	142,0
- 3,2	-
-	143,7
-	147,7
- 3,2	155,2
- 3,0	142,3
- 3,5	-
- 3,0	150,2
- 2,7	-
- 2,7	-
- 2,9	-
- 2,8	-
- 2,5	158,5
- 2,6	-
-	140,0
-	146,9
- 2,8	167,6
- 2,8	181,6
- 2,9	181,6

Zone 2 OK 761

T_F °C	T_H °C	Type homog.
- 0.8	-	V
- 0.8	307.0	L
- 1.0	278.8	L
-	318.8	L
- 0.6	372.9	L
- 1.0	379.2	V
- 0.9	353.1	L
- 0.5	308.0	L
- 2.1	366.6	L
- 2.1	-	V
- 1.7	371.0	L
- 1.9	410.3	V
- 2.1	-	-
- 1.9	405.2	V
- 1.3	-	V
- 1.5	372.9	L

- 1.7	-	V
-	368.0	L
- 1.7	357.6	L
- 5.5	-	-
-	393.9	L
- 5.7	429.7	L
- 5.4	441.0	L
-	422.2	L
- 5.3	311.9	L
-	446.6	V
- 5.7	447.5	L
-	441.9	L
-	448.4	L
- 5.9	444.4	L
- 5.4	-	V
- 5.6	360.9	L
-	421.0	L
- 5.9	426.5	L
-	401.5	L
-	479.6	V
-	509.2	V
-	450.7	L
- 5.5	-	-
- 4.9	434.4	L
- 5.0	436.6	V
- 3.3	340.9	L
-	547.6	V
-	485.8	V
- 4.2	514.0	V
-	441.9	V
-	537.4	V
- 4.6	434.4	V
- 4.2	462.4	V
-	443.8	V
- 4.7	456.8	V
- 4.4	425.6	L
- 6.3	542.0	V
- 4.7	504.6	V
-	457.8	V
- 3.7	-	-
- 5.2	-	-
-	509.2	V
-	453.1	V
-	429.7	V
-	415.6	L
- 5.8	-	-
- 5.9	402.6	L
Zone 3-4		
MP OK 14-1		
-	389.8	V
-	356.5	L
-	378.7	L
-	369.3	L
-	409.3	L
-	363.0	L
-	325.8	L
-	338.0	L
-	336.8	L
-	344.8	L
-	399.1	V
-	421.1	V
-	436.4	V
-	421.5	V
-	455.2	V
-	436.3	V
-	236.0	L
MP OK 14-3 (Grès)		
-	391.9	L
- 3.4	389.1	C
-	392.6	V
- 2.6	386.0	L
-	360.4	L
-	425.9	V
-	364.2	L
-	376.8	L
-	433.5	V
- 4.1	368.8	L
-	382.6	L
- 3.0	363.3	L
-	372.6	L
- 3.9	363.2	L
-	399.9	V
- 4.0	386.4	L
- 3.8	413.3	V
- 3.9	385.4	V
- 3.7	374.9	L
- 3.5	395.1	L
- 3.6	363.8	L
-	424.9	L
- 4.1	380.3	L
- 3.6	323.7	L
- 3.6	368.1	L
- 4.1	399.9	V
- 4.5	425.9	V
- 3.1	401.8	L
- 3.8	404.7	V
- 3.5	406.7	V
- 4.5	371.0	V
- 4.5	360.6	L
- 4.3	408.6	V
MP OK 14-3 (Filon de quartz)		
- 4.4	373.9	L
-	405.8	L
-	404.7	V
- 4.3	340.6	L
-	422.2	V
- 4.2	289.8	L
- 3.9	386.7	L
	397.7	V
-	357.1	V
-	393.4	L
-	422.7	V
-	380.6	L
-	421.4	V
-	421.4	V
-	421.4	V
-	421.4	V
- 3.9	341.9	L
-	424.0	V
-	416.4	V
-	415.8	V
-	424.0	V
-	420.7	V
-	380.0	V
-	402.5	L
MP OK 14-4 (Grès)		
- 3.0	403.4	L
- 2.9	384.5	V
- 3.8	423.9	V
-	404.6	L
- 2.4	405.3	L
- 3.5	401.8	L
-	380.7	L
- 3.3	372.9	L
- 3.3	349.9	L
- 3.9	423.9	V
- 3.5	356.6	L
- 3.7	423.9	V
- 3.1	419.9	V
MP OK 14-9 (Grès)		
-	428.7	V
- 4.2	-	L
- 5.0	401.8	V
- 4.5	198.2	L
- 4.9	379.5	L
- 4.8	450.1	V
-	380.2	L
- 4.8	-	V
- 3.8	365.0	L
- 5.2	455.6	V
-	459.4	V
- 4.8	435.5	V
- 5.2	-	V
- 4.6	397.1	L
- 4.7	-	V
- 4.6	-	V
- 4.5	355.1	L
- 4.6	459.3	V
- 4.5	457.4	V
- 4.8	401.2	V
- 4.4	466.2	V
- 4.8	-	V
-	398.8	L
- 5.2	-	-
- 4.8	439.0	V
- 4.3	-	V
- 4.4	433.7	V
- 4.5	454.2	V
- 4.7	381.7	L
- 2.9	-	-
- 4.7	415.8	V
- 4.5	-	V
- 4.4	390.3	L
- 2.6	-	V
- 2.9	348.0	L
- 4.4	-	V
- 2.8	-	-
-	388.0	L
- 4.9	420.5	V
- 4.5	447.9	V
- 4.0	-	L
-	447.9	V
- 4.4	381.9	L
- 5.0	-	-
- 4.5	402.2	L
- 4.2	348.5	L
- 5.0	404.3	L
- 5.0	386.4	L
- 4.9	-	-
- 4.7	414.6	L
- 5.0	441.2	V
- 4.9	-	-
- 4.8	402.3	L
- 4.7	-	-
-	384.5	L
- 4.7	404.7	L
- 4.8	386.4	L
- 5.1	426.2	V
- 4.6	-	-
-	428.7	V
GL 824 (Filon de quartz)		
-	428.0	L
-	419.0	L
- 1.8	364.0	L
- 2.2	452.0	V
- 2.1	317.1	L
- 1.5	400.6	L
-	439.0	V
-	434.0	V
- 2.1	425.0	V
contemporain à la 2ème génération de quartz		
- 14.7	-	-
- 15.8	-	-
- 14.8	448.4	L
- 20.4	-	-
-	434.4	L
- 19.1	-	-
-	275.2	L
- 16.7	-	-
-	134.8	L
-	406.0	L
- 15.3	385.9	L
- 13.4	-	-
- 15.9	-	-
- 16.1	430.5	L
- 15.7	-	-
- 13.7	-	-
-	430.0	L
-	348.0	L
-	390.0	L

- 14.2	-	-
-	378.0	L
- 13.9	357.2	L
- 12.4	-	-
- 18.2	-	-

MP OK 20a
Filon de quartz

- 4.0	414.7	L
-	415.6	V
-	395.1	L
- 4.3	354.8	L
- 4.5	401.6	L
- 3.3	388.6	L
- 3.7	409.1	L
-	306.3	L
- 3.7	347.7	L

Zone 5–6
MP OK 6
Filon de quartz

-	403.6	L
- 3.6	403.8	L
- 3.8	362.4	L
-	363.9	L
- 3.4	397.0	L
- 4.6	403.0	L
-	382.9	L
-	348.9	L
- 3.7	365.6	L
-	393.2	L
-	383.7	L
- 3.6	305.0	L
- 3.7	367.2	L
- 3.6	363.1	L
-	420.3	V
-	420.3	V
- 3.3	373.8	L
-	392.2	L
-	424.0	V
- 3.5	-	-
- 3.7	429.7	V
-	397.0	L
- 3.7	403.5	L
- 3.6	361.0	L
- 3.2	-	-
-	359.4	L
-	364.2	L
-	392.2	L
- 3.3	371.7	L
- 3.8	397.0	L
-	389.4	L

GL 2226
Filon de quartz

-	402.3	L
-	373.1	L
-	411.0	L
-	435.0	V
-	523.0	V
-	434.0	V
-	462.0	V
- 4.6	-	-
-	393.2	L
-	394.6	L
-	437.1	V
-	402.6	L
- 4.5	389.0	L
-	255.0	L
-	436.0	V
-	435.0	V
-	382.0	L

MP OK 47
Filon de quartz

- 4.1	415.6	V
- 3.6	-	-
- 4.2	-	V
- 3.3	420.4	V
- 3.1	420.4	V
- 3.4	462.4	V
- 3.3	398.3	L
-	425.0	V
-	401.6	L
- 1.6	275.5	L

MP OK 48
Filon de quartz

- 3.2	302.4	L
- 3.2	353.9	L
- 3.6	351.2	L
- 3.2	346.6	L

MP OK 7
Grès

-	433.4	L
-	396.5	L
- 1.9	380.0	L
-	431.6	L
-	436.4	L
- 2.3	375.2	V
-	361.4	L

Dressant
FOD quartz

-	417.4	V
-	421.2	L
-	428.9	C
-	410.7	L
-	389.4	L
-	461.3	V
-	497.7	V
-	413.2	L
- 3.1	388.8	L
- 3.4	352.6	L
- 3.4	363.8	L
- 3.5	267.8	L

DISCUSSION

F. WEBER: Je suis d'accord avec vos conclusions, qui me paraissent très intéressantes. Néanmoins je me pose une question: peut-on estimer que le rapport Na/K est contrôlé uniquement par le feldspath? En effet, les feldspaths potassiques sont très rares. La valeur de la concentration de K en solution ne serait-elle pas plutôt contrôlée par les micas?

R. OPENSHAW: Tant qu'une quantité quelconque de feldspaths potassiques et sodiques sera présente dans le grès, le rapport K/Na sera tamponné.

J. CONNAN: Si j'ai bien compris votre exposé, vous avez dit, sur la base de vos études d'inclusions fluides, que les filons de quartz d'Oklo ont pris naissance à une profondeur de 4,3 km. Un tel enfouissement est appréciable. J'aimerais savoir si cette évaluation est en accord avec les paléo-enfouissements estimés par les géologues.

F. WEBER: Je confirme que les résultats présentés par M. Openshaw sont en bon accord avec nos conclusions concernant l'enfouissement de la série. Je rappelle qu'en 1975 j'avais avancé l'hypothèse d'un enfouissement de 4000 à 5000 m en me fondant sur la nature des phyllites. Naturellement, ces valeurs étaient beaucoup plus subjectives et moins précises que celles avancées par M. Openshaw.

MINERALOGICAL EVIDENCE FOR THE MODE OF DEPOSITION AND METAMORPHISM OF REACTION ZONE SAMPLES FROM OKLO

P.R. SIMPSON, J.F.W. BOWLES
Institute of Geological Sciences,
Geochemical Division,
London, United Kingdom

Résumé–Abstract

DEMONSTRATION MINERALOGIQUE DU MODE DE DEPOSITION ET DU METAMORPHISME D'ECHANTILLONS PRELEVES DANS LA ZONE DE REACTION D'OKLO.

L'étude minéralogique et les examens effectués au moyen d'une microsonde électronique sur des échantillons prélevés dans la zone de réaction d'Oklo ont montré que l'uraninite (échantillon n° 1391/4) est massive, recristallisée et relativement homogène, bien qu'on rencontre également des concentrations de galène d'origine probablement radiogénique et des veinules transversales contenant des matières carbonées. La micro-analyse effectuée en combinant des mesures des longueurs d'onde et de l'énergie diffusée indique que l'uraninite a des teneurs moyennes faibles en thorium (0,26% ThO_2), en vanadium (0,02% V_2O_3) et en yttrium (0,01% Y_2O_3) mais est plus riche en manganèse (0,31% MnO), en fer (0,81% Fe_2O_3) et en calcium (0,96% CaO); on constate la présence en faibles quantités du titane (0,13% TiO_2) et du silicium (0,43% SiO_2). La composition de l'uraninite indique qu'elle s'est probablement formée par métamorphisme thermique et recristallisation de pechblende à grain fin. Les conditions critiques se sont probablement établies au cours de la diagénèse et de la compaction d'une matière organique riche d'origine algaire, fortement uranifère, saturée d'eau et en décomposition. Ce phénomène a entraîné l'expulsion progressive de l'eau des pores et des matières carbonées vers la périphérie, en même temps qu'une élévation locale de température et qu'un métamorphisme de la pechblende qui s'est transformée en uraninite, après quoi la réaction en chaîne de fission a pris fin.

MINERALOGICAL EVIDENCE FOR THE MODE OF DEPOSITION AND METAMORPHISM OF REACTION ZONE SAMPLES FROM OKLO.

Ore-mineralogical and electron microprobe studies of samples from the reaction zone at Oklo indicate that the uraninite (sample No. 1391/4) is massive, recrystallized and relatively homogeneous, although concentrations of galena of probable radiogenic origin and secondary cross-cutting veinlets containing carbonaceous matter occur. Microanalysis, by a combination of wavelength and energy dispersive techniques, indicates that the uraninite contains low mean values for thorium (0.26% ThO_2), vanadium (0.02% V_2O_3) and yttrium (0.01% Y_2O_3), but is enriched in manganese (0.31% MnO), iron (0.81% Fe_2O_3) and calcium (0.96% CaO); titanium (0.13% TiO_2) and silicon (0.43% SiO_2) are present in small amounts. The uraninite composition indicates that it probably formed by thermal metamorphism and recrystallization of fine-grained pitchblende. The conditions for criticality were probably established during diagenesis and compaction of highly uraniferous, waterlogged and decaying organic rich algal material. This resulted in the progressive expulsion of porewater and carbonaceous matter into the aureole, associated with local heating and metamorphism of the pitchblende to uraninite followed by termination of the fission chain reaction.

INTRODUCTION

The present study represents a progress report on combined ore mineralogical and electron microprobe studies of reaction zone samples from Oklo kindly supplied by Dr. Naudet [1, 2], which demonstrate the presence of massive uraninite in the core of the reaction zone (sample No. 1391/4) and carbonaceous nodules and finely disseminated carbonaceous matter associated with clay minerals in the aureole of the reaction zone (sample Nos 1945/2, 1956/2). These studies provide mineralogical constraints on the geological conditions which resulted in criticality and assist in the elucidation of possible combined geochemical and geological models which would account for this phenomenon in nature. Uraninite compositons for both major and minor elements can give much information on the mode of formation and can be used to give support to alternative models for formation when considered in conjunction with relevant textural information.

ORE MINERALOGY

Ore microscopic study indicates that the reaction zone samples consist of coarsely crystalline, optically homogeneous uraninite, cross-cut by occasional fine veinlets of carbonaceous matter. Grain boundaries are generally not observed. Fine-grained clay minerals are dispersed through the uraninite which also contains exsolved blebs of probable radiogenic lead as galena. The X-ray powder diffraction data indicate that the main uraninite phase is well crystallized as the powder lines show evidence of streakiness/spottiness after preparation of the sample mount by crushing between microscope slides and the cell size of this uraninite is approximately 5.44 Å. In addition to this major distinct uraninite phase an indistinct and presumably more oxidized uraninite phase was detected with an approximate cell size of 5.40 Å. No intermediate types were found and it has not been possible so far to identify these two types on the microscope and so decide their relationship to one another. However, it is likely that these varieties result from the variable auto-oxidation of uraninite in the production of radiogenic lead.

Carbonaceous nodules are present in the argillaceous aureole of the reaction zone (sample Nos 1945/2 and 1956/2) comprising anisotropic carbonaceous matter, which is not associated with discrete uranium minerals. These nodules appear to be primary in origin and are intimately intergrown with minerals such as rutile, biotite, zircon, quartz, gypsum and lead-rich baryte, which also occur in the host rock. Separate grain mounts of these were prepared for electron-probe analysis.

In addition, a fine-grained vein-like dissemination of carbonaceous matter is also present, and since it has a cross-cutting relationship has probably been

introduced into the sediment. This material varies from a disseminated translucent phase to a denser, more opaque veining, particularly where it is associated with well-formed euhedral pyrite crystals, which have apparently formed in situ in close association with this organic matter.

ELECTRON-PROBE MICROANALYSIS

Electron-probe microanalysis was performed systematically on the uraninite using combined quantitative energy and wavelength dispersive techniques on an 8-mm rectangular grid with ~ 0.25 mm between analysis points, utilizing the automatic sample positioning facilities attached to the Cambridge Instrument Company Microscan 5 microprobe which is fitted with a Canberra energy dispersive analyser. The results are presented in Table I, and cumulative frequency curves for U_3O_8, ThO_2, PbO, MnO and Fe_2O_3 are shown in Figs 1–5.

In addition, electron-probe scanning of the carbonaceous nodules was performed to detect the presence of associated uranium minerals but none were encountered.

Microprobe analyses with more than 12.5 wt% PbO were excluded from consideration as these were assumed to result from the exsolution and concentration of radiogenic lead from the uraninite.

INTERPRETATION OF RESULTS

The results obtained so far indicate that the uraninite, although well-crystallized, is of the low-thorium type, generally associated with deposition from low-temperature aqueous solutions (Simpson and Bowles [3]). In addition, the co-existence of significant iron, manganese and calcium suggests that organic matter may have been important in forming the initial concentrations of uranium. The importance of organic acids in this process has previously been indicated by Szalay [4, 5], who indicated geochemical enrichment factors between water and peat of 1×10^4 for UO_2^{2+}, 2.65×10^4 for Fe^{3+}, and 5.0×10^3 for Mn^{2+}. On the other hand, thorium is relatively insoluble in low-temperature aqueous solution and is thereby excluded from deposits formed from such waters, which could account for its very low abundance shown in Table I.

The low values for vanadium may either be due to absence from the mineralizing solutions, since it is readily sorbed after reduction of the anionic migrating form into cations [5] and should therefore follow uranium, or may have been consumed in the fission-chain reaction if only present initially in small amounts.

TABLE I. ELECTRON-PROBE MICROANALYSIS OF OKLO REACTOR CORE URANINITE

U_3O_8	87.53	(2.21)	see Note (a)
PbO	7.98	(1.32)	
ThO_2	0.26	(0.13)	
TiO_2	0.13	(0.05)	
V_2O_3	0.02	(0.02)	
Fe_2O_3	0.81	(0.30)	
MnO	0.31	(0.07)	
Y_2O_3	0.01	(0.01)	
CaO	0.96		see Note (b)
SiO_2	0.43		
La_2O_3	0.069	(0.007)	see Note (c)
Ce_2O_3	0.205	(0.007)	
Pr_2O_3	0.171	(0.020)	
Nd_2O_3	0.393	(0.010)	
Sm_2O_3	0.029	(0.008)	
EuO	nd	(0.008)	
Gd_2O_3	nd	(0.008)	
Tb_2O_3	nd	(0.009)	
TOTAL	99.31		

Note (a): Average of 173 energy dispersive analyses over an area 8 mm × 8 mm. One standard deviation given in brackets.

Note (b): Average of 3 precision wavelength dispersive analyses.

Note (c): Average of 3 precision wavelength dispersive analyses with 1000 s counting time to give low limit of detection (0.007 – 0.02% oxide) and with interference suppressed. Detection limit given in brackets.

It is probable that the carbonaceous nodules represent primary organic matter deposited in the sediments, but that the interstitial and cross-cutting veins of disseminated carbonaceous material with pyrite represent carbonaceous matter and sulphur remobilized from the core of the reaction zone during criticality. This material could therefore represent carbonaceous matter responsible for the initial reducing conditions which caused deposition of the uranyl and associated

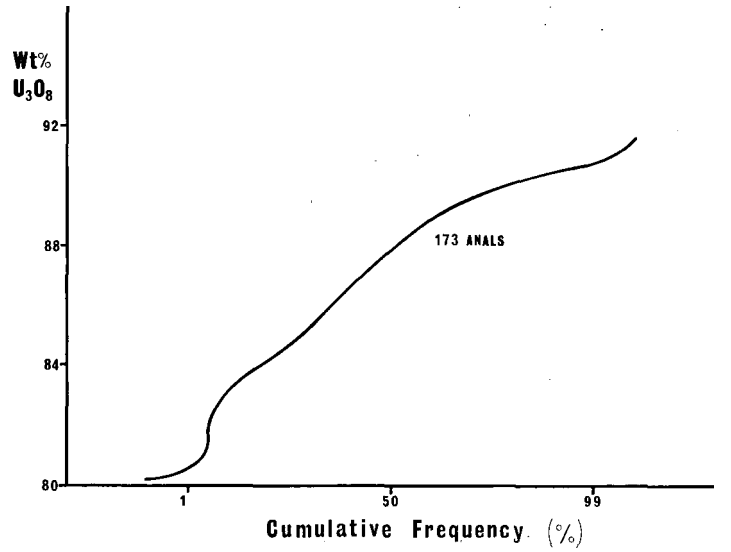


FIG.1. Cumulative frequency distribution for U_3O_8 in uraninite from sample No. 1391/4 determined by energy dispersive electron-probe microanalysis.

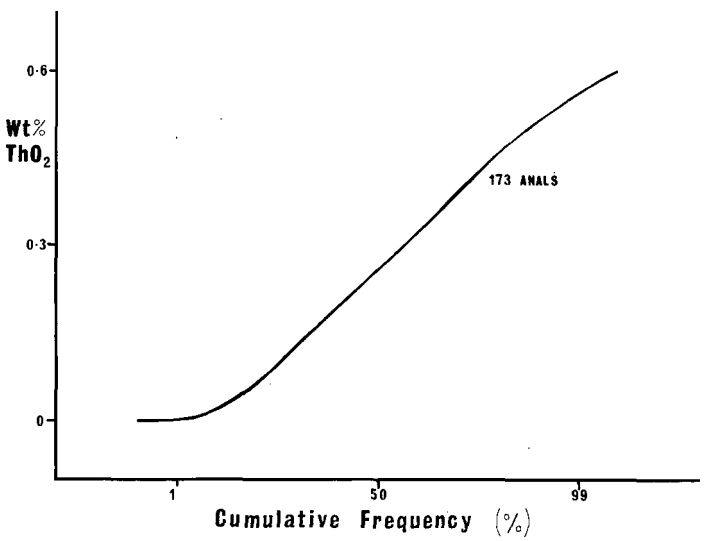


FIG.2. Cumulative frequency distribution for ThO_2 in uraninite from sample No. 1391/4 determined by energy dispersive electron-probe microanalysis.

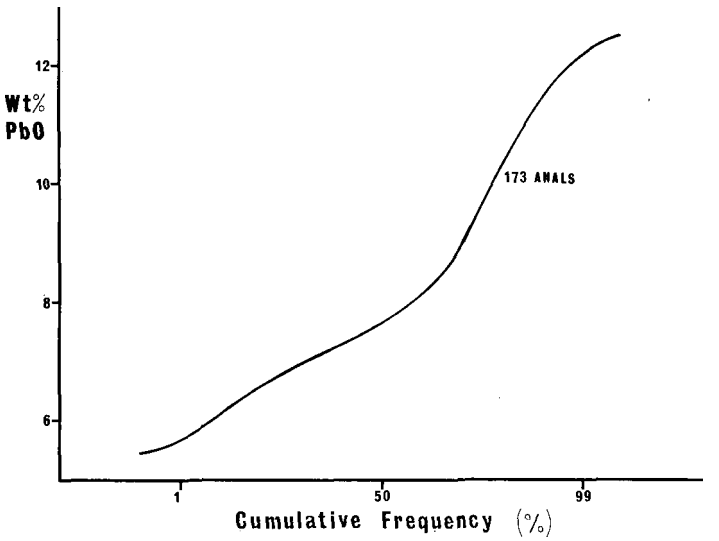


FIG.3. Cumulative frequency distribution for PbO in uraninite from sample No. 1391/4 determined by energy dispersive electron-probe microanalysis.

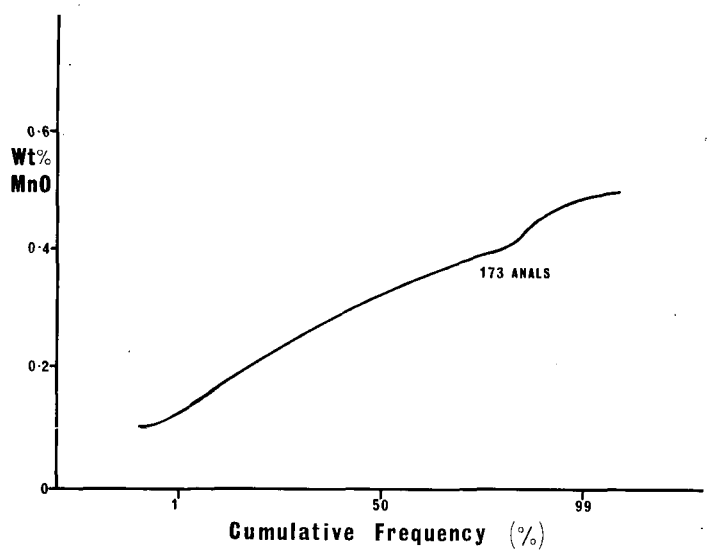


FIG.4. Cumulative frequency distribution for MnO in uraninite from sample No. 1391/4 determined by energy dispersive electron-probe analysis.

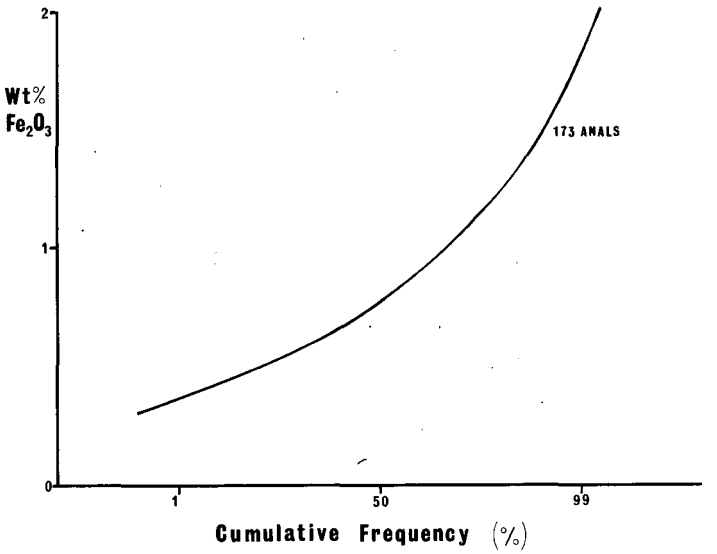


FIG.5. Cumulative frequency distribution for Fe_2O_3 in uraninite from sample No. 1391/4 determined by energy dispersive electron-probe microanalysis.

cations from solution. Hence, in this model, the association between the reaction zone and the aureole of organic-rich sediments would not be an accidental feature but of prime genetic significance, although original depositional features are obliterated by the thermal metamorphism in the core of the reaction zone. This probably converted pitchblende to coarsely crystalline uraninite, which has retained chemical characteristics, suggesting deposition from low-temperature solutions. The absence of detrital uraninite from the conglomerates, which lie in the same stratigraphic plane as the uraniferous sediments, exclude detrital processes as a mechanism for introducing uranium in high concentration locally.

CONCLUSIONS

The preferred model on the data obtained so far involves the introduction of uraniferous groundwater into a series of braided arenaceous and argillaceous sediments with organic-rich lenses possibly representing decaying algal mats. These are known to concentrate uranium, iron, manganese and calcium from low-temperature aqueous solution. Diagenesis and compaction of the sediments promoted conditions favouring criticality moderated by water and carbonaceous matter. This could have resulted in local thermal metamorphism which

progressively expelled water and organic matter from the core of the reaction zone, formed coarsely crystalline uraninite and eventually brought the reaction to a close. It is significant that existing ages for the uraninite are indistinguishable from the enclosing sediments. Similar modes for the role of organic matter in concentrating uranium have recently been described from the Carbon Leader of the Witwatersrand, South Africa (Simpson and Bowles [3, 6]) but in that environment the geometry of the deposit did not satisfy requirements for criticality. The model presented here implies a source of water enriched in the soluble uranyl ion draining into the deposit during deposition of these sediments. The source is unknown but may perhaps be accounted for by erosion and dissolution of primary uranium mineralization in the granitic basement or secondary uraninite concentrations upstream.

ACKNOWLEDGEMENT

Published by permission of the Director, Institute of Geological Sciences, London.

REFERENCES

[1] BODU, R., et al., C.R. Hebd. Acad. Sci. **275**, Sér. D (1972) 1731.
[2] NEUILLY, M., et al., C.R. Hebd. Acad. Sci. **275**, Sér. D (1972) 1847.
[3] SIMPSON, P.R., BOWLES, J.F.W., Philos. Trans. R. Soc. London, A **286** (1977) 527.
[4] SZALAY, A., Geochim. Cosmochim. Acta **28** (1964) 1605.
[5] SZALAY, A., Ark. Mineral. Geol. **5** 3 (1969) 23.
[6] SIMPSON, P.R., BOWLES, J.F.W., Q. J. Geol. Soc. (1978) in press.

DISCUSSION

G.A. COWAN: En général, de tels gisements comprendront-ils une région renfermant du thorium, de l'or et des oxydes lourds d'origine détritique, puis une région où on trouvera cet uranium assez pur dans un état oxydé et réduit? S'ensuit-il par exemple que dans les environs d'Oklo il pourrait exister, peut-être au sommet du cône d'éboulis, une région contenant de l'or et du thorium?

P.R. SIMPSON: Les données présentées ici et aussi dans d'autres institutions font supposer que l'uranium, les terres rares et bien d'autres éléments associés ont leur origine dans l'érosion des granites du socle. Un environnement à énergie plus élevée que le gisement d'Oklo, plus proche des granites, aurait pu exister dans lequel de l'uranium associé à du thorium aurait pu être déposé et concentré. L'oxydation de ces gisements pendant le relèvement et le remaniement aurait pu créer des solutions uranifères conduisant à des concentrations d'uranium associées

à des gisements riches en matières organiques et à énergie plus basse. En conséquence on pourrait étudier des prolongements du corps minéralisé actuel, tant plus près que plus loin du contact granitique, mais la possibilité de trouver une minéralisation dépendra du niveau actuel d'érosion et de facteurs structuraux. Nous n'avons pas de données sur l'or; mais l'obtention de ces dernières pourrait dépendre des possibilités d'étude dans la région d'origine des gisements d'Oklo.

V.A. PCHELKIN: J'ai trouvé votre communication très intéressante, en particulier la partie qui traite de la détermination quantitative du thorium et de son rapport avec la matière organique. Dans cet ordre d'idées, je voudrais demander si vous avez fait des études sur la composition isotopique du thorium. Avez-vous pris en considération l'éventualité d'une accumulation de thorium-232 notamment, par suite de réactions du type (n, γ)? Au Colloque de Libreville des résultats ont été présentés dans ce domaine.

P.R. SIMPSON: Nous n'avons malheureusement pas de données isotopiques disponibles, bien que nous nous soyons initialement proposé de faire une étude à la sonde ionique. Pour des raisons indépendantes de notre volonté, la sonde n'a pas fonctionné; nous espérons néanmoins continuer ce travail en vue d'obtenir des données isotopiques à l'appui des thèses que nous avons présentées aujourd'hui.

E. ROTH: Vous avez décrit deux étapes dans la formation des dépôts d'uranium: une concentration primitive par la matière organique et une cristallisation subséquente. Au cours de quelle étape se produirait la réaction nucléaire?

P.R. SIMPSON: La concentration élevée de l'uranium associée à la présence de matière organique a probablement donné lieu à la réaction nucléaire au cours de l'enfouissement et de la diagenèse. On attribue la formation d'uraninite bien cristallisée dans les foyers de réaction au métamorphisme thermal de la matière organique riche en uranium au cours de la réaction nucléaire; la matière organique a disparu dans l'auréole en raison des températures locales élevées dans les foyers de réaction.

B. POTY: Votre comparaison entre Oklo et le Witwatersrand me paraît hardie. Au Witwatersrand l'uranium, qu'il soit détritique ou détritique et chimique (selon vos propres travaux), est essentiellement syngénétique et de surface. La concentration en uranium semble contemporaine du développement des algues et de la formation des conglomérats qui ne sont pas rongés. A Oklo, l'uranium paraît au contraire essentiellement diagénétique: les solutions uranifères oxydées circulant dans les grès du FA sont réduites par la matière organique expulsée des pélites durant la compaction et le H_2S associé. Ceci se passe durant l'enfouissement de la série. Les conditions de température et de pression sont donc très différentes. La matière organique au moment du dépôt de l'uranium devait également être très différente.

P.R. SIMPSON: Nous ne voulons pas pousser trop loin l'analogie entre les gisements de Witwatersrand et ceux d'Oklo. J'ai fait cette comparaison simplement pour essayer de démontrer les processus par lesquels l'uranium se trouve

associé avec des matières organiques à de fortes concentrations. Dans le cas d'Oklo, beaucoup d'éléments font supposer que le site final de la concentration pourrait dépendre d'un phénomène du type à auréole semblable à celui qu'on observe au plateau du Colorado; on se trouverait alors en présence d'un environnement gréseux. Cependant, je ne connais pas suffisamment bien l'environnement géologique en question. J'imagine que les deux situations coexistent.

B. POTY: A Oklo, nous n'avons pas d'auréole puisque la réduction s'est produite lors du transport des solutions uranifères. Au Colorado, il y a une auréole parce que – autant que je sache – la réduction des grès s'est effectuée avant l'arrivée de l'eau. A Oklo le processus de réduction a eu lieu au même moment.

P.R. SIMPSON: J'avais cru comprendre qu'une auréole se formait lorsque l'eau souterraine oxydante transportant l'uranium en solution entrait en contact avec une barrière rédox où s'effectuait la réduction. Les matières organiques constitueraient une telle barrière.

K.E. APT: A propos de Witwatersrand et en particulier du récif de Vaal, quel a été le déroulement dans le temps du processus de dépôt détritique de l'uranium et de sa concentration ultérieure dans le corps algaire?

P.R. SIMPSON: On a trouvé deux types d'association de l'uranium avec les algues. Dans le premier cas, le minerai uranifère consiste en une pechblende finement divisée. L'uranium s'est probablement incorporé au corps algaire par solution pendant le dépôt des sédiments il y a 2500 MA à peu près. Cependant, l'âge de ce matériau est d'environ 2000 MA, ce qui correspond à l'âge de recristallisation de la pechblende dans la matière organique, moment où a eu lieu une perte de plomb et où ce minerai uranifère s'est entièrement remis en place. Le conducteur de carbone *(carbon leader)* en est un bon exemple. Le récif de Vaal illustre bien le second cas, dans lequel l'uraninite détritique et la pechblende authigénique coexistent dans le matériau en colonnes. L'âge de l'uraninite détritique est approximativement 3000 MA, ce qui correspond aux âges des granites du socle, tandis que la pechblende secondaire coexistante s'est probablement cristallisée à 2000 MA à peu près. Les grains détritiques se sont incorporés à la matière organique lors du dépôt, aux environs de 2500 MA.

ETUDE GEOCHIMIQUE DE LA MATIERE ORGANIQUE INSOLUBLE (KEROGENE) DU MINERAI URANIFERE D'OKLO ET DE SCHISTES APPARENTES DU FRANCEVILLIEN

Mireille VANDENBROUCKE
Institut français du pétrole,
Rueil-Malmaison

J.N. ROUZAUD, Agnès OBERLIN
CNRS, Laboratoire Marcel Mathieu,
Université d'Orléans,
Orléans-la-Source,
France

Résumé–Abstract

ETUDE GEOCHIMIQUE DE LA MATIERE ORGANIQUE INSOLUBLE (KEROGENE) DU MINERAI URANIFERE D'OKLO ET DE SCHISTES APPARENTES DU FRANCEVILLIEN.

L'étude a pour objet de caractériser la matière organique associée au minerai d'uranium et ses transformations dans le cadre des problèmes suivants: 1) dans les zones des réacteurs naturels, évolution de la matière organique dans le cœur et en fonction de la distance à celui-ci, 2) comparaison des matières organiques d'un minerai riche et d'un minerai pauvre, 3) comparaison entre les matières organiques à l'état dispersé et concentré, 4) comparaison des matières organiques dans les zones de minerai d'uranium et dans le Francevillien voisin non minéralisé. La matière organique du cœur des réacteurs n'a pas pu être isolée par les techniques d'attaque acide habituelles. On constate dans les autres cas que la matière organique est oxydée dans les sédiments uranifères, et que l'oxydation est d'autant plus importante qu'on s'approche des zones de réaction, quel que soit l'état de dispersion de la matière organique dans la roche. La teneur en uranium n'a pas d'influence sur ce phénomène, qu'on attribue à l'action de l'eau portée à haute température dans le voisinage des zones de réaction. D'après la répartition actuelle de la matière organique et de l'uranium, on propose un schéma de la formation du gisement d'Oklo qui rendrait compte de la localisation du minerai dans les grès et du rôle de la matière organique dans les processus d'accumulation.

GEOCHEMICAL STUDY OF THE INSOLUBLE ORGANIC MATERIAL (KEROGEN) IN THE OKLO URANIUM ORE AND THE ASSOCIATED FRANCEVILLIAN SCHISTS.

The purpose of this study was to describe the organic material associated with uranium ore and ore transformations undergone by it, in terms of the following problems: (1) In the natural reactor zones, evolution of the organic material in the core and as a function of the distance away from it; (2) Comparison of organic materials from a rich and a poor ore; (3) Intercomparison of organic materials in the dispersed and concentrated state; (4) Comparison of organic materials in the uranium ore zones and in the adjacent non-mineralized Francevillian. The organic material from the reactor core could not be isolated by the normal techniques of treatment with acid.

It is found in other cases that the organic material is oxidized in the uranium-bearing sediments and that the nearer to the reaction zone, the greater the oxidation, irrespective of the state of dispersion of the organic material in the rock. The uranium content does not affect this phenomenon, which is attributed to the action of the water raised to a high temperature in the vicinity of the reaction zones. On the basis of the present distribution of organic material and uranium the authors suggest a pattern for the formation of the deposit that would take into account localization of the ore in the sandstones and the part played by organic material in the accumulation process.

1. INTRODUCTION

On présente ici les résultats de l'étude géochimique de la matière organique insoluble associée au minerai uranifère d'Oklo (Gabon), ainsi que celle de schistes non uranifères des mêmes séries, pour comparaison. Une étude précédente [1] avait déjà été réalisée sur six échantillons, mais elle portait essentiellement sur la matière organique extractible d'une part, et sur l'examen des propriétés optiques des matières organiques totales d'autre part. La matière organique extractible étant très peu représentée du fait de l'état d'évolution élevé des échantillons, il a été décidé de reprendre l'étude sur une matière organique concentrée par élimination de la plus grande partie des minéraux.

2. METHODE DE PREPARATION DU KEROGENE

Son principe consiste à solubiliser la matière minérale par des attaques acides non oxydo-réductrices qui n'altèrent pas ou très peu la matière organique [2, 3]. On opère en pratique de la manière suivante:

– Deux attaques de la roche préalablement broyée (80–100 μm) et extraite par le chloroforme, par l'acide chlorhydrique 6 N à 70°C pendant trois heures pour la première, une nuit pour la seconde, suivies à chaque fois d'un lavage en eau légèrement acidulée. On élimine ainsi principalement les carbonates, sulfates, oxydes et hydroxydes.

– Même protocole avec un mélange fluochlorhydrique (HCl 4 N 1/3, HF 40%, 2/3), puis rinçages en eau acidulée. On élimine de cette manière les silicates.

– Nouvelle attaque par HCl 6 N à 70°C pendant trois heures puis rinçages jusqu'à neutralité. On élimine ainsi certains fluosilicates formés au cours de l'attaque précédente.

Toutes les opérations sont faites sous azote dans des réacteurs munis d'un système d'agitation et d'un filtre 0,6 μm. Le soutirage des solutions est effectué à l'aide d'une pompe péristaltique.

Après ces attaques acides, le résidu récupéré sur le filtre est constitué essentiellement par la matière organique et quelques minéraux non attaqués tels que la pyrite et certains oxydes et sulfates de métaux lourds, ou des minéraux de néoformation comme certains fluosilicates. On élimine généralement les préparations qui, à l'analyse élémentaire, présentent des teneurs en pyrite supérieures à 40% et/ou des teneurs en autres minéraux supérieures à 15%, car le dosage des éléments organiques devient très imprécis. Cependant, dans le cas des kérogènes d'Oklo, on a obtenu, d'une façon assez générale, à partir des roches uranifères, une proportion élevée de cendres minérales autres que la pyrite (5 à 25%); aucune préparation correspondant aux échantillons des zones de piles n'a pu être utilisée, la proportion des cendres minérales obtenue étant 100 fois supérieure à celle de la matière organique attendue à partir du dosage du carbone. L'étude en diffraction et fluorescence X a montré que ces cendres étaient constituées essentiellement par les fluorures d'uranium UF_4, H_2O et UF_4, 3/4 H_2O. Il est vraisemblable que ces composés proviennent de l'attaque fluorhydrique, et que donc l'attaque chlorhydrique qui la précédait n'a pas pu solubiliser les sels d'uranium. On a essayé de remplacer l'attaque avec HCl 4 N par une attaque légèrement oxydante, n'altérant pas trop la matière organique. Avec l'acide perchlorique 4 N comme avec l'acide nitrique 4 N, la tentative a été infructueuse: l'attaque fluorhydrique ultérieure a fait précipiter la même proportion de fluorures d'uranium. Ce problème de précipitation massive ayant été rencontré seulement dans le cas des échantillons irradiés, on peut se demander s'il n'est pas lié à l'apparition dans les zones de piles de minéraux particuliers plutôt qu'à la simple concentration du minerai uranifère. On reviendra plus longuement sur cette question en 4.3 b).

3. TECHNIQUES ANALYTIQUES UTILISEES

3.1. Sur la roche brute

a) Dosage du carbone organique

On opère sur une prise de 400 à 800 mg de roche broyée, homogénéisée. Les carbonates sont attaqués pendant une nuit à 70°C par un excès d'acide chlorhydrique 2 N. Un dosage en retour par la soude 1,33 N permet de connaître la teneur en carbone minéral. Le carbone organique est dosé dans un appareil Leco WR 12: l'échantillon est brûlé sous oxygène à 1700°C; les gaz de combustion passent ensuite sur de l'oxyde cuivrique pour transformer l'oxyde de carbone en gaz carbonique; ce dernier est dosé à l'aide d'un détecteur à catharomètre (pont électrique dont la branche de détection, parcourue par l'effluent gazeux, voit sa résistivité changer par variation de la conductivité thermique du milieu).

b) Pyrolyse sous gaz inerte

On chauffe un échantillon de roche broyée (5 à 100 mg) sous hélium en programmation de température (22°C/min de 150 à 600°C). L'effluent gazeux est divisé et envoyé sur deux détecteurs:

– Un détecteur à ionisation de flamme (le courant d'ionisation obtenu par passage des produits gazeux dans la flamme est reçu sur un électromètre et amplifié) dont la réponse est proportionnelle en première approximation à la quantité de carbone contenue dans l'effluent. Au cours de la pyrolyse, on obtient successivement deux pics. Le premier est attribuable aux hydrocarbures libres déjà présents dans l'échantillon, le second aux composés carbonés libérés par la pyrolyse, et qui correspondent en première approximation aux quantités totales d'hydrocarbures qui pourraient être formés par la matière organique lors de son évolution ultérieure, dans les conditions géologiques; en outre, la température observée au maximum de ce second pic est caractéristique de l'état d'évolution atteint dans les conditions naturelles par l'échantillon.

– Un détecteur à catharomètre, qui permet d'obtenir parallèlement la quantité de gaz carbonique produit au cours de la pyrolyse.

La connaissance des deux grandeurs *hydrocarbures potentiels* et *gaz carbonique* en mg/g de carbone organique, encore appelées *index d'hydrogène* et *index d'oxygène* [4, 5], permet aux pétroliers de classer les matières organiques en fonction de leur origine et de leur état d'évolution.

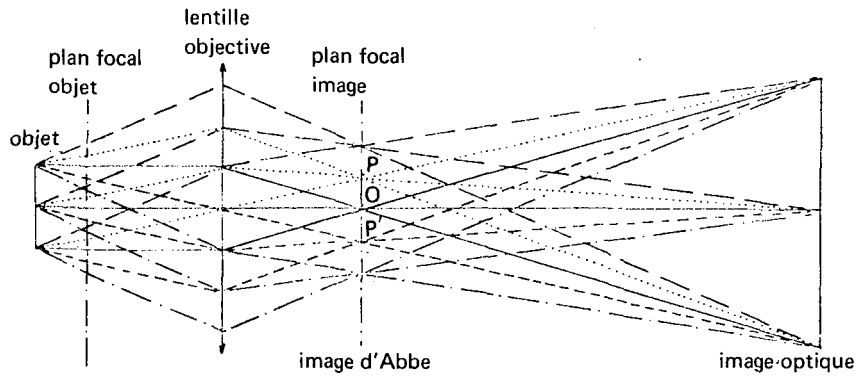
3.2. Sur le kérogène

a) Analyse élémentaire

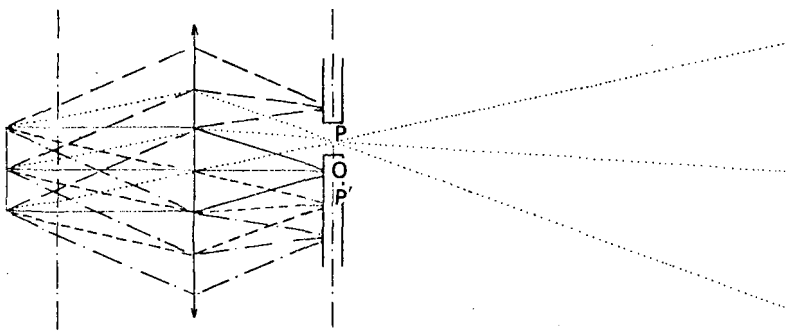
Les éléments dosés sont C, H, N, O, S, Fe, ainsi que les cendres résiduelles après combustion. Le dosage du fer est nécessaire pour calculer la proportion de pyrite FeS_2 contenue dans le kérogène et qu'on n'a pu éliminer (la pyrite est en principe la seule forme minéralogique du fer qui résiste aux attaques acides). Le soufre minéral résultant est alors déduit du dosage, et on obtient ainsi le soufre organique. Les analyses donnant par cette méthode une proportion de pyrite supérieure à 40% sont généralement suspectes à cause d'une part de la forte densité de la pyrite comparée à celle de la matière organique, qui rend difficile l'homogénéité de la prise d'échantillon, et d'autre part de l'influence sur le dosage de l'oxygène (augmentation de la teneur apparente en cet élément). On élimine pour la même raison les kérogènes comportant plus de 15% de minéraux autres que la pyrite (qui sont fréquemment des oxydes lourds comme zircon, rutile, etc.).

b) Etude par microscopie électronique à haute résolution

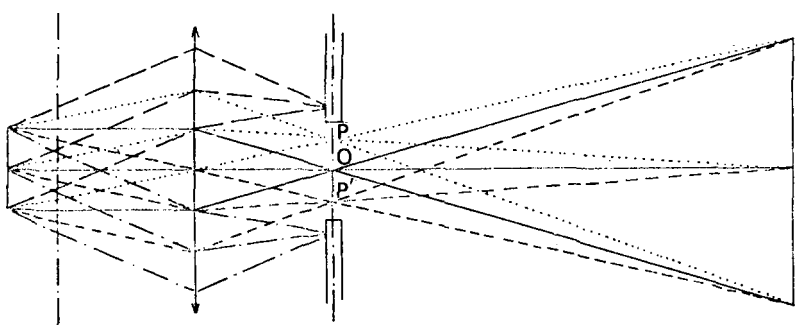
Deux techniques différentes sont utilisées. Dans les deux cas, on part de l'observation suivante: la formation d'une image par une lentille objective peut



a. Formation de l'image optique.



b. Image en contraste de diffraction.



c. Image en contraste de phase.

FIG.1. Technique de formation des images en microscopie électronique à haute résolution.

être décomposée en deux transformations de Fourier successives à partir de l'objet (fig. 1). La première aboutit à une image de diffraction (image d'Abbe) située dans le plan focal image de la lentille objective; la seconde permet de passer de cette image à l'image optique (fig. 1 a).

– *Contraste d'amplitude (fond noir).* Si l'on sélectionne par un petit diaphragme une zone particulière de l'image d'Abbe, seuls les rayons diffractés par des particules de même orientation et arrivant donc à cette zone pourront former une image apparaissant dans le plan de l'image optique comme des taches brillantes sur fond noir (fig. 1 b). En particulier, pour mettre en évidence les feuillets carbonés aromatiques, on placera ce diaphragme à l'emplacement du faisceau 00.2 qu'ils produisent. Alors que bien souvent cette raie n'est pas observable directement dans le diagramme de diffraction, car elle est trop peu intense, la technique décrite permet de matérialiser les régions de l'objet où existent déjà des empilements de feuillets de noyaux aromatiques, et de matérialiser ceux-ci s'ils sont supérieurs en taille au pouvoir séparateur du microscope.

– *Contraste de phase (résolution des plans réticulaires) (fig. 1 c).* Son principe est de faire interférer le faisceau incident et un faisceau diffracté. La condition de cohérence nécessaire pour que l'interférence ait lieu est remplie à cause de la très petite longueur d'onde du faisceau d'électrons, pourvu qu'on élimine par un diaphragme les rayons diffractés émis loin de l'axe optique (déphasage dû aux aberrations des lentilles). L'image optique est alors formée de franges alternativement sombres et brillantes qui matérialisent, si le faisceau choisi est 00.2 des carbones, les couches aromatiques vues sur la tranche.

4. RESULTATS ET DISCUSSION

4.1. Distribution de la matière organique

a) Données générales

Le dosage direct du carbone organique contenu dans les différentes roches étudiées permet déjà, sans isoler la matière organique, d'obtenir certains renseignements concernant sa répartition. Nous avons analysé 26 échantillons d'argiles et de grès de la carrière d'Oklo, 32 argiles et grès prélevés dans le sondage Okelobondo 21 (OK 21), et 9 *bitumes*[1] provenant soit d'Oklo, soit d'autres sédiments du Francevillien (tableau I). Les échantillons d'OK 21 ont été choisis pour comparer la

[1] Le terme bitume désigne ici de la matiere organique concentrée qui remplit la porosité ou les fissures des roches.

TABLEAU I. REPARTITION DU CARBONE ORGANIQUE

ARGILES DE PILE ET GRES D'OKLO

Numéro	Lithologie	Distance aux zones de réaction (m)	Teneur en minerai (%)	Carbone organique (%)
GL 998	argile	cœur	riche	0,04
GL 1002	argile	cœur	riche	0,05
2374	argile	cœur	6	0,14
2371	argile	cœur	18	0,20
400/5	argile	cœur	36	0,02
GL 1009	argile	bordure	riche	0,12
GL 1361	argile	bordure	riche	0,05
2694	argile	bordure	32,2	0,41
2533	grès	bordure	riche	0,11
2679	grès	0,5	20,5	0,13
2539	grès	0,8	riche	0,08
GL 1013	?	1	pauvre	0,14
2686	grès	1	18,9	0,15
2281	argile	1,5	25–30	0,35
2548	argile	1,6	?	1,06
GL 1017	grès	2	pauvre	0,23
2675	grès	2	7,9	0,14
2676	grès	2	14,7	0,16
2291	argile	2,5	25–30	0,09
GL 2326	grès	2–3	pauvre	0,08
GL 1021	?	3	pauvre	0,16
GL 1022	?	4	pauvre	0,30
2703	grès	4,5	8,5	0,18
2669	grès	12	8,3	0,85
GL 373	grès	?	3,3	1,53
490	grès	500	pauvre	0,20

TABLEAU I (suite)

BITUMES

Numéro	Provenance	Distance aux zones de réaction (m)	Carbone organique (%)
GL 2238	Oklo zone 5	1,5	30,99
COMUF 594		2,5	47,12
GL 2372	Oklo sud dolérite	loin	42,46
RFM 361	Mikouloungou	-	68,69
RFM 362	Mikouloungou	-	6,51
RFM 183	rivière Bambai	-	12,73
FW 66 – 578	schiste altéré sommet FB	-	15,62
FW 66 – 457	rivière M'Voudi	-	61,68
FW 942	schiste id. FW 66 – 578	-	10,95

ARGILES SEDIMENTAIRES ET GRES D'OKELOBONDO 21

Numéro	Lithologie	Cote (m)	Carbone organique (%)
GL 2340	pélite noire	22,5	0,67
2341	"	42,1	0,19
2342	"	68,2	1,21
2343	"	82,1	0,54
2344	"	102,2	0,14
2345	"	122,1	0,10
2346	"	142,1	0,16
2347	ampélite	162,2	2,09
2348	"	180,5	11,30
2349	"	201,7	5,44
2350	"	221,9	1,50
2351	"	241,8	4,44
2352	pélite rubanée	262,3	1,49
2353	"	281,5	2,87

TABLEAU I (suite)

Numéro	Lithologie	Cote (m)	Carbone organique (%)
2354	pélite rubanée	302,1	2,38
2355	"	322,0	0,43
2356	"	342,7	0,19
2357	"	362,0	0,61
2358	"	382,1	0,24
2359	"	402,4	0,44
2360	"	421,9	0,28
2361	"	442,2	0,33
2362	grès fin noir	474,1	0,09
2363	"	481,4	0,08
2364	"	494,6	0,24
2365	"	510,1	0,11
2366	"	523,5	0,06
2367	"	536,8	0,06
2368	"	553,0	0,11
2369	"	567,2	0,10
2370	"	586,2	0,08
2371	"	604,0	0,04

matière organique du Francevillien non uranifère à celle d'Oklo. Ce sondage est situé au sud-est de la carrière d'Oklo, à proximité des zones exploitées pour le minerai de manganèse. La série étudiée recoupe les grès du FA supérieur correspondant à la zone uranifère d'Oklo, et les pélites avec alternances de grès du FB dans lesquelles existe de la matière organique.

On observe dans le cas d'Oklo, en mettant à part les bitumes, que les teneurs en carbone organique sont généralement très inférieures à 1% et ne dépassent qu'exceptionnellement 0,4%. Par contre, il existe dans OK 21 toute une zone des ampélites (160 à 300 m de profondeur) où le carbone est supérieur à 1% et peut atteindre plus de 10%. Ainsi qu'il est habituel dans les séries sédimentaires, les grès, sauf s'ils contiennent des bitumes, sont plus pauvres en matière organique que les argiles (souvent moins de 0,1%).

b) Relation entre le carbone organique et la teneur en uranium dans les échantillons d'Oklo

L'examen du tableau I ne permet pas à première vue de dégager une corrélation entre les teneurs en minerai et en matière organique. On peut cependant observer que les teneurs élevées en uranium sont associées à des pourcentages de carbone généralement très bas ($< 0{,}15\%$).

c) Relation entre le carbone organique et la distance aux zones de piles dans Oklo

Les échantillons sont classés dans le tableau I par distance croissante à partir des zones de réaction. Malgré une fluctuation très importante, il semble:
- que les teneurs en carbone au cœur des zones de piles soient très faibles ($\leqslant 0{,}2\%$);
- qu'elles dépendent en dehors du cœur plus de la nature minéralogique des échantillons (grès ou argiles) que de la distance; les grès présentent généralement des teneurs en carbone plus faibles que les argiles; l'inverse peut se produire, mais dans ce cas l'examen des échantillons de grès montre que la porosité est remplie par des bitumes.

d) Interprétation et discussion des résultats

Les sédiments du Francevillien semblent avoir été déposés dans un milieu relativement riche en matière organique et assez semblable à ce que l'on peut observer dans certains deltas actuels. On peut être tenté de poursuivre l'analogie en ce qui concerne la formation possible, à une certaine époque, de gisements d'hydrocarbures dont les témoins actuels seraient les bitumes ou *charbons*. Pour former un gisement d'hydrocarbures, il faut:
- que la matière organique soit déposée en milieu calme, avec un sédiment fin qui la protégera d'une destruction ultérieure par oxydation ou attaque bactérienne (c'est pourquoi les grès ne contiennent initialement pas de carbone organique);
- qu'elle subisse une évolution thermique suffisante (par le biais de l'enfouissement des sédiments) pour se décomposer partiellement en hydrocarbures; la genèse de ces hydrocarbures étant un phénomène cinétique, le temps et la température ont un rôle comparable (mais en première approximation multiplicateur pour le temps, exponentiel pour la température, ce qui fait atteindre un taux de décomposition voisin à 70°C en 250 millions d'années, ou à 130°C en 5 millions d'années);
- que ces hydrocarbures puissent se rassembler dans un ou des réservoirs qui formeront le gisement; ce phénomène (migration) est dû à la possibilité, pour les sédiments fins renfermant la matière organique, de se compacter sous la pression des roches sus-jacentes, expulsant ainsi les fluides qu'ils contiennent (hydrocarbures et eau) vers d'autres roches ne se compactant pas ou peu (grès par exemple).

On conçoit que le contenu organique des argiles sera donc généralement assez abondant et essentiellement formé de matière organique insoluble dispersée dans la matrice minérale. Dans les grès par contre, cette matière organique sera peu abondante sauf dans les réservoirs d'hydrocarbures où elle sera rassemblée essentiellement dans les pores et constituée, jusqu'à un stade d'évolution avancé, de composés mobiles et solubles dans les solvants usuels. Ceci est bien entendu un schéma simple; dans la réalité, il y a toujours mélange en proportions variables des types de sédiments et des propriétés qui en découlent.

Il ne semble pas, d'après b), que le mode de répartition actuel de la matière organique soit corrélable avec la concentration en uranium. Il faut cependant tenir compte de l'influence des différentes conditions géologiques depuis le dépôt, qui par le biais du temps et de la température, ont pu faire évoluer ou disparaître de la matière organique. Les zones de pile ont peut-être aussi joué un rôle dans l'altération de la matière organique, directement par action des rayonnements ou indirectement par élévation de la température. Enfin, il faut se rappeler que la tectonique a joué un rôle dans la transformation des minéraux, et que ce que l'on observe actuellement sous la forme d'argiles de pile était peut-être à l'origine des grès à ciment argileux contenant de la matière organique soluble (c'est d'ailleurs pourquoi on a distingué argiles de pile d'Oklo et argiles sédimentaires d'OK 21). On reviendra dans les conclusions sur le rôle possible de la matière organique dans les différentes phases de la formation du gisement et des piles d'Oklo.

4.2. Etude en pyrolyse sous atmosphère inerte

Cette méthode d'analyse, bien adaptée aux échantillons des zones pétrolières, n'est pas ici dans son domaine d'application. La grande majorité des échantillons, Oklo comme OK 21, ne donne aucun pic d'hydrocarbures libres ou potentiels; ce fait est dû à la fois aux très faibles teneurs en carbone organique et à l'état d'évolution avancé des échantillons. Quelques bitumes ont donné un faible pic d'hydrocarbures potentiels, mais la température au maximum du pic est supérieure à 550°C (limite des possibilités de l'appareil). Les quantités de gaz carbonique mesurées sont du même ordre de grandeur que le blanc.

Ces analyses montrent que la matière organique étudiée est actuellement très évoluée et qu'elle a dépassé le stade de formation d'huile et de gaz. Le fait que OK 21, en l'absence d'échauffement provoqué par les réactions nucléaires, montre un degré d'évolution comparable à celui d'Oklo prouve qu'il y a eu, pendant un certain temps au moins, un enfouissement notable du Francevillien.

4.3. Etude des kérogènes en analyse élémentaire

Le tableau II donne les résultats des analyses obtenus sur les différentes préparations. Bien que les teneurs en pyrite et minéraux lourds soient souvent très élevées, l'homogénéité des résultats montre que les analyses sont malgré tout assez significatives.

TABLEAU II. ANALYSE ELEMENTAIRE DES KEROGENES

ARGILES DE PILE ET GRES D'OKLO

Numéro	Distance aux zones de réaction (m)	Teneur en minerai[a]	Pyrite (%)	Autres minéraux (%)	H/C atomique	O/C atomique (%)
GL 1009	contact	R	57,7	12,3	0,78	32,6[b]
KN 228	contact	R ?	91,0	3,3	0,65	20,6[b]
1955	1,4	?	5,1	6,4	0,59	18,6
2281	1,5	R	32,7	18,6	0,77	35,6[b]
GL 1017	2	P	57,5	7,8	0,66	22,1[b]
2291	2,5	R	13,6	59,0	0,93	60,5[b]
GL 1022	4	P	6,1	5,4	0,63	6,7

BITUMES

Numéro	Distance aux zones de réaction (m)	Pyrite (%)	Autres minéraux (%)	H/C atomique	O/C atomique (%)
GL 522	contact	1,5	0,3	0,38	28,0
2556	1,5	5,0	3,9	0,40	22,8
COMUF 594	2,5	4,4	24,7	0,50	25,7[b]
GL 2372	sud carrière (dolérite)	0	0,6	0,46	30,5
RFM 361	∞	0,4	1,4	0,25	8,9
FW 66 – 457	∞	0	21,3	0,45	16,9[b]

ARGILES SEDIMENTAIRES ET GRES DU SONDAGE OKELOBONDO 21

Numéro	Cote (m)	Lithologie	Pyrite (%)	Autres minéraux (%)	H/C atomique	O/C atomique (%)
GL 2342	62,2	argile	4,0	24,5	0,52	8,4[b]
GL 2348	180,5	argile	16,6	4,7	0,40	4,3
GL 2349	201,7	argile	21,3	6,8	0,39	4,6
GL 2354	302,1	argile	9,0	5,8	0,34	3,3
GL 2359	402,4	argile	13,0	12,1	0,42	3,8
GL 2368	553	grès	1,0	22,1	0,38	5,1[b]

[a] R = riche (> 10% d'uranium); P = pauvre (de l'ordre du %).

[b] Analyses douteuses, surtout en O/C (plus de 40% de pyrite ou plus de 15% d'autres minéraux).

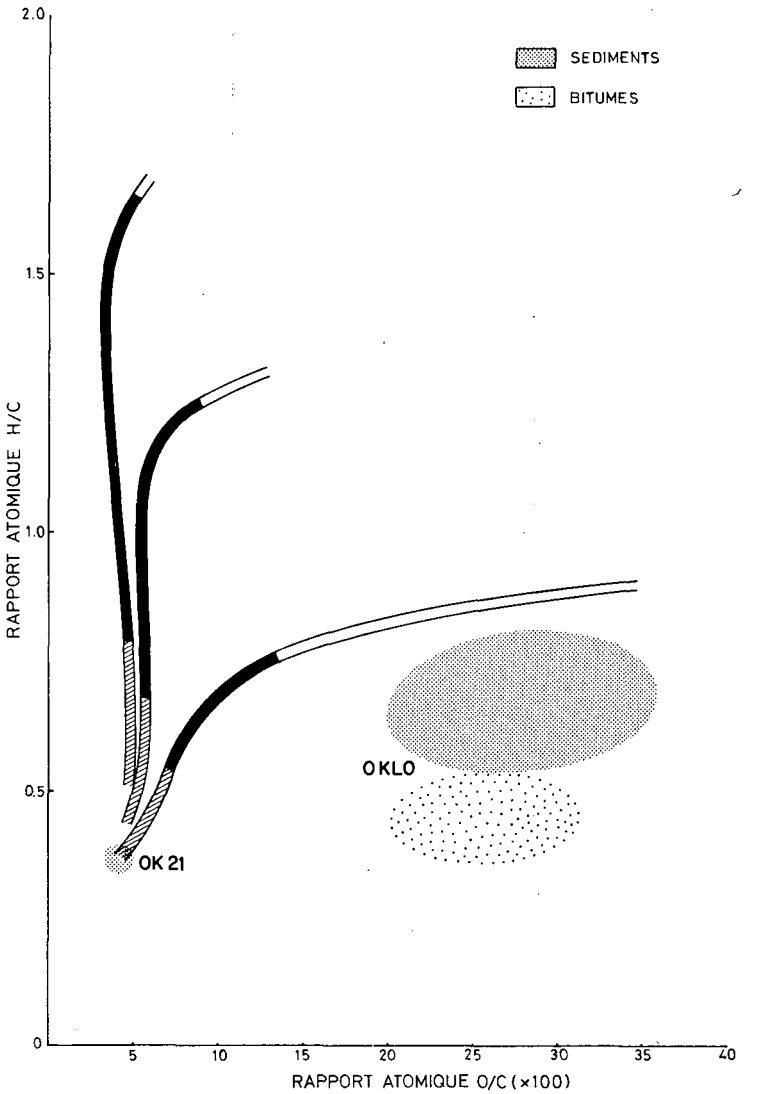


FIG. 2. Analyse élémentaire des kérogènes.

a) Degré d'évolution de la matière organique

On peut l'apprécier d'après la position des échantillons dans un diagramme H/C en ordonnée, O/C en abscisse, H, C et O étant les proportions atomiques du kérogène en ces éléments, correction faite des impuretés minérales. Pour replacer les échantillons analysés dans le contexte de ceux généralement étudiés par les pétroliers, on peut se référer à la figure 2, qui situe dans ce diagramme les

zones de formation de l'huile et du gaz pour des matières organiques d'origines diverses. On constate d'une manière générale que le rapport H/C est très bas, confirmant comme on l'a vu en 4.2 que la matière organique a atteint, à l'heure actuelle, un stade d'évolution avancé, et en tout cas postérieur à la formation d'hydrocarbures.

b) Relation entre les analyses élémentaires et la teneur en uranium

Certains des premiers kérogènes préparés ayant précipité au moment de l'attaque fluorhydrique, le problème de l'influence respective de la teneur en minerai et de l'existence des réactions nucléaires s'est posé. On a donc essayé de préparer des kérogènes provenant des zones de pile ou en dehors, et dans ce dernier cas issus de minerai riche ou pauvre. On a constaté sur trois échantillons de zones de pile (GL 998, GL 1002, 2320) une précipitation systématique; en dehors par contre, comme le montre le tableau II, la teneur en minerai n'influe pas sur la préparation (bien que les teneurs en pyrite et minéraux lourds soient dans l'ensemble très élevées).

c) Relation avec la distance aux zones de réaction

D'après le tableau II, les kérogènes préparés sur argiles et grès sont généralement trop riches en minéraux résiduels pour que les chiffres soient vraiment significatifs. On peut remarquer sur les échantillons 1955 (à 1,4 m), GL 1022 (à 4 m) et sur les argiles d'OK 21 (très loin) que la proximité des zones de réaction semble se traduire par une augmentation du rapport O/C, le rapport H/C étant, lui, peu affecté. Une confirmation de cette évolution de O/C est apportée par les analyses des kérogènes de bitumes, généralement plus purs. L'échantillon de carrière GL 2372, qui fait exception, a pu être contaminé par les zones en exploitation.

d) Comparaison entre les matières organiques à l'état dispersé et à l'état concentré

Elle est assez délicate au vu du petit nombre d'analyses significatives. Cependant, si l'on considère que le rapport atomique H/C est relativement peu affecté par la présence de minéraux résiduels, on constate sur le tableau II que ce rapport est plus élevé dans les kérogènes d'argiles et grès que dans ceux préparés à partir des bitumes.

e) Comparaison des matières organiques d'Oklo avec celles du Francevillien voisin non minéralisé

Avec les mêmes réserves que précédemment, on peut remarquer sur les analyses du tableau II que le rapport H/C se situerait autour de 0,6 pour les argiles et grès

d'Oklo, et plutôt autour de 0,4 pour les sédiments de OK 21. Ce rapport est également voisin de 0,4 dans les bitumes, qu'ils proviennent ou non de la carrière d'Oklo.

En ce qui concerne le rapport O/C on peut constater, même si l'on fait des réserves sur la valeur exacte de ce paramètre, que les chiffres trouvés pour Oklo sont sensiblement supérieurs à ceux obtenus dans OK 21.

f) Interprétation des résultats et discussion

Malgré les difficultés rencontrées pour l'analyse de l'oxygène, il ressort du tableau II que la différence la plus immédiate entre les matières organiques liées à l'uranium et les autres porte sur le rapport O/C. On peut bien sûr invoquer le fait que les échantillons d'Oklo ont pu subir une oxydation par les eaux météoriques, au moment du dépôt d'uranium, ou à une époque récente comparée à l'âge des réacteurs. Mais on peut aussi supposer que cette oxydation a eu lieu au moment où les piles ont fonctionné, la température du milieu étant alors assez élevée pour que l'eau ait un pouvoir oxydant important. Cette interprétation irait bien dans le sens d'une oxydation plus poussée à mesure que l'on s'approche des zones de pile, comme on l'a vu en c).

Les différences sur le rapport H/C sont beaucoup moins faciles à expliquer, d'autant que ce sont les échantillons les plus proches des foyers de réaction qui sont les plus riches en hydrogène. On aurait pu s'attendre au contraire à un effet thermique plus important, dans le sens d'une diminution de H/C. Il est possible qu'il y ait eu par ailleurs un phénomène chimique ou radiochimique dû à la proximité de la pile, mais dont nous ne pouvons pas préciser la nature, qui aurait conduit à la fixation d'hydrogène sur la matière organique.

Il faudrait alors admettre que les bitumes n'auraient pas subi cette hydrogénation parce que leur mobilité leur aurait permis une mise en place plus tardive à proximité des zones de réaction.

4.4. Etude des kérogènes en microscopie électronique à haute résolution[2]

Le processus de catagenèse provoque dans les kérogènes un enrichissement en carbone, et une distillation des matières volatiles (pétrole) et des gaz. Le résidu, même peu évolué, est toujours formé de piles de deux à trois molécules aromatiques de cinq à douze cycles reliées par un ciment non aromatique [6, 7]. Les diagrammes de microdiffraction électronique des échantillons peu évolués sont très peu intenses. Ils ne comportent que deux anneaux diffus 10 et 11, tandis que l'anneau 00.2, confondu avec la diffusion centrale, n'est pas visible. En fond noir 00.2, on voit apparaître sous forme de domaines lumineux les empilements de molécules qui sont orientés sur la tranche dans le fragment étudié.

---

[2] Ce travail (commentaire et illustrations) a été réalisé au laboratoire Marcel Mathieu.

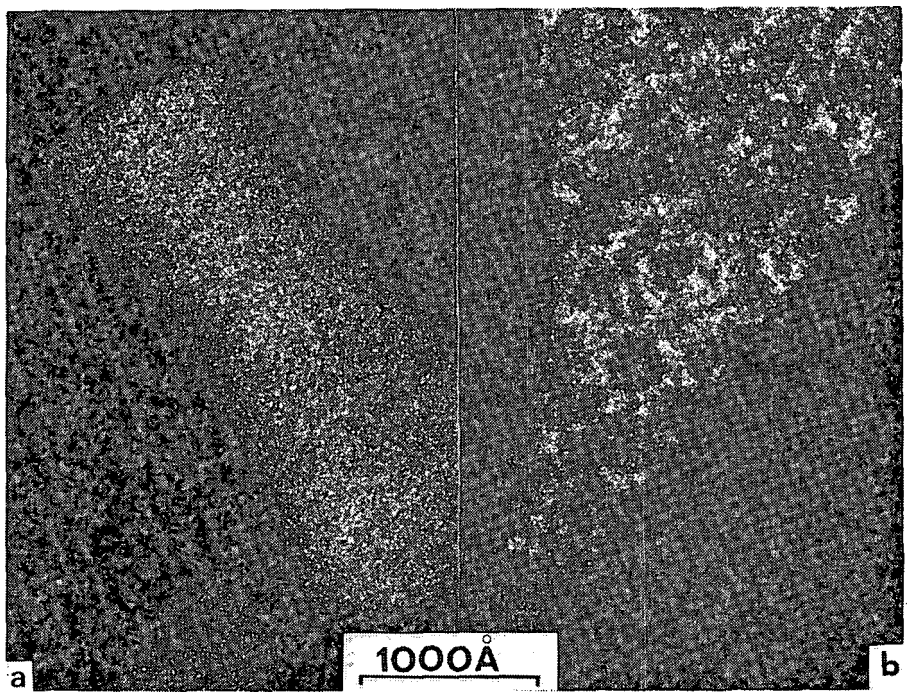


FIG.3. a – Kérogène peu évolué, image en fond noir 00.2; les empilements de molécules aromatiques sont orientés au hasard. b – Kérogène évolué, image en fond noir 00.2; les empilements aromatiques s'orientent parallèlement dans certains domaines.

Les piles de molécules d'abord orientées au hasard (fig. 3 a) peuvent s'arranger à peu près parallèlement dans des domaines d'étendue variable lorsque progresse la catagenèse [8]. En fond noir 00.2 l'orientation moléculaire se traduit par l'apparition de nuages de points lumineux séparés par des parties sombres (fig. 3 b). Dans les diagrammes de microdiffraction électronique l'anneau 00.2 devient visible. L'apparition de l'orientation moléculaire correspond à la fin de la production de l'huile et son étendue dépend du potentiel pétrolier du kérogène [9]. Au delà de ce point la progression de la catagenèse conduit seulement à une augmentation progressive du contraste des nuages de domaines lumineux. Ceci correspond à une amélioration du degré d'orientation moléculaire par une amélioration du parallélisme des molécules aromatiques d'un empilement à l'autre.

Si l'on considère dans le diagramme H/C, O/C (fig. 2) les kérogènes de la série I, dont le rapport H/C est le plus élevé, l'extension de l'orientation moléculaire est maximale (500–1000 Å). Les kérogènes appartenant à la série III, où le rapport

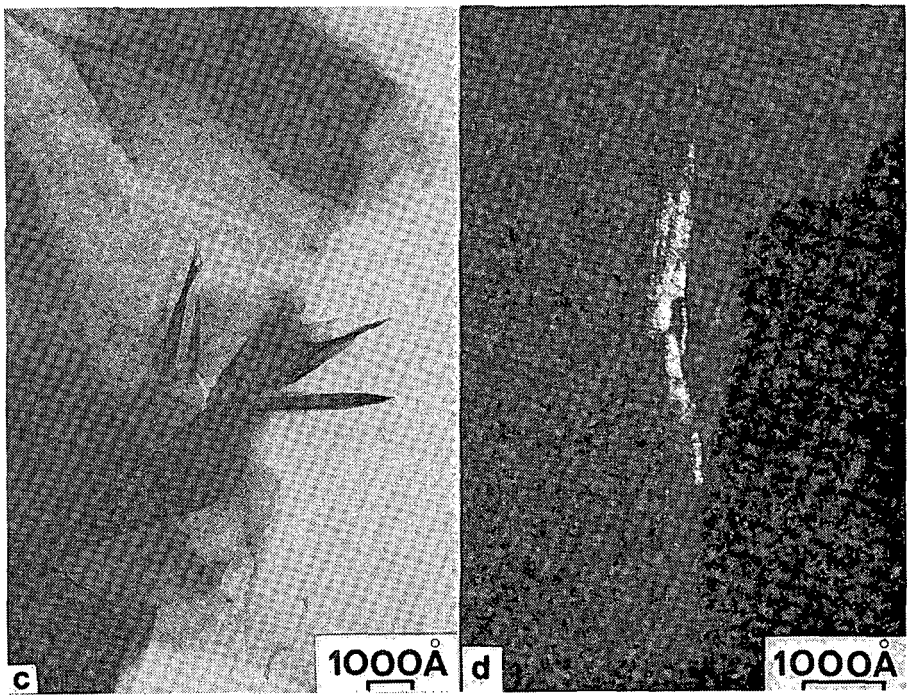


FIG.3 (suite). c – Coke de carbone tendre, image optique. d – Coke de carbone tendre, image en fond noir 00.2; les molécules aromatiques vues sur la tranche dans un pli s'illuminent.

H/C est le plus bas, présentent au contraire une orientation moléculaire très réduite (50–100 Å). Ils sont riches en fonctions oxygénées et présentent un faible rendement en hydrocarbures. Les kérogènes de la série II, à composition intermédiaire, contiennent des régions orientées d'environ 200 Å.

Ces résultats ont permis de définir un ensemble de critères apparemment suffisants pour évaluer le degré de catagenèse et pour classer les kérogènes dans une des trois catégories décrites ci-dessus, même lorsqu'ils sont très évolués. De ce fait il est possible de donner une idée de la composition chimique du précurseur. On pourrait par exemple s'attendre à observer dans un kérogène d'âge précambrien une orientation moléculaire caractéristique d'un degré élevé de catagenèse. En même temps on devrait s'attendre à une orientation très étendue comparable à celle des kérogènes de la série I d'origine algaire.

En effectuant des simulations thermiques sur les kérogènes [9], on s'aperçoit que catagenèse et pyrolyse en phase condensée provoquent les mêmes modifications structurales. Elles sont donc comparables, compte tenu de la durée plus longue et

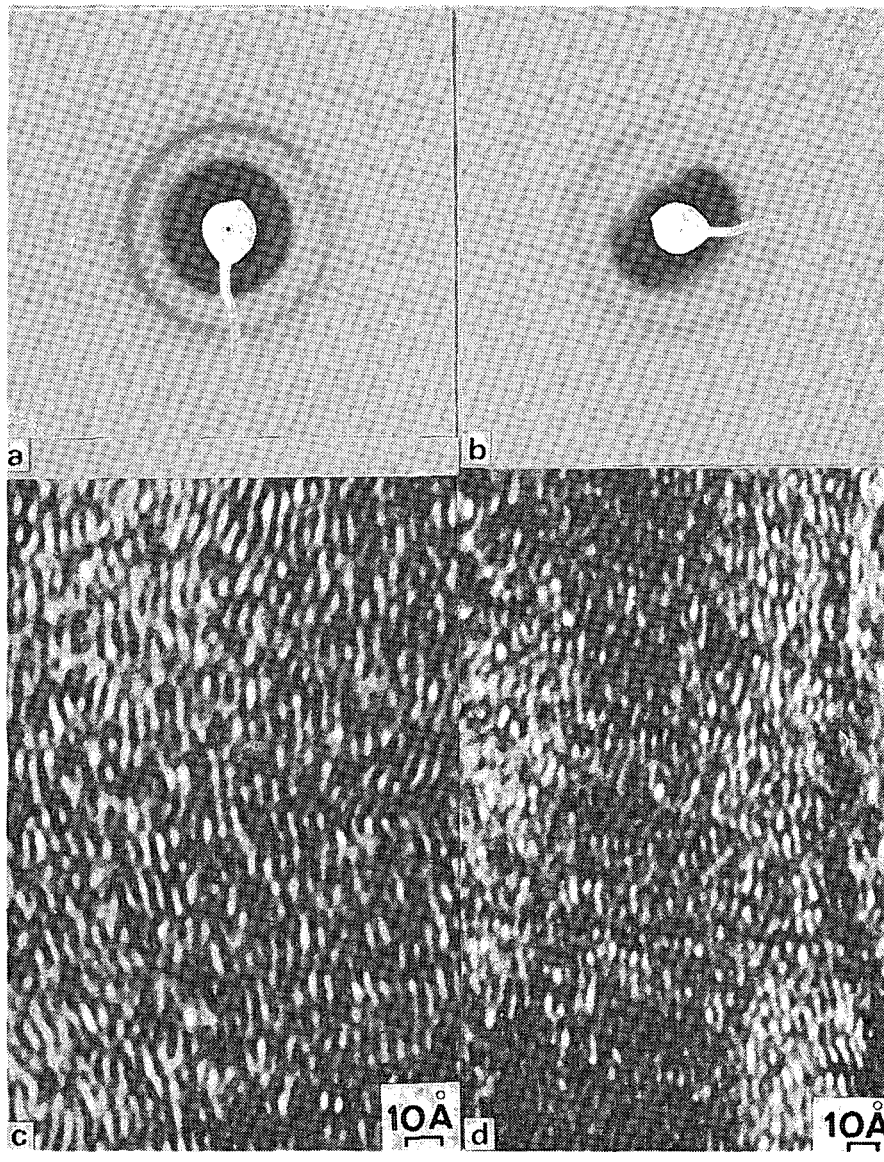


FIG.4. a – Diagramme de microdiffraction électronique d'un coke de kérogène. b – Diagramme de microdiffraction électronique d'un coke de carbone tendre. c – Résolution des plans réticulaires dans les plis d'une particule de coke de carbone tendre. d – Résolution des plans réticulaires de l'échantillon GL 1022.

de la température plus basse de la catagenèse. Ceci a suggéré l'utilisation, comme précurseurs, de substances naturelles plus simples que les kérogènes. Leur étude thermique [10-12] a permis de mettre en évidence l'effet de l'oxydation au début de l'évolution. Lorsque la pyrolyse est conduite sous atmosphère inerte, on retrouve des résultats similaires à ceux obtenus sur les kérogènes. L'orientation moléculaire qui apparaît au-dessus de 400°C est d'autant moins étendue que le précurseur est plus riche en oxygène. Par contre, même lorsque le matériau est riche en hydrogène, l'orientation moléculaire est réduite ou même totalement inhibée par l'action de l'oxygène sur le produit initial à 200°C. Dans ce cas les produits très évolués ne se signalent que par l'augmentation de l'intensité des domaines lumineux en fonction de celle de l'anneau 00.2 dans les diagrammes de microdiffraction électronique, ainsi que par la position de leur point figuratif dans le diagramme H/C, O/C.

Dans la pyrolyse des déchets pétroliers lourds ou des brais de houille, il se produit aussi une orientation moléculaire (mésophase), mais elle est plus étendue que celle observée dans les kérogènes. Elle atteint plusieurs micromètres [13, 14]. Lorsqu'on pyrolyse de tels matériaux sous atmosphère inerte on forme un coke dont la structure est lamellaire (vers 1000°C). Ces carbones, appelés carbones tendres, se transforment progressivement en graphite par chauffage à 3000°C. Un fragment de coke de carbone tendre examiné au microscope électronique est formé de molécules aromatiques similaires à celles que contiennent les kérogènes, mais elles sont orientées à peu près parallèlement au plan de la lamelle dans tout le fragment. Comme ces fragments sont très minces, donc très souples, ils se déposent à plat sur la membrane support mais en formant par endroits des plis (fig. 3 c).

En fond noir 00.2 les parties posées à plat ne s'illuminent pas; par contre dans les plis les empilements de molécules sont orientés sur la tranche et apparaissent comme des domaines lumineux intenses (fig. 3 d). Les diagrammes du coke de carbone tendre montrent deux arcs 00.2 (fig. 4 b) qui traduisent l'immense extension de l'orientation moléculaire, qui couvre de façon homogène tout le volume d'un fragment (plusieurs μm^3). La qualité et l'extension de l'orientation moléculaire d'un coke de carbone tendre apparaissent bien aussi dans les images de plans réticulaires effectuées dans les plis d'une particule de coke (fig. 4 c). Les équivalents naturels des carbones tendres pourraient peut-être être trouvés dans les bitumes.

Rappelons qu'un kérogène au maximum de son évolution naturelle (ou mieux, de son évolution thermique provoquée, toujours supérieure à l'évolution naturelle) conduit à un coke très différent du coke de carbone tendre décrit ci-dessus. Il présente une orientation réduite en volume et qui change de direction d'une région à l'autre. Par conséquent le fragment devient statistiquement isotrope, et il se produit donc un anneau 00.2 continu dans les diagrammes (fig. 4 a).

Parmi les échantillons étudiés nous décrirons d'abord RFM 361 et GL 2342. Le premier (charbon de Mikouloungou, fig. 5 a), est très éloigné des réacteurs. Il est d'âge francevillien. Le second, également d'âge francevillien, est un kérogène

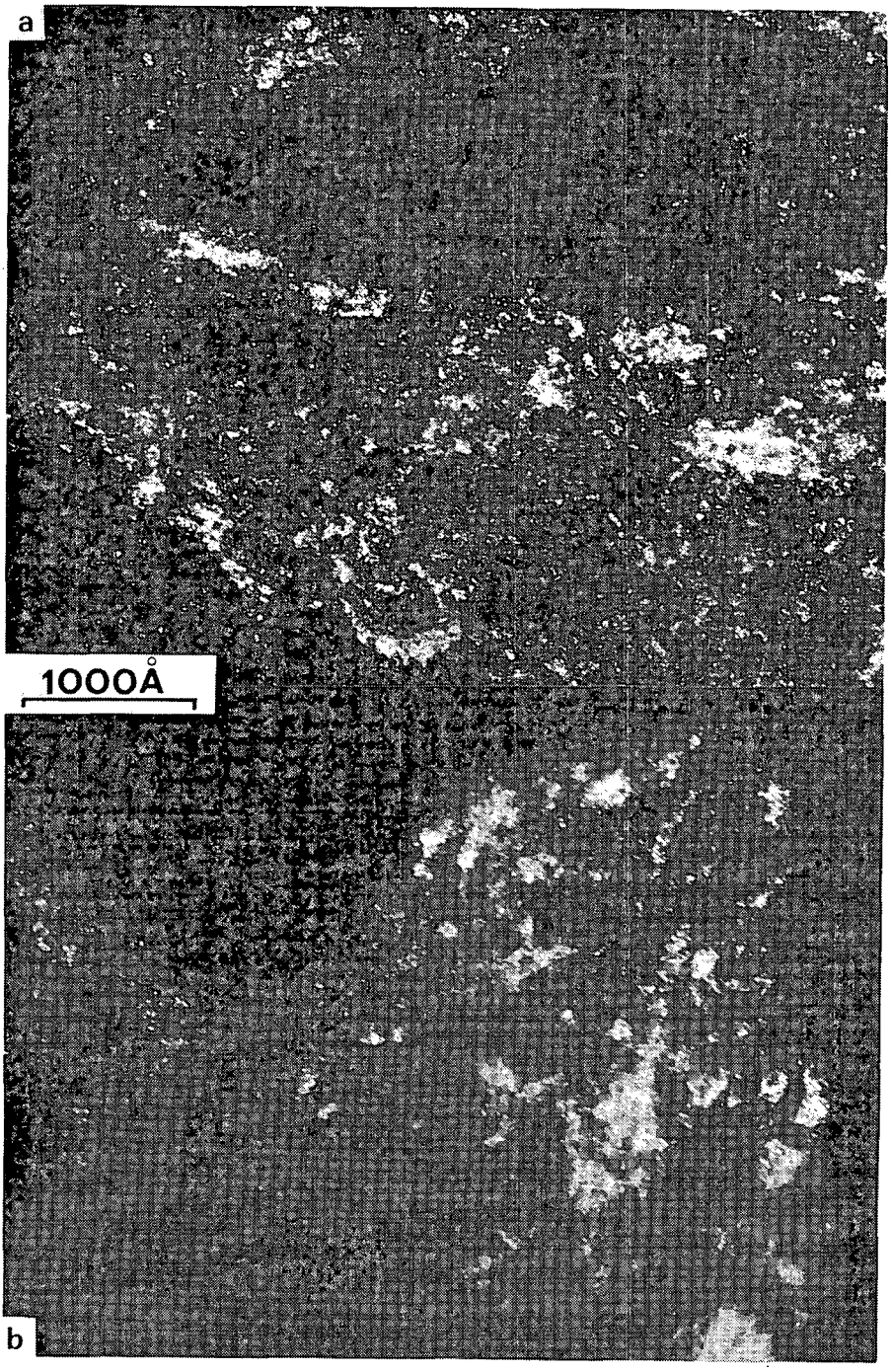


FIG.5. a – Image en fond noir 00.2 de l'échantillon RFM 361, charbon de Mikouloungou. b – Image en fond noir 00.2 de l'échantillon GL 2342, kérogène d'Okelobondo 21.

d'Okelobondo très éloigné aussi des réacteurs (fig. 5 b). Ces deux échantillons sont des cokes absolument comparables à ceux des kérogènes évolués de la série I, ce qui indiquerait d'une part un état très avancé de catagenèse, d'autre part une origine algaire ou bactérienne. Toutefois l'extension de l'orientation moléculaire ne dépasse pas 500 Å, ce qui la classe parmi les plus petites de la série I. D'autre part, ces deux échantillons sont très différents des cokes de carbones tendres des figures 3 c et d et 4 b et c. Ces résultats concordent bien avec ce que l'on pouvait prévoir, en particulier dans le cas de l'échantillon de OK 21, dont on sait qu'il a été préparé à partir d'une argile sédimentaire et est donc typique du matériel organique autochtone au milieu de sédimentation.

De façon extrêmement surprenante l'échantillon GL 1022, minerai pauvre d'Oklo à 4 m d'une zone de réaction, est absolument similaire à un coke de carbone tendre issu d'un brai de houille ou de pétrole, comme le montre la comparaison des figures 3 c et d et 4 b et c avec les figures 6 a, b, c et 4 d. Les figures 3 c et 6 a montrent les lamelles plissées visibles en fond clair tandis que les plis s'illuminent en fond noir 00.2 (figures 3 d et 6 b). De même les diagrammes de microdiffraction électronique (figures 4 b et 6 c) et les images de réseau (figure 4 c et d) sont similaires. Nous avons interprété cet aspect comme étant celui d'un bitume situé au terme de son évolution.

Au contact même du réacteur l'échantillon de bitume GL 522 est très évolué, puisque le rapport H/C est de 0,38. Cependant il ne montre aucun anneau 00.2 décelable, les domaines lumineux du fond noir 00.2 se distinguent à peine de la membrane support et il n'apparaît aucune orientation préférentielle. L'organisation structurale s'améliore à peine après un traitement thermique à 700°C. Nous avons vu que l'oxydation intense du matériau initial pouvait expliquer ces phénomènes. Cette interprétation est confirmée par l'analyse élémentaire qui indique un rapport O/C de 0,28 contre 0,067 pour le bitume GL 1022. L'échantillon COMUF 594, situé à 2,50 m d'une zone de réaction, montre un aspect voisin du bitume GL 522, bien que les images en fond noir soient plus intenses et l'anneau 00.2 visible. L'analyse élémentaire confirme ici encore l'existence d'une oxydation intense due à la présence d'eau et peut-être plus ou moins accentuée par l'irradiation. Celle-ci provoquerait l'apparition de radicaux libres susceptibles de favoriser la fixation d'oxygène. Dans le cas des oxydations expérimentales [10-12] décrites précédemment, la disparition de l'orientation moléculaire est en effet attribuée à la fixation de fonctions oxygénées aux frontières des empilements de molécules aromatiques qui provoque un pontage de ces empilements et les fige, empêchant ainsi toute orientation moléculaire. Les échantillons GL 522 et COMUF 594 ne sont vraisemblablement pas des bitumes mis en place peu après l'extinction du réacteur car ils auraient alors évolué naturellement et se rapprocheraient de l'échantillon GL 1022. Mis en place plus tardivement on aurait pu les faire évoluer par traitement thermique. On doit donc bien considérer qu'ils étaient présents au moment où les réactions nucléaires ont eu lieu.

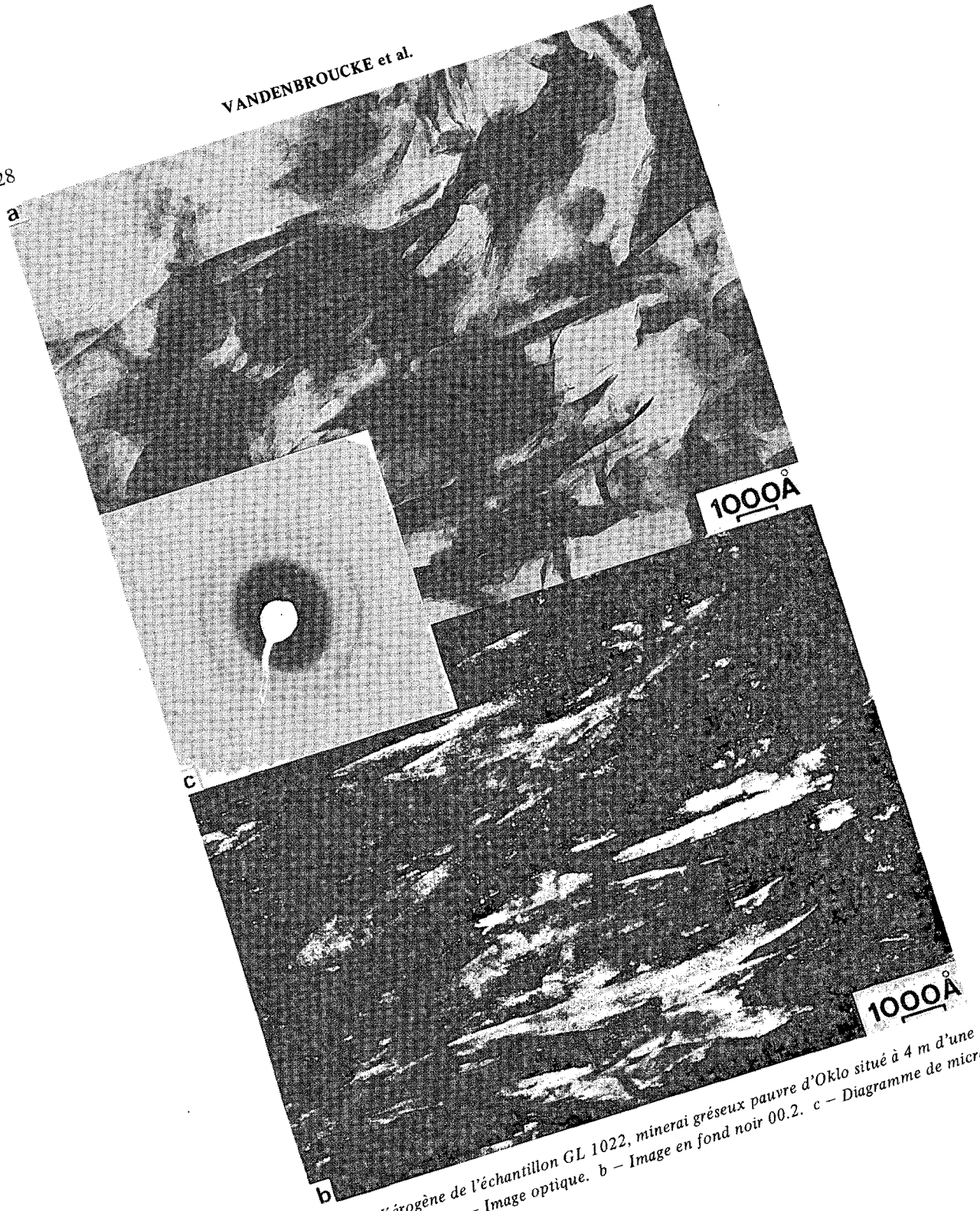


FIG.6. *Kérogène de l'échantillon GL 1022, minerai gréseux pauvre d'Oklo situé à 4 m d'une zone de réaction.* a – *Image optique.* b – *Image en fond noir 00.2.* c – *Diagramme de micro-diffraction électronique.*

5. CONCLUSIONS

5.1. Rôle de la matière organique dans la genèse du gisement d'uranium d'Oklo

Les problèmes posés, nature du vecteur de l'uranium et agent précipitant, sont indirectement liés à l'époque du dépôt de l'uranium, comparée à celle des couches sédimentaires qui contiennent le minerai. Deux possibilités se présentent:

a) Dépôt synsédimentaire

L'uranium peut être transporté sous forme de combinaison avec de la matière organique. On sait que celle-ci peut, par l'action des micro-organismes des sols ou des eaux, augmenter considérablement la solubilisation de l'uranium [15]. D'autre part, une activité pédologique au Précambrien est fort probable (bien qu'il ne s'agisse probablement pas de végétaux supérieurs!), la matière organique déposée dans les pélites du FB provenant certainement, comme les sédiments qui l'accompagnaient, de l'érosion du continent par un fleuve (ce qui n'exclut pas un apport de matériel algaire autochtone au milieu de sédimentation, mais qui reste toujours subordonné, comme le prouve l'étude des deltas actuels). L'agent précipitant serait alors l'oxygène du milieu de dépôt qui détruirait la matière organique. Cependant, plusieurs contradictions apparaissent. En premier lieu, l'uranium libéré en environnement oxydant doit rester à la valence 6, donc probablement en solution. Ensuite, une liaison uranium-matière organique doit s'accompagner d'une liaison uranium-vanadium et uranium-phosphore. Or, si la première est effectivement rencontrée [16], la seconde n'existe pas et de plus les teneurs en phosphore sont généralement très faibles [17]. En outre, on ne voit pas pourquoi dans les roches contenant ou ayant contenu de la matière organique, comme les pélites du FB, il n'y aurait pas de l'uranium en concentration plus importante que dans les grès.

Si l'uranium est transporté sous forme d'une combinaison minérale (carbonate par exemple), sa précipitation doit faire intervenir un milieu sédimentaire réducteur. Là encore on devrait retrouver la minéralisation dans des sédiments fins et non dans des grès.

b) Dépôt post-sédimentaire

Il est possible, d'après [18], que la phase de dépôt et de consolidation des sédiments FA et FB1 par enfouissement ait été suivie d'une remontée mettant à jour une partie des grès FA. Les eaux météoriques chargées en uranium soluble ont pu alors s'infiltrer dans les grès, particulièrement dans les zones de conglomérats, très perméables. Si, pendant la phase d'enfouissement des sédiments, la matière organique du FB s'est transformée en partie en hydrocarbures qui ont migré dans les réservoirs les plus perméables et les plus proches, c'est-à-dire les grès du FA supérieur, le milieu réducteur capable de précipiter l'uranium était en place au

moment de l'infiltration des eaux météoriques. Ceci expliquerait pourquoi on ne retrouve l'uranium que dans les grès de la couche C1, et pourquoi il est intimement associé à de la matière organique, sous forme d'inclusions [19]. On expliquerait également ainsi la corrélation entre la richesse de la couche et le pendage [20], les hydrocarbures se concentrant toujours dans un réservoir au sommet des structures et l'eau en dessous, par gravité.

L'état sous lequel l'uranium aurait été transporté par les eaux météoriques est plus délicat à définir; on ne peut pas complètement exclure un mode de transport en combinaison avec de la matière organique, encore qu'on puisse lui opposer le manque de corrélation entre uranium et phosphore. Cependant l'excellente corrélation observée entre U, Ca et U, Pb [17] fait plutôt penser, puisque Ca et Pb sont essentiellement déposés sous forme de carbonates, que l'uranium était peut-être lui aussi sous forme de carbonate.

Le dépôt de l'uranium dans des grès déjà consolidés a pu se faire par précipitation continue à partir des infiltrations météoriques, la matière organique assurant ainsi une préconcentration, même si les quantités d'uranium transportées par les eaux étaient initialement assez faibles. Ce mécanisme de préconcentration ne peut être envisagé que dans le cas où l'uranium est déposé dans des couches déjà consolidées, qui ne risquent pas d'être altérées ou détruites par une circulation de fluides.

5.2. Rôle de la matière organique dans la formation des zones de pile

Il semble que toutes les observations convergent vers une influence dominante de la tectonique dans la formation des piles. On peut supposer que la concentration de l'uranium provient de la concentration de la couche minéralisée elle-même, l'ensemble des silicates étant dissous sous l'influence de la pression et de la température dans les zones tectonisées. Le départ de silice est démontré par les nombreuses silicifications observées dans les sédiments en dehors des zones de pile [16] et la recristallisation des phyllites en kaolinite dans les zones de réaction (la kaolinite est l'argile la moins riche en SiO_2). La matière organique n'a probablement eu aucune influence dans ce processus. Il est même possible qu'elle ait déjà en grande partie disparu au moment de ce phénomène de concentration, soit qu'elle ait été oxydée au fur et à mesure de l'infiltration des eaux météoriques chargées en uranium, soit qu'elle ait été craquée sous l'influence de la température au cours de l'enfouissement des sédiments, soit qu'elle ait été expulsée des grès ou détruite par la pression et la température dans les zones tectonisées.

5.3. Influence des zones de pile sur la matière organique

Les résultats des analyses ne permettent pas de mettre en évidence une influence directe des rayonnements sur la matière organique, vu les faibles teneurs

en carbone des roches examinées et les difficultés d'obtention de kérogènes débarrassés de cendres minérales. On peut par contre observer les effets secondaires de la présence des réacteurs sur la matière organique, c'est-à-dire l'échauffement et l'oxydation par l'eau qui en a résulté. Notons que l'échauffement dû à la proximité des piles aurait sur la matière organique une influence équivalente à celle d'une irradiation, par formation d'une matière organique plus évoluée, toutes choses égales par ailleurs.

REMERCIEMENTS

Nous remercions particulièrement Messieurs Naudet, Weber et Gauthier-Lafaye pour la fourniture des échantillons et les nombreux renseignements qu'ils nous ont communiqués. Nos remerciements vont aussi à Messieurs Pelet et Durand, de l'IFP, pour les fructueuses discussions que nous avons eues ensemble et la critique du manuscrit. Le dévouement et la compétence du personnel du Laboratoire de géochimie de l'IFP sont grandement appréciés, particulièrement chez Monsieur Paratte et Madame Schroeder. Le stage de Monsieur Duringer nous a permis d'apprécier son efficacité et sa gentillesse. Enfin nous remercions le CEA pour le soutien financier qu'il nous a accordé.

REFERENCES

[1] CASSOU, A.-M., CONNAN, J., CORREIA, M., ORGEVAL, J.-J., «Etudes chimiques et observations microscopiques de la matière organique de quelques minéralisations uranifères», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 195–205.

[2] FORSMAN, J.P., HUNT, J.M., in Habitat of Oil (L.G. Weeks ed.), AAPG (1958) 747.

[3] ROBINSON, W.E., «Isolation procedures for kerogens and associated soluble organic materials», Organic Geochemistry (G. Eglinton, M.T.J. Murphy, Ed.), Springer Verlag (1969) 181–95.

[4] ESPITALIE, J., LAPORTE, J.L., MADEC, M., MARQUIS, F., LEPLAT, P., PAULET, J., BOUTEFEU, A., Méthode rapide de caractérisation des roches mères, de leur potentiel pétrolier et de leur degré d'évolution, Rev. Inst. Fr. Pét. **32** 1 (1977) 23–42.

[5] ESPITALIE, J., MADEC, M., TISSOT, B., LEPLAT, P., «Source rock characterization method for petroleum exploration», Offshore Technology Conference, OTC-2935 (1977) 439–44.

[6] OBERLIN, A., BOULMIER, J.L., DURAND, B., Natural evolution (catagenesis) related to carbonization, Adv. Org. Geochem. 1973, Technip, Paris **15** (1974) 27.

[7] OBERLIN, A., BOULMIER, J.L., DURAND, B., Electron microscope investigation of the structure of naturally and artificially metamorphosed kerogens, Geochim. Cosmochim. Acta **38** (1974) 647–50.

[8] OBERLIN, A., TERRIERE, G., BOULMIER, J.L., Carbonification, carbonization and graphitization as studied by high resolution electron microscopy, Tanso **80** 29–42 et **83** (1975) 153–70.

[9] BOULMIER, J.L., Etude structurale de quelques séries de roches sédimentaires carbonées, Critères d'origine et d'évolution des kérogènes, Thèse CNRS AO 12748 (1976).
[10] VILLEY, M., OBERLIN, A., COMBAZ, A., Pyrolyse d'une substance modèle de kérogène (sporopollenin),C.R. Hebd. Acad. Sci., Sér. D, **282** (1976) 1657.
[11] OBERLIN, A., VILLEY, M., COMBAZ, A., Carbon pyrolysis mechanism as studied by electron microscopy, DTA, IR and ESR, sous presse.
[12] VILLEY, M., OBERLIN, A., COMBAZ, A., Pyrolysis of two organic substances (sporopollenin-lignite) as models of kerogens, Geochim. Cosmochim. Acta, sous presse.
[13] SHIRAISHI, M., TERRIERE, G., OBERLIN, A., Electron microscopic study on graphitization of bulk mesophases, J. Mater. Sci., sous presse.
[14] OBERLIN, A., TERRIERE, G., Etude de la graphitation d'un carbone d'anthracène, J. Microsc. **18** (1973) 247–52.
[15] MAGNE, R., BERTHELIN, J.R., DOMMERGUES, Y., «Solubilisation et insolubilisation de l'uranium des granites par des bactéries hétérotrophes», Formation of Uranium Ore Deposits (C.R. Coll. Athènes, 1974), AIEA, Vienne (1974) 73–86.
[16] WEBER, F., GEFFROY, J., LE MERCIER, Marcelle, «Synthèse des études minéralogiques et pétrographiques des minerais d'Oklo, de leurs gangues et des roches encaissantes», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 173–91.
[17] BRANCHE, G., CHANTRET, F., GUILLEMAUT, A., POUGET, R., «Données chimiques et minéralogiques sur le gisement d'Oklo», Ibid. 119–30.
[18] WEBER, F., BONHOMME, M., «Données radiochronologiques nouvelles sur le Francevillien et son environnement», Ibid. 17–33.
[19] GEFFROY, J., «Etude microscopique des minerais uranifères d'Oklo», Ibid. 133–49.
[20] CHAUVET, R.J., «Description du gisement d'uranium d'Oklo», Ibid. 53–65.

ETUDE PETROGRAPHIQUE DE LA MATIERE ORGANIQUE D'OKLO

B. ALPERN
CERCHAR (Centre d'études et recherches des charbonnages de France),
Verneuil-en-Halatte,
France

Résumé–Abstract

ETUDE PETROGRAPHIQUE DE LA MATIERE ORGANIQUE D'OKLO.

Les techniques de la pétrographie des charbons ont été appliquées aux échantillons d'Oklo. Divers types de matière organique (MO) ont été déterminés autour du réacteur et dans l'ensemble de la région: MO interstratifiée autochtone, type charbon, de réflectance maximale dans l'huile, atteignant 6,90%; MO de remplissage secondaire, type bitume, de réflectance variant autour de 2%, c'est ce type de MO qui est associé au réacteur; MO de type coke naturel, à anisotropie granulaire fine entre nicols croisés. On a tenté, sur une série de 600 m recoupée par sondage, d'estimer l'intensité du paléoflux thermique. Ces investigations, qui en sont encore au stade préliminaire, devront être complétées.

PETROGRAPHIC STUDY OF ORGANIC MATTER FROM OKLO.

Coal petrography techniques were applied to Oklo samples and various types of organic material were determined around the reactor and throughout the region as a whole: e.g. interstratified autochthonous organic material of the coal type, with maximum reflectance in the oil, reaching 6.90%; secondary-filler organic material of the bitume type, with reflectance varying around 2%, which is the type of organic material that is associated with the reactor; and natural coke organic material with fine-grain anisotropy between crossed nicols. An attempt has been made, with a 600-m series intersected by a borehole, to estimate the intensity of the thermal palaeoflux. The research is still only at the initial stage and should be continued.

Les techniques modernes de la pétrographie des charbons n'ont pas été, semble-t-il, appliquées jusqu'à présent au cas d'Oklo.

Au cours d'une réunion à Strasbourg, le 24 mars 1977, j'ai eu l'occasion d'en exposer les possibilités, qui ont paru assez intéressantes pour qu'un petit programme de recherche soit entrepris dans cette direction. Nous nous étions proposé:

- de reconnaître les divers types de matières organiques (MO) associées au phénomène d'Oklo;
- de déterminer si possible l'influence de la radioactivité sur ces familles naturelles;

– de tenter, à partir d'un forage ayant recoupé la série sédimentaire sur une épaisseur suffisante, de calculer l'intensité du paléoflux thermique régional et de comparer les données obtenues à celles de la zone de réaction.

1. ECHANTILLONNAGE

Nous avons utilisé pour ce travail trois séries d'échantillons:

– une série de onze échantillons qui nous ont été remis par MM. Naudet et Weber en mars 1977 à Strasbourg; neuf d'entre eux ont été polis et examinés et cinq se sont révélés suffisamment riches pour permettre l'établissement d'un réflectogramme;
– une série de douze échantillons envoyés par le CEA et parvenus au Cerchar le 29 juin 1977; six d'entre eux ont été polis et trois réflectogrammes ont pu être établis;
– une série de trente-quatre échantillons qui nous sont parvenus par le canal de l'Institut français du pétrole et qui provenaient principalement du sondage OK 21; des examens ont été faits sur vingt-deux d'entre eux et dix réflectogrammes ont pu être établis.

2. METHODES D'OBSERVATION ET DE MESURE

Les échantillons ont fait l'objet de deux types de préparation:

– des sections polies sur fragments bruts (SB) simplement enrobés dans une résine thermodurcissable (Stratyl);
– des lames minces polies à MO concentrée (LC) obtenues à partir de broyats < 200 μm centrifugés dans une liqueur dense (d = 1,7) à 2500 tours/min; le flottant est recueilli par aspiration sur un filtre Millipore soluble qui fixe les particules sur une lame en plastique support et en permet le polissage; cette technique est particulièrement adaptée au cas des roches pauvres en particules organiques.

La réflectométrie a été faite sur un photomètre Leitz Orthoplan MPV II avec un objectif 50 X (ouverture numérique: 0,85) à immersion dans l'huile (indice n = 1,518 à 23°C) dans la longueur d'onde λ = 546 nm. Le diamètre du champ photométré est dans ces conditions de 5 μm.

Le photomultiplicateur est un EMI 9558 S20.

Pour l'étalonnage nous avons utilisé un verre Leitz R17 704 de réflectance 5,12% (n = 2,4349).

Dans la plupart des cas, particules concentrées après broyage et bitumes, seule la réflectance statistique moyenne a été établie sur le maximum de particules présentes sans rotation de la platine et sans polariseur.

Pour de rares échantillons, notamment le charbon de Mikouloungou poli perpendiculairement à la stratification, nous avons cherché à établir les valeurs R_{max} et R_{min} par rotation de la platine du microscope, le faisceau incident étant polarisé.

En plus de la réflectométrie, les échantillons ont systématiquement été examinés en lumière polarisée (nicols croisés) et en fluorescence. Dans ce dernier cas, bien adapté aux MO récentes (contaminations, bitumes secondaires, etc.), on utilise une lampe à vapeur de mercure, un filtre d'excitation dans le bleu (λ = 390 nm) et un filtre d'arrêt à 530 nm pour l'observation. (Pour le détail de la méthode, voir [1].)

3. RESULTATS

Nous considérerons successivement les divers types de MO que nous avons été capables de distinguer.

3.1. Matière organique syngénétique autochtone: type charbon

C'est la MO primaire syngénétique interstratifiée que nous avons recherchée tout d'abord, afin d'avoir une idée de la situation initiale du bassin avant la minéralisation.

Le témoin idéal dans ce domaine est le *charbon de Mikouloungou.* L'examen en réflexion montre un ensemble incontestablement stratifié (photos 1 à 3, voir annexe) présentant un microlitage parfaitement net surtout en lumière partiellement polarisée. L'anisotropie est renforcée autour des minéralisations dures en fonction des surcompressions locales. Cependant aucune structure reconnaissable n'est visible et aucun des macéraux classiques de la pétrographie des charbons n'est détectable. Il est vrai qu'au stade anthracite où se trouve ce charbon, c'est généralement le cas.

Il est de fait que si l'on reconnaît parfois encore des tissus organisés de type fusinite dans les anthracites classiques du Carbonifère, on y reconnaît beaucoup plus rarement les spores et les cuticules, mais il est exceptionnel d'y retrouver des corps algaires.

La réflectance, mesurée dans les conditions décrites ci-dessus, a donné les résultats suivants (fig. 1):

Réflectance moyenne	4,05%	Ecart-type	0,09	n = 20
Réflectance maximale	6,90%	Ecart-type	0,30	n = 10
Réflectance minimale	2,44%	Ecart-type	0,30	n = 10

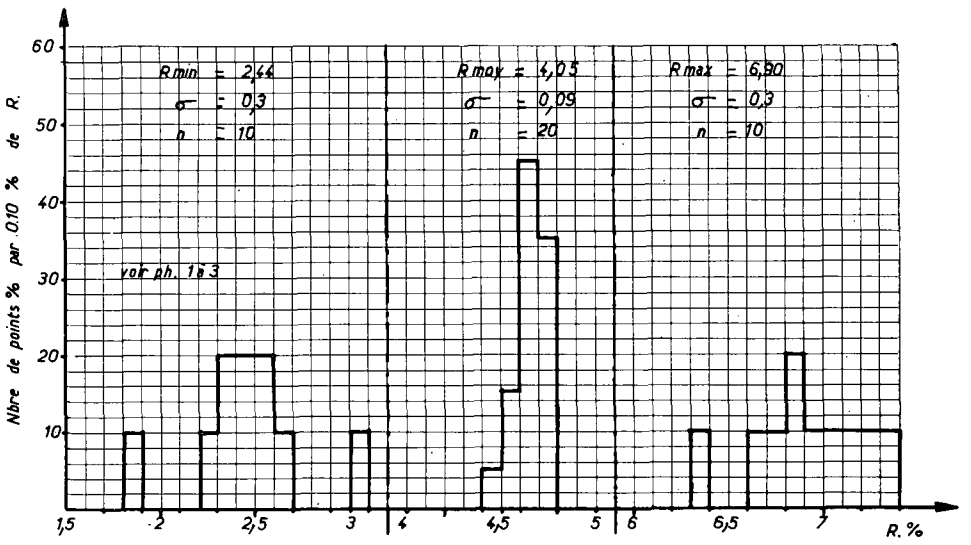


FIG.1. Réflectogramme du charbon de Mikouloungou (RFN 361).

Biréflectance: $R_{max} - R_{min} = 4{,}45\%$

Réflectance moyenne calculée: $\frac{R_{max} + 2R_{min}}{3} = 3{,}93\%$.

Les valeurs obtenues montrent que le rang de ce charbon est incontestablement celui d'un anthracite ($R > 2{,}5\%$) et même d'un méta-anthracite ($R > 4{,}5\%$) selon les propositions de Alpern et Lemos de Sousa [2].

A titre comparatif le méta-anthracite de la Mure (bassin du Dauphiné) présente les valeurs $R_{max} = 6{,}04\%$ et $R_{min} = 2{,}96\%$. Le maximum trouvé dans notre laboratoire est donné par l'anthracite du Douro (Portugal) avec $R_{max} = 7{,}30\%$ et $R_{min} = 2{,}62\%$. Les valeurs chimiques élémentaires correspondantes sont: carbone % = 97,1, hydrogène % = 1,15.

Ajoutons qu'à l'époque de la formation du charbon de Mikouloungou il ne pouvait s'agir de charbon humique provenant de plantes supérieures continentales mais d'un matériel principalement algaire donnant un charbon de type sapropélique (boghead) avec l'intervention probable de bactéries et peut-être de champignons marins (*Chitinomycetes*, ex. Chitinozoaires) [3].

Nous avons reçu un second *échantillon de surface* (carrière GL 2372) présentant une structure totalement différente (photos 4 et 5). Les particules sont formées de deux phases (fig. 2):

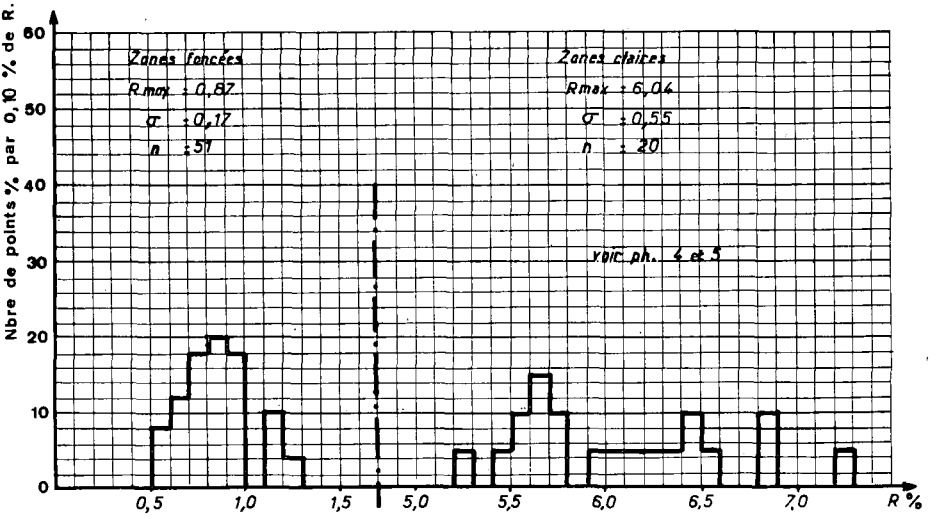


FIG.2. Réflectogramme de l'échantillon de carrière (GL 2372).

- l'une foncée, isotrope ou très légèrement anisotrope, de forme parfois ovale avec souvent une cavité centrale; réflectance R_{moy} = 0,87%;
- l'autre, généralement périphérique, est claire, fortement anisotrope, à extinction roulante, en relief; réflectance R_{max} = 6,04%.

L'ensemble montre des signes de stratification assez nets. La partie claire présente parfois des amorces de structures cloisonnées, d'interremplissage. Elle présente souvent des microvacuoles.

L'aspect de ces particules rappelle, d'assez loin et en beaucoup plus évolué, celui de certains groupements coloniaux algaires de type *Botryococcus* (forme pseudo-hexagonale radiée). On pourrait être en présence d'un boghead très évolué, la partie fortement anisotrope représentant l'exsudat bitumineux, la gelée sapropélique initiale baignant les masses algaires en décomposition. Il ne s'agit là que d'une hypothèse.

Une autre hypothèse pourrait être que la phase foncée représente une MO irradiée par les particules alpha. Cette irradiation – comme l'oxydation – aurait bloqué toute possibilité de diagenèse ultérieure, d'où le maintien de la réflectance à un bas niveau. Nous ne voyons pour l'instant pas d'autre hypothèse pour expliquer la persistance d'une phase foncée dans un milieu par ailleurs très évolué.

D'un autre côté, il est probable qu'au niveau des méta-anthracites atteint par la MO d'Oklo, les effets classiques de la radioactivité (augmentation de réflectance) doivent être difficiles à percevoir.

TABLEAU I. REFLECTOMETRIE DES MATIERES ORGANIQUES DU FORAGE OK 21

Profondeur	R_{moy}	σ	n	Sous-populations					
(m)	(%)			R_1(%)	σ_1	n_1	R_2(%)	σ_2	n_2
62,2	2,51	1,46	62	0,67	0,18	17	3,33	1,02	45
82,1	4,47	0,42	100						
162,1	4,27	0,45	100	Présence de particules de coke naturel					
180,5	5,01	0,38	96						
201,7	3,76	0,41	102						
262,3	4,44	0,53	98						
281,5	4,85	0,38	105						
302,1	4,24	0,42	100	0,85		2			
442,2	6,15	2,16	85	0,60	0,09	11	6,98	0,88	74
604,0	1,55	1,54	54	0,64	0,22	35	3,23	1,53	19

3.2. Estimation de l'intensité du paléoflux sur la MO du forage OK 21

Il est bien établi à l'heure actuelle que l'action de la température s'inscrit d'une manière irréversible sur la MO tant à l'échelle du laboratoire qu'à l'échelle géologique. Dans les deux cas la vitesse de l'échauffement et sa durée interviennent également.

Dans une certaine mesure, dans les bassins sédimentaires, temps et température peuvent se compenser. Pour le pétrographe l'action conjuguée de la température et du temps se traduit par une augmentation de réflectance.

Pour un même bassin il en résulte que la réflectance augmente avec la profondeur et qu'on peut calculer un ΔR par 100 m de sédiments qui donne une idée de l'intensité du paléogradient thermique. A titre d'exemple le forage de Gironville, situé dans le prolongement sud-ouest du bassin sarro-lorrain, se termine vers 6000 m de profondeur dans la zone des méta-anthracites avec un $\Delta R/100$ m de 0,167 [4].

Nous avons tenté de mesurer l'intensité du paléogradient sur une série d'échantillons prélevés entre 62 m et 604 m dans le forage OK 21. Les mesures ont toutes été faites sur des concentrés organiques (LC). Les résultats obtenus figurent dans le tableau I.

Le fait qu'aucune ligne évolutive nette ne puisse être tracée à partir de ces chiffres s'explique par plusieurs raisons:

- seule la MO syngénétique primaire ayant subi toute l'histoire thermique du bassin, depuis l'origine, est à prendre en considération;
- il se trouve en réalité que les particules recueillies proviennent de familles initiales diverses: particules primaires de réflectance allant de 4 à 6%, particules de bitumes secondaires venus remplir ultérieurement les failles et les fractures, particules cokéfiées par action thermique intense (montées magmatiques filoniennes).

Dans un cas aussi complexe il faudrait utiliser un plus grand nombre d'échantillons (nous en disposons mais nous avons manqué de temps pour le faire) et établir sur chacun d'eux la valeur R_{max} (et non R_{moy}) en ne choisissant que les particules autochtones primaires reconnues, si possible, comme non bitumineuses.

C'est également cette complexité qui explique en partie les sous-populations de basse et de haute réflectance qui ont été détectées. Rappelons également ici que l'échantillon de carrière fournissait, dans les mêmes grosses particules, des phases respectivement foncées et claires. Après broyage fin et séparation ces phases doivent donner des réflectogrammes nécessairement différents.

Pour une paléothermométrie correcte, ne sont valables que les particules syngénétiques primaires, non oxydées, non irradiées et ayant été capables d'enregistrer l'activité thermique maximale.

Il restera en outre à expliquer la présence de particules de basse réflectance (photo 20) et celle de tissus fusinisés (photo 18) et de sclérotes d'aspect classique (photo 19) liés généralement aux plantes supérieures.

3.3. Les substances bitumineuses

Nous donnerons ici au terme bitume, non son sens chimique de fraction extractible par les solvants usuels, mais son sens pétrographique et morphologique habituel: substance de remplissage des vides et fractures, solide, polissable, caractérisée par sa fluorescence (stades initiaux), sa réflectance, son anisotropie (stades plus évolués), sa microdureté (relief), son point de fusion, etc.

Il existe aussi des bitumes primaires, non migrés, encore présents sur le lieu de leur néoformation.

Nous assimilons les bitumes de remplissage des failles à des hydrocarbures migrés puis biodégradés.

Ces bitumes secondaires sont moins réfléchissants que la MO antérieure progénitrice. En effet leur mise en place est nécessairement plus tardive dans un système déjà consolidé et fracturé dont ils n'ont pas subi toute l'histoire thermique et dont la couverture pouvait être déjà en partie érodée au moment de la mise en place.

TABLEAU II. REFLECTOMETRIE DES CHARBONS D'AFFLEUREMENTS ET DES MATIERES ORGANIQUES ASSOCIEES AU REACTEUR

Echantillon	R_{moy} (%)	σ	n	Sous-populations					
				R_1 (%)	σ_1	n_1	R_2 (%)	σ_2	n_2
Y 220, toit couche 1	1,67	0,14	20						
GL 1021, bordure pile à 3 m	1,89	0,45	119						
COMUF 594, 2,5 m du réacteur	2,14	0,11	20						
GL 1017, 2 m du réacteur	1,26	0,25	55	Particules claires très fines, R non mesurable					
GL 2238, 1,5 m du réacteur front du 30.9.76	1,93	0,21	100						
GL 1013, 1 m du réacteur	2,76	1,73	72	1,63	0,30	49	5,16	0,89	23
GL 522, contact réacteur	1,67	0,14	20						
GL 1009, faciès pile, limite zone 2	2,12	1,30	52	1,62	0,35	42	4,49	0,96	10
GL 1002, faciès pile, cœur zone 2	1,62	0,62	64						
RFN 361, charbon de Mikouloungou	4,05	0,09	20						
GL 2372, carrière d'Oklo				0,87	0,17	51	6,04	0,55	20

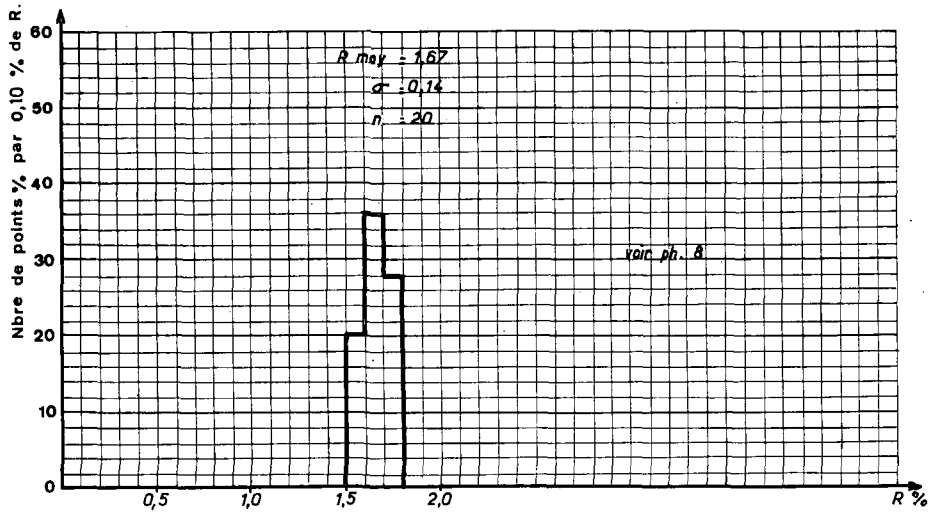


FIG.3. Réflectogramme de l'échantillon GL 522, minerai au contact du réacteur.

«Bitume» en filonnet dans la dolomie – Rivière M'Voudi

L'examen (photo 6) montre que ce bitume se présente comme un coke d'anisotropie granulaire fine, de type coke sarro-lorrain [5].

On peut donc admettre qu'il s'agit d'un coke naturel probablement formé à la suite de la mise en place voisine d'intrusions volcaniques à température assez élevée.

Industriellement l'anisotropie optique apparaît dès le stade du semi-coke à la fin de la zone plastique (phase de fusion des charbons à coke) vers 450–500°C dans la majeure partie des cas. On peut penser que des intrusions volcaniques ont pu provoquer des températures équivalentes ou même supérieures.

La réflectance de ce coke naturel est R_{moy} = 3,22% ± 0,07.

Les substances organiques associées au réacteur

La MO qui domine quantitativement autour du réacteur est de type bitumineux massif, fracturé, à inclusions métalliques sans auréoles radioactives, légèrement anisotrope, l'anisotropie étant renforcée autour des inclusions (photos 7 à 9), de réflectance plus basse que celle des charbons locaux (fig. 3).

On trouve cependant, accessoirement, des particules à deux phases (photo 11), des fragments tubulaires plus ou moins complexes (photo 12) et de rares sclérotes (restes de *Chitinomycetes?).*

Les valeurs de réflectance obtenues sont données dans le tableau II.

Elles varient, pour R moyen, de 1,62% à 2,76%. Ces variations ne sont pas liées à la distance au réacteur; nous les interprétons comme des variations

naturelles de réflectance des diverses générations de bitumes. C'est un fait d'observation assez courant, lié à la production successive de phases bitumineuses de composition chimique – donc de réflectance – différentes.

Le nombre de particules recueillies est très variable d'un échantillon à l'autre. Certaines lames sont riches et ont permis la mesure de 100 particules ou plus (GL 1021 et 2556). D'autres présentent, en plus des bitumes, des particules à deux phases – claire et foncée – analogues au charbon de la carrière (GL 2372).

C'est la phase claire de ces particules mixtes qui explique les valeurs de réflectance supérieures à 4% qui ont été trouvées autour du réacteur (GL 1009 à 1013).

Autour de celui-ci on trouve donc, en majorité, des particules de bitumes vrais, mais aussi, en traces, des reliquats de ce qui était peut-être un charbon sapropélique autochtone.

CONCLUSION

L'interprétation des résultats et observations peut se faire provisoirement de la manière suivante:

– Le charbon local (Mikouloungou) a atteint le rang des méta-anthracites (R_{max} = 6,90%), il pourra servir de référence pour les interprétations avancées et pour le calcul du paléogradient géothermique. Il est différent de l'échantillon de la carrière d'Oklo (GL 2372), qui paraît plus franchement sapropélique (particules à deux phases).

– Il y avait probablement de la matière organique primaire de type algaire dans la future zone de réaction, avant la mise en place de la tectonique et des minéralisations, puisqu'on en retrouve des traces. Cette matière, qui ressemble à celle de l'échantillon de la carrière, est peu abondante et les roches correspondantes devaient être du type schiste bitumineux.

– La MO quantitativement la plus importante, qui est venue ensuite remplir les fractures, est de type bitume, elle est secondaire et de réflectance nettement plus basse ($R < 3\%$) que la MO sapropélique autochtone ($R_{max} > 6\%$) dont la maturation lui a probablement donné naissance à une époque où sa réflectance devait être de l'ordre de 1% environ.

– L'un des types de MO de la région d'Oklo est du coke naturel probablement lié à la mise en place d'intrusions volcaniques. Il y a donc eu des actions thermiques locales intenses capables de porter la température des MO présentes à plus de 400°C mais dans des zones restreintes.

Cette première étude est encore trop sommaire, notamment pour ce qui concerne la mesure du paléogradient, et de nombreux points restent encore à

expliquer, surtout l'existence de phases et de particules de basse réflectance. L'une des hypothèse possibles est le blocage de la diagenèse à un stade très précoce sous l'action des rayons alpha.

REFERENCES

[1] ALPERN, B., «Fluorescence et réflectance de la matière organique dispersée et évolution des sédiments» (Bordeaux 1975), Bull. Centre Rech. Pau SNPA **10** 1 (1976) 201.

[2] ALPERN, B., LEMOS DE SOUSA, M.J., Sur le pouvoir réflecteur de la vitrinite et de la fusinite des houilles, C.R. Hebd. Acad. Sci., Sér. D **271** (1970) 12.

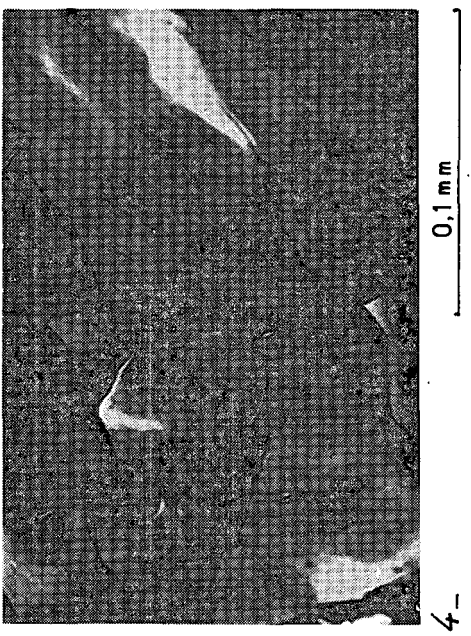
[3] LOCQUIN, M.V., Fungi of the lower Paleozoic: Ordovician, Devonian, Silurian, à *paraître*.

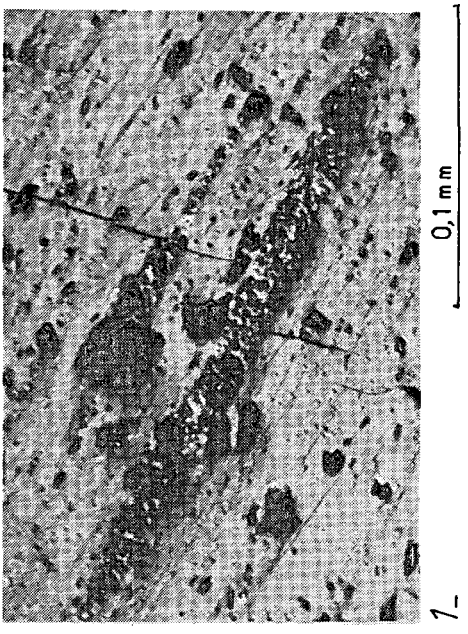
[4] ALPERN, B., Le pouvoir réflecteur des charbons français, Applications et répercussions sur la théorie de A. Duparque, Ann. Soc. Géol. Nord **LXXXIX** (1969) 143–66.

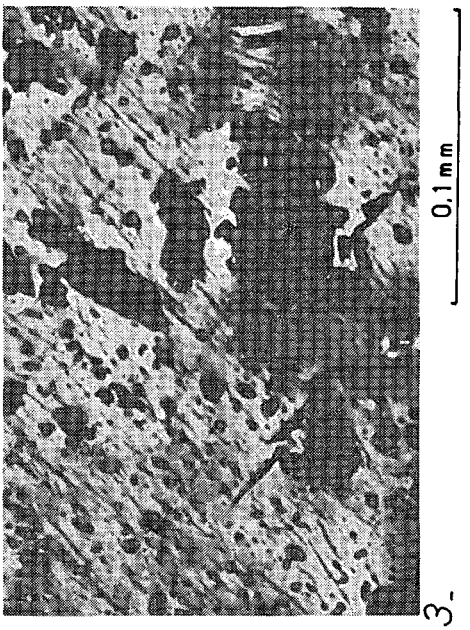
[5] ALPERN, B., Die Anisotropie der Kokse als Kriterium für ihre Beurteilung und Klassifizierung, Brennstoff Chemie **37** 13–14 (1956) 194–98.

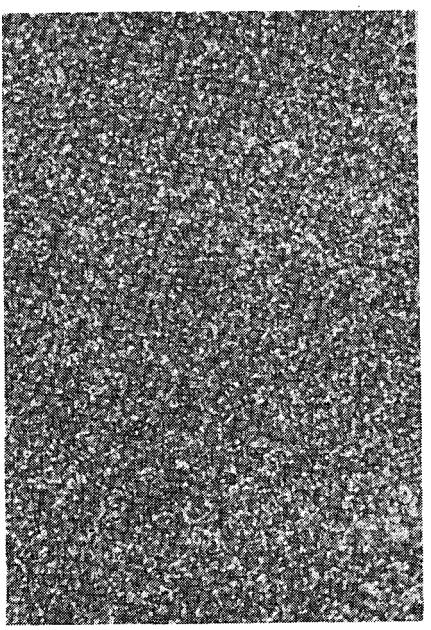
Annexe

PHOTOS 1 A 20 (légendes p. 349)

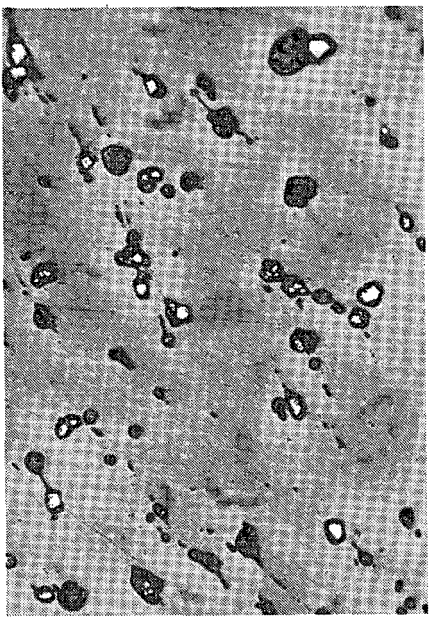






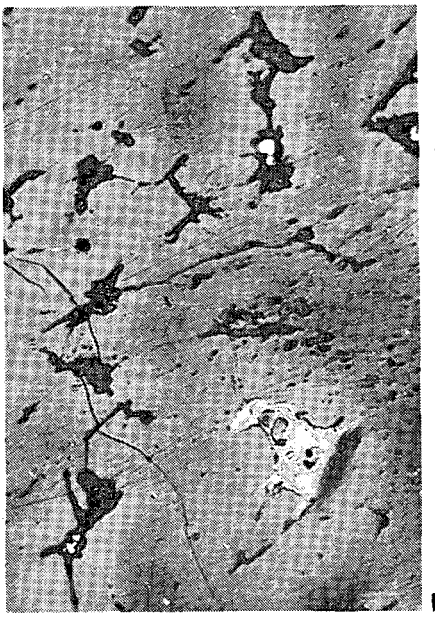


6-

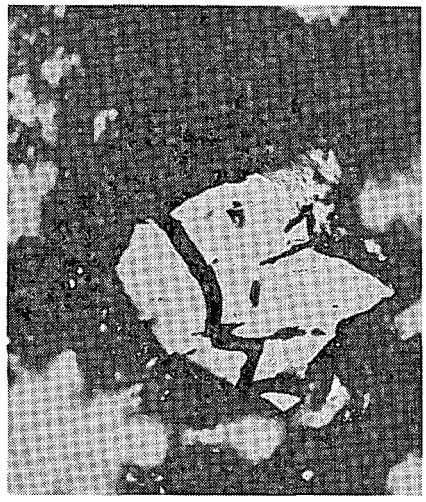


8-

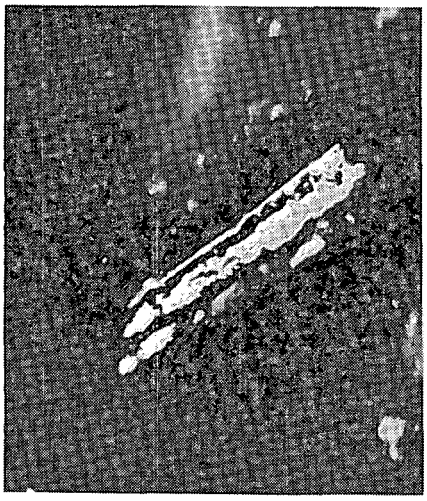
5-



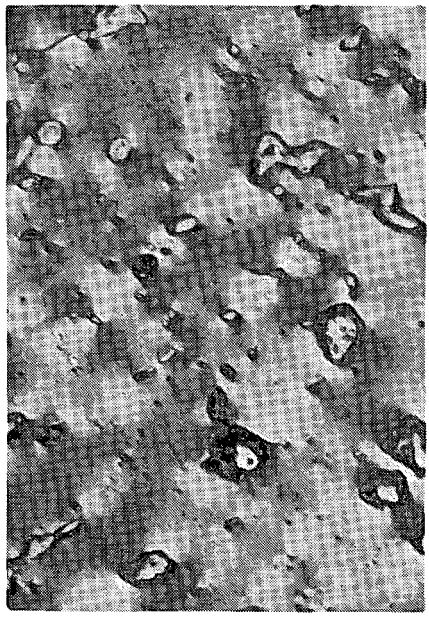
7-



10_

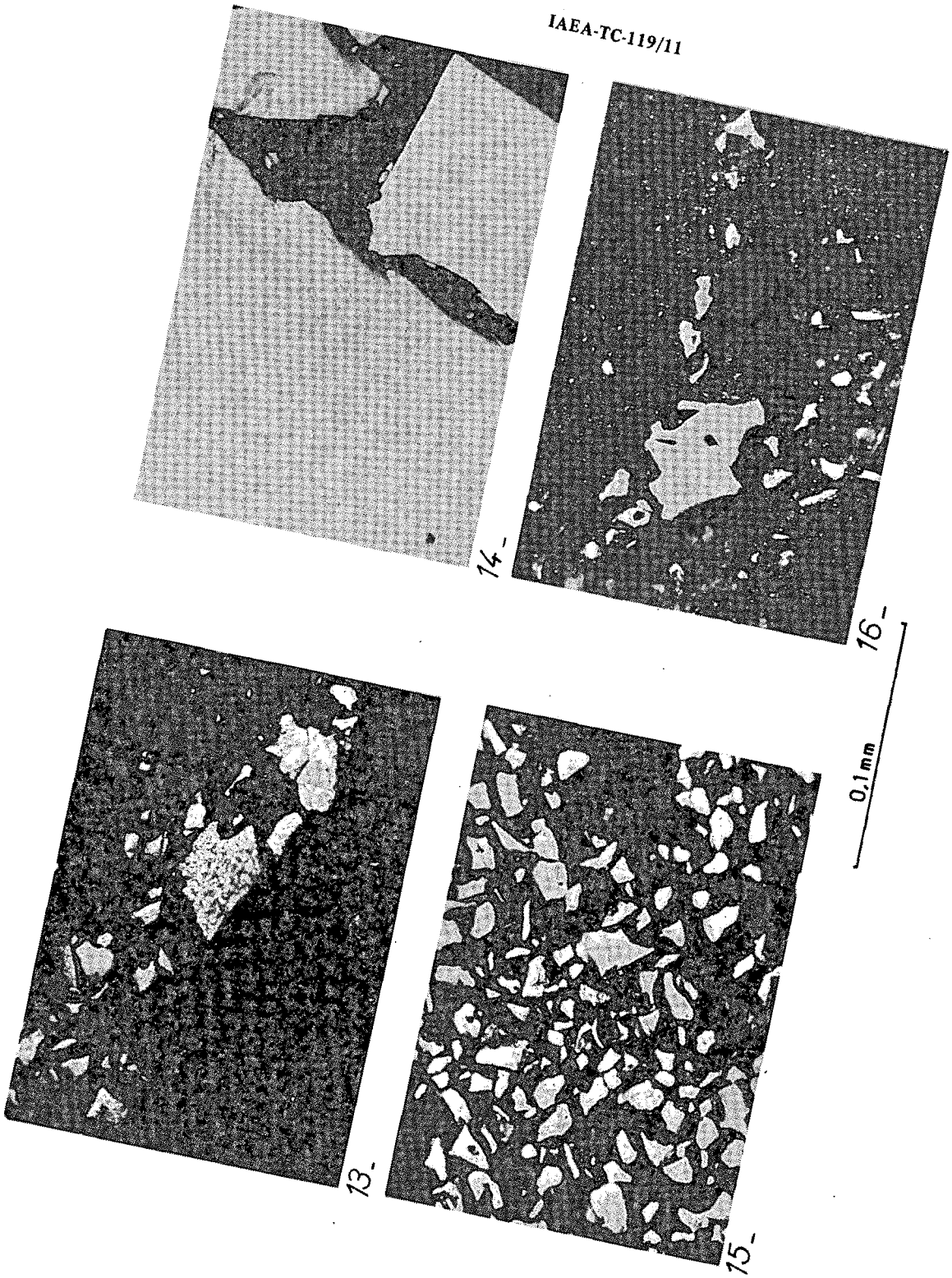


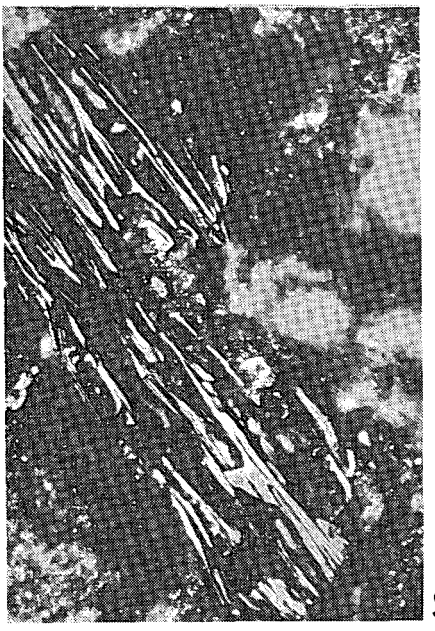
12_



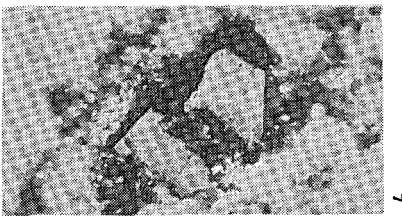
9_

11_

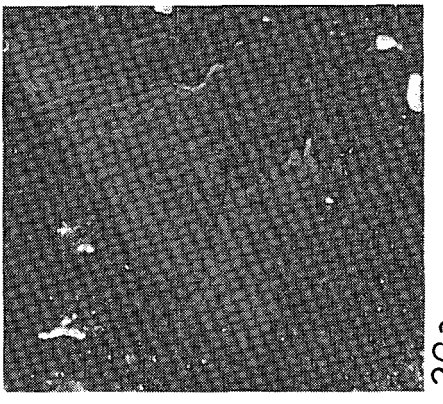

14_
16_
0,1 mm
13_
15_



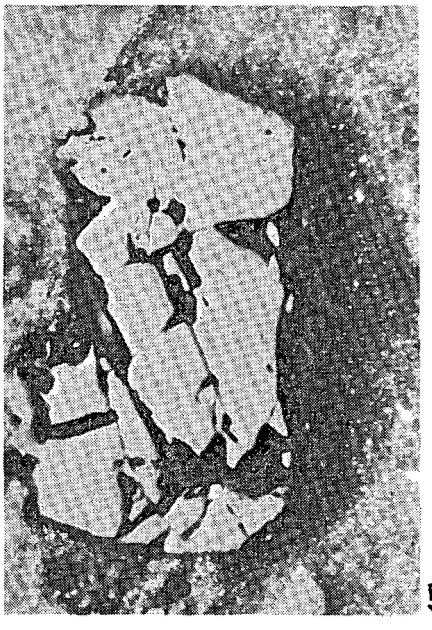
18_



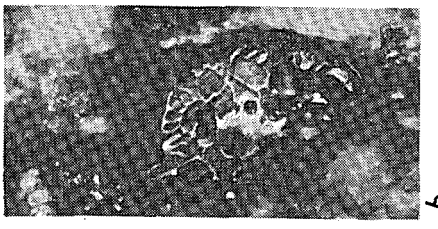
b_



20a_



17_



b_

19a_

0,1 mm

LEGENDES

PHOTO 1. RFN 361 – Charbon de Mikouloungou. Objectif 50 X immersion, lumière réfléchie. On notera l'aspect stratifié souligné par la présence, au centre, de lits à structure apparemment cellulaire et fusinisée?

PHOTO 2. RFN 361 – Charbon de Mikouloungou. Objectif 32 X immersion, lumière réfléchie. Idem avec fractures (en noir) plus nombreuses.

PHOTO 3. RFN 361 – Charbon de Mikouloungou. Objectif 32 X immersion, lumière réfléchie partiellement polarisée. L'anisotropie optique est renforcée autour des inclusions minérales dures.

PHOTO 4. GL 2372 – Echantillon de carrière (Oklo). Objectif 50 X immersion, lumière réfléchie partiellement polarisée. Particules à deux phases, la foncée étant dominante, d'origine peut-être algaire.

PHOTO 5. GL 2372 – Echantillon de carrière (Oklo). Idem.

PHOTO 6. FW 66-457 – Filonnet dans dolomie, Rivière M'Voudi. Objectif 50 X immersion, lumière réfléchie partiellement polarisée. Coke naturel à anisotropie granulaire fine. Il pourrait s'agir d'un bitume secondaire cokéfié sur place.

PHOTO 7. COMUF 594 – Minerai, à 2,50 m du réacteur. Objectif 32 X immersion, lumière réfléchie. Bitume de remplissage secondaire à inclusions métalliques.

PHOTO 8. GL 522 – Minerai, au contact du réacteur. Objectif 32 X immersion, lumière réfléchie. Bitume de remplissage secondaire à inclusions métalliques.

PHOTO 9. Y 220 – MO, toit couche 1. Objectif 32 X immersion, lumière réfléchie partiellement polarisée. Bitume de remplissage secondaire à inclusions métalliques, anisotropie renforcée autour des inclusions.

PHOTO 10. GL 1017 – Bordure pile à 2 m. Objectif 50 X immersion, lumière réfléchie. Bitume ou phase claire d'une particule à deux phases.

PHOTO 11. GL 1002 – Faciès pile, zone 2. Objectif 50 X immersion, lumière réfléchie. Formation tubulaire (Chitinomycete?).

PHOTO 12. GL 1017 – Bordure pile à 2 m. Objectif 50 X immersion, lumière réfléchie. Particules à deux phases. On notera la forme vaguement hexagonale de la partie claire et son centre plus foncé.

PHOTO 13. GL 2347 à 162,1 m. Lumière polarisée. Coke naturel à anisotropie granulaire.[1]

PHOTO 14. GL 2348 à 180,5 m. Bitume massif en grandes particules.[1]

PHOTO 15. GL 2349 à 201,7 m. Bitume probable en petits fragments.[1]

PHOTO 16. GL 2355 à 322 m. Particule foncée associée à des bitumes clairs.[1]

PHOTO 17. GL 2358 à 382,1 m. Bitume fracturé.[1]

PHOTO 18. GL 2759 à 402,4 m. Fragment de tissu ou pseudo-tissu fusinisé. Il est très peu probable que cette particule soit un mycélium.[1]

PHOTO 19a. GL 2359 à 402,4 m. Particule de bitume et sclérote d'aspect classique.[1]

PHOTO 19b. GL 2359 à 402,4 m. Sclérote (?) d'aspect inhabituel ou spore réticulée fusinisée.[1]

PHOTO 20a. GL 2361 à 442,2 m. Particule foncée de réflectance anormale dans une série méta-anthracitisée.[1]

PHOTO 20b. GL 2371 à 604 m. Particule foncée de réflectance anormale dans une série méta-anthracitisée.[1]

---

[1] PHOTOS 13 à 20. Sondage OK 21. Toutes les photographies ont été prises en lumière réfléchie avec l'objectif de 50 X immersion d'huile.

DISCUSSION

SUR LES MEMOIRES IAEA-TC-119/10 ET 11

F. WEBER: Comment expliquez-vous la migration tardive de matières organiques dans le réacteur alors que le sédiment avait déjà subi un enfouissement important avec des températures de l'ordre de 200°C?

M. Alpern parle de cokéfaction de matières organiques dans le sondage OK 21, qui est très loin des réacteurs. Ce phénomène est sans doute lié à la mise en place de dolérite (1000 MA). Les matières organiques pouvaient-elles encore évoluer à cette époque?

Mireille VANDENBROUCKE: La transformation de la matière organique est un phénomène cinétique, et non seulement la température, mais le temps jouent un rôle. Il est possible que des composés mobiles aient encore pu se former et qu'ils aient été mobilisés dans les circulations d'eau chaude dues aux courants de convection.

En ce qui concerne la matière organique de OK 21, je ne pense pas que son état d'évolution élevé puisse s'expliquer par la seule présence de dolérite, car le phénomène aurait un caractère très local (quelques mètres seulement) alors que tous les échantillons examinés sur 400 m de profondeur ont les mêmes caractéristiques (pouvoir réflecteur et position dans le diagramme H/C, O/C).

J. CONNAN: J'ai été particulièrement intéressé par les résultats que vous avez présentés au sujet des rapports atomiques H/C, O/C des kérogènes d'Oklo. Ces rapports et, en particulier, le rapport O/C, sont tout à fait anormaux. On se serait attendu à des rapports H/C, O/C faibles, c'est-à-dire à des points représentatifs, dans le diagramme H/C, O/C, proches de l'origine (points au voisinage de ceux d'Okelobondo). C'est en général le cas pour les matières organiques évoluées. Celles d'Oklo appartiennent à cette catégorie si on se réfère aux résultats présentés par M. Alpern.

Vous avez avancé, dans votre exposé, une explication de ces résultats en évoquant l'intervention de phénomènes d'hydrogénation et d'oxydation. Vos résultats m'ont paru indiquer que les phénomènes d'oxydation sont largement prépondérants. Cette interprétation justifierait notamment les fortes valeurs du rapport O/C trouvées dans les kérogènes d'Oklo.

Mireille VANDENBROUCKE: Il semble effectivement que c'est essentiellement l'action de l'eau, par son oxygène, qui a conduit à des kérogènes si fortement oxydés. Et d'ailleurs vous pouvez voir que le rapport H/C est de toute façon extrêmement bas. Donc c'est un phénomène d'oxydation sur une matière organique évoluée.

THERMOLUMINESCENCE AND ELECTRON-SPIN RESONANCE STUDIES OF THE OKLO NATURAL-FISSION REACTOR MATERIALS

S.A. DURRANI, K.A.R. KHAZAL, G.L. HENDRY*,
S. ARAFA**
Department of Physics,
University of Birmingham,
Birmingham, United Kingdom

Résumé–Abstract

THERMOLUMINESCENCE ET RESONANCE DE SPIN ELECTRONIQUE DES MATIERES DU REACTEUR NATUREL D'OKLO.

Dans une étude antérieure, les auteurs avaient conclu que les singularités des échantillons prélevés dans la zone de réaction 2 en matière de thermoluminescence, et notamment leur totale absence de thermoluminescence naturelle et leur inaptitude à manifester une thermoluminescence artificiellement provoquée, pouvaient être attribuées aux fortes détériorations que leur avait fait subir l'irradiation dans le cœur du réacteur. Par contre, les échantillons prélevés hors de la zone de réaction ont une thermoluminescence normale. L'étude actuelle porte sur un second jeu d'échantillons, au nombre de six, prélevés hors de la zone de réaction. Un examen géologique préalable effectué au cours du prélèvement avait indiqué qu'un premier groupe de trois échantillons se trouvait dans une gangue argileuse très semblable à celle du minerai du cœur, cependant que le second groupe de trois échantillons consistait en un minerai riche mais d'un taux de réaction très faible. On a étudié la fluorescence X, la thermoluminescence et la résonance du spin électronique du second jeu d'échantillons afin de déterminer s'il fallait attribuer les différences en matière de luminescence entre les échantillons prélevés à l'intérieur et à l'extérieur du cœur à des différences de composition ou aux dégâts d'irradiation. On a constaté que les compositions des échantillons du second jeu sont extrêmement hétérogènes. Mais après avoir comparé certains échantillons des premier et second jeu dont la composition offre des ressemblances générales, on a conclu que l'hypothèse primitive d'une détérioration due à l'irradiation est toujours valable. Une autre expérience vient à l'appui de cette hypothèse: on a chauffé à 1000°C pendant trois jours des matières provenant de deux échantillons du premier jeu prélevés à l'intérieur du cœur et constaté qu'ils manifestaient, après recristallisation, une thermoluminescence normale. On a également trouvé une certaine corrélation entre la résonance du spin électronique et la thermoluminescence des deux jeux.

THERMOLUMINESCENCE AND ELECTRON-SPIN RESONANCE STUDIES OF THE OKLO NATURAL-FISSION REACTOR MATERIALS.

In a previous paper, the authors had concluded that the remarkable thermoluminescence (TL) properties of samples obtained from within the 'reaction zone 2', namely the total absence

* Department of Geological Sciences, University of Birmingham.

** Department of Physics, American University in Cairo, Cairo, Egypt.

of natural TL in them and their inability to exhibit artificially induced TL, could be attributed to a high degree of radiation damage suffered by them in the reactor core. By contrast, samples from outside the reaction zone exhibited normal TL properties. In the present investigation, a 'second set' of samples (six in number) are examined, which had been collected from outside the reaction zone. Preliminary geological examination during their selection had indicated that one subset of three samples had a clay matrix very similar to that of the ore of the core, and the second subset of three samples consisted of rich ore but with a very low reaction rate. X-ray fluorescence (XRF), TL, and electron-spin resonance (ESR) studies of the 'second set' have been carried out with a view to ascertaining whether the differences in the TL properties of the in-core and off-core samples in the 'first set' could be attributed to compositional differences rather than to radiation damage. It is found that considerable compositional inhomogeneity exists within the 'second-set' samples. However, on comparing samples in the first and second sets that have broad compositional likeness, it is concluded that the original radiation-damage hypothesis is still tenable. The hypothesis is lent further support by an experiment in which material from two in-core samples of the 'first set' was heated at 1000°C for three days and it was observed that the resulting recrystallization enabled these samples to exhibit normal TL. Also, a certain degree of correlation has been found between the ESR and TL properties of each set.

1. INTRODUCTION

In our previous paper presented at the IAEA Symposium at Libreville, Gabon, in 1975 [1], one of the main conclusions of our thermoluminescence (TL) studies was that samples from within a reaction zone appeared to have suffered such a high degree of radiation damage that they not only failed to exhibit any natural TL but it was impossible to induce fresh TL in them by large doses of γ-rays. This was in marked contrast to the behaviour of samples from outside the reaction zone, where their TL properties were quite normal. Thus, whereas samples $2P_1$ to $2P_4$ from inside reaction zone 2 failed to exhibit any detectable TL glow (whether natural, or as a result of giving them a γ-ray dose of up to 6 Mrad), samples $2P_6$ to $2P_{15}$, collected at 10-cm intervals going away from the edge of the reaction zone, behaved normally. Sample $2P_5$, from near the edge of the reaction zone, displayed intermediate properties – it showed no natural TL but was able to exhibit induced TL.

The difference in the behaviour of the in-core and the off-core samples could be attributed to two alternative causes: either (i) the samples inside and outside the reaction zone were mineralogically so different that their TL properties were in marked contrast; or (ii) the radiation damage produced within the reaction zone by the intense bombardment of neutrons ($\sim 10^{21}$ n/cm^2) and the resulting fission-product impacting was sufficient to produce a state of metamictization in the soil grains. It may be mentioned in passing that we have never seen any natural geological rocks (whether lunar, meteoritic or terrestrial) that have

failed to produce observable TL glow when given a sufficiently high artificial dose of ionizing radiation.

To test the second hypothesis – (ii) – we bombarded crystals of both natural (Brazilian) quartz and of quartz found in an off-core Oklo sample ($2P_{11}$) with a massive dose (10^5 Mrad) of 10-MeV protons from a cyclotron. There was indication that this intense bombardment did produce a marked diminution in the TL sensitivity of the quartz crystals (see Refs [1, 2] for details).

It was, however, considered desirable that we should further examine the first hypothesis – (i) – by comparing and contrasting the TL properties of soil samples collected from other regions outside the reaction zone which resembled those inside the zone in their mineralogical composition, so that the radiation damage was the chief distinguishing factor. Dr. R. Naudet very kindly provided us with two sets of such off-core samples, as detailed below.

A further novelty in the present paper is the study of the electron-spin resonance (ESR) properties of the in-core and off-core samples. It is known that the ESR signal E' in silicates is radiation-dependent; it has also been suggested that it is related to the TL signal from the same sample. Therefore, we have carried out some ESR investigations of the Oklo samples to check such correlations.

1.1. Samples studied and their setting

Investigations on two sets of samples are reported in this paper. The 'first set' comprises two suites of samples [1] given to us by Dr. R. Naudet between September 1974 and January 1975, although only one of these suites is considered in detail here. This is the series $2P_1$ to $2P_{15}$ (Nos 430–444 according to Dr. Naudet's code) from outcrop No.2, picked every 10 cm along a line going out from reaction zone 2 and traversing the width of the ore-rich lens. From P_1 to P_5 the samples are still in the 'reactor core'; those beyond are from the low-grade ore. Dr. Naudet has recently expressed some doubts about sample $2P_6$: he no longer believes that it was a close neighbour of sample $2P_5$ at the time of the reactions.

The 'second set', consisting of six samples and supplied to us by Dr. Naudet in December 1975, may be divided into two subsets. Subset A consists of three samples – Nos 762, 1943, and 1959; they come from outside the reaction zone at distances of 1–3 m from the core. In Dr. Naudet's words: "They have a clay matrix very similar to the ore of the core, and have been picked out on the surface after geological examination". The purpose was "to compare their TL sensitivity with core samples such as $2P_1$ to $2P_4$".

Subset B also consists of three samples – Nos 800.1, 2321, and 2266. "They are made of rich ore (surconcentration area), but with a very low reaction rate." These samples came from vertical drill cores SC 15, KN 259, and KN 228, respectively, which apparently passed through the reaction zone.

2. EXPERIMENTAL RESULTS

2.1. Thermoluminescence (TL) studies

When ionizing radiation falls on, say, a crystalline material, it can cause electrons to be 'trapped' in various trapping states (or 'traps'), whose stability depends very strongly on the depth of the trap and the temperature of storage. On heating the material, the stored energy may be released in the form of light (TL), a number of glow peaks often being exhibited at various readout temperatures. In a natural sample, the glow intensity corresponding to a given peak (i.e. to a given trap) represents the residual or surviving number of filled traps, which are being continually drained by the temperature of storage. By artificially irradiating the same material in the laboratory, one can determine the shape of the initial glow-peak structure as well as the 'sensitivity' or TL response of the sample per unit dose, the saturation characteristics, etc.

In this study, the matrix or gangue material from each sample was sieved, and grains of diameters between 106 and 180 μm were selected. The samples were heated on a tantalum strip in a chamber, in an atmosphere of oxygen-free nitrogen to avoid chemiluminescence, at a controlled heating rate of 3.6°C s^{-1}. The light output transmitted through a broad-band blue filter was collected by a cooled photomultiplier tube, and the anode current passing via an electrometer, was plotted on an x-y chart recorder (for further details of apparatus, see Ref.[2]). The area under the glow curve was integrated over the readout temperature intervals 180 – 340°C and 340 – 500°C, using a planimeter.

2.1.1. Natural and induced TL

Figure 1 shows the TL glow curve from sample 1943 (subset A, 'second set'), chosen as an example. Curve A represents the natural TL glow, while curve B shows the glow induced in the sample as a result of imparting to it a ^{60}Co γ-ray dose of 6 Mrad in addition to its natural dose. In the natural glow, two stable peaks appear, at ~325 and ~420°C; these are enhanced by artificial irradiation. Little natural TL has survived below ~200°C, whereas artificial irradiation is able to induce a strong peak at ~100°C as well as a weak one at ~220°C. The absence of natural TL below ~200°C can be explained in terms of room-temperature fading.

All samples in the 'second set', except 1959 and 800.1, showed some natural TL over the readout temperature interval 180–500°C. In all samples (including Nos 1959 and 800.1) it was possible to induce varying degrees of glow by giving them a 6-Mrad γ-ray dose. The 'TL sensitivity' of each sample was measured by first annealing it and then giving it a test dose of 150 krad of γ's.

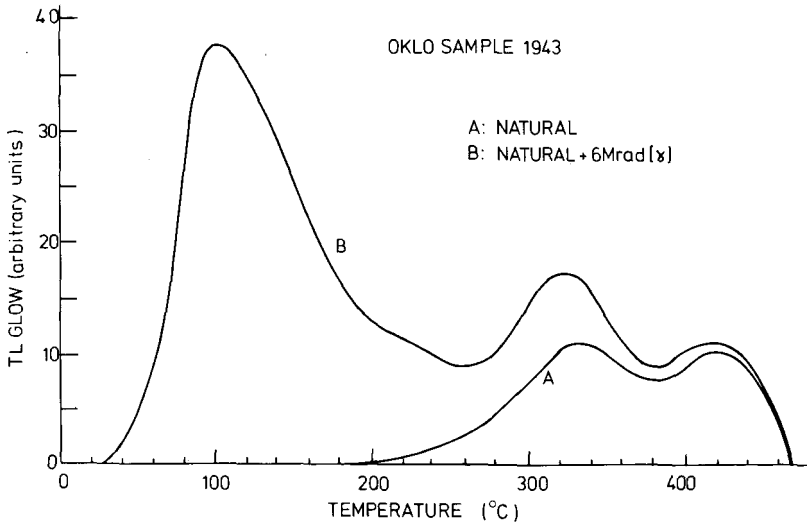


FIG. 1. The natural and artificially induced TL glow curves for a typical 'second-set' sample (No. 1943 from subset A). Curve A shows the natural thermoluminescence (TL), and curve B the TL resulting from its natural dose + 6 Mrad of ^{60}Co γ-rays. The grain size was 106–180 μm, the sample weight ≅2 mg, and the heating rate 3.6 °C s^{-1}; the black-body radiation has been subtracted.

The sensitivity values (in TL area/mg · krad) were used to normalize the TL outputs, integrated over a given temperature interval, of the various samples. The results are shown in Table I.

The means of the two subsets for the normalized natural TL (340–500°C) happen to be exactly the same, viz. 165.4 units, if one ignores the naturally non-glowing samples 1959 and 800.1 in each case (with σ values = ±69.9 and ±31.3 units for subsets A and B, respectively). These values are quite close to the mean of the 340–500°C TL in the off-core samples $2P_6 - 2P_{15}$ of the 'first set', viz. 184.7 ± 74.6 units, while being distinctly different from the TL in the core samples $2P_1 - 2P_5$, which is 0 in each case. Even the samples 1959 and 800.1, which display no natural TL, differ from the core samples in that the former are able to exhibit induced TL, whereas it was found in Ref. [1] that it is impossible to induce any TL in the core samples $2P_1 - 2P_4$. Samples 800.1 and 1959 thus resemble the core-edge sample $2P_5$ in its lack of natural TL but ability to exhibit induced TL. The relevant TL data for the 'first set' are shown in Table II for ease of comparison.

TABLE I. THERMOLUMINESCENCE CHARACTERISTICS OF THE 'SECOND SET' OF OKLO SAMPLES

Sample No.	Glow area II (180–340°C) (arbitrary units)		Glow area III (340–500°C) (arbitrary units)			
	Natural TL	Natural +6 Mrad (γ)	Natural TL	Natural +6 Mrad (γ)	Sensitivity[a] area/mg · krad (10^{-2})	Normalized natural TL[b]
Subset A						
762	15.6	28.8	26.2	32.7	12.2	214.8
1943	14.9	61.8	23.2	44.5	20.0	116.0
1959	0	7.8	0	1.65	3.9	0
			Mean[c] (samples 762 and 1943) = 165.4 ± 69.9 units			
Subset B						
800.1	.0	4.6	0	1.66	1.7	0
2321	6.6	33.4	10.6	20.0	7.4	143.3
2266	4.0	18.5	4.5	11.85	2.4	187.5
			Mean[c] (samples 2321 and 2266) = 165.4 ± 31.3 units			

[a] The TL sensitivity of a sample is measured by first annealing it and then giving it a test dose of 150 krad of γ's; any temperature-sensitization is ignored.

[b] The normalized TL is obtained by dividing the natural TL of a sample, over a given readout temperature interval, by its sensitivity value.

[c] The means refer to the normalized natural TL in the readout interval 340–500°C for the samples indicated.

TABLE II. NATURAL THERMOLUMINESCENCE IN THE 'FIRST SET' OF OKLO SAMPLES[a]

Sample No.	Glow area II (180–340°C) (arbitrary units)	Glow area III (340–500°C) (arbitrary units)		
	Natural TL	Natural TL	*Sensitivity*[b] area/mg · krad (10^{-2})	*Normalized* natural $TL\frac{1}{2}$[c]
$2P_1$-$2P_4$	0	0	0	–
$2P_5$	0	0	3.6	0
$2P_6$	10.5	22.5	12.0	187.5
$2P_7$	18.8	48.8	21.6	225.9
$2P_8$	28.5	62.3	19.8	314.6
$2P_9$	9.0	27.5	17.7	155.4
$2P_{10}$	12.8	28.5	15.6	182.7
$2P_{11}$	18.8	40.5	15.3	264.7
$2P_{12}$	10.5	25.0	13.2	189.4
$2P_{13}$	2.3	2.3	5.7	40.4
$2P_{14}$	2.3	7.5	5.1	147.1
$2P_{15}$	3.0	7.5	5.4	138.9
		Mean[d] (samples $2P_6$-$2P_{15}$) = 184.7 ± 74.6 units (or, neglecting the value for $2P_{13}$: 200.7 ± 58.2 units)		

[a] These values are based on Figs 2, 3 and 4 of Ref. [1].
[b] See first footnote to Table I.
[c] See second footnote to Table I.
[d] The mean refers to the normalized TL in the readout interval 340–500°C for the off-core samples indicated. It is quite close to the value for the naturally glowing samples in the 'second set' (Table I).

2.2. Electron-spin resonance (ESR) studies

Although a suggestion was made as long ago as 1968 by Zeller [3] that a relationship existed between the TL of geological samples and their radiation-induced electron-spin resonance (ESR) signal, very little systematic or quantitative work has been done on the relations between the two phenomena [4]. Detailed experiments are currently in progress in our laboratory to verify and define such relations, especially for materials of interest in solid-state nuclear track detection (results to be published). We decided to check any TL-ESR correlations in Oklo materials.

The interaction of radiation with a solid material produces ionization (and related phenomena) as well as radiation-induced defects. Some of the mobile charges set in motion by ionization may be trapped at a defect (intrinsic or induced) to form electron traps or hole traps. The electron traps are exemplified by the E′-centre in quartz and other silicate minerals, and the hole traps by oxygen sites in oxides.

Electron-spin resonance arises from the resonant absorption of microwave electromagnetic (em) radiation by unpaired spins in a mineral in a magnetic field. The resonance condition is

$$h\nu = g\,\mu_\beta\,H$$

where ν is the frequency of the em radiation, g the Landé-factor, H the external magnetic field intensity, μ_β the Bohr magneton, and h Planck's constant. The usual experimental practice is to use a fixed frequency, varying the magnetic field to establish the resonance condition. The g value is the spectroscopic splitting factor and is equal to 2.00 for a free electron spin.

Electron-spin resonance experiments on the 'first set' were performed at both the American University in Cairo (hereafter called the 'Cairo results') and the University of Uppsala, Sweden (hereafter called the 'Uppsala results'), using X-band ESR spectrometers. The ESR experiments on the 'second set' were performed only at Cairo.

In all cases the experiments were performed after gently crushing the samples in an agate mortar and picking out the finest grains without any sieving. The sample weight and volume were kept the same (to within ~±5%) and other experimental conditions were held constant for a given series of runs, so that the results could be internally compared from sample to sample. Heat treatment was given, where mentioned, by placing the sample in a furnace, held at 500°C for ~15 minutes, or at 200°C for about one hour. Heated samples were, in some cases, exposed to X- or γ-rays. In the case of the 'first set', the Cairo values should be regarded as preliminary; the Uppsala results are quantitatively more reliable. All ESR spectra were measured at room temperature.

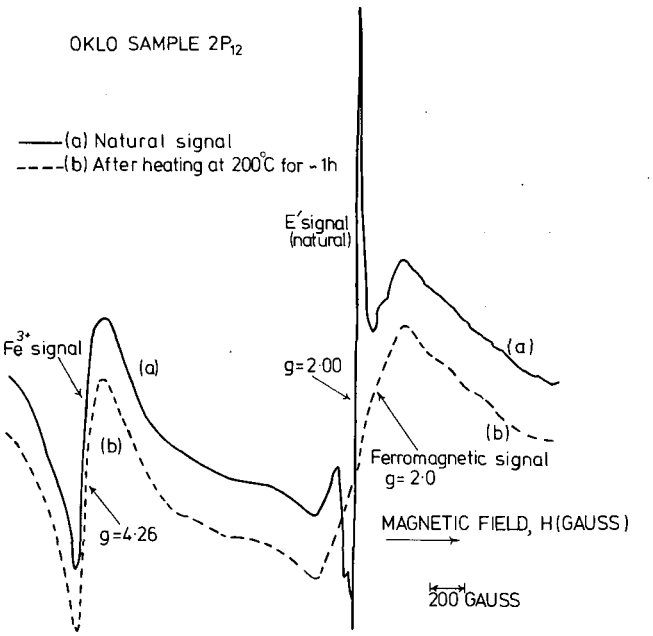


FIG.2. The natural ESR spectrum observed at room temperature for sample $2P_{12}$, chosen as an example (Cairo spectrometer). The spectrum displays three main features: (1) A line at a g-value = 4.26, attributed to Fe^{3+} ions present in the solid material. (2) A broad resonance at $g \cong 2.0$, attributed to ferromagnetic materials. (3) A sharp line at g = 2.00, which is identified to be the E' centre, induced as a result of irradiation in silicates. The latter line (E') disappears upon heating the sample above 200°C for ~1 h (or at 500°C for a few min), and is re-formed upon exposing the sample to ionizing radiation. Similar curves are obtained with the Uppsala spectrometer.

2.2.1. Natural and induced ESR signals

The natural samples displayed three main resonance lines (see Fig.2):

(1) A resonance line at a g-value of about 4.26, which is attributed [5] to Fe^{3+} ions in the sample;
(2) A broad resonance line at a g-value of about 2.0, which is attributed to ferromagnetism; and
(3) A sharp resonance line at a g-value of 2.00, which is identified with the E'-centre commonly induced by radiation in silicates (SiO_2).

The latter line (E') disappeared upon heating the sample at 200°C for ~1 h or at 500°C for ~15 minutes, and was re-formed upon exposing the sample to ionizing radiation. The figure (Fig.2) is based on the Cairo experiments, performed

TABLE III(a). ELECTRON-SPIN RESONANCE DATA ON THE 'FIRST SET' OF OKLO SAMPLES[a]

Sample No.	ESR signal intensity (arbitrary units)					
	E′ signal (g = 2.00)		Fe^{3+} signal (g = 4.26)		Ferromagnetic signal (g ≅ 2.0)	
	Cairo	Uppsala	Cairo	Uppsala	Cairo	Uppsala
$2P_1$	8.5	116	5.5	130	strong	24.5
$2P_4$	20	875	~9	645	strong	13
$2P_6$	>50	2211	21.5	632	strong	13.5
$2P_8$	≅30	6000	7.5	500	weak	12
$2P_9$	10.7	400	17.0	525	weak	12.5
$2P_{11}$	24.8	524	7.0	238	weak	17
$2P_{12}$	22.6	850	9.0	383.3	weak	15.5
$2P_{15}$	2.5	130	14.7	783	v. weak	13.5
$2P_4$ (heated)	disappears	–	unchanged (~9)	–	weak	–
$2P_{12}$ (heated	disappears	–	unchanged (9)	–	weak	–

[a] The Cairo measurements were performed in February 1976, and those at Uppsala in August 1976. The Cairo values should be regarded as preliminary. At both universities the measurements were performed at room temperature, using X-band spectrometers. For E′-centre signal, the correlation coefficient r between the Cairo and Uppsala values is calculated to be +0.572. See text for the origin of the various signals.

with an X-band spectrometer. Exactly the same behaviour was displayed in the Uppsala experiments.

In Table III (a) are collected together all the ESR values (both Cairo and Uppsala) for the 'first set'. The correlation between the Cairo and the Uppsala results has been determined by calculating the 'product moment correlation coefficient r' which is found to be +0.572, indicating a medium-value positive correlation. In Table III (b) are shown the ESR data (Cairo laboratory) on the 'second set'.

TABLE III(b). ELECTRON-SPIN RESONANCE DATA ON THE 'SECOND SET' OF OKLO SAMPLES (CAIRO SPECTROMETER)

Sample No.	ESR signal intensity (arbitrary units)[a]		
	E′ signal	Fe^{3+} signal	Ferromagnetic signal
Subset A			
762	24.2	2	7
1943	15.1	2	3.5
1959	21.2	2	5
Subset B			
800.1	4.2	1	6.5
2321	13.0	5	5
2266	22.6	5.5	3

[a] The spectrometer had been adjusted to a new sensitivity by the time the 'second-set' measurements were carried out (in October 1977). For normalization purposes it may be mentioned that sample $2P_8$ now gave a value of 10.9 for the E′ signal, whereas its previous intensity value (in February 1976) was ≅30 (cf. Table III(a)). In this Table the values have *not* been normalized to Table III(a) values.

2.3. Correlation between TL and ESR values

In Fig.3 we plot the TL and the radiation-induced E′-centre ESR signal intensity as a function of sample position in the 'first set'. The TL values are taken from our previous work [1]; the ESR values are those from the Uppsala experiments. There is fairly good agreement between the curve shapes.

Table IV (a) gives the TL and E′ values for the various samples in the 'first set'. The correlation coefficient r is found to be +0.747 indicating good correlation between the TL and the E′ values for the samples studied.

In Table IV (b) are given similar comparative values for the 'second set'. Here r = +0.34, indicating a weak correlation between the TL and E′ values for the 'second set'.

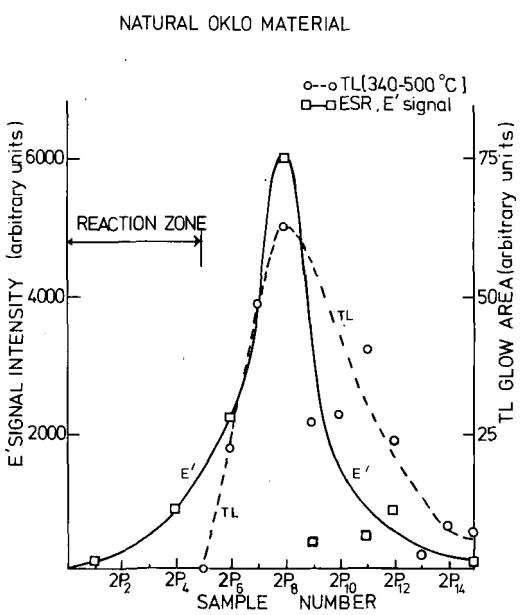


FIG.3. Correlation between the natural TL and ESR signals from samples in the 'first set'. The two curves are broadly similar. The TL curve is reproduced from Fig.2(b) of Ref. [*1*] *(without normalization); the ESR values are those from the Uppsala machine. Good correlation (with r = +0.747) is calculated between the TL and E' signal intensities (see Table IV (a)) from these samples.*

2.4. Compositional analysis of samples

Although, in his note relating to the Oklo samples allocated to us, Dr. R. Naudet had stated that 'they have been picked out after geological examination', it was decided to carry out X-ray fluorescence (XRF) analysis of all the 'second-set' samples. This was to enable us to compare their composition with that of the 'first-set' samples, which had been similarly analysed by us. As the test of the compositional similarity of the two sets is of fundamental importance in deciding between the alternative explanations of the TL properties of the in-core and off-core samples (see Introduction), it is obvious that such detailed examination is an essential prerequisite.

In Table V is shown the X-ray fluorescence analysis of the 'second set' of Oklo samples, listing the per-cent abundances of some of the major elements in them. For ease of reference, we have also included the data for the 'first set' of Oklo samples published in our previous paper [1]. The Fe_2O_3 values had not previously been measured for that set, and are fresh determinations; in geological convention total iron content is expressed as Fe_2O_3, irrespective of the oxidation state.

TABLE IV(a). CORRELATION BETWEEN THE NATURAL TL AND E′-SIGNAL VALUES FOR THE 'FIRST SET' OF OKLO SAMPLES

Sample No.	Natural TL Glow area III (340–500°C) (arbitrary units)	Natural E′-signal intensity[a] (g = 2.00) (arbitrary units)
$2P_1$	0	116
$2P_4$	0	875
$2P_6$	22.5	2211
$2P_8$	62.3	6000
$2P_9$	27.5	400
$2P_{11}$	40.5	524
$2P_{12}$	25.0	850
$2P_{15}$	7.5	130

[a] Uppsala values are used. The correlation coefficient between the natural TL (integrated over the temperature interval 340–500°C) and the E′-centre signal intensities is calculated to be r = +0.747. With $\nu = 6$, the t value of 2.75 means that the correlation is significant on the 5% level (see also Fig.3).

TABLE IV(b). CORRELATION BETWEEN THE NATURAL TL AND E′-SIGNAL VALUES FOR THE 'SECOND SET' OF OKLO SAMPLES

Sample No.	Natural TL glow area III (340–500°C) (arbitrary units)	Natural E′-signal intensity[a] (arbitrary units)
Subset A		
762	26.2	24.2
1943	23.2	15.1
1959	0	21.2
Subset B		
800.1	0	4.2
2321	10.6	13.0
2266	4.5	22.6

[a] Cairo values (October 1977). The correlation coefficient between the natural TL and the E′-signal intensities is calculated to be r = +0.34, which indicates poor correlation. With t = 0.72, $\nu = 4$, this value of r is not significant.

TABLE V. X-RAY FLUORESCENCE ANALYSIS[a] OF OKLO SAMPLES (SECOND AND FIRST[b] SETS)

Sample	UO_2	ThO_2	PbO	K_2O	Al_2O_3[e]	Fe_2O_3[f]	SiO_2[e]
'Second set'							
762[c]	3.1	0.01	1.2	2.4	25	6.7	41
1943	0.04	0.01	0.2	3.2	25	6.9	44
1959[d]	10.6 15.5	<0.01	1.7 2.0	2.0 1.9	22 22	7.5[g]	33 33
800.1	51.1	<0.01	4.1	2.2	13	3.0	19
2321	7.3	<0.01	1.4	4.8	28	4.6	43
2266	0.6	0.02	0.2	6.2	32	2.5	46
'First set'							
$2P_1$	41.8	0.13	4.4	1.2	7	–	13
$2P_2$	52.8	0.30	6.4	1.0	7	6.6	13
$2P_3$	29.0	0.23	5.2	1.5	15	11.7[g]	22
$2P_4$	10.6	0.13	2.4	2.0	21	–	30
$2P_5$	50.8	0.41	8.5	1.5	7	–	14
$2P_6$	1.3	0.01	0.8	1.9	21	–	42
$2P_7$	0.8	nd[h]	0.8	3.1	17	–	68
$2P_8$	3.9	0.03	4.0	3.9	22	5.6	48
$2P_9$	0.2	nd	0.2	7.9	25	4.0	53
$2P_{10}$	0.1	0.02	0.7	3.3	13	2.1	78
$2P_{11}$	0.3	0.03	3.8	1.9	10	2.1	79
$2P_{12}$	1.3	0.01	0.8	1.5	28	–	40
$2P_{13}$	0.2	nd	0.03	0.01	22	9.8[g]	32
$2P_{14}$	0.05	nd	nd	0.02	21	5.8	32
$2P_{15}$	0.11	0.01	0.2	0.2	24	8.9[g]	30

[a] The chemical analysis by X-ray fluorescence was performed after fusing samples in sodium tetraborate/lanthanum oxide (for details see [6]). The values shown are percentages.

[b] The results for the 'first set' are reproduced from Ref. [1] for comparison, but the Fe_2O_3 values are new. The values for the 'second set' were determined by using the 'first-set' samples as standards, and are therefore strictly comparable.

[c] The values for sample 762 are averages for two sub-samples.

[d] For sample 1959, the values obtained differed between duplicate sub-samples, indicating inhomogeneities in the original sample.

[e] Values of lower accuracy (within 1%).

[f] Total iron content has been expressed as Fe_2O_3; it does not imply the oxidation state.

[g] Calibration standard for Fe_2O_3 goes to only 6.0, so values much in excess of that figure have a slightly greater uncertainty.

[h] nd indicates values below the limit of detectability by the method – indicates 'not attempted'.

The implications of the compositional comparison of the two sets are discussed in the next section in the light of their observed TL and ESR properties.

3. DISCUSSION

3.1. TL studies

As stated in the Introduction, one of the main conclusions arrived at in our previous paper [1] was that the high degree of radiation damage received by the in-core samples $2P_1 - 2P_4$ seemed to have resulted in the destruction of their ability to display either natural or induced TL. It was considered that quartz crystals in the core material had become metamicted by intense radiation (both during the operation of the reactor and through the α-decay and spontaneous fission of their ^{238}U content), thus losing their crystalline structure which is one of the normal requirements of TL phosphors. This hypothesis was supported by laboratory experiments where both Oklo quartz and ordinary natural (Brazilian) quartz crystals were subjected to intense proton doses of up to 10^{11} rad and a consequent reduction by a factor of ~10 was observed in their sensitivity to a test-dose of β-rays [1, 2].

In the present investigation, two sets of new Oklo samples have been examined to test this hypothesis. Subset A (samples 762, 1943, and 1959) was stated by Dr. Naudet to possess a 'clay matrix very similar to the ore of the core' but came from well outside the reaction zone. Subset B (samples 800.1, 2321, and 2266) consisted of 'rich ore, but with very low reaction rate' (see Section 1.1).

The situation is, in fact, not as simple as would be expected from the above statements. As will be seen from Table V, there is considerable internal inhomogeneity between the samples in each of the two subsets. Thus, the UO_2 content in subset A varies from ~15 to 0.04% and the corresponding SiO_2 content from 33 to 44%. Similarly, in subset B, the UO_2 content varies from 51.1 to 0.6% and the corresponding SiO_2 content from 19 to 46%. There is thus no obvious geological similarity between the subset A samples of the 'second set' and the 'ore of the core' in the 'first set' as we had been led to expect from Dr. Naudet's preliminary essays.

The only possible line of action in comparing the TL properties of the old and new sets is, thus, to do so selectively between samples that, based on our own X-ray fluorescence analysis, do have a *prima facie* similarity of composition. In this context, some useful parameters have been collected together in Table VI. These parameters include some compositional abundances as well as the natural TL and E′ signal intensities from both sets of samples. As the TL exhibited by a sample is related to the amount of crystalline quartz in it, and may also be affected by its Fe_2O_3 content (as it is known that iron often acts as a suppressant of the TL signal), these values have also been included. TL sensitivity (defined

TABLE VI. SOME SELECTED PARAMETERS FOR THE 'FIRST AND SECOND SETS' OF OKLO SAMPLES

Sample No.	SiO_2 (%)	Quartz[a] signal (arbit. units)	UO_2 (%)	Fe_2O_3 (%)	Natural TL (340–500°C) (arbit. units)	TL sensitivity (340–500°C) area/mg·krad (10^{-2} arbit. units)	Natural E' signal[b] (g = 2.00) (arbit. units)
Subset A ('Second set')							
762	41	62	3.1	6.7	26.2	12.2	24.2
1943	44	97	0.04	6.9	23.2	20.0	15.1
1959	33	16	10.6 15.5	7.5	0	3.9	21.2
Subset B ('Second set')							
800.1	19	17	51.1	3.0	0	1.7	4.2
2321	43	25	7.3	4.6	10.6	7.4	13.0
2266	46	23	0.6	2.5	4.5	2.4	22.6
'First set'							
$2P_1$	13	0	41.8	–	0	0	3.1
$2P_2$	13	0	52.8	6.6	0	0	–
$2P_3$	22	0	29.0	11.7	0	0	–
$2P_4$	30	0	10.6	–	0	0	7.3
$2P_5$	14	–	50.8	–	0	3.6	–
$2P_8$	48	–	3.9	5.6	62.3	19.8	10.9
$2P_9$	53	154	0.2	4.0	27.5	17.7	3.9
$2P_{11}$	79	–	0.3	2.1	40.5	15.3	9.0
$2P_{12}$	40	–	1.3	–	25.0	13.2	8.2
$2P_{13}$	32	–	0.2	9.8	2.3	5.7	–
$2P_{14}$	32	–	0.05	5.8	7.5	5.1	–
$2P_{15}$	30	–	0.11	8.9	7.5	5.4	0.9

[a] Quartz was detected by X-ray diffraction. The signal values represent peak heights of the strong line and are only notionally quantitative. Quartz crystals were also found in most of the samples $2P_6$–$2P_{15}$, especially in samples $2P_7$ and $2P_{11}$, even though quantitative values are not shown here.

[b] All values of the E' signal are based on the Cairo spectrometer. The values for the 'first set' have been normalized to those for the 'second set' by using the signal intensities for sample $2P_8$, which gave a value of 10.9 at the time of 'second-set' measurements (October 1977) compared to ≅30 previously (February 1976; see footnote in Table III(b)). Note that the Uppsala value for the same sample was 6000 (Table III(a)).

as the TL glow in the readout interval 340–500°C induced in a mg of the sample by 1-krad γ-rays) is a good overall measure of the susceptibility of each sample to the induction of TL in it by radiation and is an important parameter which has implicit in it the effect of both the TL enhancing and suppressing agents.

In Table VII we compare selected samples from the 'second set' with those from the 'first set' in respect of their TL properties.

For these comparisons only those samples have been used which appear to have similar elemental composition, especially with regard to their UO_2 and SiO_2 content. It is interesting to note that all samples in the 'second set', whatever their UO_2 content and location, are susceptible of TL induction in them through artificial irradiation, whereas the in-core samples in the 'first set' ($2P_1 - 2P_4$) fail to exhibit any induced TL. Similarly, whereas some of the 'second-set' samples exhibit natural TL and some do not, none of the in-core samples in the 'first set' do. (The core-edge sample $2P_5$ resembles samples 1959 and 800.1 insofar as nil natural TL but finite TL inductibility are concerned.) Thus, one concludes that there is a basic difference between the TL properties of the 'second-set' samples in comparison with the 'first-set' in-core samples $2P_1 - 2P_4$. The situation is different, however, when one compares the 'second-set' samples with the counterpart off-core samples in the 'first set' ($2P_6 - 2P_{15}$). One observes a broad similarity here in the TL properties (especially the TL sensitivity and the normalized natural TL in the 340–500°C readout interval; cf. the last three columns of Table VII).

Thus, one is able to reassert the proposition contained in our first paper [1], namely that it is the intense radiation received by the in-core samples in the 'first set' (viz. $2P_1 - 2P_4$) that is responsible for their exceptional TL properties – the lack of both natural TL, and the ability to exhibit induced TL. 'Second-set' samples putatively similar to the in-core 'first-set' samples do not parallel this behaviour; this remark applies to both subsets A and B in the 'second set'. Converseley, both subsets A and B contain samples (762, 1943, 2266) that exhibit TL behaviour broadly similar to that of compositionally alike off-core samples in the 'first set' ($2P_{12}$, $2P_9$, $2P_{15}$, $2P_{14}$).

A final test of the radiation-damage hypothesis for the in-core samples has recently been carried out. This consisted in the following procedure. The matrix material of samples $2P_2$ and $2P_4$ was crushed to a very fine powder, mixed thoroughly, and annealed in a furnace at 1000°C for three days. It was then left to cool down to room temperature, sieved, and the 106–180 μm fraction collected for further investigation (this being the grain size for our preceding experiments). A γ-ray dose of 250 krad was given to 1–2 mg of this selected material. When this material was read out in a TL machine, it gave a glow curve (Fig. 4) broadly similar to that of the normal off-core samples of both 'first and second sets' (cf. Fig.1 of Ref.[1] and Fig.1 of this paper, respectively). This strongly suggests that recrystallization of the metamicted quartz in the core material results in its being able to exhibit the normal TL behaviour. A somewhat similar experiment has been reported by Dran et al. [7], who heated both

TABLE VII. COMPARISON OF THERMOLUMINESCENCE PROPERTIES OF SELECTED SAMPLES FROM THE 'FIRST AND SECOND SETS' OF OKLO SAMPLES

Sample No.	UO_2 (%)	SiO_2 (%)	Natural TL (180–500°C) (arbit. units)	Natural TL+ 6 Mrad (γ) (180–500°C) (arbit. units)	Natural TL (340–500°C) (arbit. units)	TL sensitivity (340–500°C) area/mg·krad (10^{-2}) (arbit. units)	Normalized natural TL (340–500°C) (arbit. units)	Remarks
1959	10.6 15.5	33	0	9.45	0	3.9	0	Note the contrast in the TL induction properties (TL sensitivities) between the 'second-set' samples and the in-core 'first-set' samples $2P_1 - 2P_4$. Samples 1959 and 800.1 resemble the core-edge sample $2P_5$ in this respect. Sample 2321 has considerable natural TL, unlike all the in-core samples.
$2P_4$	10.6	30	0	0	0	0	–	
800.1	51.1	19	0	6.26	0	1.7	0	
$2P_1$	41.8	13	0	0	0	0	–	
$2P_2$	52.8	13	0	0	0	0	–	
$2P_5$	50.8	14	0	20.25	0	3.6	0	
2321	7.3	43	17.2	53.4	10.6	7.4	143.3	
$2P_4$	10.6	30	0	0	0	0	–	
762	3.1	41	41.8	61.5	26.2	12.2	214.8	Note the broad similarity between the last three columns for the 'second set' and the off-core 'first-set' samples.
$2P_{12}$	1.3	40	35.5	109.5	25.0	13.2	189.4	
1943	0.04	44	38.1	106.3	23.2	20.0	116.0	
$2P_9$	0.2	53	36.5	83.5	27.5	17.7	155.4	
2266	0.6	46	8.5	30.4	4.5	2.4	187.5	
$2P_{15}$	0.11	30	10.5	73.0	7.5	5.4	138.9	
$2P_{14}$	0.05	32	9.8	10.5	7.5	5.1	147.1	

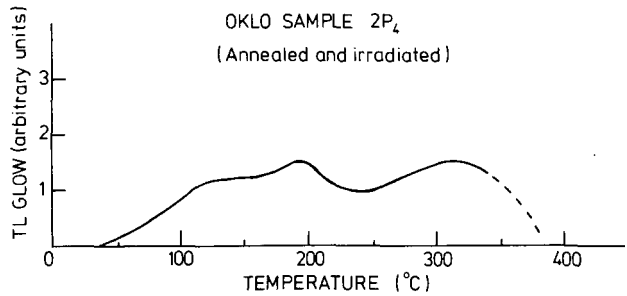


FIG.4. Induced TL exhibited by recrystallized material from the in-core sample $2P_4$. The material, finely crushed and heated at 1000°C for ~3 d, was allowed to cool; 1–2 mg of the 106–108 μm fraction was then given a 250-krad γ-ray dose. The glow curve is broadly similar to that of the normal off-core samples of both 'first and second sets' (cf. Fig.1, and also Fig.1 of Ref.[1]). This curve was obtained on our new TL machine, but using the same photomultiplier, optical filter, nitrogen-flushing, and heating rate ($3.6\,°C\,s^{-1}$) as the apparatus for Fig.1 (though there was no cooling of the PM tube). Consequently, the ordinate (TL intensity) scale units are not the same as those in Fig.1. The black-body radiation has been subtracted. A similar curve was obtained for sample $2P_2$, pre-treated in the same way. See text for discussion.

the in-core and off-core ('normal') clays at 500°C for 2 h under vacuum and were able to observe high densities of 'track-crystallites', which looked very similar to those induced by artificial Kr-ion tracks. We plan to conduct further investigations on the recrystallization properties of radiation-damaged quartz.

3.2. ESR studies

Our ESR work is still in the early stages. From the foregoing experiments it seems clear that the E'-centre (which gives rise to a sharp line at a g-value = 2.00) is related to the effect of radiation on the silicate (SiO_2) content of the samples. It disappears upon heating; and reappears when the sample is subjected to artificial irradiation. The ferromagnetic component of the resonance spectrum ($g \cong 2.0$) is probably due to iron particles or Fe_3O_4 present in the samples. The line at $g = 4.26$ is known [5] to be due to Fe^{3+} ions present in the solid material. The Fe^{3+} will have a spectral component at $g \cong 2.0$ only if it is surrounded by a regular octahedron or tetrahedron of oxygen ions. If this regular figure is distorted, as it is in most cases, then the resonance will occur over a wide range of fields. The complete explanation of a resonance would be given in principle by solving a Hamiltonian which included the paramagnetic ion and its couplings to its neighbours. This is beyond the scope of the present paper, and the reader is referred to [5] for further details. We have seen in Section 2.3 that there is a positive correlation between the ESR and TL signals from both the 'first and the

second sets' of Oklo samples. Although the correlation is quite weak ($r = +0.34$) in the case of the 'second set', that for the 'first set' (both in-core and off-core samples) is fairly high ($r = +0.747$; cf. Fig.3).

The ESR method is, thus, of potential use in studying radiation phenomena in natural geological materials. It remains, however, to be seen whether positive conclusions can be based on the results of this technique alone. In particular, the effects of impurities in the sample (which may either suppress or enhance the signal), natural and artificial heat-treatment, fading as a function of time and temperature, the length of 'memory' of the ESR signal etc., are all parameters that need careful further investigation. We hope to probe more deeply into these aspects of the ESR method.

4. CONCLUSION

We have described the further experiments that we have carried out since 1975 [1] on samples collected from outside reaction zone 2. These 'second-set' samples were supposed to be similar in composition to the 'first-set' (series 2P) samples, but had undergone either no reaction or a very low reaction rate. Our X-ray fluorescence analysis shows, however, that there is considerable inhomogeneity within the 'second set'. Nevertheless, by comparing samples from the two sets which showed compositional similarity, we conclude that our original hypothesis [1] is still tenable, namely that the intense radiation damage within the reaction zone appears to be responsible for the destruction of the TL properties of the in-core samples. The hypothesis is lent further support by our observation that recrystallization of in-core samples $2P_2$ and $2P_4$ enables them to exhibit normal TL properties.

ACKNOWLEDGEMENTS

We wish to thank Dr. J.K. Brown, Dr. G.F. Alfrey and Professor J.H. Fremlin for many helpful discussions. S. Arafa wishes to acknowledge the financial support of the RCG Program, American University in Cairo, and the technical support of the Solid State Division, University of Uppsala, Sweden. K.A.R. Khazal is grateful to the University of Basrah, Iraq, for support and leave of absence. The financial support of the SRC and the Royal Society, London, for the project is gratefully acknowledged.

REFERENCES

[1] DURRANI, S.A., KHAZAL, K.A.R., MALIK, S.R., FREMLIN, J.H., HENDRY, G.L., "Thermoluminescence and fission-track studies of the Oklo fossil reactor materials," The Oklo Phenomenon (Proc. Symp. Libreville, Gabon, 1975), IAEA, Vienna (1975) 207–22.

[2] DURRANI, S.A., KHAZAL, K.A.R., McKEEVER, S.W.S., RILEY, R.J., Studies of changes in the thermoluminescence sensitivity in quartz induced by proton and gamma irradiations, Radiat. Eff. **33** (1977) 237–44.
[3] ZELLER, E.J., "Use of electron spin resonance for measurement of natural radiation damage," Thermoluminescence of Geological Materials (McDOUGALL, D.J., Ed.), Academic Press, London (1968) 271–79.
[4] NAMBI, K.S.V., BAPAT, V.N., GANGULY, A.K., Thermoluminescence of $CaSO_4$ doped with rare earths, J. Phys. C. **7** (1974) 4403–15.
[5] CASTNER, T., Jr., NEWELL, G.S., HOLTON, W.C., SPLICHTER, C.P., Note on the paramagnetic resonance of iron in glass, J. Chem. Phys. **32** (1960) 668–73.
[6] WEST, N.G., HENDRY, G.L., BAILEY, N.T., "The analysis of slags from primary and secondary copper smelting processes by X-ray fluorescence", X-Ray Spectrom. **3** (1974) 78–87.
[7] DRAN, J.C., MAURETTE, M., PETIT, J.C., DROZD, R., HOHENBERG, C., DURAUD, J.P., LE GRESSUS, C., MASSIGNON, D., "A multidisciplinary analysis of the Oklo uranium ores," The Oklo Phenomenon (Proc. Symp. Libreville, Gabon, 1975), IAEA, Vienna (1975) 223–34.

DISCUSSION

R. NAUDET: Vos résultats ne peuvent-ils pas s'expliquer entièrement par les quartz? Dans les bordures immédiates des zones de réaction, ou même dans les portions de zones de réaction où les taux d'irradiation ont été très faibles, il reste, semble-t-il, quelques quartz microscopiques; par contre, là où les taux d'irradiation ont été très élevés, il n'en reste plus du tout. C'est peut-être ce qui explique les différences de comportement du point de vue de la thermoluminescence.

S.A. DURRANI: A notre avis le comportement thermoluminescent d'échantillons en provenance de l'intérieur et de l'extérieur du coeur ne s'explique pas seulement par la présence ou l'absence de quartz. Pour vérifier l'hypothèse des dégâts d'irradiation nous avons effectué une expérience que, faute de temps, je n'ai pas décrite dans ma présentation orale. Nous avons pris la matière matricielle de $2P_2$ et $2P_4$ – deux échantillons typiques de l'intérieur du coeur – l'avons broyée jusqu'à obtenir une poudre très fine, l'avons mélangée complètement et recuite dans un four à 1000°C pendant trois jours. Ensuite nous l'avons laissée refroidir, l'avons tamisée, et avons recueilli la fraction de 106–180 μm que nous avons irradiée à une dose de 250 krad (gamma). Introduite dans la machine à thermoluminescence, cette matière rayonnait d'une manière parfaitement satisfaisante; elle a donné une courbe normale de luminescence. Pour cette raison nous croyons que les matériaux provenant du cœur du réacteur ont conservé quelque souvenir de leur expérience de rayonnement intense. Comme dans le cas des cristallites à traces de fission décrites par Dran et al. au Colloque de Libreville (IAEA-SM-204/12) et ici (IAEA-TC-119/12), le recuit des matériaux du coeur semble guérir partiellement les dégâts d'irradiation et provoquer la

reconstitution des produits de métamictisation sous forme de cristallites présentant des propriétés normales de thermoluminescence. De cette façon, même si le quartz cristallin paraît être absent dans le cœur du réacteur de la zone 2, les constituants du quartz qui ont subi des dégâts d'irradiation semblent toujours être présents in situ et peuvent en quelque sorte être encouragés à reprendre leurs caractéristiques antérieures à l'irradiation.

CONTRIBUTION OF RADIATION DAMAGE STUDIES TO THE UNDERSTANDING OF THE OKLO PHENOMENON

J.C. DRAN*, J.P. DURAUD**, Y. LANGEVIN*, M. MAURETTE*, J.C. PETIT*

* Laboratoire René Bernas du Centre de spectrométrie nucléaire et de spectrométrie de masse, Orsay.

** Service de chimie physique, CEA, Centre d'études nucléaires de Saclay, Gif-sur-Yvette, France.

Résumé–Abstract

CONTRIBUTION DES ETUDES DE DEGATS D'IRRADIATION A LA COMPREHENSION DU PHENOMENE D'OKLO.

Les caractéristiques des dégâts d'irradiation ont été étudiées dans les minéraux extraits de différentes zones des réacteurs nucléaires fossiles d'Oklo. Les principaux résultats de cette étude sont les suivants: 1) Contrairement aux prédictions basées sur les fortes fluences neutroniques déduites des analyses isotopiques, aucune grande concentration de dégâts d'irradiation n'a été observée dans les minéraux argileux des zones de réaction. Les résultats d'expériences de simulation permettent alors de proposer une explication plausible à cette observation: les minéraux isolants sensibles à l'endommagement par les particules nucléaires et initialement présents dans le cœur des réacteurs ont subi une complète restructuration qui a été induite par l'attaque des traces de particules nucléaires enregistrées dans les grains, sous l'action des eaux conées de grande profondeur. 2) La distribution très hétérogène de l'uranium dans les grains de quartz prélevés hors des zones de réaction exclut l'utilisation de la méthode classique de datation par traces de fission. Une nouvelle méthode de datation a alors été développée qui utilise les étoiles de fission microscopiques provenant de minuscules inclusions riches en uranium contenues dans les grains de quartz. Dans les zones normales, éloignées des réacteurs, les âges obtenus sont groupés autour d'une valeur de $2,5 \pm 0,5 \times 10^9$ ans, qui est compatible avec l'âge de formation du massif du Chaillu. Par contre, les âges beaucoup plus grands mesurés en bordure des réacteurs reflètent un gradient de la fluence neutronique qui présente une variation inattendue avec la distance aux frontières des réacteurs. En particulier, cette variation qui ne suit pas une simple décroissance exponentielle contient certainement des informations intéressantes sur le fonctionnement des réacteurs d'Oklo. 3) Les grains d'uraninite extraits des zones de réaction sont très différents de ceux prélevés dans d'autres gisements d'uranium. Ils contiennent de très fortes densités de petites cristallites, observables au microscope électronique à haute tension et disparaissant à haute température (1800°C). Ces cristallites, qui constituent probablement des vestiges de dégâts d'irradiation produits au moment des réactions en chaîne, pourraient également contribuer à la compréhension du fonctionnement des réacteurs d'Oklo.

CONTRIBUTION OF RADIATION DAMAGE STUDIES TO THE UNDERSTANDING OF THE OKLO PHENOMENON.

Radiation damage features were investigated in minerals extracted from various zones of the Oklo fossil nuclear reactors. The main results of these investigations are: (1) In striking contrast to expectations based on the high neutron fluences inferred from isotope studies, no high concentration of radiation damage was observed in clay minerals extracted from the reaction zones. Results from laboratory simulation experiments then give a plausible explanation for this observation, in strongly suggesting that the track registering minerals initially present in the reactor cores suffered a drastic in-situ regeneration, which was triggered by the deep groundwater etching of the nuclear particle tracks registered in the grains; (2) the highly heterogeneous uranium distribution found in the quartz grains sampled outside the reaction zones prevents the application of the classical fission-track dating technique. A new method was thus developed with a view to using the microscopic fission-fragment "stars" originating from tiny uranium-rich inclusions imbedded in the quartz grains for determining a track "model" age for the grains. In the normal zones far from the reactor borders the ages of the quartz grains cluster at a value of about $2.5 \pm 0.5 \times 10^9$ a, which is quite compatible with the formation age of the Chaillu Massif. On the other hand, the much higher ages measured in the reactor borders do in fact reflect a gradient of the neutron fluence which shows a very surprising variation with the distance to the reactor edges. In particular this variation, which does not follow a simple exponential decrease, certainly contains interesting information about the functioning of the Oklo reactors; (3) uraninite grains extracted from the Oklo reactor zones are very different from those found in other uranium ore deposits. Indeed they contain a very high density of tiny crystallites, observable with a high-voltage electron microscope, and which disappear at a high temperature (1800°C). These crystallites, which likely represent radiation damage remnants acquired at the time of the chain reactions, should also help in understanding the functioning of the Oklo reactor.

INTRODUCTION

During the past few years important reactor operating conditions of the Oklo fossil nuclear reactor [1], including the fluences of thermal and fast neutrons, have been inferred in the framework of a static model of the reactor, which was quantitatively investigated by Naudet and his team. However, many important problems concerning the detailed functioning of the Oklo reactors were still unsolved, including the thermal regime and the poison concentration active during the chain reaction, the in-situ regeneration of minerals during or after the cessation of the chain reaction, the weak neutron fluences active in the reactor borders, etc.

In this paper we try to investigate how the study of radiation damage features stored in various minerals extracted from different locations in the Oklo deposit could help in finding new clues concerning both the real functioning of the Oklo reactors in the distant past, and the long-term stability of neutron irradiated material, which has important technological implications.

First, in striking contrast to expectations based on the high neutron fluences inferred from isotopic studies (cf. next section), we will show, by using HVEM observations, that no high concentration of radiation damage defects has so far

been found in mineral grains extracted from the reactor cores. We then use the results of laboratory simulation experiments to pin-point the most plausible explanation for such an observation, which apparently contradicts the very marked isotopic anomalies observed in the same zones. We conclude that the preferential deep groundwater corrosion of nuclear particle tracks registered in the neutron irradiated minerals was responsible for a severe in-situ regeneration of such minerals, which reprecipitated from the resulting radiation damage "mud" in thus losing their initial radiation damage record.

Next we use quartz grains only found in the reactor borders and in the "normal" (i.e. non-irradiated) ore bodies as a fission-fragment track detector. The extreme heterogeneity of the uranium distribution in the grains prevents the use of the classical fission-track dating technique. For dating purposes we describe a new method, intended to exploit the microscopic fission-fragment "stars" originating from tiny uranium-rich inclusions imbedded in the quartz grains. In the normal zones of the Oklo deposits these track ages cluster around an age value of $2.5 \pm 0.5 \times 10^9$ a, which shows that the grains did originate from the nearby Chaillu Massif. In sharp contrast, in the reactor borders, the track ages are definitely either higher or lower than this normal value. The higher ages do indeed reflect a fission-track excess due to the induced fission of ^{235}U, and they can thus be used to infer the weak neutron fluences active in the reactor borders. The resulting gradient of the neutron fluence shows an unexpected variation up to a distance of about 1.4 m from the reactor edges, which does not fit a simple exponential decrease, and which contains interesting information concerning the functioning of the Oklo reactors. On the other hand, the younger ages of $1.4 \pm 0.5 \times 10^9$ a could possibly be attributed to the formation of a second generation of quartz grains in the reactor borders.

Finally, we discovered that the uraninite grains extracted from the reactor zones, when examined by high-voltage electron microscopy (HVEM), are very different from those found in other uranium ore deposits. In particular, the grains contain very high densities of tiny crystallites, only observable with a high-voltage electron microscope (HVEM). These crystallites are probably radiation damage features acquired at the time of the chain reactions, and consequently they should give clues concerning the complex history of the Oklo reactors.

1. THE MAJOR MINERALS OF THE OKLO ORE BODIES AND THEIR EXPECTED RADIATION DAMAGE RECORD

Minerals found in the Oklo ore bodies have been extensively described by Geffroy in 1975 [2]. In particular, uranium minerals are distributed in two very different ways. First, outside the reaction zones uranium mineralization occurs in a sandstone constituted of quartz grains embedded in a matrix of clay minerals

(illite and chlorite) very rich in organic matter, and where the major constituent is illite. Uranium appears mostly as micro-veinlets of pitchblende, and the corresponding mean uranium concentration, U_8, is about 0.5%. Second, the reaction zones represent a drastic discontinuity in this normal type of mineralization as the sandstone has now been completely replaced by clay minerals with chlorite being now predominant. Uranium appears here as clusters of tiny ($\lesssim 100\ \mu m$) and well-crystallized uraninite grains, and U_8 shows an approximately 50-fold increase over the normal value of 0.5%. In these uranium-rich zones "hot" spots, with local U_8 values of up to 60%, are also frequently observed. In addition, the concentration of organic matter is much smaller than in the normal zones.

Quartz grains have been found to date only in the normal zones and in the reactor borders and both their crushing strength and size markedly decrease in the near vicinity of the reactor edges. So far they have been the most useful track detector discovered in the Oklo ores and this is mostly due to both their exceptional track retentivity against thermal annealing (1300°C) and low uranium concentrations. Before thermal annealing most of the radiation damage features expected in insulator grains (quartz, clay-minerals, mica) from the Oklo ores are latent nuclear particle tracks, which are produced by a variety of heavy ions, and which can be etched in an appropriate chemical reagent. These heavy ions are either emitted during the radioactive decay of heavy elements (spontaneous fission of ^{238}U; α-decay of ^{235}U, ^{232}Th, etc.) or induced by the neutron fluences resulting from the chain reactions in the reactor cores or their borders. Therefore, they include fission fragments with a distribution of masses (~ 100 u)[1] and energies (~ 100 MeV), α-recoils with masses ~ 200 u and energies of about ~ 100 keV, and much lighter recoils mostly induced during the elastic scattering of fast neutrons with the constituent major elements of the grains.

From the data inferred from isotope measurements we deduce that the constituent minerals of the Oklo reaction zones have been subjected to fluences of thermal and fast neutrons of about 10^{21} n·cm^{-2} and 10^{20} n·cm^{-2}, respectively. During fast-neutron irradiation, the lattice structure of most insulator grains is more readily damaged than those of semiconductor materials and metals. In particular, quartz shows an amorphous structure when exposed to fast-neutron fluences of about 10^{20} n·cm^{-2}, and this conclusion can be extrapolated to clay minerals which are known to be even more sensitive than quartz with respect to heavy ion radiation damage. Therefore, on the basis of their exposure to fast neutrons only the insulator grains extracted from the reaction zones should already show a highly disordered crystalline lattice when examined by X-ray and electron diffraction techniques (metamict state). We have demonstrated elsewhere [3] that the contribution of other nuclear particles to such a metamictization is indeed negligible. On the other hand, from extensive burnup experi-

[1] Unified atomic mass units – SI unit is u.

ments, which have shown that the lattice structure of cubic ceramic fuel material such as uraninite is stable up to an equivalent fission fragment (FF) bombardment dose $\sim 2 \times 10^{16}$FF·cm^{-2} (corresponding to thermal neutron fluences in excess of 10^{21}n·cm^{-2}), we do not expect that the Oklo uraninite could have been metamictized during the chain reactions.

Nuclear particle tracks are thermally annealed at temperatures that are generally much lower than the fusion temperature of their host grain material. In addition, tectonic indices as well as mineralogical studies suggest that the Oklo ore bodies were buried most of the time at great depths (3000 - 5000 m), where the temperature of the sediments is expected to be $\sim$ 150°C. Consequently, the "theoretical" radiation damage record of Oklo minerals just outlined has certainly been modified as a result of natural thermal annealing effects, so we now try to predict for the latent tracks possibly registered in the clay minerals and in the uraninite grains.

These predictions are based on the HVEM observations of partially annealed latent tracks in a variety of minerals. These observations clearly revealed that upon heating, latent tracks act as nucleation sites and are transformed into tiny "track-crystallites" (TC_S). These TC_S are very useful indicators of an irradiation history when the latent tracks cannot be observed, either because their densities are too high ($\gtrsim 10^{11}$ cm^{-2}) to be resolvable, or when their contrast has already been altered as a result of partial annealing in nature. In addition, as the size of the TC_S markedly increases with the annealing temperature, they are useful probes to investigate the thermal history of the host grains. Therefore, if core grains were first metamictized during the functioning of the Oklo reactors ($\rho_{nf} \gtrsim 10^{13}$cm^{-2}), and then subsequently annealed, they should show either before or after an artificial thermal annealing, TC_S densities much higher than those expected in normal grains.

2. FOSSIL RADIATION DAMAGE RECORD AND ITS VARIOUS IMPLICATIONS

2.1. Clay minerals and their in-situ regeneration in the reaction zones

HVEM observations previously reported very clearly indicated that clay minerals from the reaction zones look very similar to those from normal zones. In particular, they are not metamict and show tiny crystallites only after an artificial thermal annealing at a low temperature ($\sim$ 500°C). These crystallites look then very much like the artificial TC_S produced in the same type of minerals and their density, ρ_{xtal}, is much smaller than that expected from the thermal annealing of a metamict lattice. Finally, by comparing the ρ_{xtal} values observed in core-clays and normal clays extracted from samples with a known average

uranium weight concentration, U_8, we observed a very clear-cut correlation between the ρ_{xtal} and U_8 values, which further suggests that the crystallites are TC_S and that uranium has been remobilized in the sediments.

We already suggested [4] that the lack of a severe radiation damage disordering in clay minerals extracted from the reaction zones could be due to a drastic transformation of the clay minerals initially present in the reaction zones, and which occurred during or after the cessation of the chain reaction. This hypothesis is progressively gaining a wider acceptance because it is compatible with additional observations including (1) the non-preferential orientation of the core-clays; (2) the marked degradation of the quartz grains in the vicinity of the reactor edges; and (3) the lack of isotopic anomalies for the constituent "poisonous" elements of the clays (Li, B, Fe), which suggests that the expected anomalies have simply been washed out and diluted with normal elements.

If so, this transformation was probably triggered by the preferential corrosion of tracks in deep groundwater, which was further activated by the heat released during the chain reaction. Then, a new generation of minerals similar to the previous ones precipitated from the resulting radiation-damaged "mud", which was remarkably confined within the reaction zones.

The occurrence of this "in-situ" regeneration scenario is supported by the results of the following simulation experiment: Fission-fragments-irradiated micas were immersed for 3 d in a 1N solution of NaCl contained in a stainless-steel bomb heated at 300°C. (This solution should reasonably approximate the composition of deep groundwater in the Oklo sediments two eons ago [3], and the temperature of 300°C is a reasonable choice to reproduce the effects of the geothermal gradient at a depth of about 3000 - 5000 m.) In Fig. 1 we show that the fission tracks trigger the formation of large superficial etch pits in mica immersed for 72 h in the NaCl solution, and after 180 h the further growth of these etch pits triggered the complete dissolution of the mica. Consequently, as the track loaded core-clays most likely behave like mica, they should have been completely "digested" and transformed into a radiation-damaged "mud", when they were exposed for periods of $\gtrsim 50\,000$ a in the hot deep groundwater.

We infer that the regenerated clays should be quite similar to the primary ones as they have crystallized from solutions of very similar composition and under similar thermodynamic conditions. In addition, the slight differences observed between the core-clays and the clays from the normal zones are probably insignificant as they could possibly reflect differences between the primary clays.

2.2. The quartz grains and their fission-track "model" ages

The HVEM observations of micron-sized quartz fragments revealed no marked difference in grains extracted from the normal zones and the reactor edges. This conclusion is based on the HVEM measurement of an index of crystallinity which

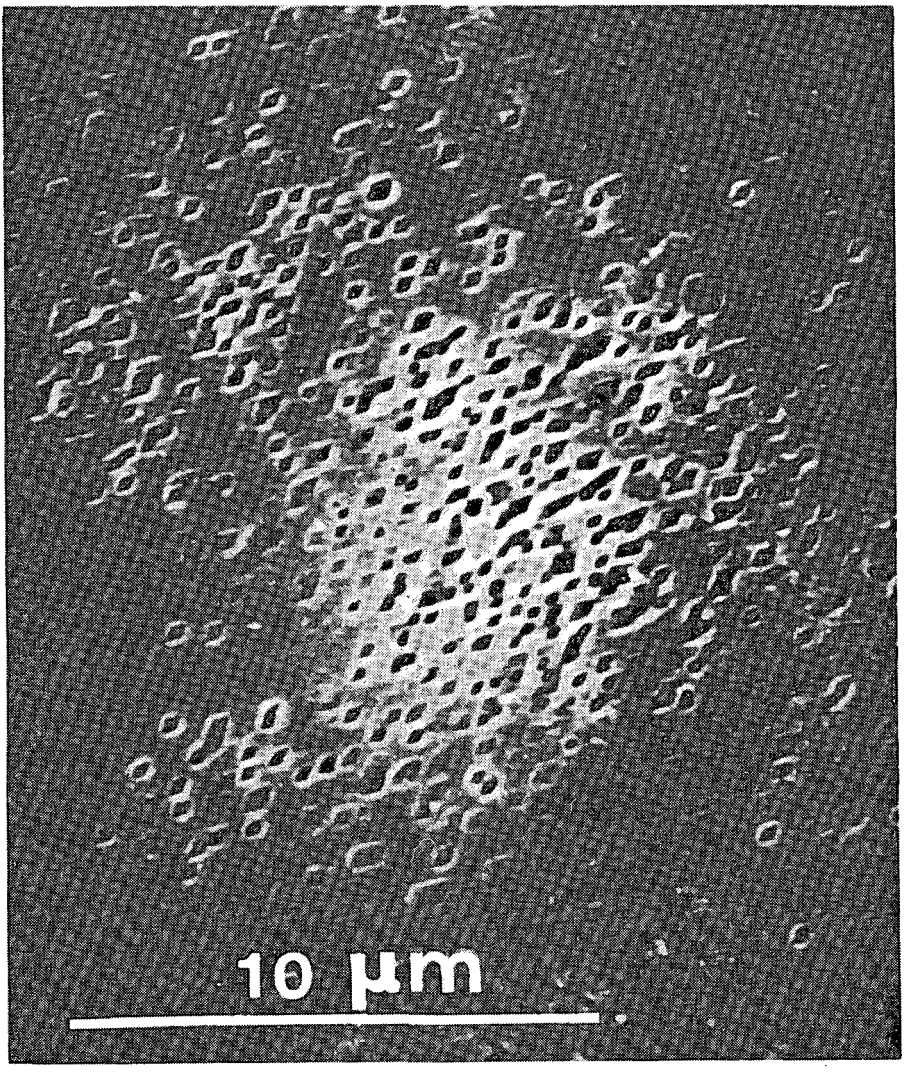


FIG.1. Scanning electron micrograph of a mica muscovite sheet which has been irradiated with fission fragments and then etched in a 1N NaCl solution contained in a stainless-steel bomb and heated at 300°C for 3 days. This treatment has clearly revealed fission tracks.

is obtained by counting the maximum number of diffraction spots appearing on the electron diffraction patterns of about 50 different grains extracted from a given sample. In addition, TC_S were not observed in the grains either before or after an artificial thermal annealing.

After a standard etching time of 10 min in a boiling 18N solution of NaOH, etched fossil fission tracks were revealed in all quartz grains so far investigated. In quartz extracted from the normal zones, the maximum length of the fossil tracks, $L_{max} \sim 3$ μm, was much smaller than that (~ 10 μm) measured in the same quartz for artificial fission tracks. This marked shortening of the fossil tracks, which is due to a natural thermal annealing in the Oklo ore bodies, is currently investigated by using a new "two-step" annealing theory described elsewhere [5]. In this model, which updates the classical one so far used in the literature, various characteristics of the fossil track length distribution (L_{max} value; geometrical shape of the tail of the length distribution near L_{max}, etc.) can be correlated through a set of complex formulae to both the temperature, T, and the duration, $\triangle t$, of the natural thermal annealing. A preliminary result indicates that the shortening of the fossil track in the normal quartz grain is compatible with T and $\triangle t$ values of about 200°C and 2×10^9 a, respectively. This work has to be extended now to quartz grains found in the reactor borders where the annealing temperature could have been much higher, as a result of the functioning of the Oklo reactors.

In the normal zones, showing no depletion in ^{235}U and where $U_8 \sim 0.5\%$, the thermal neutron fluence has probably reached a level of $\sim 10^{15}$ n·cm^{-2}, as indicated by rare-gas measurements. In this case the density of fossil track, ρ_f, will be mostly due to the spontaneous fission of ^{238}U ($\rho_f \sim \rho_{sf}$), and the so-called "fission-track" age, $\triangle$ (hom), of minerals like quartz and mica can be simply obtained by measuring the ρ_{sf} (hom) and the uranium concentration, U_8 (hom), in a zone of the mineral where the uranium distribution is very *homogeneous*.

Unfortunately, uranium track micromappings show that the uranium distribution is extremely heterogeneous in the Oklo quartz whatever their origin may be, and this prevents the application of the classical track-dating technique. Consequently, we have developed a new method which is just intended to exploit any heterogeneity in the uranium distribution, and which will yield a variety of track model age $\triangle$(i), depending on the type of parent uranium distribution from which the tracks originate. More specifically, if uranium is trapped within a tiny inclusion formed at the time of crystallization, then the tracks will form a typical fission star, and $\triangle$(incl) = $\triangle^*$ will give the formation age of the mineral. On the other hand, the fission tracks can originate from the uranium-rich matrix in which the uranium-poor grains become imbedded at the time of the uranium mineralization, and they will be registered in the external layers of the grains, thus forming a very clear superficial "zoning" of the track density. In this case $\triangle$(i) = $\triangle$(zoning) will give the apparent age of the uranium mineralization, which can be significantly different from $\triangle^*$.

We just describe below the method that we currently apply to the fission stars. In this technique, the grains are first heated to a temperature of 1200 to 1400°C, in order to shorten the fossil tracks, if necessary. Then they are exposed to a known fluence of thermal neutrons that induces long $^{235}U_{nf}$ fission tracks,

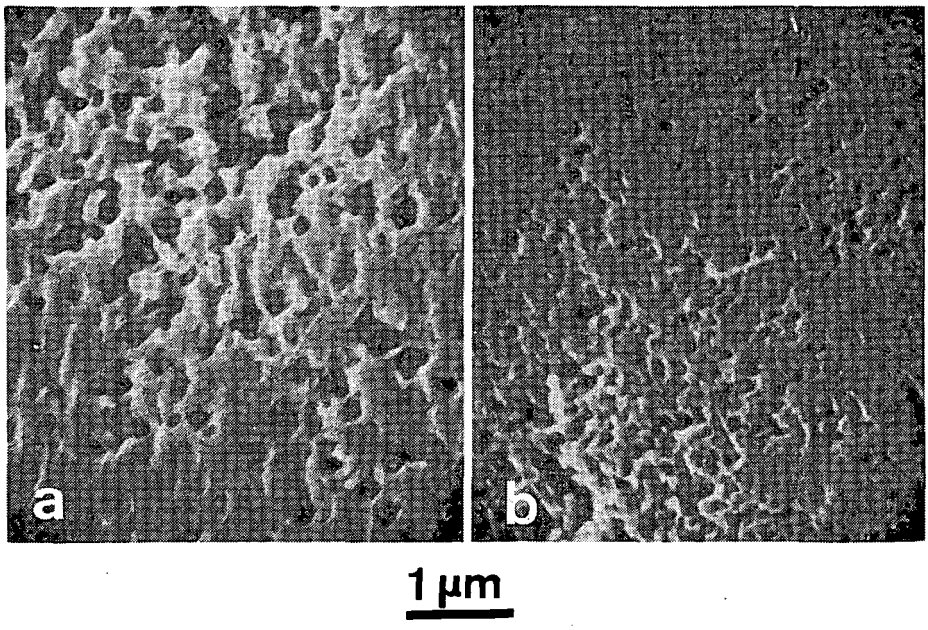


FIG.2. Scanning electron micrographs from sample KN 226-2541 of quartz grains which have been irradiated in a thermal neutron fluence of $10^{17} n \cdot cm^{-2}$ and subsequently etched in boiling 18N NaOH solution to reveal fission tracks. In grain (a) the density of short tracks is considerably reduced and the etching rate is much higher than in (b) where in quartz grains the short fossil tracks and long induced tracks can be clearly distinguished.

and subsequently etched on internal surfaces obtained by polishing. The track densities are finally measured with a scanning electron microscope at a magnification of about 20 000 (Fig. 2) for both the "short" tracks, ρ(short), which are mostly fossil fission tracks, and the "long" tracks, ρ(long), which weight the uranium concentration from which ρ(short) originates. Then Δ^* is directly deduced from the ρ(short)/ρ(long) ratio by using the following formula:

$$\rho(\text{short})/\rho(\text{long}) = \frac{(e^{\lambda_8 \Delta^*} - 1) \cdot \lambda_{f8}}{a\sigma_5 \phi \cdot \lambda_8} + \frac{e^{\lambda_5 T'} F}{\phi}$$

where λ_8 and λ_{f8} are the total and spontaneous decay constants of ^{238}U, respectively, λ_5 the decay constant of ^{235}U, F and ϕ the fluences of natural and artificial thermal neutrons and T′ the age of the chain-reaction (1.8×10^9 a).

In normal quartz, the Δ^* values clearly cluster ($\Delta^* = 2.5 \pm 0.5 \times 10^9$ a) around the Rb-Sr ages of igneous rocks from the basement. This agreement, which strongly suggests that the Oklo normal quartz originates from such rocks,

thus supports the validity of this new method that we have next applied to quartz grains extracted at various distances from a reactor edge (Zone 4), along a traverse profile (KN 226).

In such quartz grains we can expect that thermal neutrons produced during the chain reactions will be mostly responsible for an excess of fossil tracks in the fission stars, $\Gamma = \rho_{nf}/\rho_{sf}$, where ρ_{nf} and ρ_{sf} are the fission-track densities expected from the induced fission of ^{235}U and the spontaneous fission of ^{238}U, respectively, and these track excesses in turn should appear as $\triangle^*$ ages in excess of 2.5×10^9 a. The value of Γ linearly increases with the thermal neutron fluence, F, and ranges from about 1 to 10^5, when F increases from 10^{16} up to 10^{21} n·cm^{-2}. As a fission-track excess of $\sim 50\%$ can be easily measured by using the new technique described above, Γ should be a very useful parameter to determine the relatively weak thermal neutron fluences active in the borders of the reaction zones, and which cannot be inferred from isotopic measurements.

At first glance the quartz grains from the traverse profile yield a wide distribution of $\triangle^*$ values, ranging from $\sim 6 \times 10^9$ a down to 0.4×10^9 a, and which apparently are very difficult to interpret in terms of a gradient in the neutron fluence, superimposed on the base line value of about 10^{15} n·cm^{-2}, as deduced from rare-gas studies. Fortunately, the grains giving $\triangle^*$ ages smaller than 2.5×10^9 a clearly belong to a distinct family of quartz, characterized by track-etching rate much higher than those measured for the other grains, and such a grouping considerably eases the interpretation of Fig. 3.

In this high etching-rate group (HER-group), the ratio between the fossil tracks and the fresh tracks, artificially induced to weight the uranium concentrations, is always anomalously low, and this striking feature could be attributed to the following causes: (i) The thermal stability of the tracks in the HER-group is either lower or higher than in the low etching-rate group (LER-group). Consequently, after the artificial thermal annealing at 1200°C used in our fission star dating technique, the fossil tracks in the HER-group get either completely erased or insufficiently shortened in order to be easily differentiated from the artificially induced tracks; (ii) As a result of the enhanced etching rate of the observational planes in ther HER-group, the very short fossil tracks, which could be retained after the artificial annealing at 1200°C, cannot be etched out preferentially because of etching geometry considerations discussed at length elsewhere [6]; (iii) The HER-group does in fact represent grains which either formed or rejuvenated after the cessation of the chain reactions, as the corresponding $\triangle^*$ values cluster at about 1.4×10^9 a.

Now let us focus on the LER-grains, which all give values $\triangle^* \gtrsim 2.5 \times 10^9$ a, and consequently "apparent" thermal neutron fluences $\gtrsim 10^{15}$ n·cm^{-2}. The resulting gradient of the neutron fluence shows an unexpected "two-step" variation, which drastically departs from the exponential decrease expected from the neutron theory. More specifically, a plateau value of about 7×10^{15} n·cm^{-2} is first observed up to a distance of about 35 cm from the reactor edge. Then,

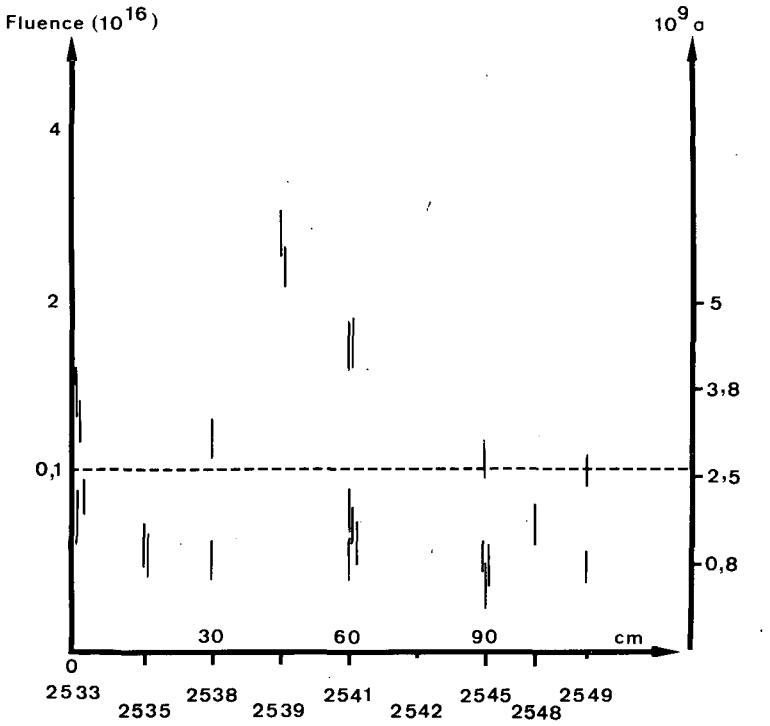


FIG.3. Apparent fission-track ages obtained with quartz grains extracted from core tube KN 226 that crosses reaction zone 4. For ages of $\geqslant 2.5 \times 10^9$ *a the excess fossil-track density reflects an exposure to a residual thermal neutron fluence (left co-ordinate).*

the neutron fluence jumps to a much higher value over a distance of ~ 14 cm and finally steadily decreases in following approximately an exponential decay law, down to the base line value of about 10^{15} n·cm^{-2}, which is reached at a distance, d_0 ~ 100 cm, from the reactor edge.

The residual neutron fluence observed at a distance $d \gtrsim 35$ cm could be attributed to various causes such as the tail of the exponentially decreasing neutron fluences originating from the reactor core at the time of the chain reaction, a secondary "neutron fire" switched on in a local hot spot located in the reactor borders, a local increase in the thermal neutron fluence that indicates either a peculiar reflexion of neutrons that thus get reinjected in the reactor border, or the thermalization of fast neutrons.

We strongly believe that this residual gradient does indeed represent the tail of the initial neutron fluence. Indeed, by injecting the d_0 value (= 100 cm) into a simple exponential decay law ($\exp - d/\lambda_0$) and by taking as initial and final

values of the neutron fluences the values determined from isotopic measurement in the reactor core ($\sim 3 \times 10^{20}$ n·cm^{-2}), and from rare-gas measurements in normal ore samples ($\sim 10^{15}$ n·cm^{-2}), respectively, we deduce an upper limit for the diffusion length, λ_0, of the neutrons in the reactor border of about 5 cm, which is in striking agreement with the value inferred from the neutron theory [7].

Then, two plausible scenarios could possibly account for the plateau values observed at a smaller distance from the reactor edge:

(1) The heat generated during the chain reaction triggered the formation of a very steep thermal gradient, which was active in the reactor border to anneal the neutron induced tracks up to a distance of about 50 cm from the reactor edges.

(2) As a result of the circulation of the hot groundwater percolating through the reactor boundaries the grains get rejuvenated by our mud scenario over the same critical distance of about 35 cm. This hypothesis is supported by the systematic observation of higher mean U concentration in the inclusions of the quartz grains extracted from the vicinity of the reactors with respect to those measured in normal quartz.

These two distinct effects have been triggered by a very peculiar thermal gradient steeply falling at a distance of about 50 cm from the reactor border. Heat-transfer computations then strongly suggest that such a thermal gradient can only correspond to a peculiar pulsed mode for the functioning of the Oklo reactor, with a pulse duration of a few years.

Much more work is needed before elucidating the complex but exciting informations appearing in Fig. 3. In particular, we have still to choose the right hypothesis for explaining the low $\triangle^*$ values associated with the HER-quartz. For this purpose we will soon modify the fission-star dating technique outlined here, by selecting first the quartz grains on the basis of their track-etching rates. Then, prior to the artificial neutron irradiation, the HER-group could be subjected to annealing temperatures either smaller or higher than 1200°C. If the resulting $\triangle^*$ values suddenly jump above 2.5×10^9 a, then the first hypothesis would be quite plausible. In addition, to understand the plateau value in the gradient of the neutron fluence, it would be interesting to measure the length distribution of fossil tracks in the LER-grain, as a function of the distance to the reactor edge. A clear shortening of the track in the plateau part of the gradient with respect to the length observed in the exponential decay part, would then strongly support the validity of the thermal gradient scenario quoted above.

2.3. Uraninite and the chain reactions

With the HVEM we have compared Oklo uraninites showing a different degree in the depletion of ^{235}U with uraninites and pitchblendes from other uranium deposits of different ages; uraninites from Shinkolobwe (630×10^6 a)

and Grabo (1800 X 10^6 a), pitchblendes from Henriette (250 X 10^6 a) and Kerolan (300 X 10^6 a). Our main results are: (1) All the samples are well crystallized and there is no apparent difference between uraninite and pitchblende grains; (2) The Oklo uraninite is the only one containing high densities of crystallites. These crystallites disappear upon thermal annealing at a temperature of ~ 1800°C, and their densities are roughly correlated to the ^{235}U depletion factor.

To identify the origin of these crystallites we have conducted the following simulation experiment: uraninite and pitchblende grains, pre-annealed at 1800°C, were irradiated in high fluxes of heavy ions, including 1 keV/n lead nuclei. For lead fluxes in excess of 10^{15} ion·cm^{-2} high densities of crystallites similar to the fossil ones were observed in both uraninite and pitchblende. This observation strongly suggests that the crystallites observed in the Oklo uraninite are radiation damage remnants produced by the chain reactions. Thus, uraninite was not formed after the cessation of the chain reaction, and this is in agreement with the marked correlation between uranium and fission products, which was observed in this mineral with the ion microprobe [8].

We are currently measuring the efficiency of registration of the cyrstallites induced by fission fragments in the Oklo uraninite. Then, if no saturation effect occurs in their formation, we could in the near future determine the neutron fluence received by this mineral.

ACKNOWLEDGEMENTS

We have greatly benefited from the support and interest of B. Jouffrey, R. Klapisch and R. Naudet. This work would have been impossible without the superb assistance of C. Jouret (Laboratoire d'Optique Electronique, Toulouse) and A. Marraud (ONERA) during the HVEM runs. We are also grateful to P. Jeanrot (BRGM) and P. Maurice (CEA) for their assistance during the scanning electron microscope observations.

REFERENCES

[1] MAURETTE, M., Fossil nuclear reactors, Annu. Rev. Nucl. Sci. **26** (1976) 319.

[2] GEFFROY, J., "Etude microscopique des minerais uranifères d'Oklo", The Oklo Phenomenon, (Proc. Symp. Libreville, Gabon, 1975), IAEA, Vienna (1975) 133.

[3] PETIT, J.C., Contribution de l'étude des dégâts d'irradiation à la compréhension du phénomène d'Oklo, Thèse de 3e cycle, Paris (1977).

[4] DRAN, J.C., MAURETTE, M., PETIT, J.C., DROZD, R., HOHENBERG, C., DURAUD, J.P., LE GRESSUS, C., MASSIGNON, D., "A multidisciplinary analysis of the Oklo uranium ores", The Oklo Phenomenon (Proc. Symp. Libreville, Gabon, 1975), IAEA, Vienna (1975) 223.

[5] DARTYGE, E., DURAUD, J.P., LANGEVIN, Y., Thermal annealing of iron tracks in muscovite, labradorite and olivine, Radiat. Eff. **34** (1977) 77.
[6] DARTYGE, E., DURAUD, J.P., LANGEVIN, Y., MAURETTE, M., in preparation.
[7] NAUDET, R., Personal communication.
[8] HAVETTE, A., NAUDET, R., SLODZIAN, G., "Etude par analyse ionique de la répartition et des proportions isotopiques de certains éléments dans des échantillons d'Oklo", The Oklo Phenomenon (Proc. Symp. Libreville, Gabon, 1975), IAEA, Vienna (1975) 463.

DISCUSSION

Rosemary J. VIDALE: La densité élevée de traces de fission dans les échantillons plus anciens rend-elle le comptage difficile?

M. MAURETTE: Dans un grain de quartz il y a plusieurs étoiles de fission, qui ont pour origine des inclusions riches en uranium, et ces inclusions ont des concentrations en uranium variables. Par conséquent, après l'irradiation neutronique, il y aura des étoiles qui contiendront trop de traces induites, mais certaines étoiles donneront la bonne densité de traces. C'est donc un avantage de la méthode que de pouvoir choisir une «bonne» étoile, où les traces ne se superposent pas.

Rosemary J. VIDALE: A votre avis, quel est le mécanisme par lequel la pechblende se transforme en uraninite idiomorphe dans un réacteur (expérimentalement ou à Oklo)?

J.C. PETIT: Nos études de simulation d'irradiation avec des ions lourds sur l'uraninite d'Oklo suggèrent que ce minéral a été irradié lors des réactions en chaîne. Cette conclusion est également fortement appuyée par l'observation d'une corrélation assez nette entre la densité de cristallites fossiles observée dans une uraninite d'Oklo et son appauvrissement en ^{235}U. Nous en déduisons donc que l'uraninite s'est formée soit avant, soit pendant le fonctionnement des réacteurs. Ces études ne permettent aucune conclusion concernant une éventuelle transformation de phase de la pechblende à l'uraninite. Ces deux minéraux ne sont par ailleurs pas différenciables au moyen du microscope électronique à haute tension.

CHIMIE ISOTOPIQUE
(Séance III et Séance IV, première partie)

ISOTOPIC CHEMISTRY
(Session III and Session IV, first part)

Présidents: A.T. JAKUBICK
(Chairmen) V.A. PCHELKIN

A NON-DESTRUCTIVE FIELD MEASUREMENT OF THE $^{235}U/^{238}U$ RATIO IN DEPLETED TO MODERATELY ENRICHED URANIUM

J.P. BALAGNA, G.A. COWAN
University of California,
Los Alamos Scientific Laboratory,
Los Alamos, New Mexico,
United States of America

Résumé–Abstract

LA MESURE NON DESTRUCTIVE IN SITU DU RAPPORT $^{235}U/^{238}U$ DANS L'URANIUM APPAUVRI OU MODEREMENT ENRICHI.

En mesurant de bonne heure les rapports entre ^{235}U et ^{238}U au voisinage de la fouille, on peut accélérer l'exploration du site d'un réacteur naturel. On a *construit un instrument* permettant de mesurer le rapport isotopique à partir des taux de fission relatifs de ^{235}U et de ^{238}U dans les spectres de neutrons rapides et ralentis. Cet appareil peut être mis en service sur le terrain et permet un examen continu du minerai à mesure que l'on extrait l'uranium d'un gisement riche. Lorsque l'opérateur est rapidement renseigné sur les isotopes, on peut détecter un réacteur fossile avant qu'il soit détruit. Le rapport entre les taux de fission induits par les neutrons rapides et les neutrons lents dans l'uranium appauvri à modérément enrichi en ^{235}U peut servir à effectuer une mesure rapide, non destructive, du *rapport isotopique* $^{235}U/^{238}U$ avec une erreur relative de quelques pour cent. Une source de neutrons de ^{252}Cf permet d'effectuer les mesures sur le terrain.

A NON-DESTRUCTIVE FIELD MEASUREMENT OF THE $^{235}U/^{238}U$ RATIO IN DEPLETED TO MODERATELY ENRICHED URANIUM.

The exploration of a natural reactor site is expedited by prompt measurement of ^{235}U to ^{238}U ratios near the mining operation. An *instrument has been constructed* which uses the relative fission rates of ^{235}U and ^{238}U in fast and moderated neutron spectra to measure the isotopic ratio. This device can be placed in the field and allows continuous monitoring of ore as a rich deposit of uranium is mined. With rapid return of isotopic information to the operator it is possible to locate a fossil reactor before it has been destroyed. The relative fast-neutron and slow-neutron fission rates induced in uranium, which is depleted to moderately enriched in ^{235}U, may be used to measure the isotopic ratio $^{235}U/^{238}U$ quickly and non-destructively with a relative error of a few per cent. When a neutron source such as ^{252}Cf is used, the measurements may be made in the field.

The discovery of the OKLO natural fission reactor has stimulated interest in a search for other natural reactors. If evidence for a reactor were to be found in the course of the actual mining of a rich deposit, definitions of the regions of greatest interest and optimization of a sample-collection strategy would be expedited by a fast field technique for measuring the isotopic

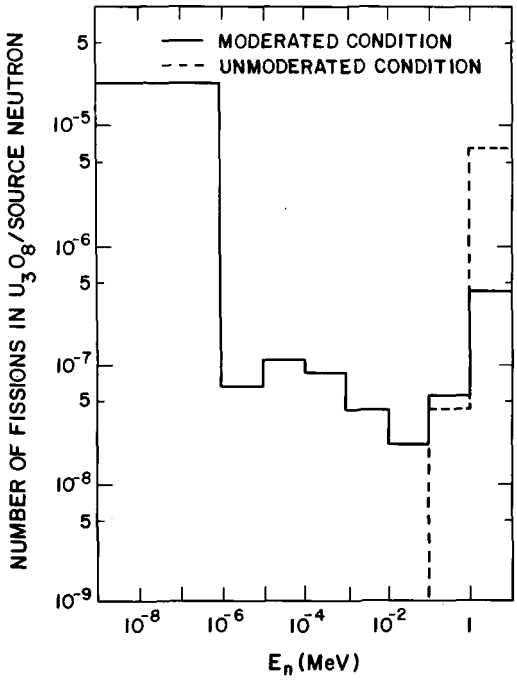


FIG. 1. Fissions per source neutron.

ratio $^{235}U/^{238}U$ in ore samples. An instrument for providing such data at OKLO was developed and used in the field by French scientists.[1] It is based on measurement of the 186-keV gamma ray in the ^{235}U decay spectrum and a transmission measurement to obtain the absolute concentration of uranium.

An instrumental technique for quickly identifying depleted samples ($^{235}U/^{238}U<0.6\%$) without requiring dissolution and purification of uranium has been developed at Los Alamos. It is based on the ratio of fissions induced in an ore sample by unmoderated and moderated neutrons from a ^{252}Cf source. With the existing neutron sources (three sources of 300 μg each) and a high counting efficiency for fission fragments (∿100%) the analysis requires about forty minutes using an ore of greater than 20% U_3O_8 content. The standard deviation of the isotopic ratio measured on 23 samples of natural ore from Canada and Australia is 4% relative. Although the precision of the technique is not high it is sufficient to identify the main reactor zone regions in an OKLO-type deposit without the need for a supporting chemistry laboratory. In addition, the features of the instrument which recommend it for field use are:

1. It can be carried on a light truck
2. The neutron source is reliable and reproducible
3. Supporting materials can be obtained at the site

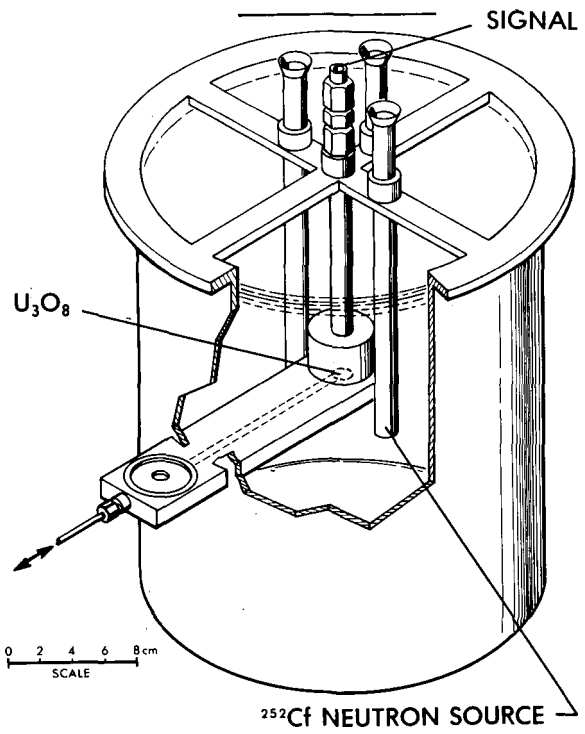


FIG. 2. Counter schematic.

4. Sample preparation is minimal
5. The results are available on a sufficiently rapid time scale so that a minimum of interference with an ongoing mining operation should be necessary.
6. The procedure can be carried out with field personnel.

Estimates were made to determine if a measurement based on fission counting of the ore using moderated and unmoderated neutrons would give reasonable isotopic sensitivity. Monte Carlo calculations [Figure 1] of normal U_3O_8 response to moderated and unmoderated neutrons indicated that in the proposed cylindrical geometry [Figure 2], with the uranium at the center of the cylinder 98% of the fissions in the unmoderated spectrum would be in the ^{238}U and that 97% of the fissions would be in ^{235}U in the moderated spectrum. Thus the ratio of fission counts from the two neutron spectra are essentially proportional to the ^{235}U abundance.

A schematic diagram of the instrument as built is illustrated in Figure 3. In use the neutron sources are removed from the shipping cask remotely and placed in the source tube in the water shield. After an ore sample is loaded into the counter, the ^{252}Cf sources are lowered around the sample.

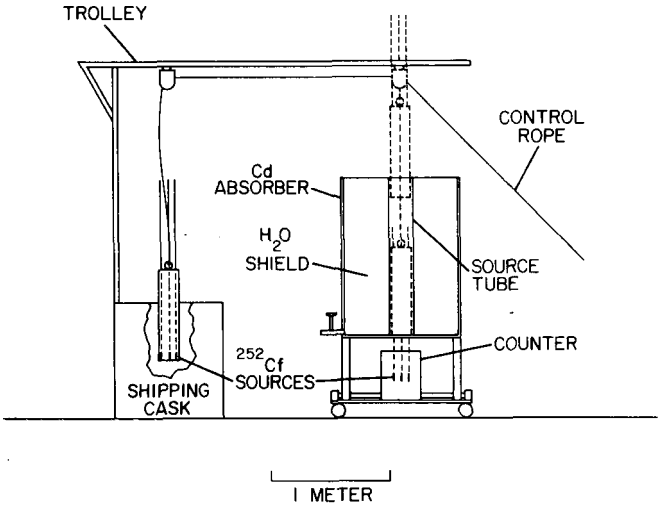


FIG. 3. Cross-section of isotope meter.

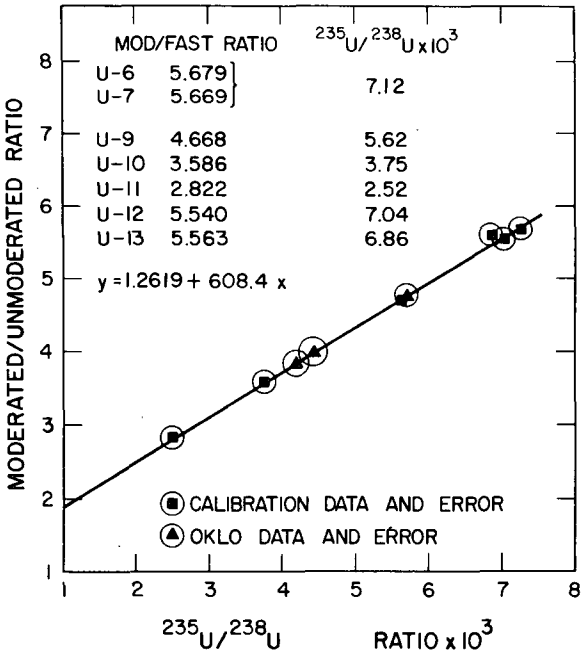


FIG. 4. Instrument calibration.

TABLE I. OKLO ISOTOPE RATIOS ($^{235}U/^{238}U$)

Source	Present Measurement		Mass Spectrometry
OKLO			
401/3	4.18×10^{-3}	$\pm.13 \times 10^{-3}$	4.05×10^{-3}
404/4	5.67×10^{-3}	$\pm.14 \times 10^{-3}$	5.55×10^{-3}
433/3	4.42×10^{-3}	$\pm.19 \times 10^{-3}$	4.52×10^{-3}

TABLE II. AUSTRALIAN AND CANADIAN SAMPLE RATIOS ($^{235}U/^{238}U$)

Source		
NABARLEK	KEY LAKE	MAURICE BAY
7.02×10^{-3}	7.18×10^{-3}	7.08×10^{-3}
6.90×10^{-3}	6.95×10^{-3}	7.01×10^{-3}
7.36×10^{-3}	7.32×10^{-3}	
7.17×10^{-3}	7.25×10^{-3}	
7.28×10^{-3}	6.62×10^{-3}	
7.79×10^{-3}	6.68×10^{-3}	
6.93×10^{-3}	7.05×10^{-3}	
7.20×10^{-3}		
7.38×10^{-3}		
7.61×10^{-3}		
7.63×10^{-3}		
6.85×10^{-3}		
7.15×10^{-3}		
7.76×10^{-3}		

Mean of all Samples 7.18×10^{-3}
$\sigma \pm 0.31 \times 10^{-3}$

Measurements are made with the counter dry and then filled with water. A complete measurement can be made in 40 minutes on an ore of U_3O_8 content of 20% or better to a precision of 0.3% in the statistics of an individual count.

Calibration was accomplished with standards made by mixing NBS (National Bureau of Standards) U_3O_8 of natural isotopic composition and U_3O_8 depleted in ^{235}U (5700 ^{238}U: 1 ^{235}U).

A least squares fit to the data of Figure 4 which was obtained using the above standards gives an equation for the line of $y = 1.2619 + 616.4\ x$, where y is the ratio of moderated count divided by unmoderated count. The value for x is the weight ratio of $^{235}U/^{238}U$. The precision of the data gives a standard deviation of ±4% for each point. The calibration curve over the range investigated is adequately described by a linear fit.

Three samples from the OKLO reactor were then examined. Results are shown in Figure 4 and in Table I with a comparison to the isotopic composition as determined by mass spectrometry. Further measurements using this instrument have been done on ore samples obtained from the Nabarlek deposit in northern Australia and the deposits at Key Lake and Maurice Bay in Saskatewan, Canada. Twenty-three samples have been measured from these deposits. The results are shown in Table II. No ratios have been found outside the ±2σ range.

REFERENCE

[1] BOYER, R.L., GUERY, M.P., RENSON, C., "Appareil de mesure de teneur isotopique de l'uranium, utilisé sur le site d'Oklo", The Oklo Phenomenon (Proc. Symp. Libreville, Gabon, 1975), IAEA, Vienna (1975) 253–63.

DISCUSSION

R. NAUDET: Votre appareil peut-il être utilisé, sans trop de problèmes, dans un climat tropical, c'est-à-dire chaud et humide?

G.A. COWAN: L'appareil a été conçu pour fonctionner sans climatisation et sans dispositions spéciales pour les températures élevées. Cependant, nous ne savons pas s'il fonctionnera d'une manière satisfaisante dans les conditions extrêmes de température et humidité.

A.T. JAKUBICK (Président): Pouvez-vous nous donner des détails concernant la mise à la disposition des utilisateurs de l'appareil que vous avez mis au point?

G.A. COWAN: L'instrument est en service à Los Alamos. Nous serions heureux de mettre les plans à la disposition de ceux qui voudraient construire un appareil de ce type. Si un nouveau réacteur devait être découvert, nous transporterions volontiers l'appareil sur le site pour faire des essais sur place. Dans ce cas, nous pourrions probablement fournir en outre les services d'un opérateur.

ETUDE LOCALE PAR ANALYSE IONIQUE DE NOUVEAUX ECHANTILLONS D'OKLO

Andrée HAVETTE
Université Paris-Sud, Orsay

R. NAUDET
CEA, Centre d'études nucléaires de Saclay,
Gif-sur-Yvette,
France

Résumé—Abstract

ETUDE LOCALE PAR ANALYSE IONIQUE DE NOUVEAUX ECHANTILLONS D'OKLO.

L'étude par analyse ionique de minerais d'Oklo, dont une première partie a été présentée lors du colloque de Libreville (Gabon) en 1975 (mémoire IAEA-SM-204/13), a été poursuivie. L'analyse ionique permet non seulement d'examiner la répartition des éléments entre les grains d'uranium et la gangue, mais également de faire des études quantitatives (rapport d'abondance des éléments, et rapports isotopiques), en choisissant les plages de mesure, et en ayant la possibilité d'apprécier leur homogénéité. On a mis davantage d'accent sur ces études quantitatives, et on a choisi un certain nombre d'objectifs spécifiques. On s'est plus particulièrement intéressé aux thèmes suivants: homogénéité de l'appauvrissement isotopique de l'uranium (dans le cœur, dans les bordures, dans les zones contaminées ou suspectes); homogénéité du rapport $^{149}Sm/^{147}Sm$ (qui permet d'apprécier les contaminations de terres rares), répartition du plomb et mesure du rapport $^{207}Pb/^{206}Pb$ (en distinguant grains d'uranium, argiles et galènes), répartition du thorium, et mesure du rapport cérium/praséodyme (mise en évidence d'une anomalie cérium négative au voisinage des zones de réaction). Pour toutes ces études, l'analyseur ionique apparaît comme un outil très précieux, qui apporte aux études des éléments d'appréciation supplémentaires.

LOCAL ION ANALYSIS STUDY OF NEW SAMPLES FROM OKLO.

The ion analysis study of Oklo ores, a first description of which was presented at the Libreville (Gabon) symposium in 1975 (paper IAEA-SM-204/13) has been continued. Ion analysis can be used not only to investigate the distribution of the elements in uranium grains and gangue, but also to make quantitative studies (abundance ratio of elements, isotopic ratios) in which the measurement ranges can be chosen and their homogeneity assessed. More emphasis was placed on these quantitative studies, and a certain number of specific objectives were selected. Particular interest was shown in the following topics: homogeneity of isotopic depletion of uranium (in core, edges, contaminated or suspect zones), homogeneity of $^{149}Sm/^{147}Sm$ ratio (which is indicative of the rare-earth contamination), distribution of lead, measurement of $^{207}Pb/^{206}Pb$ ratio (distinguishing between uranium grains, clays and galena), thorium distribution and measurement of the cerium/praseodymium ratio (discovery of a negative cerium anomaly near the reaction zones). In all these studies the ion analyser appears to be a very valuable tool, adding to the information gleaned from the studies.

L'étude par analyse ionique des minerais d'Oklo, dont une première partie a été présentée lors du colloque de Libreville [1], a été poursuivie.

Rappelons que l'analyseur ionique est un spectromètre de masse qui permet de faire des analyses in situ sur des échantillons préparés sous forme de lames polies. Il est possible d'effectuer des spectres de masse comprenant les éléments depuis l'hydrogène jusqu'à l'uranium, de mesurer l'intensité des courants émis par les ions choisis, et de faire des images ioniques directes de la répartition d'un élément sur une plage de 250 µm. L'appareil est équipé depuis peu d'un secteur électrostatique à haute résolution (5000) et il est possible, dans de nombreux cas, de séparer les ions élémentaires des ions polyatomiques de masse voisine. Le rapport $^{251}UO/^{254}UO$ a pu être ainsi mesuré avec une précision d'environ 2 % relatif dans les phases très argileuses responsables de la formation de nombreux ions polyatomiques.

Dans la première phase des études, on avait fait surtout des études qualitatives, en examinant la répartition des éléments entre les grains d'uranium et la gangue dans différentes catégories de minerais. Dans la suite du programme on s'est intéressé à des objectifs plus spécifiques.

1 - Homogénéité de l'appauvrissement isotopique de l'uranium

Cette question, qui a pu être abordée avec une meilleure précision grâce au perfectionnement de l'appareillage, est très importante. Elle comporte plusieurs aspects :

- Dans le coeur, l'homogénéité de la teneur isotopique est un argument important en faveur de l'absence de remobilisation de l'uranium. Cette homogénéité avait déjà été bien établie (cf. en particulier dans [1] les résultats relatifs à l'échantillon 400/7). On a voulu la confirmer notamment dans des régions situées davantage en bordure, d'autre part vérifier qu'il en était de même dans certaines portions des zones de réaction 4 à 6.

- En bordure des zones de réaction, on peut trouver des échantillons contaminés : il est intéressant de voir alors dans quelle mesure il y a hétérogénéité, et essayer de classer les plages donnant lieu à des teneurs isotopiques différentes.

a) On a repris plusieurs échantillons provenant du SC 36. C'est ainsi que dans l'échantillon 1413/3 on a trouvé cinq grains différents avec la même valeur 0.45 % ; de même dans 1423/5 qui est pourtant déjà dans la bordure, et pour lequel on se demandait s'il n'y avait pas contamination, on a mesuré deux grains à 0.61 %. Néanmoins on a trouvé une dispersion plus grande dans l'échantillon 1418/3 (0.58 à 0.63 %), et d'autre part dans l'échantillon 1421/9 on a trouvé des grains à 0.72 % ; cette dernière mesure étant cependant suspecte, on a l'intention de poursuivre l'étude de la bordure.

b) On a examiné quatre échantillons provenant de l'aval des zones 4 et 5 : GL 1802 (affleurement GL 5), GL 1962 et 1995 (affleurement GL 6) et GL 2066 (affleurement GL 7). L'appauvrissement isotopique paraissait un peu surprenant, car ces échantillons proviennent de passes très minces. En fait on a pu vérifier que les mesures effectuées dans trois ou quatre

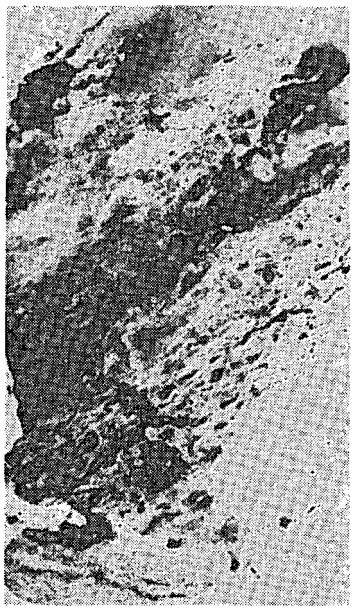


FIG.1. SC 44: environnement de l'échantillon n° 1933.

grains de chaque échantillon donnaient des résultats homogènes. On a trouvé respectivement : 0.56 % - 0.63 % - 0.65 % et 0.69 % (il faut noter que les résultats sont un peu différents de ceux trouvés par analyse isotopique dans des échantillons voisins).

c) On a par contre trouvé des valeurs dispersées dans plusieurs échantillons situés en bordure des zones de réaction : dans le n° 1326 du SC 20, les valeurs vont de 0.68 à 0.72 % ; dans le n° 1933 du SC 44 on a trouvé deux groupes de valeurs, l'un allant de 0.52 à 0.57 %, l'autre voisin de 0.72 %.

On a voulu étudier de manière détaillée la portion de carotte située au voisinage de cet échantillon 1933 qui est situé à 30 ou 40 cm du coeur. Après avoir fait faire une autoradiographie de la carotte (figure 1), on a découpé 12 échantillons jointifs. L'idée était de faire une carte de l'uranium migré, pour comprendre comment il s'était mis en place, et rechercher ensuite les éléments associés. 40 mesures de rapports isotopiques ont été faites. Malheureusement on n'a trouvé que de l'uranium à teneur proche de la normale. (On s'est demandé si les grains contaminés ne provenaient pas de fragments déplacés : cf. [2]).

d) Dans l'échantillon n° 2671 du KN 242, qui est en bordure de la zone 5 et comporte du faciès-pile (teneur isotopique mesurée à Pierrelatte : 0.690 %), on a trouvé 2 grains avec 0.72 % et un grain à 0.60 %. Ce sondage serait donc contaminé. D'autre part dans l'échantillon n° 2322 du KN 259, qui est analogue en bordure de la zone 3-4, on a trouvé deux grains à 0.72 % (Pierrelatte : 0.69 à 0.70).

e) On a étudié quatre échantillons situés dans la bordure supérieure du SC 30 bis. Dans cette bordure on trouve sur 1.50 m du minerai relativement riche (5 à 25 %) et toutes les analyses isotopiques effectuées à Pierrelatte ont donné des teneurs voisines de 0.68 ou 0.69 %. Il était intéressant de savoir s'il s'agissait d'une contamination homogène, ou si au contraire il y avait mélange entre uranium naturel et uranium plus nettement appauvri.

Dans les échantillons 2064 et 2060, les plus près du coeur, les mesures effectuées dans 3 ou 4 grains de chaque échantillon ont donné respectivement 0.69 et 0.71 %. Dans les deux échantillons suivants 2495 et 2489 on trouve des mesures plus dispersées, entre 0.69 et 0.72 %. Ce qui est remarquable est qu'on n'a trouvé nulle part de l'uranium plus nettement appauvri, il semble donc que la contamination soit très homogène, et donc massive.

2. Contamination des terres rares

Le rapport le plus représentatif de la présence de terres rares venues du coeur est $^{149}Sm/^{147}Sm$; l'isotope 147 étant plus abondant dans la fission, et le 149 étant détruit par irradiation, les deux effets font baisser le rapport depuis une valeur voisine de 1 pour le samarium naturel jusqu'à des valeurs très petites ou nulles pour du minerai du coeur.

Si on considère un échantillon situé en bordure des zones de réaction avec de l'uranium faiblement appauvri, on peut se demander s'il y a eu des réactions locales ou s'il est contaminé. L'homogénéité des valeurs du rapport $^{149}Sm/^{147}Sm$ apporte un élément d'appréciation intéressant. Lorsque les valeurs varient d'une plage à l'autre dans un même échantillon (l'échantillon a 1 cm de diamètre et les plages 20 à 60 µm) celui-ci contient un mélange de terres rares migrées ; lorsque au contraire les valeurs sont très groupées, l'hypothèse d'une irradiation locale a davantage de plausibilité.

C'est ainsi qu'on a trouvé des valeurs très dispersées dans les échantillons 1326 du SC 20, 1912/1 du SC 44 et 2283 du SC 48 bis. Ces échantillons sont contaminés. Dans le cas du SC 48 bis, l'uranium est naturel (0.7199 %), mais les analyses isotopiques ont effectivement confirmé la présence de terres rares migrantes [2].

En revanche on a trouvé des valeurs relativement groupées (la plupart autour de 0.1) dans les échantillons 1977 du SC 56, 2092 (minipile), 2322 (KN 259) et 2671 (KN 242). Tous ces échantillons ont des teneurs en uranium 235 voisines de 0.70 %. En ce qui concerne les deux premiers, les analyses isotopiques effectuées à Bruyères-le-Chatel [2] ont confirmé la valeur du rapport 149/147 et ont montré qu'il semblait y avoir effectivement une fluence locale. Enfin dans l'échantillon 1763 du SC 53, les valeurs sont proches de celle du samarium naturel.

Pour ce genre de problème, l'analyse ionique est donc un moyen d'investigation commode et particulièrement intéressant ; on ne peut pas toujours trancher avec certitude, mais l'analyse chimique ne permet pas non plus toujours de trancher, la combinaison des deux méthodes permet une interprétation plus sûre. Par exemple dans le cas de la "minipile", la convergence des deux approches rend extrêmement probable l'existence de réactions locales.

3. Problèmes du plomb

a) Le rapport Pb/U a été mesuré dans les grains d'uraninite et l'on observe qu'il est très variable d'un échantillon à l'autre aussi bien en ce qui concerne les minerais ayant participé aux réactions (de 0.4 à 3.3) que pour les autres (0.02 à 13). Dans un même échantillon, il peut être également variable : par exemple de 1.2 à 5.1 dans différents grains de KN 242 (noter que les chiffres cités n'ont qu'une valeur relative, ils ne représentent pas des rapports d'abondance réels). La même observation a déjà été faite sur les images [1]. Dans le 1933/4, on peut distinguer sur les images trois rapports bien différents (figure 2).

La dispersion des valeurs peut avoir pour cause une mise en place de l'uranium à des époques différentes, mais plus vraisemblablement des départs de plomb effectués de manière aléatoire en un ou plusieurs temps.

Dans le cas d'un échantillon contenant une belle plage de coffinite (N° 764), le rapport Pb/U a été trouvé extrêment petit (0.004), ce qui tend à confirmer que la coffinite est de formation récente.

b) Les rapports isotopiques $\alpha = {}^{207}Pb/{}^{206}Pb$ ont été mesurés séparément dans les grains d'uraninite, dans les argiles et dans les galènes. Il semble que l'existence d'ions PbH n'introduise pas d'erreur supérieure à 2 %. Les valeurs de α sont toujours très dispersées. Il est important de noter que dans les argiles et les galènes, α est presque toujours plus élevé que dans l'uraninite voisine. Dans les échantillons où l'uranium est normal, on peut trouver des valeurs de α allant de 10.9 à 14.8 (âges apparents compris entre 1.8 et 2.3 milliards d'années). Des valeurs de α très élevées ont été trouvées dans quelques échantillons.

Dans les zones de réaction la migration du plomb, associée à un étalement des proportions isotopiqes de l'uranium, peut expliquer une partie de la dispersion observée dans les argiles. Mais il est clair que cette explication est insuffisante.

La sortie du plomb a pu se produire à des époques différentes. Une sortie à l'époque subactuelle n'aurait pas modifié les valeurs de α ; par contre une sortie ancienne aurait eu pour effet de rajeunir les grains uranifères et de vieillir le plomb mélangé aux argiles ou celui que l'on retrouve sous forme de galène. C'est ce qu'on observe. Pour expliquer à la fois une différenciation importante des âges apparents et des quantités non négligeables de plomb "ancien", cette sortie a dû se faire assez longtemps après les réactions. (On peut par exemple penser à une remobilisation liée à l'intrusion des dolérites, vers 900 ou 1000 MA).

Les mesures dans les grains d'uraninite donnent les résultats les plus valables ; mais on peut toujours craindre d'intégrer dans la mesure des galènes remplissant les fissures, dont l'âge apparent est généralement plus élevé. C'est ainsi que dans l'échantillon 400/7, on avait trouvé une valeur de α (corrigée de l'appauvrissement isotopique de l'uranium) de 12.9. Dans un tel échantillon, où l'uranium est beaucoup plus appauvri que dans ses voisins immédiats, on peut craindre plus particulièrement la contamination.

Ayant la possibilité, depuis le mois d'octobre 1977, d'augmenter l'agrandissement de l'image observée ainsi que son intensité, nous avons pu sélectionner plusieurs plages éloignées des fissures dans un grain d'uraninite de grande dimension et bien compact (plusieurs millimètres) et toutes

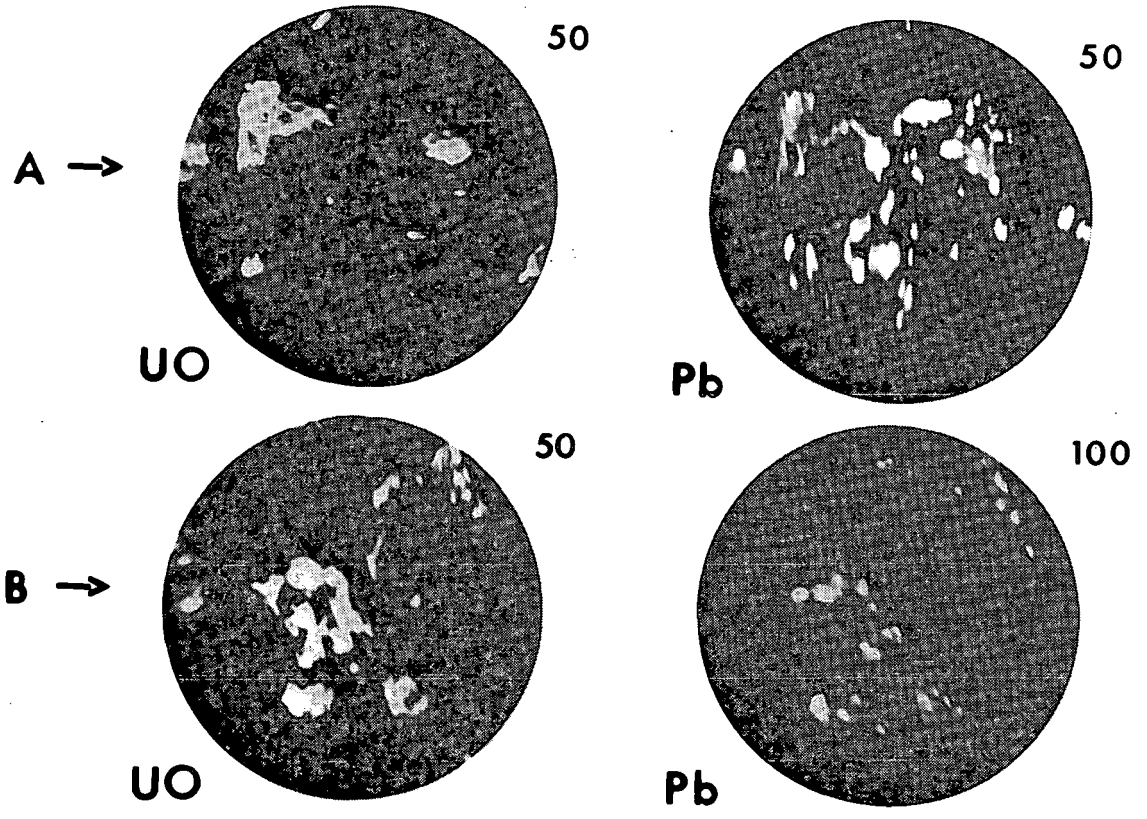


FIG.2. En A et B sont représentées des parties différentes de l'échantillon n° 1933/4 (diamètre: 200 µm). Dans les deux cas, on peut observer des plages a) peu intenses en uranium, peu intenses en plomb, b) peu intenses en uranium, très intenses en plomb, c) très intenses en uranium, moins intenses en plomb.
En bas à gauche de chaque image figure la nature de l'ion représenté (en gris ou blanc sur l'image); en haut à droite, le temps de pose exprimé en secondes.

les mesures donnent une valeur de α voisine de 4.48 % (erreur relative 1.5 %).Connaissant la valeur de l'appauvrissement isotopique de l'uranium (0.302 % à 1.5 % près) on peut en déduire que l'âge minimum de ce grain est 1.75 ± 0.05 milliards d'années. Il est possible que ce grain, nettement plus compact que ceux observés dans les autres échantillons, n'ait pas perdu de plomb à une époque ancienne ou bien, si celui-ci a quitté la structure de l'uraninite, il est resté dans le grain. Dans ce cas, la valeur obtenue serait proche de la valeur réelle.

4. Autres questions

a) Thorium

De même que les terres rares, le thorium est pratiquement toujours localisé dans l'uranium, aussi bien dans le minerai normal que dans celui des zones de réaction. Le rapport ThO/UO a été mesuré dans un certain nombre d'échantillons. On le trouve petit dans les argiles de piles où il y a eu très peu de réactions nucléaires (pas de thorium radiogénique).

Dans l'échantillon 1901 (bordure du SC 36) il y a par exception énormément de thorium et de terres rares naturelles : on n'observe pas sur les images une coïncidence aussi bonne entre les plages U, Th et Nd que dans les autres cas ; en particulier on trouve du thorium et des terres rares abondantes dans des plages où il n'y a presque pas d'uranium (fig. 3).

Dans l'échantillon 1326 (bordure du SC 20), on trouve une différence très nette entre les plages très intenses en uranium ($0.2\ 10^{-2}$) et les plages peu intenses ($0.3\ 10^{-3}$, là encore ces rapports n'ont qu'une valeur relative), les premières correspondant à de l'uranium appauvri et les secondes à de l'uranium naturel. Ceci tend à prouver que le thorium est radiogénique et que l'uranium appauvri s'est déplacé avant la décroissance de l'uranium 236 ; cette conclusion est importante.

b) Cérium

Le rapport cérium sur praséodyme a été mesuré dans des minerais contenant seulement des terres rares naturelles, éloignées ou proches des piles. Les valeurs trouvées sont les suivantes :

5 à 5.8 dans l'échantillon 312 (grès "normal"), 5.7 dans le 2252 (SC 0), 5 dans le 1947 (coupe 2'0), 5 à 3 dans le 1763 (SC 53), 1.9 dans le 594 (affleurement 2), 1.2 dans le 1912/1 (bordure du SC 44), 1.15 dans le 2428 (SC 49 bis).

On voit donc qu'il y a un échelonnement de valeurs de 5.7 à 1.2, les valeurs élevées sont en général dans des échantillons éloignés des réacteurs, les valeurs faibles sont dans des échantillons plus rapprochés. On a vérifié en outre que dans le SC 0 (qui est à 12 mètres des réacteurs) on trouve des valeurs du même ordre dans l'échantillon 2250 qui se trouve dans les pélites du toit, que dans le 2252 qui est un grès.

Dans les roches, le rapport habituel est voisin de 5. On sait d'autre part que le cérium est la seule terre rare qui peut s'oxyder (Ce^{4+}). Il semblerait donc qu'il y ait eu élimination partielle de cérium dans les zones de réaction, donc que celles-ci aient connu une ambiance relativement oxydante, par exemple pendant le fonctionnement des réacteurs.

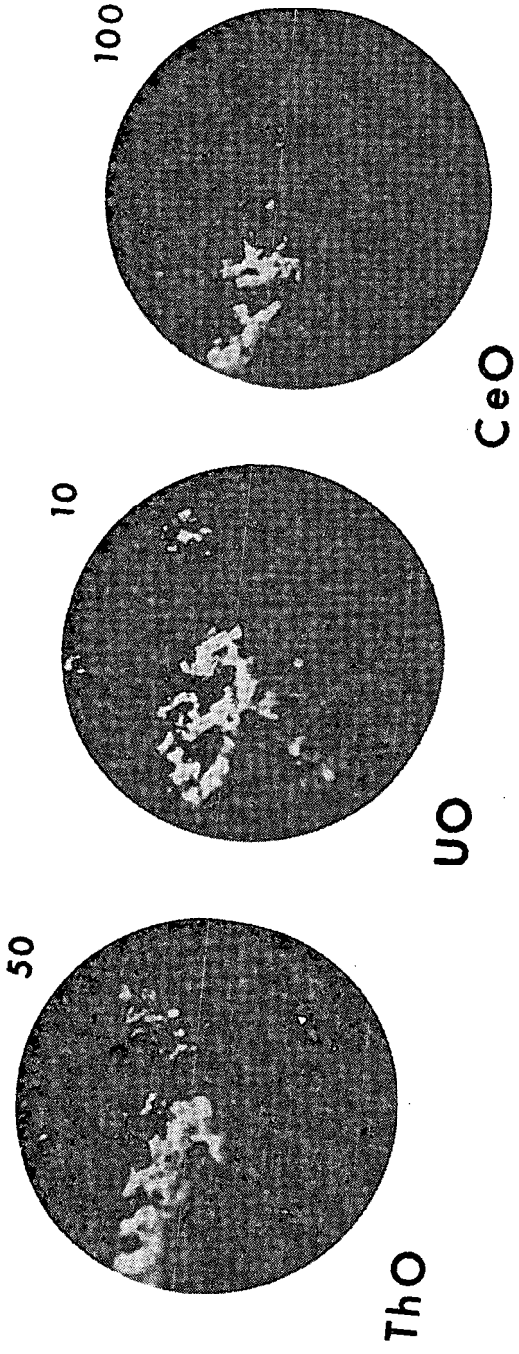


FIG.3. Echantillon 1901: thorium et cérium ont des topographies différentes de celle de l'uranium et sont localement plus abondants.

Conclusion

L'analyse ionique permet non seulement de "voir" la répartition des éléments entre les grains d'uranium et la gangue ; elle permet aussi de faire des études quantitatives (mesures d'abondance des éléments ou de rapports isotopiques) en choisissant par exemple les grains d'uranium, et en ayant la possibilité d'apprécier l'homogénéité des résultats d'un grain à l'autre. De ce point de vue, c'est un outil irremplaçable.

REFERENCES

[1] HAVETTE, Andrée, NAUDET, R., SLODZIAN, G., «Etude par analyse ionique de la répartition et des proportions isotopiques de certains éléments dans des échantillons d'Oklo», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 463.

[2] CESARIO, J., et al., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/17.

DISCUSSION

G.A. COWAN: Bien entendu, il est difficile de faire une distinction entre la diffusion continue et une perte épisodique de plomb sans posséder les données fournies par l'étude d'une série importante d'échantillons. Avez-vous envisagé le cas de la diffusion continue? A ce propos, quelle était la taille du grain qui a donné un âge de 1750 MA?

Andrée HAVETTE: Les sorties du plomb sont très aléatoires d'un échantillon à l'autre, d'un grain à l'autre et même dans un même grain, comme nous l'avons montré sur certaines images présentées au Colloque de Libreville. Nous avons choisi un grain dans lequel l'âge apparent est le plus élevé, ce qui permet d'obtenir un *âge minimal,* sans plus. Ce grain a plusieurs millimètres de diamètre et est bien compact.

C. DEVILLERS: Quelles sont les valeurs les plus élevées du rapport $^{207}Pb/^{206}Pb$ que vous avez mesurées et qui caractérisent le plomb le plus ancien?

Andrée HAVETTE: Dans notre mémoire, nous indiquons une valeur $\alpha = 14{,}8$ qui est la plus élevée de celles trouvées dans les zones argileuses où l'uranium est normal.

DETERMINATIONS DES SECTIONS DE CAPTURE NEUTRONIQUE D'ISOTOPES INTERVENANT DANS LE PHENOMENE D'OKLO PAR IRRADIATION DANS LE REACTEUR TRITON

Monique LUCAS*, R. HAGEMANN*, R. NAUDET**,
C. RENSON**, C. CHEVALIER*
CEA, Centre d'études nucléaires de Saclay,
Gif-sur-Yvette, France

Résumé–Abstract

DETERMINATIONS DES SECTIONS DE CAPTURE NEUTRONIQUE D'ISOTOPES INTERVENANT DANS LE PHENOMENE D'OKLO PAR IRRADIATION DANS LE REACTEUR TRITON.

Des irradiations expérimentales d'éléments et isotopes séparés ont été effectuées dans un réacteur de type piscine (réacteur Triton) afin d'améliorer la connaissance des sections de capture des produits de fission de l'uranium intervenant dans le phénomène d'Oklo. On décrit les conditions d'irradiation, les techniques d'analyse des échantillons, ainsi que les méthodes de calculs utilisées pour l'interprétation des résultats. Les éléments irradiés ont été les suivants: uranium à 93% de ^{235}U, uranium à 20% de ^{235}U, ^{240}Pu, $^{143+145}Nd$, ^{147}Sm, ^{99}Tc, dysprosium naturel, mélange europium + gadolinium naturels, krypton et xénon naturels. L'uranium et le plutonium ont été utilisés pour déterminer la fluence et le spectre reçus par les autres échantillons. Les irradiations ont été faites dans deux emplacements distincts du réacteur Triton, de manière à mettre en œuvre des spectres différents; les indices de spectre r ont été respectivement de 0,03 et 0,15. On a pu ainsi déterminer de manière précise les sections efficaces effectives de capture de tout un ensemble d'isotopes en fonction du spectre. Les résultats sont quelquefois sensiblement différents de ceux publiés dans la littérature. Ces résultats apportent des éléments d'information intéressants dans l'interprétation du phénomène d'Oklo. Ils confirment en particulier les valeurs de la fluence neutronique, d'où l'âge des réactions nucléaires déterminé à partir des bilans de néodyme de fission. Ils permettent de connaître de manière plus précise les rapports eau/uranium à l'époque des réactions nucléaires, par la mesure des «indices de spectre». Ils expliquent aussi l'écart constaté antérieurement entre la valeur de la durée de réaction calculée d'après la participation du plutonium aux fissions et celle déduite du couple ^{99}Tc–^{99}Ru.

DETERMINATIONS BY IRRADIATION IN THE TRITON REACTOR OF NEUTRON CAPTURE CROSS-SECTIONS FOR ISOTOPES INVOLVED IN THE OKLO PHENOMENON.

Experimental irradiations of separate elements and isotopes were carried out in a swimming-pool reactor (Triton) in order to obtain better information on the capture cross-sections of

---

* Division de chimie

** Division d'étude et développement des réacteurs

uranium fission products involved in the Oklo phenomenon. The irradiation conditions, sample analysis techniques, and calculation methods used to interpret the results are described. The elements irradiated were the following: uranium 93% and 20% enriched in ^{235}U, ^{240}Pu, $^{143+145}Nd$, ^{147}Sm, ^{99}Tc, natural dysprosium, mixture of natural europium + natural gadolinium, natural krypton and natural xenon. The uranium and plutonium were used to determine the fluence and spectrum received by the other samples. The irradiations were carried out in two different locations of the Triton reactor to permit work with different spectra; the spectral indices, r, were 0.03 and 0.15. In this way accurate determinations were made of the effective capture cross-sections of a large number of isotopes as a function of the spectrum. In some cases the results differ considerably from those published in the literature. These findings contribute information which is of interest in interpreting the Oklo phenomenon. More particularly, they confirm the values for neutron fluence, and hence the age of the nuclear reaction determined from the fission neodymium balances. They afford a more accurate knowledge of the water/uranium ratios at the time of the nuclear reactions (through measurement of the spectral indices). They also explain the discrepancy observed earlier between the value for the duration of the reaction calculated on the basis of the participation of plutonium in the fissions and that deduced from the pair ^{99}Tc–^{99}Ru.

L'étude précise et détaillée des produits de fission de l'uranium permet d'obtenir des renseignements fondamentaux concernant aussi bien les paramètres nucléaires d'échantillons particuliers (fluence, indice de spectre, nombre de fissions, pourcentages de participation aux fissions de ^{238}U et ^{239}Pu) que les caractéristiques de fonctionnement des réacteurs (date, durée, température). Cependant une des limitations à la précision des calculs résulte des marges d'erreur des sections efficaces.

Ainsi pour le néodyme 143 qui sert à calibrer les mesures de fluence, et qui est de ce fait l'un des isotopes le plus utilisé dans l'étude du phénomène d'Oklo, les valeurs de la section de capture adoptées par les auteurs des communications au colloque de Libreville variaient entre 266 et 325 barns. Une telle différence se traduit par une variation de 20 % sur la fluence ; les âges de la réaction nucléaire, calculés à partir des bilans du néodyme de fission, varient alors entre 1.8 et 2.05 milliards d'années. Il est donc apparu très utile d'entreprendre de nouvelles mesures de la section de capture du néodyme 143. Il paraissait d'autre part nécessaire de préciser les sections efficaces de ^{145}Nd et surtout ^{147}Sm, qui par comparaison avec celle de ^{143}Nd, permettent de caractériser le spectre neutronique. Dès lors, puisqu'il fallait de toute façon disposer d'un emplacement pour l'irradiation et de détecteurs de fluence et de spectre, on en a profité pour mesurer en même temps les transferts d'isotopes dans d'autres éléments intéressants : europium, gadolinium, dysprosium, gaz rares. On souhaitait enfin préciser les sections de capture de ^{99}Tc et ^{99}Ru, utilisés pour la détermination de la durée de réaction, mais malheureusement seul le premier de ces deux noyaux a pu être étudié.

1 - CONDITIONS EXPERIMENTALES D'IRRADIATION

Les irradiations ont été effectuées dans le réacteur Triton, qui est du type piscine (flux thermique de l'ordre de 3 à 5 10^{13} $n/cm^2 \cdot s$, température voisine de 40 °C). On a utilisé deux emplacements différents du réacteur, en plusieurs campagnes :

Triton 1 : du 10 juin au 31 juillet 1975
Triton 2 : du 23 juillet au 12 octobre 1976
Triton 1-2 : " "
Triton 1-3 : du 3 janvier au 10 février 1977

Les irradiations 1, 1-2 et 1-3 ont été faites au même emplacement du réflecteur (Triton 1-2 a eu pour but de déterminer avec précision l'indice de spectre, ce qui n'avait pas été fait la première fois, et on en a profité pour étudier le dysprosium. Quant à l'expérience Triton 1-3, on l'a faite pour reprendre l'irradiation du mélange Eu + Gd, car il était apparu que dans Triton 1 il y avait eu une dépression locale de flux thermique importante dans la capsule correspondante ; on a donc réduit considérablement les quantités(d'un facteur 20)). L'irradiation Triton 2 a été faite dans le coeur, et on a en outre durci artificiellement le spectre par emploi d'une chemise de zirconium boré (voir détails en annexe).

Pour chaque campagne, on a irradié simultanément tout un ensemble d'échantillons, y compris les détecteurs uranium et plutonium destinés à mesurer la fluence et l'indice de spectre. Malgré ce groupement, il peut y avoir des petites différences de flux d'un échantillon à l'autre. Dans Triton 1-2, 1-3 et Triton 2, les positionnements ont été bien repérés, et en outre on a réalisé des mesures par activation pour définir les flux relatifs (en neutrons thermiques et rapides) dans l'ensemble du dispositif ; par contre les positionnements n'ont pas été repérés dans Triton 1, et on a seulement mesuré après coup l'écart de flux maximum entre les échantillons.

Le tableau I[1] regroupe la liste des isotopes irradiés au cours de chaque campagne, leurs formes chimiques, les quantités mises en oeuvre et les analyses effectuées. Toutes les irradiations ont été faites en double ; les analyses ont été en partie doublées ; on a fait également l'analyse isotopique de tous les vierges. Par ailleurs l'analyse isotopique de l'europium irradié dans Triton 1 a été refaite à 9 mois d'intervalle pour apprécier les décroissances radioactives.

2 - METHODES ANALYTIQUES UTILISEES

La mise en solution des échantillons de terres rares irradiés a été réalisée par de l'acide nitrique 3 M de grande pureté. Pour les détecteurs à base de PuO_2, on a utilisé de l'acide nitrique 8 M (5 ml) et de l'acide fluorhydrique 23 M (quelques gouttes).

La composition isotopique des échantillons, avant et après irradiation, a été mesurée par spectrométrie de masse à thermoïonisation.

Les rapports $^{151}Eu/^{160}Gd$ et $^{152}Sm/^{151}Eu$ ont été déterminés par dilution isotopique dans les mélanges d'europium et de gadolinium naturels irradiés en utilisant un traceur triple constitué des isotopes séparés suivants : ^{151}Eu, ^{160}Gd, ^{149}Sm. La séparation élémentaire des terres rares :

[1] Voir annexe.

Gd, Eu, Sm a été effectuée, préalablement à l'analyse spectrométrique, sur une colonne de résine cationique (AG 50 WX 4) en employant de l'acide α-hydroxyisobutyrique 0.2 M à pH # 4 comme éluant.

Les échantillons de ^{99}Tc irradiés ont été dissous par un mélange d'acide chlorhydrique 6 M et d'acide nitrique 1.6 M contenant une quantité connue de ruthénium naturel et la composition isotopique du ruthénium résultant de ce mélange a été mesurée par spectrométrie de masse à thermoïonisation.

Les analyses isotopiques du krypton et du xénon ont été réalisées sur un spectromètre spécialement conçu pour l'analyse précise des gaz.

Les mêmes échantillons vierges ont été utilisés pour toutes les campagnes. Pour l'irradiation Triton 1 toutes les capsules ont fait l'objet d'analyses ; pour les autres irradiations une capsule seulement de chaque échantillon a été analysée, sauf pour les gaz rares.

Les résultats d'analyses sont donnés en annexe (tableaux II à IX).

3 - INTERPRETATION DES RESULTATS

3.1 Formalisme et méthodes de calcul

Il est important de préciser quelques définitions utilisées pour ce travail :

- Le flux neutronique est le flux $\hat{\varphi}$, défini comme le produit de la densité neutronique $\int n(v)\,dv$ par la vitesse de référence v_0 (2200 m/s). La fluence est l'intégrale du flux sur la durée d'irradiation.

- La section efficace effective $\hat{\sigma}$ est le taux de réaction par noyau et par unité de temps $\int_0^\infty \sigma(v)\, n(v)\, v\, dv$ divisé par le flux effectif $\hat{\varphi}$. Si une section efficace varie comme 1/v, $\hat{\sigma}$ s'identifie avec la valeur σ_0 de la section efficace à 2200 m/s. Dans le cas général $\hat{\sigma}/\sigma$ dépend du spectre neutronique.

- L'indice de spectre r est défini de la manière suivante : on sait qu'en première approximation, la densité neutronique varie dans le domaine de ralentissement proportionnellement à $1/v^2$ (ou ce qui revient au même, le flux $\varphi(E)$ varie comme 1/E) ; cette loi de variation étant extrapolée jusqu'à l'infini, r est le quotient de $\frac{1}{2} v^2\, n(v)$ dans ce domaine par l'intégrale $\int n(v)\, v_0\, dv$. On montre que r est, à un facteur près, le quotient de l'absorption globale du milieu par son pouvoir de ralentissement. Dans le cas idéal d'une section efficace qui varie comme 1/v dans le domaine de thermalisation et qui possède des résonances uniquement dans le domaine de ralentissement pur, la définition de r conduit à la formule très simple : $\sigma = \sigma_0 + rI$, I intégrale de résonance corrigée de la "queue en 1/v".[2]

---

[2] $$I = \int_{v_c}^{\infty} \left(\sigma(v) - \frac{\sigma_0\, v_0}{v} \right) \frac{2\, dv}{v}$$

Les intégrales de résonance publiées dans BNL 325 [1] sont calculées au-dessus de 0.5 eV sans cette correction ; il faut alors retrancher 0.45 σ_0.

Dans le cas d'une section quelconque, mais dans un milieu où la capture est en 1/v, r ne dépend pas de la température pour une composition de milieu donnée (d'où l'intérêt de cette définition pour les études Oklo où la température n'est pas connue a priori). En réalité dans un réacteur, n(v) ne varie nulle part comme $1/v^2$; on peut cependant continuer à définir r de manière précise à condition de choisir une vitesse de référence ; il faut alors remplacer la densité réelle au-dessus de cette vitesse par une densité fictive en $1/v^2$. Dans ce qui suit, la référence est prise au voisinage de 4 eV, c'est-à-dire suffisamment au-dessus du domaine de thermalisation mais au-dessous de la plus basse des résonances de l'uranium 238 (pour une vitesse de référence plus élevée, r sera plus grand).

Pour les études Oklo, on admet que les sections efficaces effectives ne dépendent que de deux paramètres : l'indice de spectre r et la température T ; ce n'est évidemment qu'une approximation.

Le code Binocle, spécialement adapté à la description et au calcul neutronique des milieux Oklo [2], calcule un r conforme à la définition précédente, pour chaque composition de milieu. On dispose d'autre part d'un code perfectionné, Apollo, qui décrit de manière détaillée (99 groupes d'énergie) l'action de tous les noyaux du milieu, et peut calculer les sections efficaces effectives de n'importe quel autre noyau dans le spectre correspondant. Apollo ne calcule pas r, mais Binocle ayant été ajusté avec précision sur ce code, le "r Binocle" défini pour la même composition de milieu est celui que calculerait Apollo pour la même définition. On peut donc calculer des sections efficaces effectives dans des milieux modérés par l'eau, en fonction de r et de T.

Ces calculs ont été utilisés d'une part, pour exploiter les mesures effectuées dans Triton (les fluences et indices de spectres relatifs aux irradiations étant déterminés par les taux de réaction de noyaux choisis comme référence : uranium 235 et plutonium 240) et d'autre part pour transposer les résultats Triton aux conditions d'Oklo (où la température est supposée de l'ordre de 350 à 400 °C).

Pratiquement, les calculs Apollo étant très lourds, on a mis à profit des tables de sections efficaces effectives calculées à Saclay il y a quelques années au moyen d'un modèle de thermalisation approché, après les avoir recalées sur un petit nombre de calculs Apollo ; cela a facilité l'obtention de formules d'interpolation.

3.2 Mesures des fluences

La fluence est déduite des analyses isotopiques de l'uranium ; on a utilisé d'une part le transfert $^{235}U \rightarrow {}^{236}U$, d'autre part la disparition de ^{235}U par rapport à ^{238}U. Le premier est mesuré avec une meilleure précision, mais la section effective correspondante est connue avec une marge d'erreur relative plus grande. On a mis à profit les recoupements entre ces deux déterminations sur l'ensemble des mesures.

On mesure N_5/N_8 et N_6/N_8 avant et après l'irradiation ; les captures de ^{238}U et ^{236}U sont petites, et on peut estimer leur effet a priori sans grand risque d'erreur ; on déduit donc de l'irradiation de chaque échantillon les deux quantités $x = \hat{\sigma}_{c5}\,\tau$ et $y = \hat{\sigma}_{a5}\,\tau$, qui fournissent chacune τ si on connaît les sections efficaces effectives.

Celles-ci sont obtenues par le calcul en fonction de la température et de r ; l'interprétation doit donc être combinée avec celle des détecteurs de spectre dont on parlera au paragraphe suivant. Les formules d'interpolation tirées des calculs ont été légèrement modifiées pour assurer la meilleure cohérence possible des deux groupes de mesures (car $\hat{\sigma}_{c5}$ varie davantage avec r que $\hat{\sigma}_{a5}$), et ce petit ajustement doit être considéré également comme un résultat positif des expériences. Pour les valeurs de r qui seront déterminées plus loin, les sections efficaces effectives calculées sont les suivantes (en barns) :

Triton 1 (r = 0.03)	$\hat{\sigma}_{a5}$ = 664.2	$\hat{\sigma}_{c5}$ = 101.4
Triton 2 (r = 0.155)	$\hat{\sigma}_{a5}$ = 673.3	$\hat{\sigma}_{c5}$ = 110.6

On en déduit les valeurs ci-après des fluences (en 10^{21} n/cm^2, ou n/kbarn) tirées respectivement de y et x, les marges d'erreur résultant seulement de celles des mesures :

Triton 1	caps. L	$\tau(y)$ = 0.150 ± 0.003	$\tau(x) = 0.150_1 \pm 0.0003$
Triton 1	caps. E	" = 0.157 ± 0.003	" $= 0.157_2 \pm 0.0004$
Triton 1-2	caps. V	" = 0.301 ± 0.003	" $= 0.301_5 \pm 0.0013$
Triton 1-3	caps. III	" = 0.176 ± 0.002	" $= 0.175_3 \pm 0.0008$
Triton 2	caps. G	" = 0.151 ± 0.004	" $= 0.147_8 \pm 0.0006$
Triton 2	caps. IV	" = 0.145 ± 0.003	" $= 0.145_0 \pm 0.0008$

La cohérence est satisfaisante. On note qu'entre les deux détecteurs de Triton 1, il y a une différence de plus de 5 % ; les mesures ultérieures par activation ont montré qu'entre les positions extrêmes d'irradiation, l'écart pouvait aller jusqu'à 7 % et malheureusement, pour cette première irradiation, on ne connaît pas la position précise de chaque échantillon ; il y a donc une indétermination assez importante sur la fluence reçue par chacun d'eux. Dans le cas de Triton 1-2 et Triton 1-3, tous les échantillons étaient groupés aux mêmes emplacements. Les échantillons de l'irradiation Triton 2 étaient répartis en trois niveaux, mais on a repéré, grâce aux mesures par activation, la différence entre les niveaux.

Finalement on a adopté les valeurs suivantes :

Triton 1		τ = 0.154 ± 0.007
Triton 1-2		τ = 0.301 ± 0.003
Triton 1-3		$\tau = 0.175_5 \pm 0.003$
Triton 2	niveau 2 (U_5 - Dy)	τ = 0.148 ± 0.003
	niveau 3 (U_8 - Nd - Sm - ^{240}Pu)	τ = 0.146 ± 0.003
	niveau 4 (Eu + Gd, Tc, Xe, Kr)	τ = 0.143 ± 0.003

En outre, dans le cas des mélanges europium-gadolinium, il est nécessaire de tenir compte d'une dépression de flux locale due à la forte capture du mélange (voir plus loin).

3.3 Mesure des indices de spectres

Les indices de spectre ont été déterminés d'une part par la mesure du ^{241}Pu formé par irradiation du ^{240}Pu, d'autre part par la mesure du

^{239}Pu formé par irradiation de ^{238}U (les ^{240}Pu et ^{241}Pu fournissent des recoupements). Le ^{240}Pu est le détecteur le plus sensible, mais il était intéressant de recouper au moins une fois les deux mesures : c'est ce qui a été fait dans Triton 2.

a) Plutonium 240

La quantité initiale de ^{239}Pu étant extrêmement petite, on peut négliger la formation de ^{240}Pu ; la disparition de ^{242}Pu est également très faible et on peut en tenir compte après coup, sous forme d'une correction. Dans ces conditions les nombres de noyaux de ^{240}Pu, ^{241}Pu et ^{242}Pu sont fournis par un système de trois équations différentielles, que l'on peut intégrer explicitement.

On mesure N_1/N_0 et N_2/N_1 avant et après irradiation. On peut en déduire $x = \hat{\sigma}_0 \tau$ et $y = \hat{\sigma}_1 \tau$, si on se donne le rapport $m = \hat{\sigma}_{c1}/\hat{\sigma}_{a1}$ de la section de capture radiative à la section d'absorption totale du plutonium 241.

En prenant $m \sim 0.27$ (quel que soit le spectre), on trouve :

Triton 1-2 : $\hat{\sigma}_0 \tau = 0.171 \pm 0.001$ $\qquad \hat{\sigma}_{a1} \tau = 0.453$

d'où, en utilisant la valeur de τ indiquée plus haut : 0.301 ± 0.003,

$\hat{\sigma}_0 = 568 \pm 7$ $\qquad \hat{\sigma}_{a1} = 1510$

Triton 2 : $\hat{\sigma}_0 \tau = 0.236 \pm 0.002$ $\qquad \hat{\sigma}_{a1} \tau = 0.246$

d'où ($\tau = 0.146 \pm 0.003$)

$\hat{\sigma}_0 = 1616 \pm 35$ $\qquad \hat{\sigma}_{a1} = 1680.$

Les $\hat{\sigma}_{a1}$ sont extrêmement proches des valeurs calculées, ce qui signifie qu'on justifie parfaitement la quantité de plutonium 242 formée. D'ailleurs le calcul d'erreur montre que, même si on faisait une erreur notable sur y (ou sur m), la détermination de **x** resterait précise. Les valeurs de $\hat{\sigma}_0$ obtenues sont exploitées plus loin.

b) Uranium 238

On a irradié de l'uranium à 20 % d'isotope 235 ; on a dosé le plutonium 239 formé par rapport à l'uranium (N_9/N_8) et mesuré les rapports N_0/N_9 et N_1/N_9 des isotopes 240 et 241 rapportés au 239.

En négligeant dans un premier temps la variation de N_8 (réintroduite ensuite comme correction), les nombres de noyaux N_9, N_0 et N_1 sont fournis par un système de trois équations différentielles que l'on peut intégrer explicitement.

Si on se donne $\hat{\sigma}_{a1}\tau$ et $m = \hat{\sigma}_{c9}/\hat{\sigma}_{a9}$, on déduit des trois rapports mesurés les quantités : $x = \hat{\sigma}_8 \tau$, $y = \hat{\sigma}_9 \tau$ et $\hat{\sigma}_0 \tau$ (en réalité on n'a pas besoin d'une grande précision sur m ; c'est my = $\hat{\sigma}_{c9} \tau$ essentiellement que l'on détermine). Dans le cas de Triton 2, puisque l'échantillon a été irradié dans la même fluence et le même spectre que le ^{240}Pu, on connaît déjà $\hat{\sigma}_0 \tau = 0.236$ et $\hat{\sigma}_{a1} \tau = 0.246$. On vérifie qu'on retrouve effectivement la même valeur de $\hat{\sigma}_0 \tau$ que celle déterminée par l'irradiation précédente, ou

ce qui revient au même que l'on justifie parfaitement à l'aide de cette valeur la quantité de plutonium 241 formée. On trouve en outre :

$$\hat{\sigma}_8 \tau = 0.00674 \pm 0.00005 \qquad \hat{\sigma}_{c9} \tau = 0.0712 \pm 0.0007$$

d'où : $\hat{\sigma}_8 = 46.2 \pm 1.$ et $\hat{\sigma}_{c9} = 488 \pm 12$

c) Les calculs fournissent $\hat{\sigma}_0$, $\hat{\sigma}_{a9}$ et $\hat{\sigma}_{c9}/\hat{\sigma}_{a9}$ en fonction de r et T. Pour 40 °C, on a ajusté les formules d'interpolation suivantes :

$$\hat{\sigma}_0 = 284\ (1.034 + 31.6\ r - 10.4\ r^2 + 2\ r^3)$$
$$\hat{\sigma}_{a9} = 1014\ (1.091 + 2.84\ r - 2.25\ r^2 + 0.9\ r^3)$$
$$\hat{\sigma}_{c9}/\hat{\sigma}_{a9} = 0.285 + 0.343\ r - 0.61\ r^2$$

D'autre part, on admet $\hat{\sigma}_8 = 2.72 + 280\ r$ (uranium infiniment dilué).

On déduit des mesures précédentes :

Triton 1 : ^{240}Pu : r = 0.031

Triton 2 : ^{240}Pu : r = 0.155

^{238}U : r = 0.155

^{239}Pu : r = 0.157

La convergence entre les trois mesures de spectre dans Triton 2 est remarquable. On peut estimer que pour Triton 1 : r est donné à ± 0.001 et pour Triton 2 à ± 0.004. Les mesures par activation ont montré par ailleurs que le spectre est très constant pour l'ensemble du dispositif Triton 2.

3.4 Détermination des sections efficaces effectives du néodyme et du samarium

Les trois transferts ^{143}Nd → ^{144}Nd, ^{145}Nd → ^{146}Nd, ^{147}Sm → ^{148}Sm se présentent de manière analogue. Pour le premier par exemple, la formation de ^{143}Nd est négligeable à cause de la très faible teneur de ^{142}Nd, et le départ de ^{144}Nd est également négligeable. Il suffit donc de connaître N_4/N_3 avant et après l'irradiation pour en déduire $\hat{\sigma}_3\tau$. Les résultats sont les suivants :

a) Néodyme 143

- Triton 1 : capsule I : $\hat{\sigma}_3 \tau = 0.0535 \pm 0.0001$

  capsule K : $\hat{\sigma}_3 \tau = 0.0526 \pm 0.0001$

$\tau = 0.154 \pm 0.007$ devant être appliqué uniformément à tous les échantillons de Triton 1, on déduit pour la moyenne : $\hat{\sigma}_8 = 344 \pm 12$ (la marge d'erreur s'obtient en associant la plus grande des deux valeurs de x à la borne supérieure de la fluence et inversement).

- Triton 1-3 : capsule O : $\hat{\sigma}_3 \tau = 0.0567 \pm 0.0003$

Il faut tenir compte de la petite dépression de flux créée pour le mélange capturant (Eu + Gd) au sein duquel se trouve le néodyme. On verra plus loin que la correction est évaluée à 2.5 %. D'où τ corrigé = 0.1712, et $\hat{\sigma}_3 = 331 \pm 8$.

Ce résultat, bien que nettement plus petit, est compatible avec celui obtenu dans Triton 1, compte tenu des marges d'erreur. On admettra pour la moyenne des deux résultats, une valeur de l'ordre de 335 barns.

- Triton 2 : capsule D : $\hat{\sigma}_3\ \tau = 0.0470 \pm 0.0003$

pour $\tau = 0.146 \pm 0.003$, on déduit $\hat{\sigma}_3 = 322 \pm 7$.

Il semble incontestable qu'il y a diminution de la section effective de capture avec r. Cela n'est pas de nature à surprendre, puisque la section efficace possède une petite résonance à énergie négative : les calculs Apollo ont montré que $\hat{\sigma}_3$ baisse d'une vingtaine de barns lorsque r passe de 0.05 à 0.25. On propose de représenter les résultats par la formule suivante :

$$\hat{\sigma}_3 = 338 - 100\ r$$

Le calcul montre d'autre part que la section efficace effective baisse légèrement avec la température ; il est donc recommandé d'utiliser pour Oklo :

$$\boxed{\hat{\sigma}_{143} = 335 - 100\ r}$$

Rappelons que le BNL 325 donne 325 barns pour 2200 m/s.

b) Néodyme 145

- Triton 1 (capsules I et K) : $\hat{\sigma}_5\ \tau = 0.0082 \pm 0.0003$

Si on utilise $\tau = 0.154$, on trouve $\hat{\sigma}_5 = 53$, mais compte tenu de la comparaison entre Triton 1 et Triton 1-3 il est sans doute justifié de minorer légèrement cette valeur, et adopter

$$\hat{\sigma}_5 = 52 \pm 3$$

- Triton 2 : $\hat{\sigma}_5\ \tau = 0.0114 \pm 0.0003$

On en déduit $\hat{\sigma}_5 = 78 \pm 3$

la comparaison entre les résultats conduit à écrire :

$$\boxed{\hat{\sigma}_{145} = 46 + 210\ r}$$

Si on tient compte des marges d'erreur indiquées, on a séparément : $\sigma_0 = 46 \pm 4$, et $I = 210 \pm 30$, ce qui est très proche des valeurs du BNL 325 : $\sigma_0 = 42 \pm 2$, $I_C = 220 \pm 35$. Cette section efficace peut être considérée comme indépendante de la température.

c) Samarium 147

- Triton 1 - capsule A : $\hat{\sigma}_7\tau = 0.0114_4 \pm 0.0001$

" G : $\hat{\sigma}_7\tau = 0.0111_5 \pm 0.0001$

on en déduit pour la moyenne : $= 73 \pm 3$.

- Triton 2 - capsule C : $\hat{\sigma}_7\ \tau = 0.0216 \pm 0.0001$

d'où on déduit : $\hat{\sigma}_7 = 148 \pm 3$

La comparaison entre les deux résultats conduit à écrire :

$$\hat{\sigma} = 55 + 600\ r$$

(marges d'erreur approximatives : 55 ± 4, 600 ± 30).

Les calculs Apollo montrent que l'on peut utiliser une approximation du type $\hat{\sigma} = \sigma_0\ g + r\ I$ avec un g un peu plus petit que un, décroissant légèrement avec la température ; la baisse de $\hat{\sigma}$ est de l'ordre de 2.7 barns lorsqu'on passe de 120 à 360 °C. Pour les conditions Oklo, il est donc recommandé d'utiliser :

$$\boxed{\hat{\sigma}_{147} = 52 + 600\ r}$$

Les sections effectives sont sensiblement plus petites que celles tirées du BNL 325 (σ_0 = 64 ± 5, I_C = 685 ± 50).

Il en résulte qu'on a eu tendance à sous-estimer un peu les indices de spectres. Désormais, en tout cas, on est certain que les indices de spectres, déterminés par comparaison des taux de capture de ^{143}Nd et ^{147}Sm, sont conformes à la définition qui a été donnée.

3.5 Détermination de la section efficace effective du technétium

La composition isotopique du ruthénium naturel, qui a été remesurée, fait apparaître que le poids atomique est 101.17 et que la concentration en atomes du ^{100}Ru est 12.60 %. On en déduit que si p est le poids de ruthénium naturel ajouté à 1 g de technétium 99 initial, le nombre d'atomes de ruthénium 100 ajoutés par atome de technétium est :

$$p \times \frac{99}{101.17} \times 0.1260 = 0.1233\ p$$

Soient d'autre part a_0 et a_1 les rapports ^{100}Ru/^{102}Ru mesurés dans le ruthénium naturel et dans le mélange : le nombre d'atomes de ^{100}Ru formés par irradiation, rapporté à un atome de ^{99}Tc initial est :

$$\left(\frac{a_1}{a_0} - 1\right) \times 0.1233\ p$$

ce nombre est aussi $1 - e^{-x}$, x étant le produit par τ de la section de capture du technétium 99. Les résultats sont les suivants :

- Triton 1 - capsule C : x = 0.00377 ± 0.00002
  capsule F : x = 0.00414 ± 0.00003

On note que la différence entre les deux mesures de x est de près de 10 %, c'est-à-dire supérieure à l'étalement maximal supposé des fluences dans les capsules, et ceci malgré des marges d'erreur indiquées inférieures au %. Il est probable qu'il s'y ajoute une imprécision sur les quantités effectivement mélangées.

En rapportant la moyenne des deux mesures, à la moyenne de la fluence, 0.154 ± 0.07 on trouve :

$$\hat{\sigma} = 25.7 \pm 1.5$$

- Triton 2 - capsule S : x = 0.00699 ± 0.00002

Pour un τ de 0.143 ± 0.004, on trouve :

$$\hat{\sigma} = 48.9 \pm 1.5$$

La comparaison entre les deux valeurs conduit à :

$$\boxed{\hat{\sigma} = 20 + 186\ r}$$

(avec les marges approximatives : 20 ± 2, 186 ± 16). Par comparaison avec le BNL 325 (σ_0 = 19 ± 2, I_c = 340 ± 20), on conclut que l'intégrale de résonance est significativement plus petite que celle des tables.

3.6 Détermination des sections efficaces effectives des gaz rares

En ce qui concerne les gaz rares, les transferts sont petits, mais les mesures très précises. On peut l'apprécier en comparant pour chaque transfert la perte observée sur le noyau concerné au gain observé sur le noyau de rang suivant. On obtient des informations non seulement sur les sections de capture de ^{83}Kr et ^{131}Xe, objet de la mesure, mais aussi sur ^{82}Kr et ^{129}Xe.

- Triton 1

Transfert	$^{82}Kr \rightarrow {}^{83}Kr$	0.036 - 0.043	rapporté à 11.59
	$^{83}Kr \rightarrow {}^{84}Kr$	0.394 - 0.401	" 11.50
	$^{129}Xe \rightarrow {}^{130}Xe$	0.120 - 0.126	" 26.41
	$^{131}Xe \rightarrow {}^{132}Xe$	0.416 - 0.429	" 21.22

On en tire les valeurs suivantes des sections effectives, pour τ = 0.154 ± 0.006

^{82}Kr : $\hat{\sigma}$ = 22 ± 3 ^{83}Kr : $\hat{\sigma}$ = 224 ± 12
^{129}Xe : $\hat{\sigma}$ = 30 ± 2 ^{131}Xe : $\hat{\sigma}$ = 129 ± 6

(les marges sont estimées en ne tenant compte que des écarts observés).

- Triton 2

Transfert	$^{82}Kr \rightarrow {}^{83}Kr$	0.058 - 0.063	rapporté à 11.58
	$^{83}Kr \rightarrow {}^{84}Kr$	0.349 - 0.354	" 11.50
	$^{129}Xe \rightarrow {}^{130}Xe$	0.238 - 0.241	" 26.40
	$^{130}Xe \rightarrow {}^{132}Xe$	0.747 - 0.759	" 21.21

On en tire les valeurs suivantes, pour τ = 0.143 ± 0.003

^{82}Kr : $\hat{\sigma}$ = 36 (± 4) ^{83}Kr : $\hat{\sigma}$ = 214 (± 6)
^{129}Xe : $\hat{\sigma}$ = 64 (± 3) ^{131}Xe : $\hat{\sigma}$ = 248 (± 6)

D'où les relations suivantes en fonction de r, par comparaison avec BNL 325 :

^{82}Kr : 18 + 120 r	(18±4, 120±40)	(BNL σ_0 = 45±15, I_c = 180±40
^{83}Kr : 215	(±15)	σ_0 = 200±30, I_c = 140±30
^{129}Xe : 22 + 270 r	(22±3, 270±30)	σ_0 = 18± 7, I_c = 240±25
^{131}Xe : 100 + 950 r	(100±6, 950±10)	σ_0 = 90±10, I_c = 830±40)

On obtient donc pour la section de ^{82}Kr, des valeurs nettement plus petites que celles des tables ; pour les trois autres noyaux par contre, les ordres de grandeur publiés sont corrects. Toutefois pour ^{83}Kr la mesure n'a pas donné une croissance de $\hat{\sigma}$ avec r (il y a vraisemblablement, pour ce noyau, une petite résonance à énergie négative non indiquée dans la littérature) ; il paraît raisonnable d'adopter une valeur de $\hat{\sigma}$ indépendante de r. Enfin en ce qui concerne le xénon 131, la mesure fournit une valeur un peu plus grande que celle du BNL 325 (d'environ 10 % quel que soit le spectre).

3.7 Détermination des sections efficaces effectives des isotopes du dysprosium

Les transferts $^{160}Dy \rightarrow {}^{161}Dy \rightarrow {}^{162}Dy \rightarrow {}^{163}Dy \rightarrow {}^{164}Dy \rightarrow {}^{165}Ho$ étant tous notables, il n'est guère possible de donner du système une solution analytique simple suffisamment approchée ; aussi a-t-on eu recours à l'ordinateur, en utilisant un petit code qui calcule ces transferts pas à pas. D'autre part, puisque le système n'est pas fermé (la quantité d'holmium formé n'étant pas dosée), on ne dispose que de quatre rapports mesurés pour déterminer cinq sections efficaces ; on ne peut donc obtenir en réalité, à partir de chaque irradiation, qu'un jeu de valeurs dépendant d'un paramètre arbitraire.

Pour choisir des systèmes de valeurs plausibles, on peut s'aider des valeurs publiées, par exemple dans le BNL 325 : le jeu obtenu dans Triton 1 ne doit pas être trop différent des valeurs à 2200 m, et la différence entre les deux jeux doit refléter autant que possible les ordres de grandeur des intégrales de résonance. La section efficace la mieux connue est sans doute $\hat{\sigma}_{164}$: le BNL 325 donne σ_0 = 2700 ± 75 ; d'autre part on sait que la section effective varie peu avec le spectre ; elle tend à diminuer à cause d'une petite résonance à énergie négative.

Les valeurs suivantes permettent de retrouver les rapports d'abondance mesurés, avec pour $\hat{\sigma}_{164}$ des valeurs proches des calculs. On donne par comparaison les sections tirées de BNL 325 pour les indices de spectres respectifs de 0.03 et 0.155 (on a simplement utilisé la forme σ_0 + r I sauf pour l'isotope 164).

	Triton 1	Triton 2	BNL 325	
			r = 0.03	r = 0.155
$\hat{\sigma}_{160}$	135	295	96	241
$\hat{\sigma}_{161}$	309	754	612	749
$\hat{\sigma}_{162}$	317	610	262	603
$\hat{\sigma}_{163}$	365	620	180	390
$\hat{\sigma}_{164}$	2693	2632	2688	2630

Les valeurs trouvées pour $\hat{\sigma}_{160}$ dépendent beaucoup de la composition isotopique initiale : l'écart n'est donc peut-être pas significatif. Par contre le fait de trouver des valeurs beaucoup plus grandes pour $\hat{\sigma}_{163}$ est tout à fait significatif : il est impossible d'ajuster simultanément les sections efficaces des deux noyaux 163 et 164.

Pour interpréter les expériences Oklo, il est moins important d'avoir de bonnes valeurs absolues qu'une cohérence convenable entre les sections efficaces. En particulier, aux fluences élevées, le rapport $^{164}Dy/^{163}Dy$ dépend moins de la valeur de $\hat{\sigma}_{164}$ que du rapport $\hat{\sigma}_{163}/\hat{\sigma}_{164}$: l'expérience Triton conduit à modifier significativement ce rapport. Les résultats permettent également d'apprécier de manière plus sûre si un échantillon donné a été irradié dans une fluence déterminée, ou s'il s'agit d'un mélange.

Les valeurs ajustées peuvent être représentées par les formules suivantes :

$\hat{\sigma}_{160}$: 95 = 1350 r	(BNL 325 : σ_0 = 61 ± 6, I_C = 1130 ± 130	
$\hat{\sigma}_{161}$: 575 + 1150 r	σ_0 = 585 ± 30, I_C = 800 ± 80	
$\hat{\sigma}_{162}$: 245 + 2350 r	σ_0 = 180 ± 20, I_C = 2650 ± 270	
$\hat{\sigma}_{163}$: 305 + 2030 r	σ_0 = 130 ± 10, I_C = 1620 ± 150	
$\hat{\sigma}_{164}$: 2708 - 500 r	σ_0 = 2700 ± 75).	

Les calculs montrent que $\hat{\sigma}_{161}$ et $\hat{\sigma}_{164}$ baissent avec la température. En se basant sur les résultats obtenus on peut proposer pour Oklo des formules modifiées :

$$\hat{\sigma}_{161} = 510 + 1270\ r$$
$$\hat{\sigma}_{164} = 2695 - 500\ r$$

3.8 Etude des mélanges europium-gadolinium

a) L'europium donne lieu à des transferts complexes (cf.fig.1). On a mesuré les compositions isotopiques avant et après irradiation des mélanges europium-gadolinium, on connaît le poids relatif initial des deux éléments et on a mesuré le rapport $^{151}Eu/^{160}Gd$ par dilution isotopique. Puisque la section de capture de ^{160}Gd est négligeable, ce noyau est resté stable au cours de l'irradiation. On peut donc faire un bilan en rapportant tout à ce noyau. Par exemple pour la capsule A de Triton 2, on a pour le mélange Eu + Gd, avant et après irradiation, les nombres de noyaux suivants pour un noyau de ^{160}Gd

		151	152	153	154	155	156	157	158
AVANT	Eu	21.77		23.79					
	Gd		0.0093		0.1000	0.6766	0.9366	0.7158	1.137
APRES	Eu	7.70	6.46	25.35	1.404	0.167			
	Gd		2.704	0.0255	0.283	0.0229	1.646	<0.001	1.838

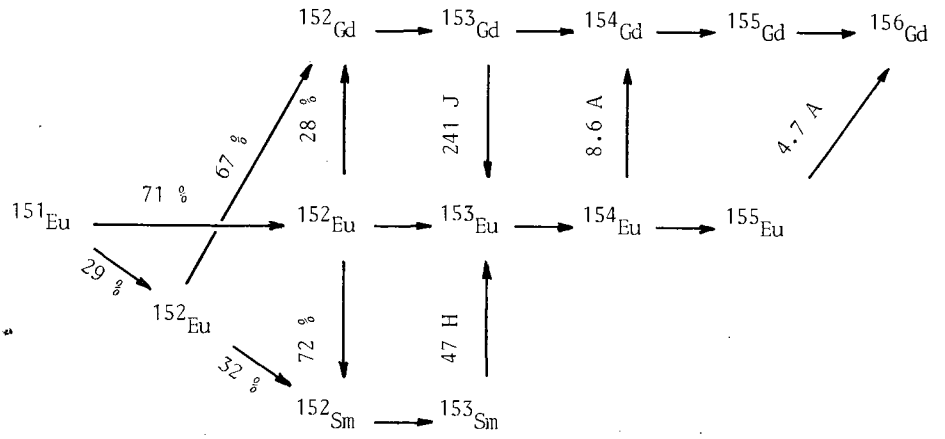


FIG.1. Schéma des transferts obtenus par irradiation d'europium.

Tous les noyaux se retrouvent dans le mélange final sous forme d'europium ou gadolinium à l'exception de ^{152}Sm. On peut donc en principe estimer la concentration de ce noyau par différence entre les nombres de noyaux initiaux et finaux sous forme Eu et Gd : on trouve $^{152}Sm = 1.57$. Toutefois toutes les marges d'erreur s'accumulent sur cette détermination. Par sécurité, le dosage de ^{152}Sm a été effectué directement par dilution isotopique, dans cette capsule et dans la capsule D de Triton 1. Pour Triton 2, on trouve $^{152}Sm/^{160}Gd = 1.55 \pm 0.03$, en très bon accord avec la valeur qui vient d'être indiquée. Pour Triton 1, l'accord était moins bon ; on a alors réajusté la normalisation, en modifiant légèrement la valeur mesurée de $^{151}Eu/^{160}Gd$. On a vérifié en outre que dans les deux capsules voisines B et D de Triton 1, tous les transferts après renormalisation étaient cohérents.

b) Un certain nombre de noyaux étant radioactifs à longue période, la composition mesurée a évolué depuis l'irradiation. On a pu constater cette évolution en mesurant à deux reprises la composition isotopique de l'europium (capsule D)

	152/151	153/151	154/151	155/151
19/11/76	0.580±0.005	2.544±0.0006	0.0761±0.0003	0.0069±0.0001
10/ 8/77	0.550±0.005	2.543±0.004	0.0713±0.0003	0.0062±0.0001

Les isotopes 151 et 153 étant stables (il ne restait déjà pratiquement plus de ^{153}Gd), les trois autres ont décru. On peut en déduire les périodes de décroissance, par comparaison avec celles de la littérature qui sont très imprécises :

^{152}Eu : T = 9.5 ± 3 ans (littérature : 12.2 - 12.7)
^{154}Eu : T = 7.7 ± 0.7 an (" : 8.6 à 15.6)
^{155}Eu : T = 4.7 ± 1.3 an (" : 1.9 à 4.7)

On a retenu respectivement 12.2, 8.6 et 4.7 ans, qui sont parmi les valeurs publiées celles qui semblent convenir le mieux. D'autre part on a admis que la période de ^{153}Gd est de 241 jours, et que la décroissance de ^{152}Eu conduit au partage : 72 % Sm, 28 % Gd. Toutes ces données sont très incertaines (il serait intéressant de refaire l'analyse dans quelques années).

Les transferts ont alors été corrigés en tenant compte des intervalles de temps qui séparent le milieu de la période d'irradiation de la date des analyses. On obtient, après correction de décroissance les bilans suivants :

		Triton 1 (capsule D)	Triton 2 (capsule A)
destruction	^{151}Eu	11.87	14.08
formation	^{152}Eu	6.20	6.78
"	^{152}Gd	2.24	2.60
"	^{152}Sm	1.03	1.32
"	^{153}Eu	1.36	1.50
"	^{153}Gd	0.044	0.061
"	^{154}Eu	0.841	1.502
"	^{154}Gd	0.066	0.086
"	^{155}Eu	0.083	0.190
"	$(^{155+156})Gd$	0.013	0.034

c) Ces différents transferts peuvent alors s'exprimer en termes de sections efficaces.

- Puisqu'il n'y a pas d'apport d'europium 151, la destruction de ce noyau est simplement de la forme $(1 - e^{-\sigma_1 \tau})$; on obtient donc immédiatement et avec une bonne précision :

europium 151 : Triton 1 : $\hat{\sigma}_1\tau = 0.788 \pm 0.005$

Triton 2 : $\hat{\sigma}_1\tau = 1.041 \pm 0.006$

les valeurs des fluences à utiliser sont discutées plus loin.

- L'europium 151 fournit d'une part un noyau instable qui se dissocie immédiatement en ^{152}Sm et ^{152}Gd, et d'autre part un ^{152}Eu à décroissance lente ; la mesure donne la proportion des trois noyaux, à condition d'évaluer directement les transferts $^{152}Sm \rightarrow {}^{153}Eu$ et $^{155}Eu \rightarrow {}^{156}Gd$, qui sont petits. On trouve :

	^{152}Eu	^{152}Gd	^{152}Sm
Triton 1 :	71.3 %	19.8 %	8.9 %
Triton 2 :	70.8 %	19.5 %	9.7 %

Bien que ces chiffres soient entachés de l'incertitude affectant la période de décroissance de l'europium 152, ils sont probablement plus corrects que les valeurs très incertaines de la littérature.

- La détermination de la section de capture de ^{152}Gd est illusoire à cause de l'importance des corrections de décroissance ; par contre on peut obtenir celle de ^{152}Eu avec une précision de l'ordre de 5 % : la quantité de ^{153}Eu formée se calcule explicitement en fonction de $\hat{\sigma}_1\tau$ et $\hat{\sigma}_2\tau$; on trouve :

Triton 1 : $\hat{\sigma}_2\tau = 0.58$ Triton 2 : $\hat{\sigma}_2\tau = 0.69$

- On peut évaluer avec une précision correcte (∿ 3 %) la section de capture de ^{153}Eu. L'accroissement de ce noyau étant petit par rapport à la quantité initiale, et la section de capture modeste, on peut évaluer simplement le nombre moyen de noyaux au cours de l'irradiation. On trouve :

$$\text{Triton 1} : \hat{\sigma}_3\tau = 0.0385 \qquad \text{Triton 2} : \hat{\sigma}_3\tau = 0.0707$$

- Enfin, on peut obtenir une estimation de la section de capture de ^{154}Eu. On trouve pour $\hat{\sigma}_4\tau$ respectivement 0.224 et 0.294.

d) Il est apparu que la forte capture du mélange europium-gadolinium avait causé une dépression de flux locale importante dans Triton 1. C'est pourquoi on a réduit par un facteur 20 les quantités de produit dans Triton 2, et on a refait une nouvelle irradiation dans le réflecteur avec cette quantité réduite (expérience Triton 1-3). On a calculé le rapport des fluences locales dans Triton 1 et Triton 1-3, en comparant les transferts à partir de ^{151}Eu et ^{153}Eu. Il faut tenir compte, d'une part de ce que la dépression de flux locale modifie l'indice de spectre, et d'autre part que, même en réduisant fortement la capture, il reste un petit effet sur le flux local. On a évalué à 0.62 le facteur multiplicatif de la fluence dans Triton 1, et 0.975 le facteur correspondant dans Triton 1-3 et Triton 2. Finalement, on a adopté les valeurs suivantes pour les fluences et indices de spectre dans les trois irradiations :

Triton 1-3 :	$\tau = 0.171 \pm 0.005$	$r = 0.032$
Triton 1 :	$\tau = 0.096 \pm 0.004$	$r = 0.052$
Triton 2 :	$\tau = 0.193_5 \pm 0.004$	$r = 0.159$

Les sections efficaces effectives sont alors les suivantes :

	^{151}Eu	^{152}Eu	^{153}Eu	^{154}Eu
Triton 1-3	8300 ± 300		360 ± 20	
Triton 1	8170 ± 300	6000 ± 400	400 ± 20	∿ 2300
Triton 2	7460 ± 200	5000 ± 300	510 ± 20	∿ 2100

La baisse de la section effective de capture de l'europium 151 en fonction de r est tout à fait significative ; on peut estimer que la différence, quand on passe de Triton 1-3 à Triton 2 est de 840 ± 250. Or les calculs montrent au contraire une croissance de $\hat{\sigma}$ avec r. On sait que cette section efficace possède deux résonances dans le domaine thermique, l'une à une énergie négative presque nulle (- 0.004 eV), l'autre à 0.32 eV ; le comportement de $\hat{\sigma}$ en fonction de r et T dépend de l'importance relative donnée à ces deux résonances ; le résultat Triton tend à prouver qu'il faut majorer l'effet de la résonance inférieure.

Les calculs montrent d'autre part que lorsqu'on élève la température, la section effective diminue, mais qu'elle diminue moins lorsque r est plus grand ; il est probable que cet effet reste vrai. Néanmoins, il est délicat de transposer le résultat Triton aux conditions Oklo : on admettra que, pour une température de 300 à 400 °C, $\hat{\sigma}_{151}$ est voisin de 7000 barns et dépend peu de r. (Rappelons que BNL 325 donne $\sigma_0 = 9200 \pm 100$).

En ce qui concerne l'europium 153, on peut représenter les résultats Triton par

$$\hat{\sigma}_{153} = 325 + 1150\ r \qquad \text{(BNL 325 : } \sigma_0 = 390 \pm 30,\ I_c = 1460 \pm 200\text{)}.$$

Les calculs montrent qu'il y a une légère baisse de la section effective avec la température. Pour Oklo on pourra utiliser :

$$\hat{\sigma}_{153} = 300 + 1200\ r$$

Les sections de capture des europium 152 et 154 n'ont pas d'intérêt direct pour Oklo ; là encore les valeurs sont assez différentes de celles des tables (BNL 325 : $\sigma^0_{152} = 2300 \pm 1000$, $\sigma^0_{154} = 1500 \pm 400$).

4 - CONCLUSION

Les nouvelles valeurs de section de capture déduites des irradiations dans le réacteur Triton apportent des éléments d'information intéressants pour l'interprétation du phénomène Oklo, en particulier sur les points suivants :

- La valeur de la section de capture du ^{143}Nd, mesurée au cours de l'irradiation Triton, confirme en gros la valeur du BNL 325 utilisée précédemment pour calculer la fluence reçue par les échantillons d'Oklo. (Toutefois l'expérience a mis en évidence une légère décroissance de la section effective avec l'indice de spectre). Il en résulte que les âges de la réaction nucléaire, calculés à partir des bilans du néodyme de fission restent voisins de 2 milliards d'années dans l'hypothèse où l'uranium et le néodyme sont restés stables [3].

- Les sections de capture effectives du ^{147}Sm, déduites de l'irradiation Triton, sont sensiblement plus petites que celles tirées du BNL 325, qui avaient été choisies pour déterminer les indices de spectre à partir des couples ^{143}Nd-^{144}Nd et ^{147}Sm-^{148}Sm [4]. On a eu tendance à sous-estimer un peu les indices de spectres.

L'important, en tout état de cause, est que grâce à ces mesures, on peut déduire des analyses combinées de néodyme et de samarium, un indice de spectre conforme à une définition précise, qui peut elle-même être rattachée à une composition définie du milieu multiplicateur à l'époque des réactions. Comme cet indice, qui traduit la compétition entre absorption et ralentissement, dépend essentiellement du rapport eau/uranium, on peut connaître désormais de manière précise cette caractéristique très importante du phénomène Oklo [2].

- Une meilleure connaissance du rapport des sections efficaces de ^{143}Nd et ^{235}U permet d'autre part de déterminer de manière plus exacte le facteur de conversion, qui représente le rapport entre l'uranium 235 formé à partir du plutonium et celui détruit par les réactions. En effet ce rapport s'obtient en comparant l'appauvrissement isotopique de l'uranium à la fluence.

- Les mesures ont également permis accessoirement de préciser la variation avec le spectre des sections efficaces effectives de l'uranium 235 ; l'ajustement qui a été fait, en ce qui concerne la section de capture de ce noyau, permet de calculer de manière plus correcte les quantités de thorium radiogénique formé.

- L'intégrale de résonance du technétium 99, tirée des mesures de l'irradiation Triton, est significativement plus petite que celle publiée par BNL 325. Cette conclusion est importante pour la détermination de la durée de la réaction nucléaire à partir de la mesure du rapport $\frac{^{100}Ru}{^{99}Ru}$ dans

les échantillons d'Oklo. Elle permet notamment d'expliquer l'écart, avec l'estimation de durée déduite de la mesure des participations du ^{239}Pu aux fissions, observé au cours d'une étude précédente [5].

En effet dans les échantillons de minerai d'Oklo étudiés, on avait trouvé pour la section de capture moyenne du mélange (^{99}Tc + ^{99}Ru) des valeurs de l'ordre de 42 à 44 barns pour un indice de spectre de l'ordre de 0.15. Si on admet les valeurs du BNL 325 ($\hat{\sigma}_{Tc} \sim 70$ et $\hat{\sigma}_{Ru} \sim 34$), il faudrait supposer qu'une proportion importante de ^{99}Ru a eu le temps de se former, donc que la durée a été très longue ; si au contraire, comme l'expérience Triton le montre, $\hat{\sigma}_{Tc} \sim 48$, la mesure prouve que le technétium est resté majoritaire, donc que la durée est nettement plus courte. Mais pour calculer une durée avec davantage de précision par cette méthode, il faudrait également mieux connaître la section de capture neutronique de ^{99}Ru.

- Le rapport $^{163}Dy/^{164}Dy$ est apparu beaucoup plus grand que celui publié dans les tables. La détermination d'un jeu cohérent de sections efficaces du dysprosium permet de comparer la "fluence dysprosium" à la "fluence néodyme" et d'en tirer des éléments d'appréciation sur les migrations et le fractionnement des terres rares. En particulier, on est certain maintenant que dans de nombreux cas les compositions isotopiques trouvées pour le dysprosium ne peuvent s'expliquer que par des mélanges d'éléments irradiés dans des fluences différentes.

- Ces mesures ont également apporté des informations sur les sections efficaces de l'europium, du krypton et du xénon, éléments dont les analyses ont été peu exploitées jusqu'à maintenant. Il faut souligner que les résultats trouvés pour les sections de capture des gaz rares sont quelquefois assez différents, mais en tout cas nettement plus précis que toutes les valeurs publiées dans la littérature.

Il serait sans doute intéressant de refaire, dans quelques années, des analyses des radionucléides formés par irradiation du mélange europium-gadolinium ; ces analyses permettraient à la fois de déterminer les périodes de décroissance, qui sont très mal connues, et de préciser les valeurs des sections efficaces grâce à de meilleures corrections de décroissance dans le calcul interprétatif.

ANNEXE

Dispositif d'irradiation Triton 2

Les éléments étaient contenus dans des capsules en quartz scellées sous une pression d'hélium légèrement inférieure à la pression atmosphérique ; les capsules étant elles-mêmes réparties dans quatre conteneurs en acier inoxydable (ϕ : 11 x 12 mm) scellés sous hélium sous une pression de 350 mm de mercure, suivant le schéma de principe représenté sur la figure 2.

Les conteneurs, placés côte à côte, étaient solidarisés par deux pièces en duralumin, et enrourés de deux demi-coquilles de zirconium boré (5000 ppm de bore naturel) de 0.57 mm d'épaisseur, 398 mm de longueur, sur un diamètre de 30.5 mm. Cet assemblage était maintenu en son centre par une tige filetée de 5 mm de diamètre, qui permettait de caler le plan médian des conteneurs dans le plan théorique de flux maximum. L'ensemble était positionné dans une gaine d'acier inoxydable, de diamètre 32 x 39.5 mm, soudée sous atmosphère d'hélium.

Pendant l'irradiation, ce dispositif cylindrique a subi des rotations successives d'un quart de tour pour obtenir une égalisation des flux intégrés par les quatre conteneurs. Ce dispositif a été irradié, pendant deux cycles, à la position 44 du coeur du réacteur Triton (cf. Tableau I). Pendant le même temps, des capsules contenant des détecteurs et notamment deux fils d'acier inoxydable (ϕ = 3 mm, l = 70 mm) ont été irradiées à la position 31 en périphérie du coeur (position de l'irradiation Triton 1). Des mesures de spectrométrie γ ont été effectuées par le Laboratoire des Combustibles Irradiés (Service d'Etudes Nucléaires - C.E.N. Cadarache) sur les conteneurs et les fils d'acier inoxydable en utilisant les pics d'absorption suivants :

E_{γ_1} = 320 keV dû au ^{51}Cr ($^{50}Cr(n,\gamma)\rightarrow{}^{51}Cr$)

E_{γ_2} = 810 keV dû au ^{58}Co ($^{58}Ni(n,p)\rightarrow{}^{58}Co$)

E_{γ_3} = 835 keV dû au ^{54}Mn ($^{54}Fe(n,p)\rightarrow{}^{54}Mn$)

E_{γ_4} = 1330 keV dû au ^{60}Co ($^{59}Co(n,\gamma)\rightarrow{}^{60}Co$)

Ces mesures utilisant des réactions n,γ (domaine des neutrons thermiques) et n,p (domaine des neutrons rapides) ont permis de déterminer les répartitions longitudinales des flux thermiques et rapides intégrés par les conteneurs.

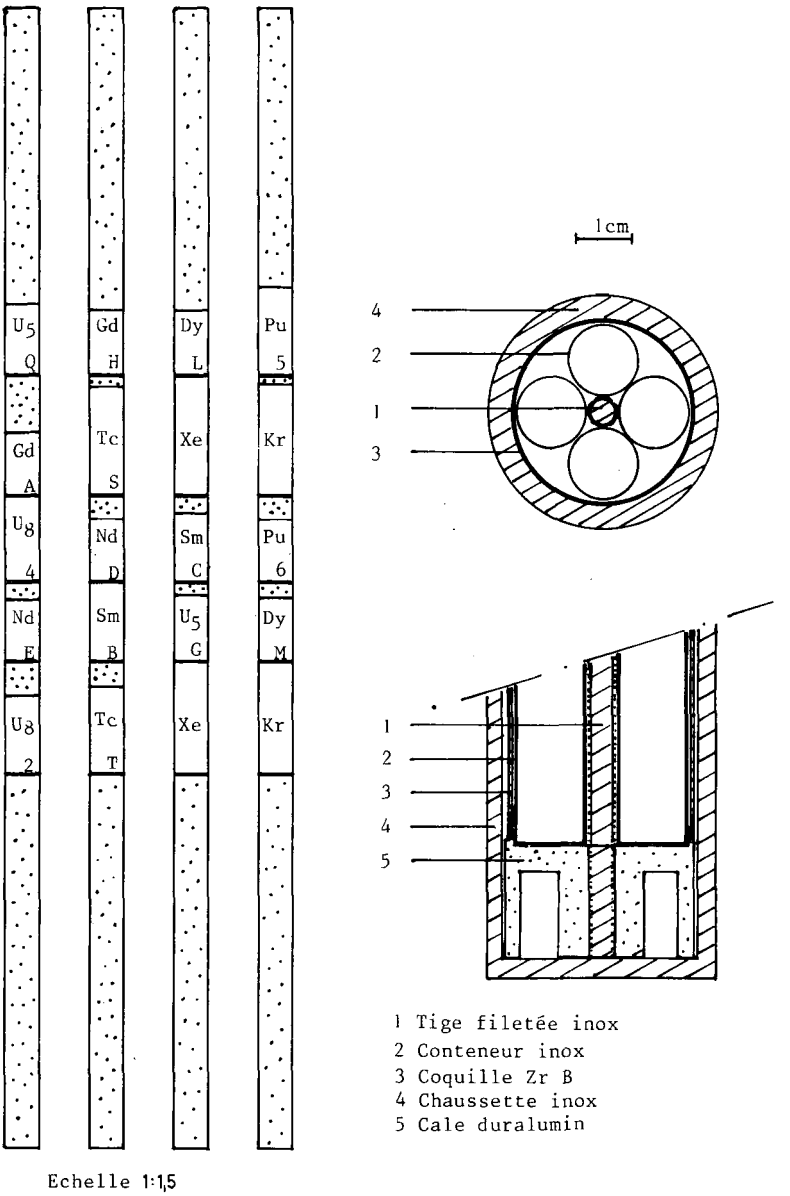


FIG.2. Dispositif d'irradiation Triton 2.

Tableau I - Liste des échantillons et des analyses effectuées

Elément irradié	Forme chimique	Quantité mise en oeuvre	Référence des capsules	Analyses effectuées
Triton 1				
^{143}Nd + ^{145}Nd	nitrate en résidu sec	4 mg	I-K	Nd_{iso}
^{147}Sm	"	4 mg	A-G	Sm_{iso}
Eu naturel + Gd naturel	"	10 mg 1 mg	B-D	Eu_{iso} - Gd_{iso} $^{151}Eu/^{160}Gd$-$^{152}Sm/^{160}Gd$
Technétium	métal en poudre	23.6 mg	F	Ru_{iso} après addition de Ru naturel au ^{99}Tc irradié
U à 93 % de 235	nitrate en résidu sec	1 mg	E-L	U_{iso}
Kr naturel Xe naturel	gaz à la pression atmosphér.	1.5 ml "	I-Ibis II-IIbis	Kr_{iso} Xe_{iso}
Triton 1-2				
Dy naturel	nitrate en résidu sec	2 mg	N	Dy_{iso}
U à 20 % de 235	"	1 mg	V-VI	U_{5iso}
^{240}Pu	oxyde sur support titane	20 µg	I-II	$^{240}Pu_{iso}$
Triton 1-3				
U à 20 % de 235	nitrate en résidu sec	1 mg	III	U (20%)$_{iso}$
Eu naturel + Gd naturel + ^{143}Nd	"	500 µg 55 µg 105 µg	O-K	Eu_{iso}, Gd_{iso} Nd_{iso}
Triton 2				
^{143}Nd + ^{145}Nd	nitrate en résidu sec	2 mg	D-E	Nd_{iso}
^{147}Sm	"	2 mg	B-C	Sm_{iso}
Dy naturel	"	2 mg	L-M	Dy_{iso}
Eu naturel + Gd naturel	"	500 µg 50 µ	A-H	Eu_{iso} - Gd_{iso} $^{151}Eu/^{160}Gd$ - $^{152}Sm/^{160}Gd$
Technétium	métal en poudre	16.8 mg 13.3 mg	S T	Ru_{iso} après addition de Ru naturel à ^{99}Tc irradié
U à 93 % de 235	nitrate en résidu sec	250 µg	G-Q	U_{5iso}
U à 20 % de 235	"	1 mg	IV-II	U(20%)$_{iso}$ - Pu_{iso} $^{239}Pu/^{238}U$
^{240}Pu	oxyde sur support titane	20 µg	V-VI	$^{240}Pu_{iso}$
Kr naturel Xe naturel	gaz à la pression atmosphér.	1.5 ml 1.5 ml	I-Ibis II-IIbis	Kr_{iso} Xe_{iso}

Tableau II - Compositions isotopiques de l'uranium des échantillons de l'irradiation Triton exprimées en atomes

	234	235	236	238
U à 93 % de 235 initial	0.1327 ± 2	15.88 ± 2	0.0383 ± 2	1
Triton 1 capsule E	0.1304 ± 2	14.33 ± 2	0.2778 ± 5	1
Triton 1 capsule L	0.1301 ± 2	14.41 ± 2	0.2671 ± 5	1
Triton 2 capsule G	0.1282 ± 2	14.44 ± 4	0.2857 ±10	1
U à 20 % de 235 initial	0.00201 ± 2	0.2523 ± 3	0.000795 ± 3	1
Triton 1-2 capsule V	0.00195 ± 3	0.2074 ± 4	0.00777 ± 3	1
Triton 1-3 capsule III	0.00196 ± 3	0.2248 ± 3	0.00503 ± 2	1
Triton 2 capsule IV	0.00195 ± 3	0.2304 ± 3	0.00465 ± 2	1

Tableau III - Compositions isotopiques du plutonium des échantillons de l'irradiation Triton exprimées en atomes
Mesure du rapport $^{239}Pu/^{238}U$ de l'échantillon Triton 2

	238	239	240	241	242
^{240}Pu initial	0.000033 ± 5	0.00784 ± 4	1	0.00475 ± 4	0.00176 ± 1
Triton 1-2 capsule I	0.00020 ± 2	0.00645 ± 6	1	0.1527 ± 3	0.0127 ± 1
Triton 2 capsule VI	0.00012 ± 1	0.00864 ± 6	1	0.2400 ± 5	0.0109 ± 1
Triton 2 capsule VI Pu formé par irradiation	-	1	0.03400 ± 15	0.0262 ± 2	< 0.000035
Triton 2 capsule IV	$^{239}Pu/^{238}U$ 0.00607 ± 4				

Tableau IV - Compositions isotopiques du néodyme des échantillons de l'irradiation Triton exprimées en atomes

	142	143	144	145	146	148	150
^{143}Nd + ^{145}Nd initial	0.0327 ± 1	1	0.06725 ± 5	0.4537 ± 5	0.0374 ± 1	0.00262 ± 2	0.00160 ± 2
Triton 1 Capsule 3 I	0.0342 ± 1	1	0.1259 ± 1	0.4771 ± 5	0.0436 ± 1	0.00279 ± 2	0.00172 ± 2
Triton 1 Capsule 3 K	0.0342 ± 1	1	0.1249 ± 1	0.4772 ± 5	0.0436 ± 1	0.00278 ± 2	0.00171 ± 2
Triton 2 Capsule D	0.0342 ± 1	1	0.1186 ± 2	0.4722 ± 5	0.0448 ± 1	0.00276 ± 2	0.00169 ± 2
Triton 1-3 ^{143}Nd initial	0.0266 ± 1	1	0.0495 ± 1	0.00634 ± 3	0.01622 ± 5	0.00139 ± 1	0.00098 ± 1
Triton 1-3 Capsule O	0.0282 ± 1	1	0.1107 ± 1	0.00673 ± 3	0.01725 ± 5	0.00148 ± 1	0.00106 ± 1

Tableau V - Compositions isotopiques du samarium (atomes) et du dysprosium (atomes %) des échantillons de l'irradiation Triton

	144	147	148	149	150	152	154
^{147}Sm initial	0.00060 ± 1	1	0.00869 ± 4	0.00518 ± 3	0.00177 ± 2	0.00360 ± 2	0.00214 ± 2
Triton 1 capsule A	0.00059 ± 1	1	0.0203 ± 1	-	0.00699 ± 3	0.00358 ± 2	0.00222 ± 2
Triton 1 capsule G	0.00060 ± 1	1	0.0200 ± 1	-	0.00694 ± 3	0.00355 ± 2	0.00220 ± 2
Triton 2 capsule C	0.00059 ± 1	1	0.0307 ± 1	-	0.00706 ± 5	0.00344 ± 2	0.00225 ± 2

	156	158	160	161	162	163	164
Dy naturel initial	0.059 ± 5	0.096 ± 5	2.339 ± 5	18.94 ± 4	25.50 ± 5	24.88 ± 5	28.18 ± 5
Triton 1-2 capsule N	0.064 ± 5	0.109 ± 5	2.683 ± 5	18.98 ± 4	31.36 ± 5	29.50 ± 5	17.30 ± 4
Triton 2 capsule M	0.058 ± 5	0.104 ± 5	2.469 ± 5	18.82 ± 4	27.87 ± 5	27.49 ± 5	23.18 ± 5

Tableau VI - Compositions isotopiques du ruthénium des échantillons de l'irradiation Triton exprimées en rapport du nombre d'atomes

	Poids de ^{99}Tc initial en mg	Poids de Ru nat ajouté en mg	96/102	98/102	*99/102	100/102	101/102	104/102
Ru naturel			0.1748 ± 2	0.0590 ± 1	0.4034 ± 4	0.3990 ± 4	0.5400 ± 5	0.5910 ± 5
Triton 1 capsule C	57.3	0.8256	0.1747 ± 4	0.060 ± 1	non mesuré	1.244 ± 3	0.542 ± 2	0.591 ± 2
Triton 1 capsule F	23.6	1.1626	0.1750 ± 4	0.059_5 ± 5	non mesuré	0.6708 ± 15	0.539 ± 2	0.591 ± 2
Triton 2 capsule S	16.8	0.4319_5	0.1762 ± 4	0.0594 ± 5	non mesuré	1.276 ± 2	0.541 ± 2	0.591 ± 2

* *Pour les échantillons irradiés les analyses isotopiques de ruthénium ont été faites sans séparation chimique préalable du technétium 99 de sorte que le rapport $^{99}Ru/^{102}Ru$ n'a pas pu être mesuré.*

Tableau VII - Compositions isotopiques des échantillons de gaz rares de l'irradiation Triton, exprimées en atomes %

KRYPTON	78	80	82	83	84	86
Triton 1 Kr initial	0.355	2.275	11.587	11.498	56.978	17.307
*Triton 1 Kr irradié	0.353	2.280	11.544	11.140	57.372	17.311
Triton 2 Kr initial	0.352	2.274	11.583	11.503	56.934	17.355
*Triton 2 Kr irradié	0.353	2.264	11.520	11.212	57.283	17.368

XENON	124	126	128	129	130	131	132	134	136
Triton 1 Xe initial	0.094	0.088_2	1.914	26.406	4.065	21.219	26.902	10.441	8.871
*Triton 1 Xe irradié	0.091	0.088_3	1.912	26.280	4.185	20.790	27.318	10.452	8.884
Triton 2 Xe initial	0.0956	0.089_8	1.913	26.401	4.069	21.212	26.876	10.459	8.886
*Triton 2 Xe irradié	0.088	0.089_8	1.913	26.163	4.310	20.465	27.635	10.446	8.891

* *Pour le krypton et le xénon les valeurs publiées correspondent respectivement à la moyenne des résultats d'analyses des capsules I, Ibis et II, IIbis.*

Tableau VIII - Compositions isotopiques du gadolinium des échantillons de l'irradiation Triton exprimées en atomes

	152	153	154	155	156	157	158	160	Date des analyses
Gd naturel initial	0.0093 ± 1		0.1000 ± 3	0.6766 ±15	0.9368 ± 15	0.7158 ± 15	1.137 ± 2	1	30.09.76
Triton 1 capsule B	2.323 ± 4	0.0101 ± 3	0.235 ± 1	0.0217 ± 4	1.616 ± 3	< 0.001	1.851 ± 4	1	20.10.76
Triton 1 capsule D	2.375 ± 5	0.0113 ± 3	0.248 ± 1	0.0252 ± 4	1.615 ± 5	< 0.001	1.851 ± 4	1	14.10.76
Triton 2 capsule A	2.704 ± 5	0.0255 ± 3	0.283 ± 1	0.0229 ± 4	1.646 ± 5	< 0.001	1.838 ± 4	1	20.06.77

Tableau IX - Compositions isotopiques de l'europium des échantillons Triton exprimées en atomes. Mesure des rapports $^{151}Eu/^{160}Gd$ et $^{152}Sm/^{151}Eu$

	151	152	153	154	155	Date des analyses	$^{151}Eu/^{160}Gd$	$^{152}Sm/^{151}Eu$
Eu naturel initial	1	-	1.0929 ± 5	-	-	10.11.76	21.77	
Triton 1 capsule B	1	0.560 ± 5	2.448 ± 6	0.0711 ± 1	0.0063 ± 1	18.11.76	10.23 ± 5	non dosé
Triton 1 capsule D	1	0.580 ± 5	2.544 ± 6	0.0761 ± 3	0.0069 ± 1	19.11.76	9.90 ± 5	non dosé
Triton 1 capsule D	1	0.550 ± 5	2.543 ± 6	0.0713 ± 3	0.0062 ± 1	10.08.77	non dosé	0.158 ± 2
Triton 2 capsule A	1	0.840 ± 3	3.293 ± 4	0.1823 ± 3	0.0217 ± 2	01.07.77	7.70 ± 5	0.202 ± 2

REFERENCES

[1] MUGHABGHAB, S.F., GARBER, D.U., Neutron Cross Sections Resonance Parameters, BNL-325, 3rd Edition 1 (1973).
[2] NAUDET, R., FILIP, A., «Etude du bilan neutronique des réacteurs naturels d'Oklo», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 527.
Voir aussi: NAUDET, R., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/21.
[3] DEVILLERS, C., et al., «Age de la minéralisation de l'uranium et date de la réaction nucléaire», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 293.
[4] RUFFENACH, J.-C., et al., «Analyses isotopiques fines des produits de fission et détermination des principaux paramètres des réactions nucléaires», Ibid., p. 371.
[5] HAGEMANN, R., «Estimation de la durée de la réaction – Limitations imposées par les données neutroniques», Ibid., p. 415.

DISCUSSION

W.J. MAECK: Quelle température attribuez-vous aux foyers de réaction d'Oklo?

Monique LUCAS: Les diverses méthodes utilisées pour évaluer la température dans les zones de réaction conduisent à des valeurs comprises entre 300 et 400°C. Les formules proposées pour Oklo, pour le calcul des sections de capture déduites de l'irradiation Triton, ont donc été basées sur une température de 350°C.

NOUVELLES MESURES DE DISTRIBUTION DES FLUENCES DANS LES REACTEURS D'OKLO PAR ANALYSE ISOTOPIQUE DES TERRES RARES

Michèle NEUILLY*, J.F. DOZOL*, R. NAUDET**
Commissariat à l'énergie atomique, France

Résumé—Abstract

NOUVELLES MESURES DE DISTRIBUTION DES FLUENCES DANS LES REACTEURS D'OKLO PAR ANALYSE ISOTOPIQUE DES TERRES RARES.

Le programme d'analyses isotopiques systématiques des terres rares présenté au Colloque de Libreville (Gabon) en 1975 (mémoires IAEA-SM-204/29 et 30) a été poursuivi. Une vingtaine d'échantillons supplémentaires ont été analysés. Le but des mesures était de comparer les courbes de fluence et d'appauvrissement isotopique de l'uranium. Les nouveaux résultats sont présentés et commentés. Certains d'entre eux montrent à l'évidence qu'il y a eu une certaine remobilisation des terres rares, même dans le cœur.

NEW FLUENCE DISTRIBUTION MEASUREMENTS FOR THE OKLO REACTORS BY ISOTOPIC ANALYSIS OF RARE-EARTHS.

The programme of systematic isotopic analyses of rare-earths described at the Libreville (Gabon) symposium in 1975 (papers IAEA-SM-204/29 and 30) has been continued. Twenty or so additional samples have been analysed. The purpose of the measurements was to compare the fluence curves and uranium isotopic depletion curves. The new results are presented with comments. Some of them show evidence that there has been some remobilization of rare-earths, even in the core.

Le programme d'analyses systématiques d'échantillons de minerais d'Oklo, présenté dans [1] et [2], a été poursuivi et terminé dans l'année qui a suivi le colloque de Libreville. Ce travail, rappelons-le, consistait à comparer aux distributions d'appauvrissement isotopique de l'uranium, le long de sondages ayant traversé les zones de réaction, les distributions des fluences et autres paramètres neutroniques déduits des analyses isotopiques du néodyme et du samarium. Les mesures déjà présentées concernaient 91 échantillons ; 19 échantillons supplémentaires ont été étudiés à la fin de 1975 et en 1976.

Résultats et interprétations

La technique d'analyse a été décrite dans [1]. On a utilisé, pour tous les nouveaux échantillons, la méthode mise au point en 1974 consistant

* Centre d'études nucléaires de Cadarache, Saint-Paul-lez-Durance.
** Centre d'études nucléaires de Saclay, Gif-sur-Yvette.

TABLEAU I . ANALYSES ISOTOPIQUES DU NEODYME

Résultats en %

Echantillon	^{142}Nd	^{143}Nd	^{144}Nd	^{145}Nd	^{146}Nd	^{148}Nd	^{150}Nd
SC 39 - n° 1383	3.20	23.77	28.86	17.27	15.38	7.94	3.59
1385	2.04	23.93	29.44	17.66	15.36	8.05	3.51
1395	4.31	22.62	28.98	16.74	15.61	7.84	3.70
SC 35 bis - n° 2126	2.05	23.50	29.94	17.44	15.55	8.00	3.52
2130	1.42	21.59	32.18	17.48	15.73	8.17	3.43
2134	1.11	22.83	31.21	17.80	15.46	8.18	3.41
SC 43 - n° 2421	2.56	23.35	29.64	17.42	15.40	8.06	3.56
SC 63 - n° 1970	3.19	24.94	27.81	17.54	15.05	8.00	3.47
1972	0.93	24.53	29.73	17.85	15.19	8.28	3.48
1974	0.93	23.57	30.46	18.02	15.62	8.11	3.29
1976	2.45	23.49	29.79	17.64	15.10	8.00	3.54
1978	1.21	24.23	29.56	18.03	15.38	8.16	3.42
1980	3.18	23.80	28.84	17.20	15.19	8.08	3.70
SC 30 - n° 2031	1.61	24.85	28.58	17.52	15.84	8.16	3.44
2035	3.06	24.69	28.12	17.49	15.16	7.91	3.57
2039	1.60	23.91	29.73	17.93	15.32	8.08	3.44
2043	1.69	23.31	30.15	17.72	15.45	8.14	3.54
SC 30 bis - n° 2068	4.93	24.08	27.30	16.94	15.14	7.97	3.64
2074	2.85	24.32	28.52	17.48	15.22	8.01	3.60

à faire les analyses isotopiques sans séparation chimique préalable : on met à profit l'existence de conditions d'ionisation différentes des terres rares, par chauffage à haute température du filament de rhénium.

Les tableaux I et II donnent, en pourcentages atomiques, les compositions isotopiques du néodyme et du samarium dans les 19 échantillons.

La méthode d'interprétation des résultats a été décrite dans [2] ; on n'en rappelle que les principes. On sépare tout d'abord les contributions des éléments naturels et des produits de fission, et on admet qu'à une très faible contamination près (d'ailleurs réduite par la nouvelle technique d'analyse) les éléments naturels ont été irradiés dans le même flux que l'uranium et les produits de fission. On déduit la fluence neutronique τ du transfert $^{143}Nd \rightarrow {}^{144}Nd$. La comparaison entre cette fluence et l'appauvrissement isotopique de l'uranium fournit ensuite le "coefficient de conversion" C : celui-ci est le rapport moyen entre l'uranium 235 formé par décroissance radioactive du plutonium 239 et l'uranium 235 détruit par fission et capture radiative (on écrit simplement : $\text{Log } N_5^0/N_5 = \hat{\sigma}_{a5}(1 - C)\tau$). Enfin, on déduit un indice de spectre r de la comparaison entre les transferts $^{143}Nd \rightarrow {}^{144}Nd$ et $^{147}Sm \rightarrow {}^{148}Sm$, la section de capture du samarium 147 étant plus sensible à la proportion des neutrons en ralentissement vis-à-vis des neutrons thermiques. La formulation a été délibérément simplifiée, le but de l'étude étant essentiellement d'apprécier la variation de paramètres calculés dans les mêmes conditions.

TABLEAU II . ANALYSES ISOTOPIQUES DU SAMARIUM

Résultats en %

Echantillon	^{144}Sm	^{147}Sm	^{148}Sm	^{149}Sm	^{150}Sm	^{152}Sm	^{154}Sm
SC 39 - n° 1383	0.32	52.48	3.62	0.50	26.15	12.62	4.30
1385	0.19	53.87	3.99	0.43	26.25	11.76	3.51
1395	0.29	50.88	4.54	0.93	25.89	12.86	4.60
SC 35 bis - n° 2126	0.22	53.86	2.39	0.44	28.18	10.94	3.98
2130	0.08	51.66	8.32	0.18	26.15	10.21	3.40
2134	0.06	52.47	7.31	0.28	26.98	9.98	2.92
SC 43 - n° 2421	0.21	52.69	4.51	0.54	26.29	12.16	3.60
SC 63 - n° 1970	0.28	52.73	3.09	0.98	27.35	12.17	3.40
1972	0.33	51.18	5.01	0.47	26.12	13.11	3.79
1974	0.11	53.58	5.63	0.30	27.52	10.36	2.51
1976	0.14	54.46	4.79	0.28	26.68	10.94	2.71
1978	0.05	55.14	3.85	0.51	26.62	11.07	2.75
1980	0.33	52.84	3.37	1.46	26.04	12.22	3.73
SC 30 - n° 2031	0.48	51.18	3.08	1.02	25.27	13.50	5.47
2035	0.26	53.17	2.73	0.69	25.87	12.96	4.32
2039	0.19	53.97	3.83	0.36	26.27	11.85	3.52
2043	0.15	51.45	5.27	2.98	25.55	11.16	3.44
SC 30 bis - n° 2068	0.49	50.60	2.71	1.23	25.21	14.18	5.58
2074	0.25	52.70	3.68	0.57	26.19	12.42	4.19

Le tableau III donne, en regard du numéro de l'échantillon et de sa localisation : la teneur du minerai en uranium, la concentration isotopique de l'uranium en isotope 235, et les trois paramètres neutroniques déduits des analyses ; à savoir la fluence τ, le facteur de conversion C et l'indice de spectre r. (Cinq échantillons pour lesquels les résultats avaient déjà été présentés ont été rajoutés à la liste, afin de regrouper dans l'ordre l'ensemble des mesures du sondage SC 39). Par souci de continuité, on a utilisé non seulement les mêmes formules, mais les mêmes valeurs numériques que dans [2].

On rappelle que la fluence considérée ici est la fluence "effective" $\tau = v_0 \int n(v)\, dv\, dt$. Le taux de réaction par noyau $\int \sigma(v)\, n(v)\, v\, dv\, dt$ étant mis sous la forme $\hat{\sigma}\tau$, la section efficace "effective" $\hat{\sigma}$ se réduit à la valeur σ_0 à v_0 = 2200 m/s pour un absorbeur strictement en 1/v, et peut s'écrire dans le cas général $\hat{\sigma} = \sigma_0(g + rs)$, r étant l'indice de spectre, avec des coefficients g et s qui ne dépendent en première approximation que de la température. On a utilisé les sections efficaces effectives suivantes : pour l'absorption de l'uranium 235 ; $\hat{\sigma}_a$ = 653 barns (indépendante de r) ; pour la capture du néodyme 148 : $\hat{\sigma}_3$ = 325 barns (indépendante de r) ; pour la capture du samarium 147 : $\hat{\sigma}_7 = 64 + 685\, r$.

Les expériences effectuées dans le réacteur Triton, consistant à irradier par analyse différents éléments et en particulier des isotopes séparés de ^{235}U, ^{143}Nd et ^{147}Sm [3] ont permis d'ajuster de meilleures valeurs des sections efficaces en fonction du spectre. Les trois sections

TABLEAU III . PARAMETRES NEUTRONIQUES DEDUITS DES ANALYSES

Sondage	n° échantil.	Teneur U %	% ^{235}U	τ(n/kb)	C	r***
Sondage SC 39						
1.95 m	1383	25	0.561	0.68	0.43	0.06
2.05	1385	40	0.562	0.80	0.52	0.10
2.15	1387*	32	0.484	1.01	0.39	0.12
2.25	1389*	27	0.479	1.02	0.38	0.16
2.30	1390*	26	0.505	0.87	0.37	0.22
2.35	1391*	43	0.510	1.02	0.48	0.20
2.45	1393*	54	0.575	0.77	0.55	0.26
2.55	1395	9	0.511	0.74	0.28	0.10
Sondage SC 35 bis						
1.55 m	2126	55	0.568	0.92	0.60	
1.75	2130	46	0.402	1.44	0.38	0.20
1.95	2134	60	0.526	1.21	0.60	0.22
Sondage SC 43						
2.00 m	2421	39	0.491	0.85	0.30	0.11
Sondage SC 63						
2.50 m	1980	34	0.529	0.43	(<0)	(0.18)
2.60	1972	42	0.576	0.83	0.58	0.13
2.70	1974	35	0.453	1.01	0.29	0.17
2.80	1976	48	0.435	0.88	(0.11)	0.15
2.90	1978	51	0.616	0.80	(0.70)	0.12
3.00	1980	39	0.595	0.70	0.58	0.08
Sondage SC 30						
5.80	2031	34	0.652	(0.62)	(0.75)	(0.02)
6.00	2035	21	0.617	0.49	(0.51)	(0.03)
6.20	2039	26	0.511	0.85	0.38	0.09
6.40	2043	28	0.502	0.97	0.43	0.14
Sondage SC 30bis						
6.00	2068	15	0.686	0.36	(0.79)	(0.02)
6.30	2074	56	0.605	0.60	0.55	0.09

* résultats déjà présentés dans [2].

** les valeurs de r doivent être majorées de 0.03 à 0.04 lorsqu'on utilise les nouvelles valeurs des sections efficaces ajustées dans Triton.

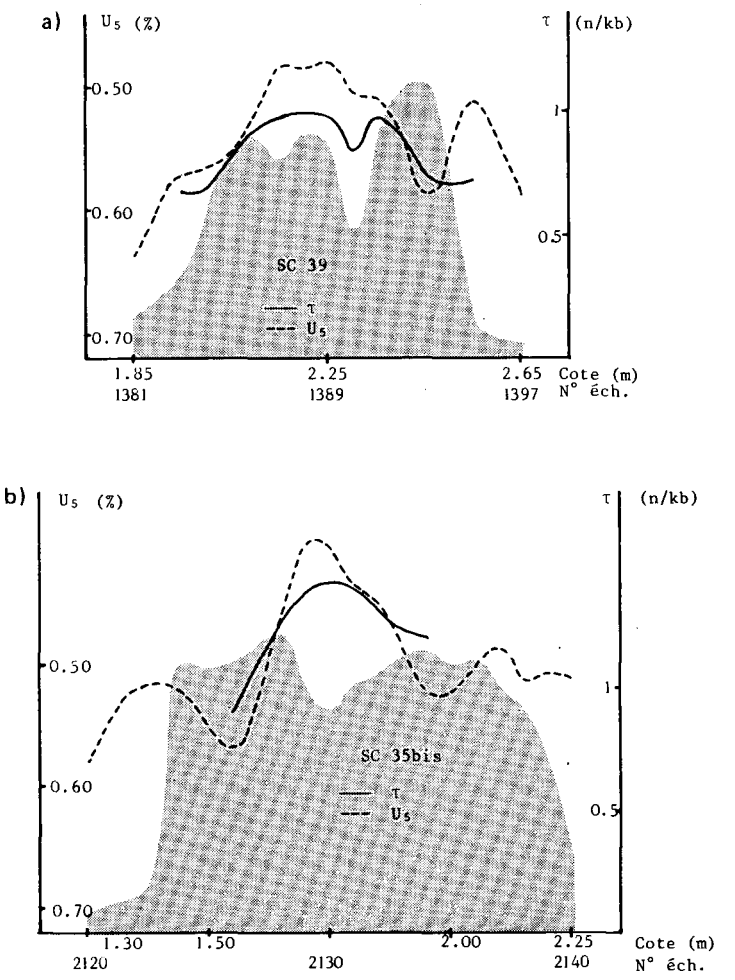


FIG.1. Sondages SC 39 et SC 35 bis. Comparaison entre les courbes de fluence et d'appauvrissement isotopique. En grisé teneur en uranium du minerai.

effectives baissant un peu avec la température, on a tenu compte de cet effet pour transposer les résultats Triton. Ceci nous a amené à proposer les valeurs suivantes : $\hat{\sigma}_{a5}$ = 681 (0.931 + 0.19 r), $\hat{\sigma}_3$ = 335 - 100 r, $\hat{\sigma}_7$ = 52 + 600 r. Avec ces nouvelles constantes, les fluences sont peu modifiées, les facteurs de conversion sont un peu plus grands lorsque r est élevé, et les indices de spectre systématiquement plus grands (de 0.035 en moyenne). Mais l'allure des variations n'est pas modifiée.

Commentaires sur les résultats

On rappelle que la conclusion principale de ce programme mené à Cadarache a été de montrer que les fluences déduites des analyses des terres rares sont corrélées aux appauvrissements isotopiques de l'uranium, et que l'une et l'autre, ainsi que les paramètres C et r, sont en relation avec la distribution de l'uranium. On peut retrouver par des calculs de bilans et diffusion neutroniques les corrélations observées et la forme des courbes obtenues. Une des motivations de ces mesures est donc de fournir des données expérimentales aux études de physique des réacteurs. C'est dans cet esprit qu'on a complété les mesures dans le sondage SC 39, et qu'on a étudié quelques échantillons des sondages SC 35 bis et SC 43.

Mais on a montré également que dans les bordures des zones de réaction, les corrélations ne sont plus respectées ; on trouve en particulier des terres rares de fission manifestement déplacées ; il faut donc admettre qu'il y a eu une petite remobilisation des terres rares, qui n'apporte en général que des perturbations mineures dans le coeur, mais dont les effets sont prépondérants en bordure, là où les taux de réaction locaux sont très faibles. Dans certains cas les perturbations sont manifestes même dans le coeur : c'est ce que montrent les analyses des sondages SC 63, SC 30 et SC 30 bis.

a) Dans SC 39 et SC 35bis (fig. 1a et 1b) les résultats sont conformes à ce qu'on peut déduire de considérations neutroniques. Dans les bordures du SC 39, la fluence remonte un peu quand on sort des zones riches, et le facteur de conversion diminue. Les indices de spectre deviennent également plus petits. De même, dans SC 35 bis, la courbe de fluence est moins contrastée que la courbe d'appauvrissement isotopique, parce que le facteur de conversion est plus petit au centre qu'au droit des deux maxima de teneur. Enfin dans le SC 43, sondage plus pauvre que ses voisins, on trouve un appauvrissement isotopique relativement élevé, à la fois parce que le flux thermique remonte dans cette région de moindre absorption, et parce que le facteur de conversion diminue (l'indice de spectre également est petit, comme on peut s'y attendre).

b) Mais dans le SC 63 (figure 2a) les résultats ne peuvent plus être expliqués par des considérations de ce genre. Alors que la courbe d'appauvrissement isotopique de l'uranium comporte un maximum très aigu, la courbe de fluence est beaucoup plus aplatie ; c'est bien ce que nous avons constaté chaque fois, mais ici les valeurs des facteurs de conversion auxquelles on est conduit deviennent invraisemblables, trop petites ou trop grandes : on ne peut plus rendre compte par le calcul de telles valeurs. Il semble nécessaire d'admettre qu'il y a eu remobilisation du néodyme, et mélange isotopique qui a effacé en partie le pic de fluence. Cette hypothèse avait déjà été suggérée dans [1], à propos des valeurs trop basses du facteur de conversion ; ici elle semble s'imposer.

De ce fait il faut peut-être mettre en doute certaines interprétations précédentes ; les transitoires de facteur de conversion, s'ils s'expliquent par des considérations neutroniques, sont probablement artificiellement accentués la plupart du temps du fait des mélanges de néodyme.

De même dans le sondage SC 30 (fig. 2b), si les valeurs de la fluence trouvées dans les échantillons 2043, 2039 et 2035 sont acceptables, la valeur trouvée pour l'échantillon 2031, qui serait plus grande que dans

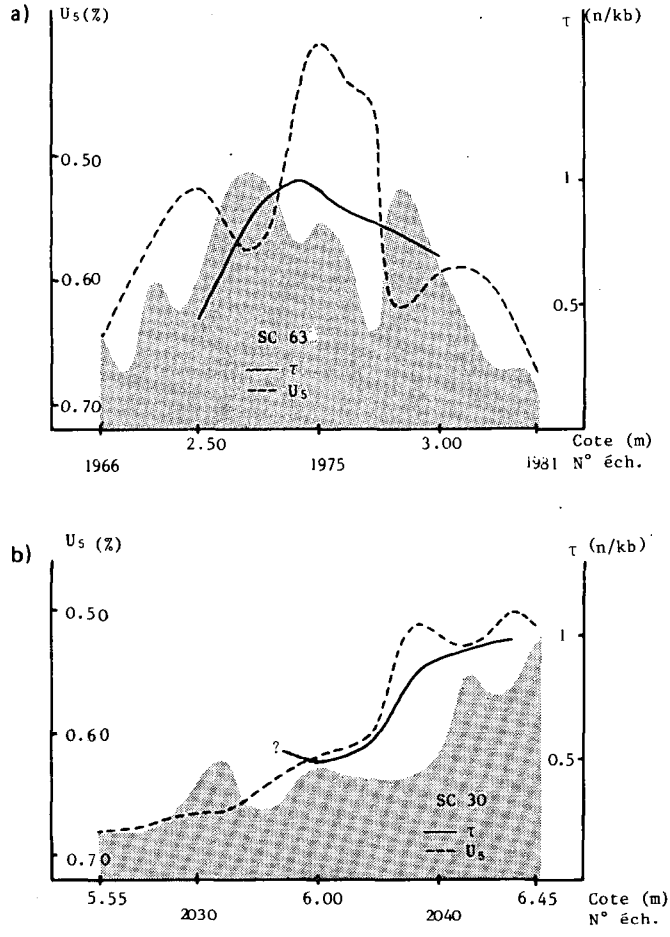


FIG.2. Sondages SC 63 et SC 30. Comparaison entre les courbes de fluence et d'appauvrissement isotopique. En grisé teneur en uranium du minerai.

l'échantillon précédent, ne l'est pas. D'ailleurs la remontée du facteur de conversion, que l'on observe déjà dans l'échantillon 2035, n'est pas explicable. Là encore, il faut donc admettre qu'il y a eu remobilisation du néodyme. On a déjà constaté en bordure des zones de réaction un "glissement" du néodyme vers l'extérieur, mais on l'avait vu principalement dans le minerai pauvre bordant le réacteur ; il semble donc que cela est vrai également lorsqu'il y a du minerai riche en bordure.

La même constatation a été faite sur le sondage voisin SC 30 bis : si la valeur de la fluence trouvée pour l'échantillon n° 2074, qui est encore dans le coeur, est acceptable, celle du n° 2068 est certainement trop élevée, car elle conduit à un facteur de conversion trop grand.

Finalement, la remobilisation du néodyme semble un phénomène assez constant ; il est possible que dans beaucoup de cas elle soit peu apparente simplement par effet de compensation.

REFERENCES

[1] DOZOL, J.-F., NEUILLY, Michèle, «Analyse isotopique des terres rares contenues dans le minerai d'Oklo», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 357.

[2] NEUILLY, Michèle, NAUDET, R., «Etude de la distribution des fluences dans les réacteurs naturels d'Oklo, par analyse isotopique des terres rares», Ibid., p. 541.

[3] LUCAS, Monique, et al., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/14.

LES REACTEURS NATURELS D'OKLO

Etude des migrations de l'uranium et des terres rares sur une carotte de sondage et application à la détermination de la date des réactions nucléaires

J.C. RUFFENACH
Division de chimie,
CEA, Centre d'études nucléaires de Saclay,
Gif-sur-Yvette, France

Résumé–Abstract

LES REACTEURS NATURELS D'OKLO: ETUDE DES MIGRATIONS DE L'URANIUM ET DES TERRES RARES SUR UNE CAROTTE DE SONDAGE ET APPLICATION A LA DETERMINATION DE LA DATE DES REACTIONS NUCLEAIRES.

Les analyses isotopiques et chimiques de l'uranium et de cinq terres rares – néodyme, samarium, europium, gadolinium et dysprosium – ont été effectuées sur quatorze échantillons prélevés sur une même carotte de sondage qui traverse une zone de réaction du gisement d'uranium d'Oklo. Cette étude fait ressortir la stabilité générale de l'uranium et des terres rares de fission; les distributions dans l'espace de ces éléments sont tout à fait analogues. Au cœur de la zone de réaction, les migrations n'ont affecté qu'environ 5% du néodyme de fission formé; les valeurs correspondantes sont légèrement plus élevées pour le samarium et le gadolinium. Ces phénomènes de migration n'ont pas entraîné de terres rares de fission à plus de 80 centimètres du cœur. L'étude de l'europium révèle de plus que les traces des réactions nucléaires sont restées inscrites dans les terrains depuis l'époque des réactions. On montre d'autre part, grâce notamment aux analyses de dysprosium, que les terres rares naturelles n'ont pas subi de remobilisation majeure. Cette étude permet également de déterminer la date des réactions nucléaires à partir de la mesure des quantités de néodyme de fission formées. On aboutit ainsi à une valeur égale à 1,98 milliard d'années, valeur légèrement plus élevée que celle déterminée par les méthodes géochronologiques.

THE NATURAL REACTORS OF OKLO: STUDY OF URANIUM AND RARE-EARTH MIGRATION IN A CORE SAMPLE AND ITS APPLICATION TO THE DATING OF THE NUCLEAR REACTIONS.

Isotopic and chemical analyses of uranium and five rare-earths (neodymium, samarium, europium, gadolinium and dysprosium) were carried out on fourteen samples from a borehole traversing a reaction zone of the Oklo uranium deposit. The study shows how stable the fission rare-earths and uranium are in general; the spatial distributions of these elements are completely analogous. In the core of the reaction zone the migrations have affected only about 5% of the fission neodymium formed; the analogous values for samarium and gadolinium are slightly higher. These migration phenomena have not moved fission rare-earths more than 80 cm from the core. In addition, the europium study shows that the traces of nuclear reactions have remained imprinted in the ground ever since the reactions took place. It is also shown, mainly by the dysprosium analyses, that the natural rare-earths have not been subject to any

major remobilization. This study also makes it possible to date the nuclear reactions by measuring the amounts of fission neodymium formed. This leads to a value of 1980 million years, which is slightly higher than the geochronological estimates.

Parmi les méthodes préconisées pour l'investigation du phénomène d'OKlo, il est rapidement apparu que l'étude précise et détaillée des produits de fission permettrait d'accéder à des renseignements fondamentaux, concernant aussi bien les paramètres nucléaires d'échantillons particuliers (fluence, indice de spectre, nombre de fissions, pourcentages de participation aux fissions de ^{238}U et ^{239}Pu) que les caractéristiques de fonctionnement des réacteurs (date, durée, température).

Nous nous sommes intéressés principalement à l'étude des terres rares légères ; ces éléments ont des rendements de fission importants et leurs différents isotopes présentent des caractéristiques nucléaires nombreuses et variées. Il a semblé intéressant d'étudier une série d'échantillons, tous situés sur une même carotte de sondage qui traverse de part en part le gisement d'uranium.

Le sondage étudié, repéré SC 36, traverse la zone de réaction n° 2, qui est apparue comme la zone la plus homogène et la plus compacte. La carotte, d'un diamètre de 63 mm, a été découpée en quatre dans le sens de la longueur ; les cinq échantillons 1892, 1402, 1418, 1901 et 1905 correspondent chacun à un prélèvement de 5 cm sur un quart de carotte, les neuf autres à un prélèvement de 1 cm. Il y a 180 cm entre les échantillons extrêmes, le 1892 étant prélevé au toit du gisement et le 1905 au mur (figure 1). Chaque échantillon a été finement broyé et homogénéisé au laboratoire, et toutes les analyses ont été effectuées sur les poudres ainsi obtenues.

Les méthodes chimiques d'extraction, mises au point au laboratoire, ont déjà été décrites dans une publication précédente [1]. Les analyses isotopiques ont été effectuées par spectrométrie de masse à thermoionisation (spectromètre CAMECA TSN 206 SA), les dosages chimiques par dilution isotopique [2].

Dans tous les calculs, sauf mention spéciale, les valeurs des sections de captures neutroniques et des intégrales de résonance que nous avons utilisées sont extraites du rapport BNL 325 [3]. Les rendements de fission sont ceux recommandés par Meek et Rider [4]. En l'absence de standards isotopiques pour les terres rares, les compositions isotopiques naturelles utilisées sont celles que nous avons mesurées au laboratoire à partir des produits purs Johnson Matthey, compositions indiquées dans les tableaux II à VI[1].

Certains résultats préliminaires relatifs aux échantillons situés au coeur de la zone de réaction ont déjà été publiés lors du colloque de Libreville [5]. Le présent rapport fait le point des résultats obtenus sur l'ensemble des 14 échantillons du sondage.

---

[1] Voir annexe, tableaux I à XX et figures 1 à 12.

1. DISTRIBUTION DES TERRES RARES LE LONG DU SONDAGE

Nous avons reporté dans le tableau I les résultats des analyses d'uranium dans onze échantillons, ainsi que les mesures de concentrations des cinq terres rares étudiées (Nd, Sm, Eu, Gd, Dy). La figure 1 représente la distribution de la teneur en uranium du minerai le long du sondage, ainsi que l'appauvrissement isotopique de l'uranium. Les résultats des analyses isotopiques des terres rares pour les quatorze échantillons sont indiqués dans les tableaux II à VI.

On constate tout d'abord une grande similitude entre les résultats des analyses effectuées sur les cinq échantillons centraux (1408/4 à 1418) et ceux que nous avions obtenus sur l'échantillon KN 50 - 3548 [1]. De part et d'autre de ces échantillons, on observe :

- une augmentation des abondances des isotopes ^{142}Nd, ^{144}Sm, ^{154}Sm et ^{160}Gd qui sont les témoins de la présence d'éléments naturels ;
- une augmentation des abondances des isotopes ^{151}Eu et ^{164}Dy, attestant une diminution correspondante de la fluence ;
- une augmentation des abondances des isotopes fortement capturants ^{149}Sm, ^{155}Gd et ^{157}Gd, qui indique soit une irradiation neutronique faible, soit une arrivée postérieure d'élément naturel pas ou peu irradié ;
- une diminution des abondances des isotopes ^{152}Gd et ^{154}Gd, attestant une diminution correspondante du transport Eu-Gd après captures neutroniques sur les isotopes ^{151}Eu et ^{153}Eu ;
- une évolution systématique des compositions isotopiques qui tendent à se rapprocher des compositions isotopiques naturelles ; la similitude est particulièrement frappante pour les échantillons 1892 et surtout 1901 et 1905.

La figure 2 représente les distributions, le long du sondage, de l'uranium et des trois terres rares : néodyme, samarium et gadolinium. Les quantités mesurées, exprimées en atomes d'élément par gramme de minerai, correspondent pour les terres rares à des mélanges élément naturel/élément de fission. On observe pour les deux terres rares les plus légères, qui sont aussi celles de rendements de fission les plus élevés, trois maximums de concentration qui correspondent aux trois maximums de concentration de l'uranium ; ils sont situés au niveau des échantillons (1408/4 à 1418), 1423/5 et 1901. Sur la courbe du gadolinium, le premier maximum est moins prononcé, le second est totalement escamoté.

Les tableaux II à VI et principalement l'examen des isotopes ^{142}Nd, ^{144}Sm, ^{154}Sm et ^{160}Gd indiquent que l'élément naturel est largement minoritaire dans le premier maximum, et au contraire quasi-exclusif dans le dernier ; la différentiation est moins aisée pour le deuxième maximum, mais les analyses isotopiques et essentiellement les abondances des isotopes précédemment cités présentent une discontinuité très nette au niveau des échantillons 1421/4 et 1423/5.

Ces quelques remarques permettent d'affirmer que :

- les échantillons 1408/4 à 1418 sont constitués pour l'essentiel d'élément formé par fission, en quantité importante ;
- l'échantillon 1901 est constitué presque exclusivement d'élément naturel, en quantité importante par rapport aux quantités formées par fission dans la zone de réaction ;

- l'échantillon 1423/5 est constitué d'élément naturel et d'élément de fission, dans des proportions relatives telles qu'aucun de ces deux constituants ne semble être prépondérant.

1.1 Echantillons du coeur

L'étude des quatre échantillons du coeur (1408/4 à 1418) est effectuée selon le modèle que nous avions appliqué à l'échantillon KN 50-3548 et qui est défini dans [1].

Rappelons quelques points particuliers. L'élément naturel est déterminé à partir des isotopes ^{142}Nd (corrigé des contributions dues au praséodyme et au cérium), ^{144}Sm et ^{160}Gd ; l'absence d'information mesurable à la masse 157 du gadolinium autorise à exclure toute arrivée d'élément naturel non irradié postérieurement aux réactions nucléaires ; la fluence et l'indice de spectre sont déterminés à partir des couples d'isotopes (^{143}Nd, ^{144}Nd) et (^{147}Sm, ^{148}Sm) ; le facteur de conversion s'obtient par comparaison entre la fluence subie par les produits de fission et celle déduite de l'appauvrissement de l'uranium ; les pourcentages de participations aux fissions des noyaux fissiles ^{238}U et ^{239}Pu (α et β) découlent des compositions isotopiques ; enfin, le nombre de fissions, déterminé pour chaque élément et rapporté à l'uranium actuel, est obtenu à partir des concentrations de groupes d'isotopes peu affectés par les captures neutroniques.

Sur ces bases de calcul, nous obtenons les décompositions élément naturel/élément formé par fission indiquées dans les colonnes 2 et 3 des tableaux VII à IX pour les trois terres rares néodyme, samarium et gadolinium, ainsi que les principaux paramètres des réactions nucléaires rassemblés dans le tableau X. Nous avons utilisé pour les sections efficaces de captures neutroniques des isotopes ^{143}Nd et ^{147}Sm les expressions suivantes, exprimées en barns : (338 - 100 r) et (52 + 600 r) respectivement [6].

La figure 3 représente les courbes de variation de certains paramètres le long de la partie centrale du sondage. On observe une corrélation très nette entre les variations du rapport $^{235}U/^{238}U$, de la fluence et du nombre de fissions déterminé à partir des analyses de néodyme. Cependant si l'on compare les nombres de fissions déterminés à partir du néodyme à ceux obtenus à partir du samarium ou du gadolinium, on observe des fluctuations qui apparaissent dans les colonnes 8 à 10 du tableau X. La comparaison néodyme-samarium indique que les migrations relatives de ces deux éléments sont demeurées faibles, par contre le désaccord s'accentue avec le gadolinium.

Ces légers désaccords nous amènent à étudier de façon plus approfondie les migrations de ces trois terres rares dans le coeur. Avant d'aborder ce problème, il est utile de pouvoir se rapporter à un ensemble d'échantillons constituant une référence. Trois échantillons, extérieurs au sondage SC 36, ont été choisis en fonction des critères suivants : teneur en uranium supérieure à 50 %, uranium très appauvri, fluence élevée. Les caractéristiques de ces trois échantillons sont indiquées dans le tableau XI. On a inclus dans ce tableau les valeurs de la date calculée pour chaque élément à partir des concentrations en produits de fission correspondantes. Les trois échantillons situés au centre du sondage SC 36 s'intègrent parfaitement dans le groupe des échantillons de référence.

Le calcul de la date des réactions à partir de la mesure des quantités de produits de fission formés a été exposé dans [1]. En première

approximation, l'expression finale proposée peut s'écrire sous la forme condensée suivante :

$$d = \frac{1}{\lambda_5} \text{Ln} \left(A \cdot \frac{Nf_5}{U} \cdot \frac{1}{\tau}\right) \qquad (1)$$

où d est la date de la réaction ; λ_5 est la constante radioactive de ^{235}U ; (Nf_5/U) est le nombre de fissions de l'uranium 235 rapporté à l'uranium actuel ; τ est la fluence et A est une expression numérique caractéristique de l'échantillon.

Une particularité est à noter : alors que toutes les valeurs de la date déterminées à partir des analyses de néodyme et de samarium concordent autour d'une valeur moyenne de l'ordre de 1,95 milliard d'années, celles déterminées à partir des analyses de gadolinium sont groupées autour d'une valeur légèrement inférieure, voisine de 1,8 milliard d'années.

En fait, la détermination du nombre de fissions à partir des analyses de gadolinium est très délicate. Elle est en effet basée sur la mesure des quantités d'isotopes (155 + 156) et (157 + 158) produits par fission, qui ne représentent en moyenne, par rapport au gadolinium total et dans les échantillons du coeur, que 15 % et 4 % respectivement. Et la détermination du nombre de fissions à partir de ces quantités mesurées dépend de façon très étroite des valeurs de α et β.

De plus, dans ces échantillons du coeur, l'isotope 154 représente à lui seul entre 20 et 30 % du gadolinium total et possède une section efficace de capture neutronique non négligeable et surtout très dépendante du spectre neutronique. La correction due aux captures sur cet isotope, qui contribuent à augmenter l'abondance des isotopes (155 + 156), est de ce fait très importante.

Enfin, la répartition entre élément naturel et élément de fission est basée sur l'abondance mesurée de l'isotope 160 ; or, dans la fission, l'abondance de cet isotope dépend beaucoup du noyau fissile.

Pour chaque élément, nous avons déterminé le nombre de fissions théorique, donc les quantités théoriques de produits de fission formés, en utilisant la valeur de la date déterminée pour l'élément correspondant de la référence et la fluence calculée à partir des analyses isotopiques. Les valeurs des quantités de produits de fission mesurées et calculées sont regroupées dans les tableaux VII à IX pour les quatre échantillons du coeur ainsi que les deux échantillons directement adjacents, 1402 au toit et 1421/4 au mur. Dans ces tableaux, Δ est la différence entre les quantités mesurée et calculée de l'élément de fission rapportée à la quantité correspondante mesurée dans l'échantillon 1418 (cet échantillon a été choisi arbitrairement).

On constate que les écarts ainsi pondérés sont faibles, particulièrement pour le néodyme où ils restent limités à 5 % en valeur absolue. Les variations de ces écarts le long de la coupe sont représentées sur la figure 4 pour les six échantillons considérés. On observe alternativement un défaut et un excès de terres rares de fission, et ces défauts comme ces excès semblent plus importants pour le samarium et le gadolinium que pour le néodyme. En outre, le défaut correspond à un maximum de concentration (1410/3 et 1418), alors qu'à l'inverse l'excès correspond à un minimum de concentration (1413/3). On observe donc un certain étalement des terres rares de fission, qui a tendance à combler les creux au détriment des bosses.

En ce qui concerne les deux échantillons directement adjacents au coeur, on constate au mur (1421/4) un excès de terres rares de fission qui a tendance à augmenter pour les terres rares lourdes, et au toit (1402) un léger excès de néodyme associé à un défaut en samarium et en gadolinium.

En résumé, on peut affirmer que les migrations qui ont affecté les terres rares de fission formées au coeur de la zone de réaction sont restées faibles, particulièrement pour le néodyme. Il semble qu'elles aient pris plus d'importance lorsqu'on se déplace vers les terres rares lourdes.

1.2 Echantillons de bordures, côté mur

Nous considérons dans ce paragraphe les trois échantillons 1899/4, 1901 et 1905. L'échantillon 1901 sera plus particulièrement étudié, car il lui correspond un maximum de concentration très prononcé en uranium et en terres rares.

En bordure, les concentrations en uranium deviennent faibles, comparables à celles enregistrées dans le minerai normal exploité dans le reste du gisement, et les appauvrissements sont voisins de 1. De ce fait, nous supposons dans un premier temps l'absence de terres rares de fission produites localement. Dans ces conditions, les quantités de terres rares de fission mesurées sur ces échantillons proviennent du coeur, puisque nous savons que les concentrations en terres rares de fission sont largement prépondérantes dans cette portion du sondage.

Nous avons choisi l'échantillon 1418 constitué essentiellement de produits de fission, comme échantillon type : on admet dans la suite que les compositions isotopiques et chimiques de cet échantillon sont caractéristiques du coeur de la zone de réaction ; les excédents de terres rares de fission sont comparés aux quantités mesurées dans l'échantillon type.

Les résultats sont illustrés pour l'échantillon 1901 dans les tableaux XII à XIV ; ils mettent en lumière l'excellent accord ainsi obtenu pour les trois terres rares entre la composition isotopique corrigée et celle de l'élément naturel. La quantité de gadolinium de fission est très faible (inférieure à 0.1 %) et n'apparaît pas dans le tableau XIV ; pour les deux autres échantillons, où cette quantité est voisine de 1 %, on peut facilement identifier trois composantes : élément naturel, élément formé par fission et élément résultant des captures sur les isotopes de l'europium.

Les résultats des répartitions effectuées pour les trois échantillons sont groupés dans le tableau XV. Dans la dernière colonne de ce tableau, les chiffres indiqués se rapportent à la totalité du gadolinium résultant des captures neutroniques sur l'europium, soit formé sur place, soit provenant de l'échantillon type.

On peut constater sur les tableaux XII à XIV que la fluence reçue par les échantillons corrigés des produits de fission est suffisamment faible pour ne pas modifier les isotopes capturants ^{143}Nd, ^{145}Nd et ^{147}Sm. Par contre, on observe des défauts importants des isotopes fortement capturants : ^{149}Sm, ^{155}Gd et ^{157}Gd. Les transferts correspondants permettent de calculer la fluence subie par ces échantillons, à condition de connaître les sections efficaces effectives de capture neutronique de ces isotopes. Or, cette dernière détermination est délicate car ces sections effectives dépendent à la fois du spectre neutronique et de la température.

Le tableau XVI indique les valeurs du produit ($\sigma.\tau$) ainsi que les fluences calculées pour un même indice de spectre (r = 0.05) et deux valeurs de la température, 40 °C et 400 °C.

Pour une température de 40 °C, on observe un désaccord profond entre les différentes valeurs des fluences ; pour des températures plus élevées, ce désaccord a tendance à se réduire, principalement pour l'échantillon 1901 très riche en terres rares naturelles. Cependant, pour expliquer la composition isotopique de l'échantillon voisin 1899/4, on remarque que l'on ne peut pas exclure un apport d'élément naturel peu ou pas irradié.

Au niveau du maximum de concentration en terres rares naturelles (échantillons 1899/4 - 1901), l'étude du samarium et du gadolinium conduit donc à des valeurs de la fluence que l'on peut estimer comprises entre 0.5 10^{19} n/cm^2 et 1.0 10^{19} n/cm^2, soit plus de cent fois plus faibles qu'au coeur, et à des températures élevées, de l'ordre de 300 à 400 °C ; cependant, des migrations d'éléments dans cette zone, également mises en évidence, tendent à accroître sensiblement les marges d'incertitude correspondantes.

Les valeurs des appauvrissements et des fluences calculées sur ces échantillons conduisent à des nombres de fissions rapportés aux noyaux d'uranium de l'ordre de 0.0001, et les terres rares de fission ainsi formées restent toujours inférieures à 10 % de la valeur mesurée. Les quantités absolues de produits de fission qui ont migré, telles qu'elles peuvent être calculées à partir des valeurs rapportées dans le tableau XV, constituent en tout état de cause des valeurs limites supérieures.

Le tableau XVII indique pour chaque échantillon la quantité de terres rares de fission excédentaire maximale, exprimée en atomes par gramme de minerai, et rapportée à la quantité totale de fission mesurée dans l'échantillon type 1418(Δ). On obtient des pourcentages faibles, ce qui illustre une nouvelle fois la stabilité des terres rares. La limite de migration côté mur peut être estimée à environ 80 cm à partir du coeur (échantillon 1418). A cette distance, l'excès de fission pour les trois terres rares représente moins de 1 % de la quantité correspondante mesurée au centre de la zone de réaction.

1.3 Echantillons directement adjacents au coeur côté mur

Nous avons regroupé les trois échantillons situés en bordure immédiate du coeur, côté mur : 1421/4, 1423/5 et 1425/1. L'emplacement privilégié de ces échantillons rend leur étude particulièrement intéressante, car l'examen de la figure 2 les montre pris "en sandwich" entre un maximum de concentration en produits de fission et un maximum constitué d'éléments naturels peu irradiés.

Les fluences calculées pour ces trois échantillons (voir tableau X) sont très élevées mais incompatibles avec les nombres de fission mesurés ; les calculs conduisent pour les trois échantillons à des âges trop grands. L'équation (1) du calcul de la date indique que celle-ci est en première approximation proportionnelle au nombre de fissions et inversement proportionnelle à la fluence. Deux hypothèses non exclusives permettent de retrouver des âges comparables aux âges des échantillons de référence : elles supposent soit un excès de produits de fission (ce qui a pour effet de diminuer les nombres de fission), soit un excès de terres rares pas ou peu irradiées (ce qui a pour effet d'augmenter les fluences).

Ces deux hypothèses ne sont pas exclusives, et une infinité de solutions sont envisageables pour expliquer les compositions et les concentrations mesurées. A défaut de pouvoir résoudre ce problème à trois composantes (terres rares locales naturelles et/ou de fission, terres rares de fission irradiées excédentaires, terres rares naturelles pas ou peu irradiées excédentaires), nous avons essayé d'atteindre les valeurs maximales que l'on peut attribuer aux migrations des terres rares en provenance soit du coeur, soit des bordures.

Pour simplifier, nous avons admis les correspondances suivantes : l'excès de produits de fission est attribué exclusivement à une migration en provenance du coeur et précisément de l'échantillon 1418 ; l'excès de terres rares naturelles pas ou peu irradiées est attribué exclusivement à une migration en provenance d'un maximum de concentration en terres rares naturelles peu irradiées et précisément de l'échantillon 1901. Les calculs sont alors entrepris selon la séquence suivante : étude, à partir des analyses de néodyme et de samarium, des domaines de variation de la fluence et du nombre de fissions compatibles avec la date de référence ; détermination des pourcentages d'échantillons 1418 et 1901 correspondant aux limites de ces domaines de variation.

Pour le samarium, l'excès d'échantillon 1901 est déterminé directement à partir de l'isotope 149, en exprimant la différence entre la quantité d'isotope 149 mesurée et celle qui découle des valeurs calculées des fluences. On montre en effet que le rapport isotopique de fission 149/(147 + 148) est inversement proportionnel à la fluence, et obéit à la loi :

$$\frac{149}{147 + 148} = \frac{\gamma_9}{\gamma_7} \frac{\text{Ln } W}{W - 1} \frac{1}{\sigma_9 . \tau} \qquad (2)$$

où γ_7 et γ_9 sont les rendements de fission des isotopes 147 et 149 respectivement ; W est l'inverse de l'appauvrissement de l'uranium et σ_9 est la section efficace de capture neutronique de l'isotope 149.

On peut remarquer que dans le cas de l'échantillon 1421/4, la quantité d'isotope 157 mesurée ne s'explique pas exclusivement par un apport de gadolinium naturel non irradié, en raison d'incompatibilités au niveau des isotopes 155 et 156. Cette constatation vient à l'appui de l'hypothèse d'une migration à partir de concentrations locales faiblement irradiées comparables à celles observées au niveau de l'échantillon 1901.

La figure 5 résume les résultats obtenus sur ces trois échantillons ; les excès observés sont exprimés en atomes par gramme de minerai et rapportés à la quantité correspondante mesurée dans un échantillon type, échantillon 1418 ou 1901 selon le cas. Nous avons également fait figurer sur ce schéma les résultats correspondant aux deux échantillons 1901 et 1905 et relatifs aux excès de produits de fission observés (voir paragraphe 1.2). Les deux hypothèses formulées précédemment étant traitées indépendamment l'une de l'autre, les excès indiqués pour chacune d'entre elles correspondent à des valeurs maximales.

En ce qui concerne les migrations d'élément naturel faiblement irradié, on constate que les quantités ayant migré restent faibles, inférieures à 10 % de la quantité mesurée dans l'échantillon type 1901 ; elles sont maximales pour les échantillons directement adjacents à la zone concernée, puis diminuent régulièrement au fur et à mesure que l'on s'en éloigne. Les différentes courbes de migration que l'on est amené à tracer à

partir des domaines de variation représentés sur la figure 5 présentent toutes la même allure, caractéristique d'un phénomène de diffusion dont l'épicentre est localisé au niveau de l'échantillon 1901.

Par contre, l'interprétation des excès de produits de fission en provenance du coeur (échantillon type 1418) est plus délicate. Les courbes de migration que l'on peut tracer présentent un maximum qui reste situé approximativement dans la zone délimitée par les échantillons 1425/1 et 1901 ; ces courbes excluent donc une migration orientée dans le sens du sondage.

D'autre part, une migration ayant opéré exclusivement dans le sens de la couche n'aurait occasionné qu'un déplacement des produits de fission sans en modifier la distribution. La figure 5 suggère plutôt un lessivage des produits de fission formés au coeur de la zone de réaction selon un pendage légèrement décalé par rapport au sondage ; la zone située au niveau de l'échantillon 1425/1, entre le coeur et l'échantillon 1901, aurait constitué une zone particulièrement propice à la circulation de ces produits de fission. Toutefois, dans le cas du néodyme par exemple, ces phénomènes n'ont pas conduit à accumuler en bordure de la zone de réaction plus de 3 % en moyenne du néodyme total formé par fission au coeur.

1.4 Echantillons situés au toit du gisement

Sont regroupés dans ce paragraphe les deux échantillons 1892 et 1402. D'une façon générale, les interprétations des analyses sont identiques à celles proposées pour les échantillons homologues situés côté mur.

On observe au niveau de l'échantillon 1402 un défaut de produits de fission par rapport aux valeurs que l'on peut calculer en utilisant la fluence déterminée à partir des analyses isotopiques de néodyme et de samarium. (Les résultats relatifs à cet échantillon sont indiqués dans les tableaux VII à IX). En ce qui concerne le néodyme, l'écart n'est pas significatif ; par contre, le défaut en terres rares lourdes est plus marqué.

Un défaut en terres rares de fission au niveau de l'échantillon 1402 peut surprendre, compte tenu de sa position en bordure immédiate d'une zone de concentration maximale en produits de fission. Un lessivage des produits de fission du toit vers le mur du gisement constitue une hypothèse plausible quant à l'interprétation des résultats. Cependant, nous verrons plus loin qu'un excès d'uranium constitue une hypothèse peut-être plus séduisante. On remarque d'autre part que l'on observe en bordure plus lointaine (échantillon 1892 - voir plus loin) un excès très net de terres rares de fission.

Quant à l'échantillon 1892, il peut être aisément rapproché des échantillons correspondants situés côté mur, tout au moins en ce qui concerne les quantités excédentaires de terres rares de fission observées. Les principaux résultats qui lui sont relatifs ont de ce fait été inclus dans les tableaux XV et XVII. Une seule particularité discutée au chapitre 2 le distingue de ses homologues : l'appauvrissement élevé de l'uranium.

1.5 Distribution des terres rares de fission

Les distributions des terres rares de fission sont illustrées sur la figure 6, où elles peuvent être comparées à la courbe correspondante de

l'uranium. L'examen de cette figure souligne bien la stabilité générale des terres rares de fission. Tout au plus observe-t-on un léger glissement des produits de fission du toit vers le mur, glissement progressif dans le sens néodyme-samarium-gadolinium et particulièrement dans la zone centrale au niveau des échantillons 1408/4 à 1418, ainsi qu'une très légère augmentation de la quantité relative de terres rares de fission au niveau des échantillons 1421/4 et surtout 1423/5 et 1425/1, côté mur ; une remarque analogue peut être formulée à l'égard de l'échantillon 1408/4, situé côté toit.

La figure 7 représente les variations des rapports des produits de fission samarium/néodyme et gadolinium/néodyme le long du sondage (rapports atomiques). On observe bien des valeurs identiques pour les trois échantillons situés au coeur de la zone de réaction ; les rapports tendent à augmenter pour les échantillons adjacents, principalement au mur, atteignant des valeurs maximales pour l'échantillon 1425/1, situé à 35 cm du coeur (1418), puis chutent rapidement vers des valeurs nettement plus faibles (échantillon 1901). Aux bordures extrêmes du sondage, au toit comme au mur, on observe un excès de gadolinium de fission par rapport au néodyme et par rapport au samarium. Les migrations des terres rares de fission à partir du coeur ont donc entraîné un fractionnement.

Une façon différente d'aborder ce problème de migrations consiste à se limiter à des groupes fermés d'isotopes stables, non affectés par les captures neutroniques et dépendant peu du noyau fissile initial, donc insensibles aux innombrables aventures ayant pu affecter les éléments pendant les réactions. Deux groupes d'isotopes répondent à ces caractéristiques : (143 + 144)Nd et (147 + 148)Sm. Nous avons regroupé dans le tableau XVIII les quantités mesurées et calculées de chacun de ces deux groupes d'isotopes. C'est une illustration supplémentaire de la stabilité des principales terres rares de fission par rapport à leur parent commun, l'uranium.

1.6 Distribution des terres rares naturelles

Les distributions des terres rares naturelles présentes actuellement sont illustrées sur la figure 8 pour les trois éléments néodyme, samarium et gadolinium. La similitude entre ces trois courbes est frappante ; on retrouve exactement le même motif pour les trois terres rares : minimum de concentration au centre de la zone de réaction, légère remontée de part et d'autre de cette zone, et maximum très prononcé et surtout très localisé au niveau de l'échantillon 1901.

Il est intéressant d'examiner les variations le long du sondage des rapports des quantités d'éléments naturels samarium/néodyme et gadolinium/néodyme, en ayant soin cependant de se reporter aux quantités présentes avant les réactions nucléaires. En effet, les captures neutroniques sur les isotopes situés en fin de chaîne (^{146}Nd par exemple) ou isolés (^{148}Nd par exemple) ont entraîné une diminution des quantités présentes initialement ; en fait, seul le samarium présente une très grande sensibilité vis-à-vis de cet effet (captures neutroniques sur l'isotope 152 principalement).

Les quantités présentes avant les réactions ont été calculées en utilisant les valeurs de la fluence déterminée le long du sondage. Les résultats rapportés au néodyme sont illustrés sur la figure 9. On a également reporté sur cette figure les valeurs du rapport dysprosium naturel/néodyme naturel corrigé comme indiqué ci-dessus (voir aussi paragraphe 1.8).

Les variations des trois rapports le long du sondage présentent exactement le même profil : à partir des échantillons du coeur, on observe une augmentation importante de tous les rapports, y compris du rapport Dy/Nd, puis une diminution sensible à partir de l'échantillon 1901.

Le fractionnement des terres rares naturelles illustré sur cette figure peut être rapproché de celui observé pour les terres rares de fission (voir figure 7). Comme indiqué précédemment, l'origine des migrations au mur est vraisemblablement située au niveau de l'échantillon 1901 ; la comparaison avec la figure 5 (courbe supérieure) suggère un fractionnement lié à l'étalement du pic de concentration maximale.

Cependant, la similitude entre les courbes de la figure 9 semble indiquer un fractionnement important du néodyme par rapport aux terres rares plus lourdes. On constate d'autre part que les valeurs des différents rapports pour l'échantillon 1901 sont voisines de celles des échantillons du coeur, ce qui tend à suggérer une concentration sélective du néodyme liée à l'accumulation d'uranium. Les rapports des quantités d'élément naturel samarium/néodyme, gadolinium/néodyme et dysprosium/néodyme mesurées dans l'échantillon 1901 peuvent sans doute être considérés comme caractéristiques des zones à forte concentration en uranium du gisement d'Oklo.

1.7 Etude de l'europium

La figure 10 représente les courbes de distributions des quantités d'uranium et d'europium mesurées le long du sondage. On constate que les deux courbes présentent la même allure générale. Par analogie avec la figure 2 et le commentaire qui lui est associé, on peut dès à présent affirmer que l'*europium* de fission actuellement présent dans le gisement se retrouve en première approximation aux endroits où est situé l'*uranium*, et que l'europium de l'échantillon 1901 est constitué pour l'essentiel d'élément naturel.

Mais dans le cas de l'europium, élément di-atomique, il est impossible d'effectuer directement la séparation élément naturel/élément de fission ; une approximation peut être envisagée à partir des courbes de distribution des autres terres rares naturelles (figure 8). La similitude de ces différentes courbes impose pour l'europium une distribution similaire, basée sur la quantité présente au niveau de l'échantillon 1901 ; une fois déduite de la distribution totale mesurée (figure 10), elle conduit à une répartition de l'europium formé par fission tout à fait comparable à celles représentées sur la figure 6 pour les trois autres terres rares.

Mais l'europium que l'on retrouve aujourd'hui ne représente qu'une partie de l'europium formé initialement par fission ; *en effet*, les deux isotopes possèdent des sections efficaces de capture importantes. Les captures neutroniques engendrent une cascade de réactions nucléaires particulièrement complexe. Nous nous limiterons à l'étude succincte des conséquences de ces captures, à savoir les perturbations apportées aux compositions du samarium et du gadolinium.

Pour chaque échantillon du sondage, il est possible de déterminer les quantités excédentaires observées sur les isotopes ^{152}Sm, ^{152}Gd et ^{154}Gd; pour cela, nous avons admis que l'isotope 152 représente 7.7 % du samarium total (cette valeur correspond à : $\alpha = \beta = 3$ %) ; pour le gadolinium, l'excès correspond aux quantités mesurées directement au niveau des isotopes

152 et 154, déduction faite des quantités faibles correspondant à l'élément naturel. La figure 10 représente les quantités de samarium et de gadolinium excédentaires ainsi déterminées le long du sondage.

La similitude entre cette courbe et les courbes correspondantes représentant les quantités de produits de fission mesurées pour le samarium et le gadolinium (voir figure 6) conduit à écarter l'hypothèse d'une remobilisation conséquente de ces terres rares de fission dans le gisement d'Oklo, puisque même les transferts nucléaires entre les différents éléments ont gardé leur configuration originelle depuis l'époque des réactions.

1.8 Etude du dysprosium

L'étude du dysprosium présente un intérêt particulier par rapport aux quatre autres terres rares considérées jusqu'à présent : les rendements de fission des différents isotopes étant très faibles, le dysprosium mesuré dans le gisement d'Oklo est presque exclusivement composé d'élément naturel.

L'isotope 164 possède une section de capture neutronique importante, et l'analyse du dysprosium permet donc a priori de calculer la fluence reçue par cet élément non produit par fission. En fait, le problème ne se résume pas à l'étude d'un seul transfert nucléaire car tous les isotopes, de 160 à 164, possèdent des sections de capture neutronique non négligeables ; il faut donc résoudre un schéma de captures successives. De plus, certains isotopes et en particulier l'isotope 162 sont très sensibles à la partie épithermique du spectre neutronique. Enfin, le terbium 160 résultant d'une capture neutronique sur le terbium 159 décroît rapidement en dysprosium 160, ce qui entraîne un excès de ce dernier isotope.

Aussi, les déterminations de la fluence et de l'indice de spectre ont été effectuées de la manière suivante : on calcule les compositions isotopiques du dysprosium irradié en utilisant différentes valeurs des paramètres nucléaires de façon à obtenir des séries de compositions isotopiques théoriques que l'on compare ensuite aux compositions isotopiques mesurées. Cette méthode permet de déterminer la fluence des échantillons très irradiés avec une précision relative de l'ordre de 2 %. (Bien entendu, la sensibilité diminue avec la fluence ; lorsque celle-ci devient inférieure à $0.1\ 10^{21}$ n/cm^2, l'incertitude peut dépasser 5 %).

Une estimation de la quantité de terbium naturel présente dans le gisement, effectuée à partir de la comparaison entre les concentrations relatives des différentes terres rares dans des sédiments et dans l'échantillon 1901, conduit à un rapport terbium naturel/dysprosium naturel dans Oklo de l'ordre de 0.3. En fait, cette approximation est justifiée puisque, pour expliquer l'abondance mesurée de l'isotope 160 dans les échantillons du coeur, il faut affecter à ce rapport des valeurs très voisines de 0.23 (voir tableau XIX) ; une valeur légèrement plus élevée doit être appliquée à l'échantillon 1418. Pour les autres échantillons situés en bordure, la fluence est trop faible et ne permet pas de déterminer ce rapport avec une précision suffisante.

Le tableau XIX résume les résultats obtenus. Il est intéressant de comparer ces valeurs à celles déterminées à partir des analyses de néodyme et de samarium ; les figures 11 et 12 permettent les comparaisons entre les valeurs respectives de la fluence et de l'indice de spectre.

Dans les deux cas, la fluence culmine à environ 1.4 10^{21} n/cm^2 au niveau de l'échantillon 1413/3 situé exactement au centre de la zone de réaction, puis décroît régulièrement de part et d'autre, plus vite cependant pour le dysprosium que pour les deux terres rares légères. Ce dernier effet est important : par exemple, pour l'échantillon du coeur 1418, les deux déterminations diffèrent entre elles d'un facteur 2.5.

L'écart observé ne peut s'expliquer par un ajustement des valeurs des sections efficaces de captures neutroniques ; cependant, nous avons déjà montré que pour les échantillons adjacents au coeur on ne peut exclure un apport d'élément en provenance de zones à accumulation préférentielle en terres rares naturelles comparables à celle observée au niveau de l'échantillon 1901. Un tel apport aurait eu pour effet de réduire la fluence apparente pour les échantillons concernés. Or toutes les compositions isotopiques mesurées peuvent s'expliquer par un mélange adéquat entre d'une part du dysprosium naturel irradié avec la fluence "locale" telle qu'elle est déterminée à partir des analyses de néodyme et de samarium, et d'autre part du dysprosium naturel irradié avec une fluence plus faible (de l'ordre de 0.01 à 0.1 10^{21} n/cm^2) et qui proviendrait de zones analogues à celle décrite précédemment. Ce schéma suppose une mobilité plus grande du dysprosium par rapport aux terres rares légères. Notons toutefois que ces migrations n'affectent que des quantités de matière extrêmement faibles, puisque le dysprosium mesuré au coeur ne représente en poids qu'environ 1 ppm par rapport au minerai.

En ce qui concerne l'échantillon central 1413/3, les quantités absolues mesurées sont très faibles, comme on peut s'y attendre d'après l'examen des courbes de distributions des quantités de terres rares naturelles le long du sondage (figure 8) ; compte tenu du nombre de fissions calculé, la proportion de dysprosium formé par fission présent dans cet échantillon peut être estimée à environ 4 %. On en déduit pour cet échantillon un rapport dysprosium naturel/néodyme naturel égal à 0.032, antérieurement aux réactions nucléaires ; ce même rapport mesuré dans l'échantillon 1901 est égal à 0.031.

Cependant, les écarts observés entre les différentes valeurs calculées de la fluence ne sauraient faire oublier la similitude existant entre les deux courbes de variation de cette fluence, déterminée d'une part à partir du néodyme et du samarium, éléments formés principalement par fission, et d'autre part à partir du dysprosium, élément présent presque exclusivement à l'état naturel. Cette similitude conduit à exclure une remobilisation importante des terres rares lourdes dans le gisement d'Oklo.

Cette constatation se trouve encore renforcée par l'examen de la figure 12, qui décrit la variation le long du sondage de l'indice de spectre déterminé par les deux méthodes. Les deux courbes présentent le même profil, les minimums et maximums sont parfaitement en phase. De plus, ce profil est calqué très étroitement sur le profil de la distribution de l'uranium le long de la coupe : plus l'échantillon est riche en uranium, moins il comporte d'eau, élément ralentisseur des neutrons, et plus le spectre neutronique est dur. La variation de l'indice de spectre le long du sondage traduit très fidèlement cette remarque.

2. MIGRATIONS DE L'URANIUM

Toute étude de migration suppose une référence ; dans cette étude, la référence fondamentale reste l'uranium. Tous les phénomènes de migration

d'éléments ont de ce fait été examinés en supposant l'uranium stable ; en particulier, lors des discussions relatives aux valeurs des nombres de fissions rapportés aux noyaux d'uranium, nous n'avons envisagé que des excès ou des défauts de produits de fission. Or , il est bien évident qu'un excès de produits de fission équivaut à un défaut d'uranium et vice versa.

Des études de neutronique ont montré qu'une continuation du dépôt d'uranium pendant les réactions ne semblait pas être intervenue de façon importante, notamment en raison des ordres de grandeur des fluences observées (9). Néanmoins, rien ne permet d'exclure une migration ou tout au moins une mobilité préférentielle de l'uranium liée à certaines particularités du gisement.

La présente étude, basée principalement sur les mesures des nombres de fission rapportés à l'uranium, ne permet pas de trancher quant au problème des migrations de l'uranium. Ainsi, dans les échantillons de bordure situés au mur du gisement, nous avons toujours observé pour les nombres de fission rapportés aux noyaux d'uranium des valeurs trop élevées. Ces valeurs ont été attribuées jusqu'à présent à des excès de produits de fission, mais elles peuvent également être interprétées comme des défauts d'uranium. Bien que cette dernière hypothèse ne puisse être entièrement exclue, il paraît peu vraisemblable d'imaginer un défaut en uranium en des endroits situés en bordure immédiate d'un maximum très prononcé de concentration en uranium. Par contre, pour l'échantillon 1402 situé au toit et auquel correspond un défaut en produits de fission, le désaccord peut s'expliquer par un excès d'uranium. Toutes choses égales par ailleurs, la teneur en uranium de cet échantillon nécessaire pour résorber l'écart observé au niveau du samarium de fission est 2.0 % alors que la valeur mesurée est de 2.7 %. Rapporté à l'uranium présent au coeur, l'effet observé équivaut donc à un déplacement éventuel d'uranium en quantités particulièrement faibles.

En résumé, les distributions de l'uranium et des terres rares de fission telles qu'elles apparaissent le long de ce sondage permettent d'affirmer que les migrations d'uranium, si elles ont eu lieu, sont restées suffisamment modestes pour ne pas perturber en profondeur les distributions originales.

3. DATE DES REACTIONS NUCLEAIRES

Il découle de la présente étude que parmi toutes les terres rares de fission étudiées, le néodyme est l'élément qui est resté le plus étroitement lié à son parent l'uranium. De plus, dans le cas du néodyme, le seul effet observé au coeur est un très léger étalement des concentrations maximales au profit des zones à concentration plus faible ; ce phénomène ne représente en quantité que quelques pour cent des quantités présentes. Il est donc justifié de déterminer la date des réactions nucléaires à partir des quantités de néodyme de fission produites dans les échantillons fortement irradiés et à concentration très élevée en néodyme de fission, ceci afin de réduire au maximum les écarts relatifs dus à des effets de migration.

Huit échantillons analysés au C.E.A. sont conformes à ce type ; ils sont indiqués dans le tableau XX. Sont également rassemblés dans ce tableau les résultats des analyses d'uranium, le produit $(\sigma.\tau)$, la fluence déterminée à partir du transfert $^{143}Nd/^{144}Nd$, le nombre de fissions rapporté à l'uranium ainsi que les valeurs de la date des réactions telles qu'elles découlent de l'application de la formule générale explicitée dans [1] et

mentionnée sous forme condensée ci-dessus au paragraphe 1.1 (formule (1)). Nous avons adopté pour la section efficace de capture neutronique de l'isotope ^{143}Nd l'expression (338 - 100 r) exprimée en barns ; en effet, des irradiations neutroniques effectuées récemment au C.E.A. [6] n'ont pas confirmé la valeur proposée par W.J. Maeck et al. au colloque international sur le phénomène d'Oklo (Libreville, juin 1975).

Tous ces échantillons conduisent à une valeur de la date incluse dans une fourchette particulièrement étroite, y compris l'échantillon KN 50 323 et qui ne renferme pourtant que 7 % d'uranium. Ce tableau confirme, une fois de plus, l'excellente cohésion qui a caractérisé le couple (uranium, néodyme) pendant les deux milliards d'années de refroidissement des réacteurs nucléaires fossiles d'Oklo. La valeur moyenne de toutes ces déterminations est de 1,98 milliard d'années.

En ne tenant compte que des effets de migration de produits de fission dans le coeur tels qu'ils ont été mis en évidence dans le présent rapport, la précision relative sur cette date est de l'ordre de 3 %. Il subsiste donc un désaccord entre la valeur de la date déterminée par la mesure des produits de fission de l'uranium d'une part, et celle qui découle des études géochronologiques d'autre part, cette dernière étant inférieure d'environ 10 %.

Des réajustements des sections efficaces n'ont pas permis d'aboutir à une harmonisation des résultats. Cependant, l'écart constaté entre les différentes valeurs de l'âge pourrait s'expliquer par une migration de l'uranium. Outre que d'après le tableau XX cette migration aurait dû avoir un caractère uniforme, elle aurait dû affecter environ 20 % des quantités d'uranium présentes, tout en épargnant les quantités importantes de néodyme de fission observées. Un phénomène d'une telle ampleur aurait dû laisser des traces ; au vu de l'ensemble des résultats actuellement disponibles sur Oklo, et en particulier de ceux qui découlent de la présente étude, une telle éventualité ne semble pas devoir être retenue.

4. CONCLUSION

Cette étude relative aux migrations des produits de fission le long d'un sondage effectué dans le gisement d'Oklo confirme les hypothèses optimistes formulées dès les premiers travaux sur ce phénomène, à savoir l'état de conservation remarquable dans lequel les zones de réaction ont été retrouvées. Les distributions de l'uranium et des terres rares engendrées par la fission sont particulièrement révélatrices du niveau faible atteint par les remobilisations ayant affecté le coeur des réacteurs.

Les excès de produits de fission que l'on observe au niveau d'échantillons situés à quelques dizaines de centimètres du coeur ne représentent au maximum que quelques pour cent des quantités totales formées par fission. Ces excès sont minimums dans le cas du néodyme, où ils restent inférieurs à 5 % ; ceci autorise à considérer le couple (uranium, néodyme) comme étant le plus caractéristique du phénomène de fission pour la détermination de la date des réactions nucléaires à partir des quantités de produits de fission formées. Cette méthode conduit pour la date à une valeur égale à 1.98 ± 0.05 milliard d'années ; nous confirmons par l'étude de ce sondage la valeur déjà proposée dans un précédent rapport, et qui avait été obtenue sur un échantillon unique. Il demeure que la détermination de l'âge par les méthodes géochronologiques conduit à une valeur légèrement inférieure.

Cette étude confirme la bonne stabilité des produits de fission ; en outre, les aventures nucléaires des isotopes de l'europium ont donné naissance il y a deux milliards d'années à des phénomènes dont les traces sont restées inscrites dans les terrains jusqu'à notre époque.

L'intensité du phénomène nucléaire n'a pas entraîné de remobilisation sensible des terres rares naturelles. Les analyses de dysprosium indiquent d'autre part que les conclusions que l'on peut tirer des analyses des terres rares légères sont également applicables aux terres rares lourdes ; elles ont toutes été soumises à des taux de réactivité qui présentent dans l'espace des distributions analogues.

Les résultats encourageants qui résultent de l'ensemble de ce travail ouvrent la voie à des études plus fines concernant soit la recherche d'autres produits de fission peut-être plus sophistiqués, soit surtout l'examen à très petite échelle de situations locales originales qu'un temps de refroidissement exceptionnellement long de deux milliards d'années n'a pas réussi à effacer.

Annexe
TABLEAUX ET FIGURES

TABLEAU I. RAPPORTS ISOTOPIQUES $^{235}U/^{238}U$, TENEURS PONDERALES EN URANIUM EXPRIMEES EN % PAR RAPPORT AU MINERAI, ET CONCENTRATIONS EN TERRES RARES EXPRIMEES EN 10^{18} ATOMES PAR GRAMME DE MINERAI

ECHANTILLON	$^{235}U/^{238}U$	TENEURS PONDÉRALES EN URANIUM %	CONCENTRATIONS				
			Nd	Sm	Eu	Gd	Dy
1892	0,00671	0,28	0,0856	0,0165	0,00321	0,00886	
1402	0,00665	2,73	0,442	0,0761	0,0133	0,0316	
1408/4	0,00545	23,3	2,801	0,538	0,0572	0,0965	
1410/3	0,00527	57,8	8,272	1,402	0,1357	0,1234	0,00707
1413/3	0,00410	37,2	6,586	1,256	0,1094	0,1103	0,00382
1418	0,00574	57,9	7,264	1,255	0,1382	0,0952	0,00173
1421/4	0,00525	4,63	0,716	0,141	0,0157	0,0467	0,00791
1423/5	0,00547	9,37	1,610	0,313	0,0315	0,0607	0,0132
1425/1	0,00638	2,03	0,757	0,200	0,0232	0,1311	0,0377
1901	0,00725	9,48	4,993	0,734	0,0631	0,358	0,146
1905	0,00718	0,71	0,262	0,0340	0,0083	0,0328	

TABLEAU II. COMPOSITIONS ISOTOPIQUES DU NEODYME
exprimées en atomes pour cent

ÉCHANTILLON	142	143	144	145	146	148	150
1892	19,84	15,70	25,57	11,04	16,52	6,37	4,96
1402	10,54	19,65	28,12	14,43	15,91	7,20	4,15
1408/4	4,77	22,50	29,29	16,65	15,41	7,73	3,65
1410/3	1,86	23,16	30,53	17,56	15,41	8,03	3,45
1413/3	1,03	22,17	32,24	17,67	15,49	8,05	3,35
1416/1	0,65	23,27	31,41	17,82	15,43	8,09	3,33
1418	0,93	24,30	30,03	17,93	15,36	8,13	3,32
1419/5	3,33	23,26	29,58	17,05	15,40	7,83	3,55
1421/4	9,28	20,27	28,33	14,90	15,82	7,32	4,08
1423/5	4,35	22,13	29,85	16,57	15,64	7,79	3,67
1425/1	15,51	17,47	26,73	12,59	16,32	6,78	4,60
1899/4	22,42	14,29	24,99	10,03	16,83	6,20	5,24
1901	25,89	12,75	24,15	8,77	17,08	5,86	5,50
1905	24,56	13,36	24,47	9,20	17,02	5,97	5,42
ÉLÉMENT NATUREL	27,12	12,17	23,80	8,30	17,18	5,77	5,66
FISSION ^{235}U [4]	-	28,83	26,36	19,04	14,48	8,16	3,13

TABLEAU III. COMPOSITIONS ISOTOPIQUES DU SAMARIUM
exprimées en atomes pour cent

ÉCHANTILLON	144	147	148	149	150	152	154
1892	2,66	21,03	9,98	8,07	14,13	24,48	19,65
1402	1,65	34,83	7,16	1,53	22,38	19,49	12,96
1408/4	0,46	50,56	4,56	0,36	25,80	12,99	5,27
1410/3	0,15	53,19	5,79	0,30	26,57	10,76	3,24
1413/3	0,07	53,41	7,13	0,18	26,12	10,32	2,77
1416/1	0,03	53,44	7,31	0,24	26,59	9,87	2,52
1418	0,03	54,06	5,81	0,42	26,92	10,21	2,55
1419/5	0,29	51,35	5,49	0,60	26,09	11,99	4,19
1421/4	1,00	42,74	6,41	1,12	23,94	16,03	8,76
1423/5	0,62	46,34	7,40	0,97	24,94	13,33	6,40
1425/1	1,86	30,98	8,58	2,73	20,78	20,48	14,59
1899/4	2,71	19,89	10,41	6,19	15,72	24,84	20,24
1901	3,02	16,06	11,08	7,73	13,70	26,31	22,10
1905	3,02	16,52	11,09	9,73	11,72	26,03	21,89
ÉLÉMENT NATUREL	3,09	15,03	11,24	13,84	7,38	26,72	22,70
FISSION ^{235}U [4]	-	61,29	-	29,37	0,02	7,30	2,02

TABLEAU IV. COMPOSITIONS ISOTOPIQUES DE L'EUROPIUM
exprimées en atomes pour cent

ÉCHANTILLON	151	153
1892	43.92	56.08
1402	32.04	67.96
1408/4	21.96	78.04
1410/3	16.60	83.40
1413/3	12.78	87.22
1416/1	14.83	85.17
1418	24.75	75.25
1419/5	21.39	78.61
1421/4	24.59	75.41
1423/5	21.00	79.00
1425/1	30.23	69.77
1899/4	39.67	60.33
1901	43.92	56.08
1905	45.66	54.34
ÉLÉMENT NATUREL	47.81	52.19
FISSION ^{235}U [47]	72.14	27.86

TABLEAU V. COMPOSITIONS ISOTOPIQUES DU GADOLINIUM
exprimées en atomes pour cent

ÉCHANTILLON	152	154	155	156	157	158	160
1892	1.47	2.50	11.13	23.95	8.94	30.83	21.18
1402	6.09	3.96	3.05	30.53	1.75	35.03	19.59
1408/4	20.46	10.43	0.10	29.77	$\leqslant$ 0.01	26.18	13.05
1410/3	32.35	20.07	0.38	25.26	$\leqslant$ 0.01	15.43	6.50
1413/3	32.19	30.13	0.30	22.95	$\leqslant$ 0.01	10.69	3.73
1416/1	37.79	30.16	0.43	21.79	$\leqslant$ 0.01	7.87	1.95
1418	42.46	22.08	0.90	23.18	$\leqslant$ 0.01	9.05	2.32
1419/5	22.69	12.28	3.88	25.13	1.77	22.36	11.89
1421/4	10.35	6.66	4.99	27.38	1.72	31.47	17.43
1423/5	13.12	9.73	5.60	25.66	2.05	28.19	15.65
1425/1	5.03	4.35	7.50	26.44	2.99	33.95	19.74
1899/4	1.35	2.67	10.72	24.26	5.70	33.97	21.33
1901	0.49	2.29	11.72	23.45	6.49	33.82	21.74
1905	0.54	2.36	13.08	22.16	10.22	30.06	21.58
ÉLÉMENT NATUREL	0.20	2.19	14.81	20.48	15.66	24.82	21.84
FISSION ^{235}U [47]	-	-	58.23	23.80	11.50	5.78	0.69

TABLEAU VI. COMPOSITIONS ISOTOPIQUES DU DYSPROSIUM
exprimées en atomes pour cent

ECHANTILLON	156	158	160	161	162	163	164
1892	0,06	0,09	2,38	19,05	25,76	25,02	27,64
1402	0,06	0,11	2,61	18,96	27,92	27,35	22,99
1408/4	0,06	0,12	3,90	16,94	31,90	35,48	11,60
1410/3	0,06	0,13	5,20	14,94	28,89	40,04	10,74
1413/3	0,07	0,13	6,09	12,17	29,68	44,79	7,07
1416/1	0,06	0,12	6,65	14,43	27,53	41,00	10,21
1418	0,06	0,12	4,84	17,48	26,77	33,61	17,12
1419/5	0,06	0,10	2,75	18,68	27,77	27,23	23,41
1421/4	0,06	0,10	2,71	18,58	27,93	26,92	23,70
1423/5	0,06	0,10	2,51	18,80	26,37	26,08	26,08
1425/1	0,05	0,10	2,45	18,91	26,28	25,69	26,52
1901	0,05	0,10	2,36	18,95	25,64	25,03	27,87
1905	0,06	0,09	2,36	18,90	25,60	24,86	28,13
ÉLÉMENT NATUREL	0,06	0,09	2,34	18,91	25,51	24,90	28,19

TABLEAU VII. NEODYME – REPARTITION EN ELEMENT NATUREL ET EN ELEMENT PRODUIT PAR FISSION
Quantités exprimées en 10^{18} atomes par gramme

ÉCHANTILLON	ÉLÉMENT NATUREL	ÉLÉMENT DE FISSION		
		MESURÉ	CALCULÉ	Δ(%) (VOIR TEXTE)
1402	0,171	0,270	0,256	+ 0,2
1408/4	0,482	2,314	2,423	- 1,5
1410/3	0,508	7,743	8,043	- 4,3
1413/3	0,185	6,381	6,111	+ 3,8
1418	0,197	7,051	7,381	- 4,7
1421/4	0,244	0,471	0,418	+ 0,8

TABLEAU VIII. SAMARIUM – REPARTITION EN ELEMENT NATUREL ET EN ELEMENT PRODUIT PAR FISSION

Quantités exprimées en 10^{18} atomes par gramme

ÉCHANTILLON	ÉLÉMENT NATUREL	ÉLÉMENT DE FISSION		
	MESURÉ		CALCULÉ	Δ (%) (VOIR TEXTE)
1402	0,037	0,039	0,052	- 1,0
1408/4	0,071	0,467	0,458	+ 0,7
1410/3	0,055	1,347	1,468	- 9,7
1413/3	0,024	1,232	1,125	+ 8,6
1418	0,011	1,244	1,389	- 11,7
1421/4	0,040	0,101	0,080	+ 1,7

TABLEAU IX. GADOLINIUM – REPARTITION EN ELEMENT NATUREL ET EN ELEMENT PRODUIT PAR FISSION

Quantités exprimées en 10^{18} atomes par gramme

ÉCHANTILLON	ÉLÉMENT NATUREL	ÉLÉMENT DE FISSION		
	MESURÉ		CALCULÉ	Δ (%) (VOIR TEXTE)
1402	0,0283	0,00077	0,0010	- 0,9
1408/4	0,0569	0,0109	0,0077	+ 12,7
1410/3	0,0353	0,0241	0,0277	- 14,3
1413/3	0,0175	0,0244	0,0227	+ 6,8
1418	0,0088	0,0251	0,0264	- 5,2
1421/4	0,0370	0,0025	0,0011	+ 5,6

TABLEAU X. PRINCIPAUX PARAMETRES DES REACTIONS NUCLEAIRES

ÉCHANTILLON	$\sigma \cdot \tau$ (^{143}Nd)	τ (10^{21} n/cm2)	$\mathcal{R}$	c	α (%)	β (%)	Nf/u		
							Nd	Sm	Gd
1402	0,224	0,67	0,06	0,78	-	-	0,0189	0,0136	0,012
1408/4	0,263	0,81	0,13	0,44	1	3,5	0,0191	0,0206	0,024
1410/3	0,342	1,07	0,19	0,53	3,5	3,5	0,0258	0,0244	0,020
1413/3	0,458	1,43	0,18	0,38	2	5	0,0331	0,0347	0,029
1416/1	0,396	1,26	0,24	-	2	5	-	-	-
1418	0,295	0,94	0,26	0,62	4	4,5	0,0235	0,0223	0,020
1419/5	0,269	0,85	0,22	-	-	-	-	-	-
1421/4	0,227	0,71	0,17	0,29	-	-	0,0195	0,0215	0,033
1423/5	0,310	0,99	0,24	0,56	-	-	0,0278	0,0281	0,029
1425/1	0,155	0,49	0,22	0,59	-	-	0,0304	0,0403	0,09

TABLEAU XI. ECHANTILLONS DE REFERENCE (B) ET, A TITRE DE COMPARAISON, ECHANTILLONS CENTRAUX DU SONDAGE SC 36 (A)
Principales caractéristiques et date de la réaction déterminée pour chaque élément

	ÉCHANTILLON	U(%)	$\frac{235U}{238U}$	T (10^{21} N/CM^2)	DATE D(ND)	DATE D(SM)	DATE D(GD)	RÉFÉRENCE BIBLIOGRAPHIQUE
A	SC36-1410/3	57,8	0,00527	1,07	1,93	1,88	1,68	PRÉSENTE ÉTUDE
A	SC36-1413/3	37,2	0,00410	1,43	2,02	2,06	1,88	PRÉSENTE ÉTUDE
A	SC36-1418	57,9	0,00574	0,94	1,93	1,86	1,75	PRÉSENTE ÉTUDE
B	2'P - 612	52,3	0,00459	1,29	2,03	1,96	1,80	[107]
B	SC9B-882/1	63,2	0,00511	1,07	1,92	1,88	1,84	[107]
B	KN50-3548	55,0	0,00465	1,34	1,97	2,06	1,76	[87]
	MOYENNE DES TROIS ÉCHANTILLONS DU SONDAGE SC36				1,96	1,93	1,77	
	MOYENNE DES TROIS ÉCHANTILLONS DE RÉFÉRENCE				1,97	1,97	1,80	

TABLEAU XII. ECHANTILLON 1901 – REPARTITION DU NEODYME
exprimée en atomes pour cent

	ND MESURÉ	ND ATTRIBUÉ À L'ÉCHANTILLON TYPE 1418	ND RESTANT		ÉLÉMENT NATUREL
142	25,89	0,05	25,84	27,12	27,12
143	12,75	1,14	11,61	12,18	12,17
144	24,15	1,41	22,74	23,86	23,80
145	8,77	0,84	7,93	8,32	8,30
146	17,08	0,72	16,36	17,17	17,18
148	5,86	0,38	5,48	5,75	5,77
150	5,50	0,16	5,34	5,60	5,66
	100	4,7	95,3	100	100

TABLEAU XIII. ECHANTILLON 1901 – REPARTITION DU SAMARIUM
exprimée en atomes pour cent

	SM MESURÉ	SM ATTRIBUÉ À L'ÉCHANTILLON TYPE 1418	SM RESTANT			ÉLÉMENT NATUREL	
144	3,02	-	3,02	3,11		3,09	
147	16,06	1,51	14,55	14,97		15,03	
148	11,08	0,16	10,92	11,23		11,24	
149	7,73	0,01	7,72	7,94	21,26	13,84	21,22
150	13,70	0,76	12,94	13,32		7,38	
152	26,31	0,29	26,02	26,77		26,72	
154	22,10	0,07	22,03	22,66		22,70	
	100	2,8	97,2	100		100	

TABLEAU XIV. ECHANTILLON 1901 – REPARTITION DU GADOLINIUM
exprimée en atomes pour cent

	Gd mesuré	Gd résultant des captures sur Eu	Gd restant			Élément naturel	
152	0,49	0,29	0,20	0,20		0,20	
154	2,29	0,11	2,18	2,19		2,19	
155	11,72	-	11,72	11,77	35,31	14,81	35,29
156	23,45	-	23,45	23,54		20,48	
157	6,49	-	6,49	6,52	40,47	15,66	40,48
158	33,82	-	33,82	33,95		24,82	
160	21,74	-	21,74	21,83		21,84	
	100	0,4	99,6	100		100	

TABLEAU XV. ECHANTILLONS DE BORDURE – REPARTITION DU NEODYME, DU SAMARIUM ET DU GADOLINIUM
exprimée en atomes pour cent

Échantillon	Nd		Sm		Gd		
	Attribué à l'échant. type 1418	Élément naturel	Attribué à l'échant. type 1418	Élément naturel	Attribué à l'échant. type 1418	Élément naturel	Provenant des captures sur Eu
1892	27,8	72,2	15,0	85,0	1,9	96,4	1,7
1899/4	17,9	82,0	12,0	88,0	0,7	97,6	1,7
1901	4,7	95,3	2,8	97,2	< 0,1	99,5	0,4
1905	9,7	90,3	3,5	96,5	0,7	98,8	0,5

TABLEAU XVI. ECHANTILLONS DE BORDURE – PRODUITS ($\hat{\sigma} \cdot \tau$) ET FLUENCES DETERMINES A PARTIR DES ISOTOPES TRES CAPTURANTS DES TERRES RARES

	Isotope	$\hat{\sigma}$ (barns) [8]	Échantillon			
			1892	1899/4	1901	1905
$\hat{\sigma} \cdot \tau$	^{149}Sm		0,385	0,685	0,556	0,318
	^{155}Gd		0,254	0,298	0,230	0,111
	^{157}Gd		0,524	0,985	0,876	0,411
τ (10^{19} N/cm2) (40°C)	^{149}Sm	70.000	0,55	0,98	0,79	0,45
	^{155}Gd	50.000	0,51	0,60	0,46	0,22
	^{157}Gd	220.000	0,24	0,45	0,40	0,19
τ (10^{19} N/cm2) (400°C)	^{149}Sm	85.000	0,45	0,81	0,65	0,37
	^{155}Gd	33.000	0,77	0,90	0,70	0,34
	^{157}Gd	145.000	0,36	0,68	0,60	0,28

TABLEAU XVII. ECHANTILLONS DE BORDURE – QUANTITES DE PRODUITS DE FISSION MESUREES

exprimées en 10^{18} atomes par gramme de minerai

ÉCHANTILLON	Nd		Sm		Gd	
	MESURÉ	Δ (%) VOIR TEXTE	MESURÉ	Δ (%) VOIR TEXTE	MESURÉ	Δ(%) VOIR TEXTE
1892	0,023	+ 0,3	0,0025	+ 0,2	0,00013	+ 0,5
1901	0,23	+ 3,2	0,021	+ 1,7	0,0002	+ 0,8
1905	0,025	+ 0,4	0,0012	+ 0,1	0,0002	+ 0,8

TABLEAU XVIII. BILANS DES TERRES RARES DE FISSION

exprimés en 10^{18} atomes par gramme de minerai

L'erreur indiquée pour les trois échantillons adjacents au cœur ne tient compte que des incertitudes sur les fluences

ÉCHANTILLON	$^{143}Nd + {}^{144}Nd$		$^{147}Sm + {}^{148}Sm$	
	MESURÉ	CALCULÉ	MESURÉ	CALCULÉ
1892	0.01	-	-	-
1402	0.15	0.14	0.02	0.03
1408/4	1.28	1.34	0.28	0.27
1410/3	4.26	4.43	0.81	0.88
1413/3	3.52	3.37	0.75	0.69
1418	3.88	4.06	0.75	0.84
1421/4	0.26	0.24 ± 0.02	0.06	0.05 ± 0.01
1423/5	0.75	0.71 ± 0.04	0.15	0.14 ± 0.02
1425/1	0.18	0.12 ± 0.06	0.05	0.02 ± 0.01
1901	0.12	-	0.01	-
1905	0.01	-	-	-
TOTAL	14.42	14.4 ± 0.1	2.88	2.92 ± 0.04

TABLEAU XIX. PARAMETRES TIRES DE L'ETUDE DU DYSPROSIUM

ÉCHANTILLON	τ (10^{21} N/CM2)	π	TB/DY (*)
1892	≃ 0.01	-	-
1402	0.11	≃ 0.05	-
1408/4	0.54	0.13	0.22
1410/3	0.77	0.22	0.24
1413/3	1.35	0.16	0.23
1416/1	0.88	0.23	0.32
1418	0.38	0.33	0.35
1419/5	0.10	≃ 0.05	-
1421/4	0.093	≃ 0.01	-
1423/5	0.047	0.14	-
1425/1	0.035	≃ 0.05	-
1901	≃ 0.006	-	-
1905	≃ 0.001	-	-

(*) *Le rapport Tb/Dy ne peut être déterminé que pour les échantillons du coeur.*

TABLEAU XX. DETERMINATION DE LA DATE DES REACTIONS NUCLEAIRES A PARTIR DES ANALYSES D'URANIUM ET DE NEODYME

ÉCHANTILLON	U(%)	$^{235}U/^{238}U$	$\sigma \cdot \tau$ (143-Nd)	τ (10^{21} N/CM2)	NF/U (Nd)	D (10^9 ANS)	RÉFÉRENCES
2'P - 612	52.3	0.00459	0.408	1.29	0.0323	2.03	[7]
2'Q'- 1294	18.9	0.00297	0.566	1.77	0.0363	2.03	
SC9B-882/1	63.2	0.00511	0.338	1.07	0.0250	1.92	
KH50-323	7.0	0.00482	0.353	1.10	0.0279	2.05	[5]
KH50-3548	55.0	0.00465	0.428	1.34	0.0316	1.97	
SC36-1410/3	57.8	0.00527	0.342	1.07	0.0258	1.93	PRÉSENTE ÉTUDE
SC36-1413/3	37.2	0.00410	0.458	1.43	0.0331	2.02	
SC36-1418	57.9	0.00574	0.295	0.94	0.0235	1.93	
				VALEUR MOYENNE		1.98	

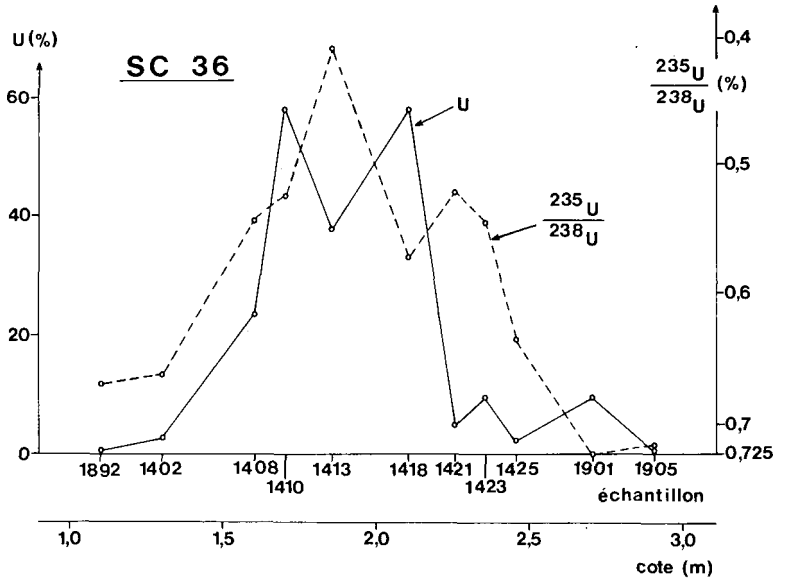


FIG.1. Distribution de l'uranium le long du sondage SC 36.

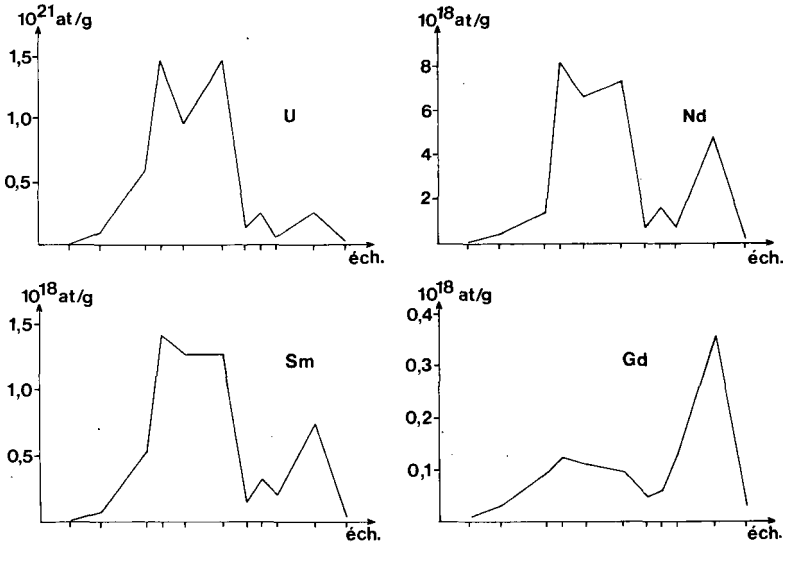


FIG.2. Distributions de l'uranium et des terres rares le long du sondage.

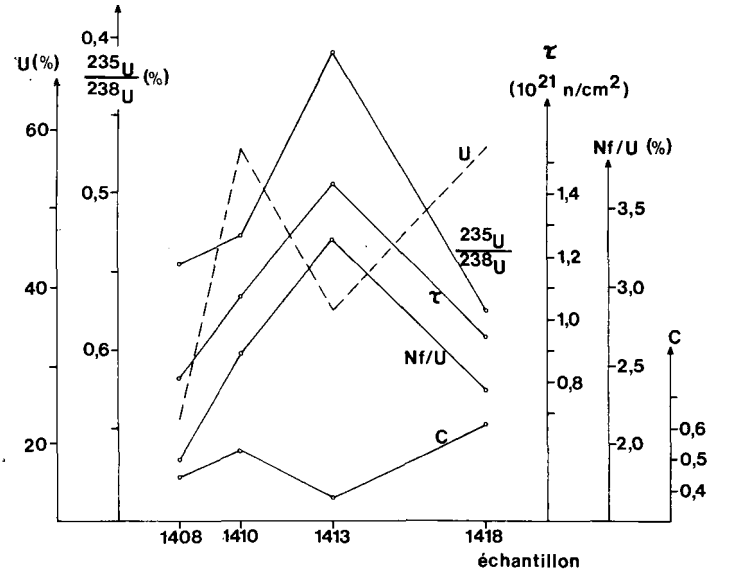


FIG.3. Variations du rapport $^{235}U/^{238}U$, de la fluence, du nombre total de fissions rapporté à l'uranium et du facteur de conversion, au cœur de la zone de réaction.

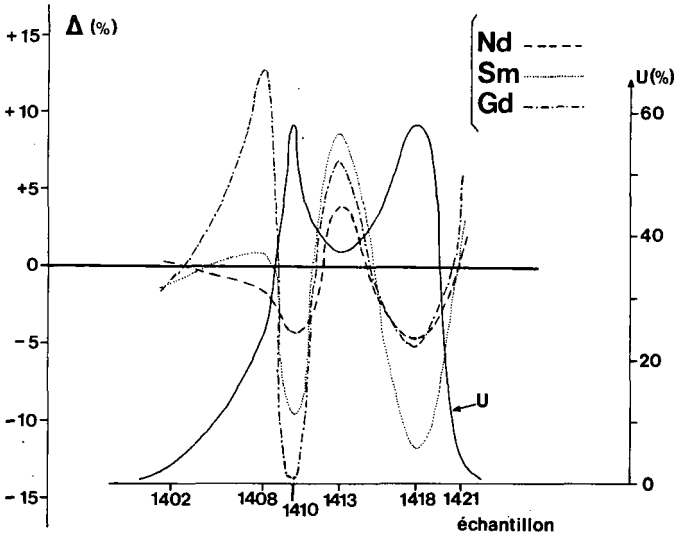


FIG.4. Ecarts des quantités de produits de fission par rapport à la référence, rapportés aux quantités mesurées dans l'échantillon type, au cœur de la zone de réaction.

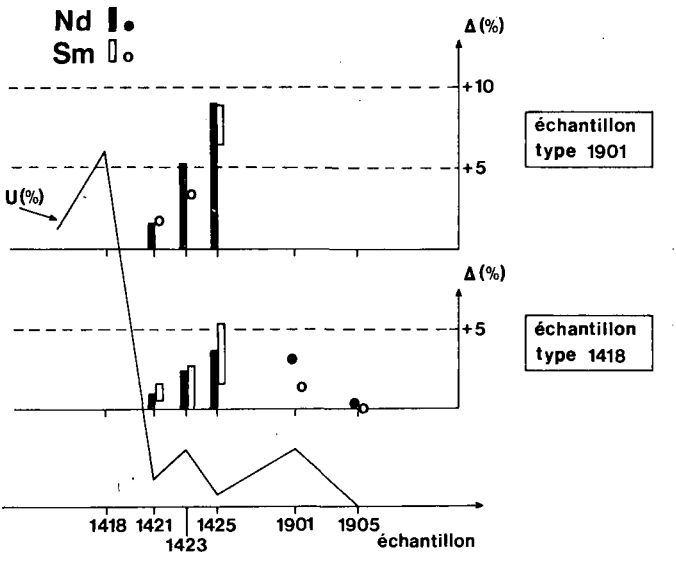


FIG.5. Ecarts des quantités de produits de fission par rapport à la référence, rapportés aux quantités mesurées dans les échantillons types, en bordure immédiate du cœur.

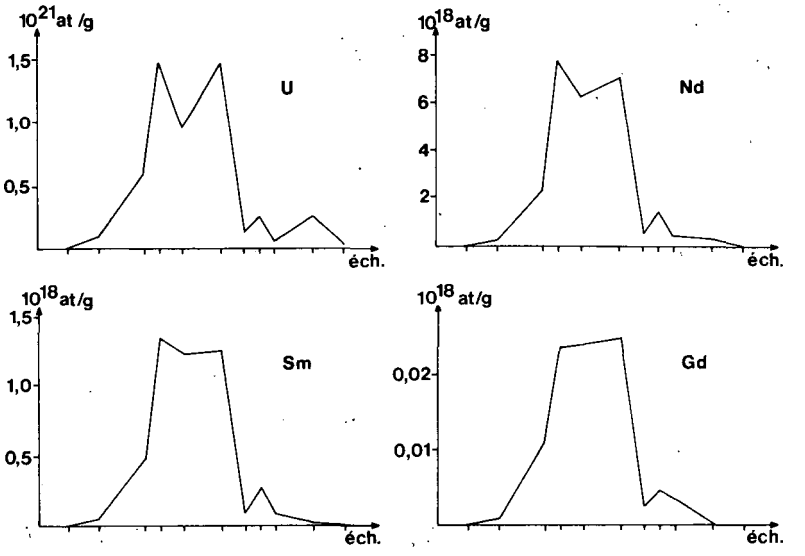


FIG.6. Distributions de l'uranium et des terres rares de fission le long du sondage.

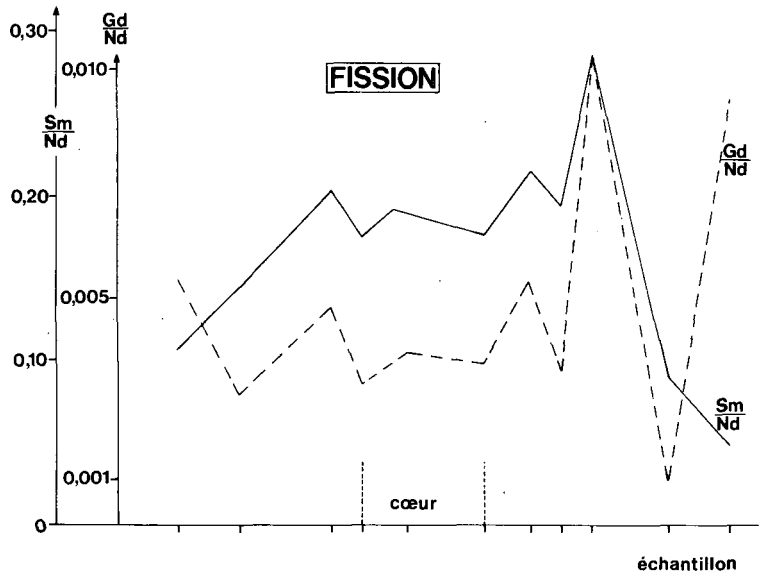


FIG. 7. Variations, le long du sondage, des rapports Sm/Nd et Gd/Nd des terres rares de fission.

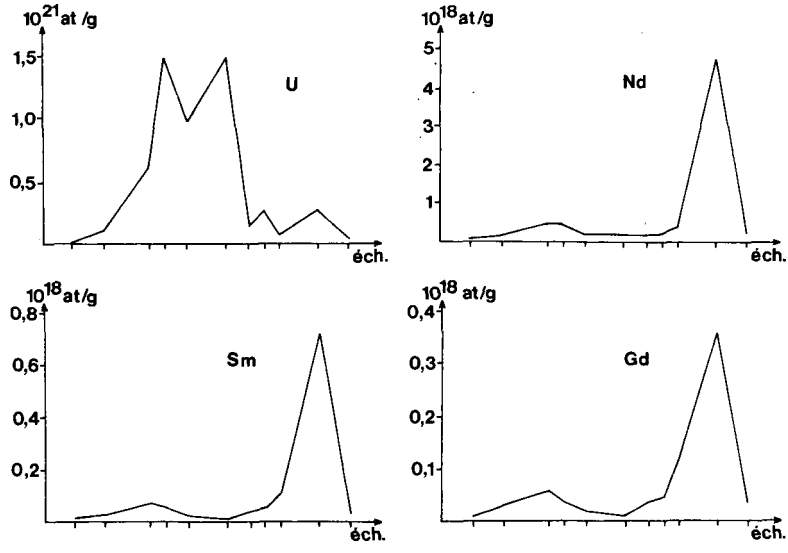


FIG. 8. Distributions de l'uranium et des terres rares naturelles le long du sondage.

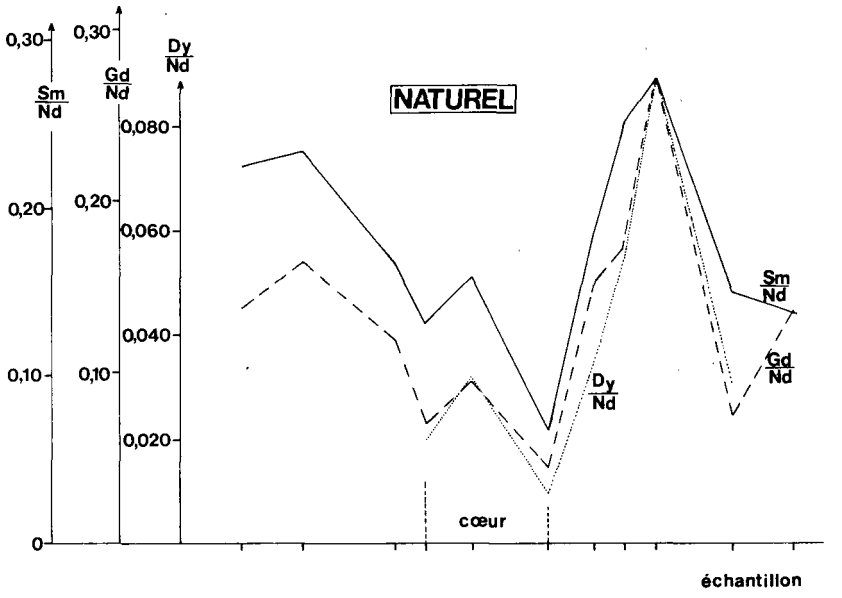


FIG.9. Variations, le long du sondage, des rapports Sm/Nd, Gd/Nd et Dy/Nd des terres rares naturelles.

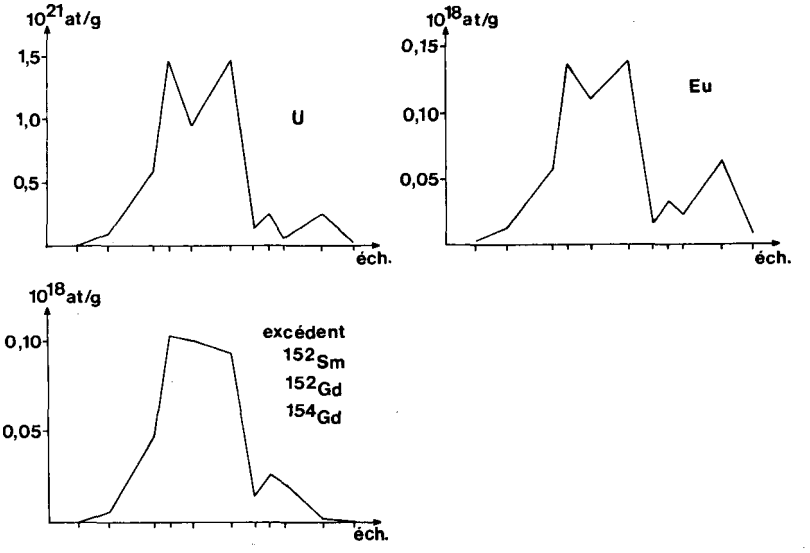


FIG.10. Distributions de l'uranium, de l'europium et des quantités excédentaires correspondant aux transferts Eu-Sm et Eu-Gd, le long du sondage.

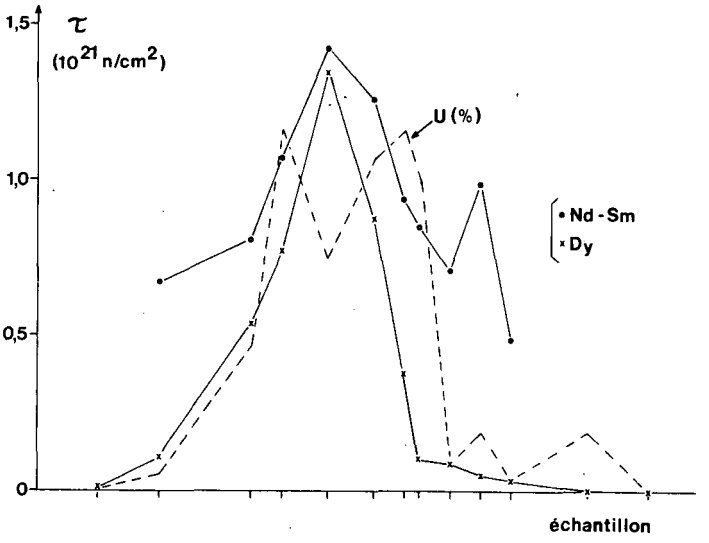


FIG.11. Variations de la fluence calculée à partir du couple (Nd, Sm) et à partir du dysprosium.

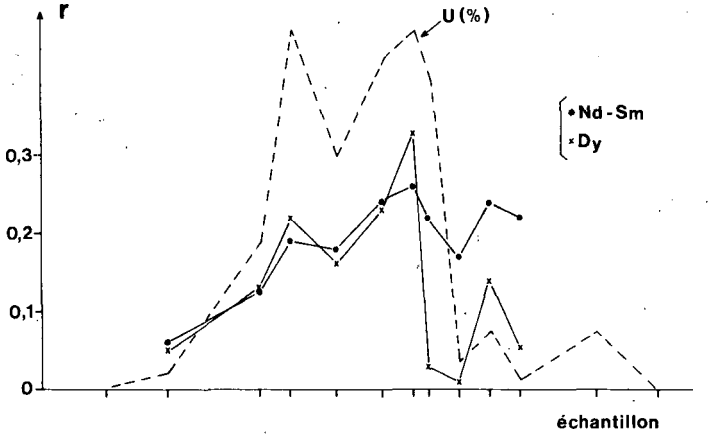


FIG.12. Variations de l'indice de spectre calculé à partir du couple (Nd, Sm) et à partir du dysprosium.

REFERENCES

[1] RUFFENACH, J.C., MENES, J., DEVILLERS, C., LUCAS, M., HAGEMANN, R., Etudes chimiques et isotopiques de l'uranium et du plomb et de plusieurs produits de fission dans un échantillon de minerai du réacteur naturel d'Oklo, Earth Planet. Sci. Lett. **30** (1976) 94.

[2] RUFFENACH, J.C., LUCAS, M., HAGEMANN, R., «Application des méthodes de dosage par dilution isotopique à la détermination des produits de fission contenus dans les échantillons de minerai provenant du réacteur nucléaire fossile d'Oklo», 32^{e} Congrès du GAMS, Paris, décembre 1974.

[3] MUGHABGHAB, S.F., GARBER, D.I., Neutron Cross Sections, Vol. 1, Resonance Parameters (Brookhaven National Laboratory, Upton, N.Y., 1973), BNL-325, 3rd Ed.

[4] MEEK, M.E., RIDER, B.F., Compilation of Fission Product Yields (Vallecitos Nuclear Center, Pleasanton, Calif. 1974), NEDO-12154.

[5] RUFFENACH, J.-C., MENES, J., LUCAS, Monique, HAGEMANN, R., NIEF, G., «Analyses isotopiques fines des produits de fission et détermination des principaux paramètres des réactions nucléaires», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 371.

[6] LUCAS, Monique, et al., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/14.

[7] BASSIERE, H., CESARIO, J., POUPARD, D., NAUDET, R., «Analyse isotopique et pondérale de terres rares dans divers échantillons d'Oklo», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 385.

[8] NAUDET, R., Communication personnelle.

[9] REUSS, P., «Modèles d'évolution de l'uranium et des produits de fission», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 565.

NOUVELLES ANALYSES DES TERRES RARES DANS DES ECHANTILLONS D'OKLO

J. CESARIO*, D. POUPARD*, R. NAUDET**
Commissariat à l'énergie atomique, France

Résumé–Abstract

NOUVELLES ANALYSES DES TERRES RARES DANS DES ECHANTILLONS D'OKLO.

Au Laboratoire de radiochimie de Bruyères-le-Chatel, le programme d'études sur les réacteurs naturels d'Oklo, qui fait suite à celui présenté lors du colloque de Libreville (Gabon) de 1975 (mémoire IAEA-SM-204/31), a comporté les thèmes suivants: a) étude des corrélations entre quantités de produits de fission et fluence, dans des portions du cœur où une certaine remobilisation des terres rares est susceptible de s'être produite; on trouve dans certains cas des déséquilibres importants; b) étude des migrations de terres rares dans les bordures axiales des zones de réaction: il est apparu en effet que ces migrations sont systématiques; on a cherché à mieux les caractériser, en considérant plusieurs sondages où apparemment les conditions étaient assez différentes; c) étude des bordures latérales des zones de réaction: on a recherché jusqu'où on trouve des réactions locales et/ou des contaminations; d) étude des contaminations lointaines: cas particulier d'Okelobondo où existent semble-t-il de nouveaux foyers de réaction; e) proportion des fissions dans le plutonium, dans quelques cas particuliers; f) étude du spectre des terres rares naturelles dans l'environnement des zones de réaction. Au total près de quarante échantillons ont été étudiés, les mesures allant de l'analyse isotopique d'un ou deux éléments (par exemple samarium et gadolinium) au dosage d'un ensemble de terres rares par dilution isotopique. Les résultats sont décrits et commentés.

NEW ANALYSES OF THE RARE EARTHS IN OKLO SAMPLES.

The study programme on the natural reactors of Oklo conducted at the Radiochemistry Laboratory, Bruyères-le-Chatel, in continuation of work described at the Libreville (Gabon) symposium in 1975 (Paper IAEA-SM-204/31) comprises the following: (a) Study of the correlations between quantity of fission products and fluence in portions of the core where some remobilization of the rare-earths may have been produced; sometimes cases of considerable disequilibrium can be found; (b) study of the migration of rare-earths in the axial borders of reaction zones: it appears that these migrations are systematic; attempts have been made to describe them more fully on the basis of several probes in which conditions appear to be quite different; (c) study of the lateral edges of the reaction zones: the extent of local reactions and/or contamination was investigated; (d) study of contamination at a distance: special case of Okelobondo, where there seem to be further reaction sites; (e) proportion of fission events in plutonium in some special cases; (f) spectral studies of natural rare-earths in the vicinity of the reaction zones. Altogether nearly 40 samples have been studied, the measurements ranging from isotopic analysis of one or two elements (e.g. samarium and gadolinium) to the determination of rare-earth proportions by isotopic dilution. The results are described and commented on.

* Centre d'études de Bruyères-le-Chatel, Montrouge
** Centre d'études nucléaires de Saclay, Gif-sur-Yvette.

Trois laboratoires du Commissariat à l'Energie Atomique ont étudié les terres rares dans les minerais d'Oklo ; ils l'ont fait de manière coordonnée. Au laboratoire de Cadarache [1], on a surtout mesuré systématiquement les distributions de fluence ; à Saclay [2], on s'est consacré à l'étude la plus complète possible d'un sondage, le SC 36. Il est apparu qu'une troisième voie se justifiait, parce qu'il était intéressant d'approfondir un certain nombre de situations ou problèmes particuliers : c'est l'objectif que s'est donné le laboratoire de Bruyères-le-Chatel. Les programmes ont été conçus de manière à se compléter : c'est ainsi que certaines situations mises en évidence à Cadarache ont été étudiées plus en détail ici ; de même on a cherché à voir si des observations faites dans le SC 36 pouvaient être retrouvées ou non dans d'autres sondages.

Un premier ensemble de résultats a été présenté à Libreville [3]. A cette occasion on a décrit les techniques expérimentales mises en oeuvre ; on n'y reviendra pas ici. Dans ce qui suit on expose le programme mené depuis juin 1975, en insistant plus particulièrement sur la motivation des mesures et l'interprétation des résultats.

Programme des mesures

Le tableau I donne la liste des échantillons étudiés : on indique successivement le numéro d'échantillon, sa localisation, la teneur en uranium, la concentration de l'uranium en isotope 235, les éléments dont on a fait l'analyse isotopique, et ceux que l'on a dosés par dilution isotopique (Les valeurs marquées * sont celles mesurées au laboratoire, les autres teneurs sont données à titre indicatif, les ^{235}U ont en général été mesurés à Pierrelatte). Sur ce tableau ne figurent pas six échantillons pour lesquels on a seulement fait l'analyse isotopique de l'uranium [4].

Dans le tableau, les échantillons ont été regroupés en cinq catégories ; on peut en effet classer les études selon un certain nombre de thèmes :

- bilan du néodyme, remobilisation des terres rares dans le coeur
- migration des terres rares dans les bordures de sondages
- étude des bordures latérales des zones de réaction
- étude du secteur Okelobondo
- études diverses, et notamment spectre des terres rares naturelles dans l'environnement des zones de réaction.

On va examiner successivement ces différentes rubriques.

Bilan du néodyme. Remobilisation des terres rares dans le coeur

Les études antérieures sur Oklo [2][3][5] ont montré que dans le coeur des zones de réaction, il y avait une bonne corrélation entre la fluence déduite des transferts isotopiques du néodyme (principalement $^{143}Nd \rightarrow {}^{144}Nd$) et le nombre de fissions tiré du dosage néodyme sur uranium. On a observé toutefois de petites fluctuations avec dans certains cas des effets qui semblent systématiques [6], qui pourraient être attribués à une remobilisation limitée des terres rares. D'autre part, lorsqu'on compare la fluence tirée du néodyme à l'appauvrissement isotopique de l'uranium, on détermine un facteur de conversion C (qui représente la quantité d'uranium 235 formée à partir du plutonium rapportée à celle qui est détruite par les réactions) : en général C a des valeurs plausibles et ses variations sont conformes à ce qui peut être prédit par la théorie, mais il y a aussi

TABLEAU I. ECHANTILLONS ETUDIES

Numéro d'échantil.	Localisation	Teneur U %	^{235}U %	analyses isotopiques	Dosages
400/7	Coupe 2 L	16.7 ⁂	0.3229	Nd-Sm-Eu-Gd	Nd-Sm-Eu-Gd-U
1975/3	SC 63 2.75m	21.8 ⁂	0.4092 ⁂	Nd	Nd-U
1976/3	" 2.80	48.7 ⁂	0.427	Nd	Nd-U
1977/3	" 2.85	6.93 ⁂	0.4718 ⁂	Nd	Nd-U
1978/3	" 2.90	58.3 ⁂	0.608	Nd	Nd-U
2193	KN 267 28.20	8.11 ⁂	0.6140	Nd	Nd-U
2194	" 28.30	62.1 ⁂	0.6180	Nd-Sm-Gd	Nd-U
GL 2066	Afft. GL 7	61.0	0.6637	Nd	Nd-U
435	Coupe 2 P	∿ 2	0.6993	Sm-Gd	
1320	SC 20 4.10m	0.54	0.6834	Sm-Gd	
1913	SC 44 0.85	6.9	0.7177	Sm-Gd	
1919	" 1.15	∿ 0.4	0.7144	Sm-Gd	
1922	" 1.30	∿ 0.3 ⁂	0.7107	Sm-Gd	
1933/1	" 3.08	9.09 ⁂	0.7147	Nd-Sm-Eu-Gd	Nd-Sm-Eu-Gd-U
1933/3	" 3.10	9.14 ⁂	0.5795	Nd-Sm-Eu-Gd	Nd-Sm-Eu-Gd-U
2027	SC 30 5.60	∿10	0.6750	Sm-Gd-Dy	
2031	" 5.80	∿34	0.6516	Sm-Gd-Dy	
1877	SC 56 22.35	∿48	0.6930	Sm-Gd	
2092	Minipile	∿64	0.7004	Sm-Gd	
2283	SC 48bis 2.42	∿40	0.7199	Sm-Gd	
2694	KN 257 21.95	32	0.7194	Sm-Gd	
2291	SC 48ter 2.22	∿ 5		Sm	
GL 1016	Afft. GL 1	∿20	0.7200	Sm	
GL 1020	"			Sm-Gd	
GL 2326	Afft. GL 8	∿11	0.7196	Sm-Gd	
2724	OK 84bis (312.9 à 314.3)	∿ 5	0.6749	Sm-Gd	
2731	" 313.8	21.0 ⁂	0.638 ⁂	Nd-Sm-Eu-Gd	Nd-Sm-Eu-Gd-U
OK 48/5	OK 48 349.8 à 352		0.7188	Gd	
867	SC 6 9.53	∿65	0.649	Nd-Sm-Gd	
1870	SC34bis 1.50	∿35	0.5705	Nd-Sm-Gd	
2252	SC 0 9.30	∿ 3	0.7201		Ce-Nd-Sm-Eu-Gd
2639	congl.thorif.	0.0041			Ce-Nd-Sm-Eu-Gd
2673	KN 244 12.6	2.7	0.7205		Nd

des cas où on observe des valeurs de C nettement trop petites ou trop grandes, qui ne peuvent s'expliquer qu'en faisant appel à une remobilisation du néodyme. C'est ainsi qu'à Cadarache, on a mesuré dans le sondage SC 63 une courbe de fluence qui semble beaucoup trop aplatie par rapport à la courbe d'appauvrissement isotopique de l'uranium [1].

C'est la raison pour laquelle on a effectué des dosages, d'une part dans l'échantillon 400/7 où le facteur de conversion a été trouvé trop petit, et d'autre part dans quatre échantillons consécutifs de ce sondage SC 63.

Par ailleurs on a analysé deux échantillons du KN 267, parce que ce sondage est situé tout à fait à l'aval des zones de réaction, vingt-cinq mètres plus bas que les portions de coeur des zones 1 et 2 habituellement étudiées : les conditions d'altération auraient pu être différentes. Enfin un échantillon a été analysé dans une portion de la zone 3-4, où la passe riche s'amincit beaucoup et où les appauvrissements isotopiques de l'uranium sont tous très bas ; on voulait s'assurer que le bilan néodyme était équilibré, et qu'il ne s'agissait pas simplement d'une contamination.

Les résultats sont exploités de la manière suivante. Le nombre de fissions dans l'uranium 235 peut s'écrire : $\overline{N}_5.\hat{\sigma}_{f5}.\tau$, τ étant la fluence exprimée de manière cohérente avec la section efficace "effective" de fission $\hat{\sigma}_{f5}$. Si on rapporte $\overline{N}_5$ à la quantité actuelle d'uranium, il faut tenir compte de la décroissance radioactive depuis l'époque des réactions, donc de leur âge ; d'autre part la moyenne au cours des réactions s'exprime en fonction des valeurs initiale et finale N_5^0 et N_5 par : $\overline{N}_5 = (N_5^0 - N_5)/\text{Log}\ (N_5^0/N_5)$. Le nombre de fissions est donc proportionnel à la quantité $\overline{N}_5\ \tau$ déduite des analyses isotopiques de l'uranium et du néodyme ; pour passer à la quantité totale de néodyme de fission, il faut ensuite multiplier par le rendement de fission, et tenir compte du petit pourcentage de fissions dans ^{238}U et ^{239}Pu. Finalement on peut comparer à $\overline{N}_5\tau$ la quantité mesurée $(Nd)_f$ de néodyme de fission rapportée à l'uranium.

En utilisant les résultats de vingt-trois mesures publiées à Libreville (neuf mesures françaises et quatorze mesures américaines : [2] [3] [5]) on trouve que le coefficient moyen de proportionnalité est $(Nd)_f = 0.86\ \overline{N}_5\tau$, $(Nd)_f$ et $\overline{N}_5$ étant les concentrations atomiques en % par rapport à l'uranium, et τ en n/kb étant obtenu en attribuant à la section de capture du néodyme 143 une valeur de 325 barns indépendante du spectre. On observe une fluctuation de l'ordre de ± 10 % par rapport à cette moyenne qui correspond à un âge apparent de 2 milliards d'années. Pour un échantillon particulier, si on désigne par **x** le rapport du premier membre au second, **x** représente ce qu'on appellera le déséquilibre de l'échantillon ; **x** est supérieur à l'unité si on trouve trop de néodyme par rapport à ce qui est calculé à partir de la fluence, et inversement.

(En toute rigueur, lorsque l'indice de spectre r augmente, c'est-à-dire quand il y a davantage de neutrons en ralentissement, $\hat{\sigma}_{f_5}$ augmente légèrement, $\hat{\sigma}_{143}$ diminue un petit peu, et il y a en général un peu plus de fissions dans ^{238}U et ^{239}Pu ; on devrait donc trouver un **x** légèrement plus grand quand le spectre est plus dur. En réalité, cette corrélation n'apparaît pas de manière évidente, ce qui semble montrer que les effets des remobilisations sont prépondérants).

Le tableau II donne, pour huit échantillons de la première catégorie, les valeurs de τ, $\overline{N}_5$, C, $(Nd)_f$ et **x**. Le facteur de conversion, donné à titre indicatif, est simplement calculé par $1 - C = \text{Log}\ (N_5^0/N_5)/0.65\ \tau$.

TABLEAU II. BILAN DU NEODYME

Echantillon	τ	$\overline{N}_5$	C	$(Nd)_f$	x
400/7	1.36	0.495	0.09	0.551	0.95
1975/3	0.99	0.550	0.12	0.780	1.67
1976/3	0.93	0.561	0.13	0.337	0.75
1977/3	0.88	0.586	0.26	0.416	0.94
1978/3	0.78	0.663	0.67	0.375	0.84
2193	0.34	0.665	0.28	0.093	0.48
2194	0.45_5	0.668	0.48	0.242	0.93
GL 2066	0.22	0.691	0.43	0.122	0.93

Comme annoncé, le facteur C est beaucoup trop petit pour l'échantillon 400/7, ce qui suggère que τ est largement sous-évalué ; dans ces conditions le déficit en néodyme serait plus grand que ne l'indique la valeur de x. D'autre part, dans cet échantillon, on trouve des excès de samarium et de gadolinium par rapport au néodyme : $(Sm)_f/(Nd)_f = 1.25$ et $(Gd)_f/(Nd)_f = 1.21$ (normalisés aux rendements de fission).

Pour les quatre échantillons du SC 63, la croissance apparente de C, depuis des valeurs trop petites jusqu'à une valeur trop grande, suggère qu'en réalité c'est la courbe de fluence qui est beaucoup trop aplatie. Les valeurs de x sont tout à fait déconcertantes ; il n'y a presque plus de corrélation entre le rapport Nd/U et la fluence ou l'appauvrissement isotopique de l'uranium.

L'échantillon 2193, qui est en bordure, est lui aussi très perturbé. Par contre, les échantillons 2194 et GL 2066, de l'aval des zones 5 et 4, ont des bilans à peu près normaux, et qui ne peuvent en tout cas pas être considérés comme significativement différents de ceux des zones 1 et 2. D'autre part l'indice de spectre déterminé dans l'échantillon 2194 (en comparant les transferts $^{147}Sm \rightarrow {}^{148}Sm$ et $^{143}Nd \rightarrow {}^{144}Nd$) est de 0.19 ; il est donc du même ordre que ce qu'on aurait trouvé en zone 1 ou 2 pour cette teneur de minerai ; les quantités d'eau et donc la porosité des terrains devaient donc être comparables.

Migration des terres rares dans les bordures de sondages

On avait montré dans [3] que l'échantillon n° 1326 du sondage SC 20 comportait des terres rares de fission déplacées ; les résultats d'analyse de deux autres échantillons de ce sondage, n° 1323 et 1332, avaient été publiés mais non commentés ; un quatrième échantillon, n° 1320, a été analysé ultérieurement. Ces quatre échantillons s'échelonnent sur 1.20 m dans la bordure supérieure de la zone de réaction.

On a étudié deux autres sondages présentant des caractéristiques différentes. Au toit du SC 20, en effet, l'uranium est contaminé, et on s'est demandé s'il n'y avait pas corrélation entre les déplacements de terres rares de fission et d'uranium appauvri ; au toit du SC 44 par contre, il semble n'y avoir aucune contamination dans l'uranium ; c'est dans cette portion qu'ont été choisis les échantillons 1919 à 1922. Par ailleurs au mur de ce même sondage, on a trouvé une situation a priori très intéressante :

TABLEAU III. DECOMPOSITION DES ANALYSES ISOTOPIQUES DU SAMARIUM ET DU GADOLINIUM DANS L'ECHANTILLON N° 2724 (OKELOBONDO)

Isotope	Composition %	Contribution du naturel	Contribution de la fission	Transferts internes	Echanges avec Eu
^{144}Sm	0.48	0.48			
^{147}Sm	51.43	2.31	50.20	- 1.07	
^{148}Sm	2.80	1.79		+ 1.07	
^{149}Sm	1.51	2.15	24.52	- 25.16	
^{150}Sm	25.08	1.16	0.03	+ 25.16	- 1.27
^{152}Sm	13.36	4.14	6.33		+ 2.89
^{154}Sm	5.34	3.52	1.82		
Total	100.00	15.50	82.90	0.00	1.62
^{152}Gd	12.52	0.16			12.36
^{154}Gd	3.67	1.67	0.02		1.98
^{155}Gd	3.48	11.38	4.52	- 12.42	
^{156}Gd	30.05	15.78	1.86	+ 12.42	
^{157}Gd	1.17	12.12	1.00	- 11.96	
^{158}Gd	31.92	19.33	0.62	+ 11.96	
^{160}Gd	17.19	17.06	0.08		
Total	100.00	77.50	8.10	0.00	14.34

juxtaposition d'uranium presque naturel et d'uranium très appauvri, visiblement déplacé. Enfin dans le sondage SC 30, les mesures faites à Cadarache ont montré que les terres rares semblaient déjà perturbées dans une région où la teneur du minerai en uranium était encore élevée (alors qu'ailleurs les perturbations ont été observées dans le minerai pauvre de bordure).

Pour ces études, il n'a pas paru nécessaire de faire des dosages de terres rares dans tous les échantillons, puisqu'en général les quantités ne sont plus corrélées à l'uranium ; les renseignements les plus intéressants sont obtenus en comparant les analyses isotopiques du samarium et du gadolinium, ces deux éléments comportant des isotopes à très forte section de capture.

Les résultats sont exploités de la manière suivante. Tout d'abord, quelle que soit la complexité des migrations, on peut toujours séparer les contributions de l'élément naturel et de la fission. Pour le samarium, on déduit la première de ^{144}Sm, puis la seconde de (^{147}Sm + ^{148}Sm) et on ajuste les deux valeurs dans les limites d'erreur de manière à retrouver le mieux possible ^{154}Sm. Pour le gadolinium, les deux contributions sont déduites de manière approchée respectivement de ^{160}Gd, puis de la somme ($^{155}Gd \rightarrow {}^{160}Gd$) ; on les ajuste ensuite dans les limites d'erreur de manière à trouver une valeur convenable du rapport (^{157}Gd + ^{158}Gd)/(^{155}Gd + ^{156}Gd) de fission. (Ce rapport, comme d'ailleurs ^{154}Sm, dépend de la proportion de fissions dans ^{238}U et ^{239}Pu, mais on sait bien qu'on ne peut pas jouer beaucoup sur ce rapport ; on cherche à obtenir la meilleure cohérence possible). Le tableau III donne un exemple de décomposition.

Cette décomposition met en évidence les transferts : pour chacun des quatre noyaux ^{147}Sm, ^{149}Sm, ^{155}Gd, ^{157}Gd (et aussi ^{143}Nd quand le néodyme est analysé), elle fournit, en regard des quantités n et f provenant respectivement de l'élément naturel et de la fission, la quantité t transférée à la masse de rang suivant. Le tableau IV donne l'analyse des transferts, pour les 4 échantillons du SC 20 et les 5 échantillons du SC 44.

Pour un isotope très capturant, si les contributions de l'élément naturel et de la fission ont été irradiées dans la même fluence τ, on a de manière approchée :

$$t = n\,(1 - e^{-\sigma\tau}) + f\left(1 - \frac{1 - e^{-\sigma\tau}}{\sigma\tau}\right) \qquad (1)$$

Une première observation est que généralement dans les bordures des zones de réaction une telle formule est inapplicable, car les valeurs de la fluence tirées des différents transferts ne coïncident absolument pas. Il faut donc admettre qu'on se trouve en présence de mélanges, et donc qu'il y a eu migration. En effet, même si les proportions entre les noyaux sont conservées au cours de ces migrations, ce qui est certainement le cas pour les isotopes d'un même élément, la non-linéarité des effets a pour conséquence qu'on ne peut pas raisonner sur une fluence moyenne.

On peut alors essayer de rendre compte des transferts observés en faisant appel à un mélange entre une composition représentative du coeur et celle d'un échantillon irradié localement. Supposons par exemple que le produit déplacé provienne d'une région de fluence élevée (disons $\tau >$ 0.1 n/kb) ; alors pour les trois isotopes 149, 155 et 157 la grande majorité de f et la totalité de la fraction de n déplacée ont été transférés. Désignant par μ la fraction de l'élément naturel migrée, on écrit donc

$$t = f + \mu n + (1 - \mu)\, n\,(1 - e^{-\sigma\tau})$$

Les deux équations relatives aux isotopes 155 et 157 du gadolinium permettent de déterminer simultanément μ et τ ; en portant ensuite la valeur de τ dans l'équation relative au samarium 149, on en tire le μ correspondant. Si ce schéma est acceptable on doit trouver des μ du même ordre pour Sm et Gd (ils seraient égaux si les spectres de terres rares naturelles étaient les mêmes partout, et si la migration n'était accompagnée d'aucun fractionnement), d'autre part ils doivent être tels que le rapport terres rares naturelles sur produit de fission dans la fraction déplacée soit représentatif du coeur.

C'est ce qu'on avait fait dans [3] pour l'échantillon 1326 : on avait trouvé $\mu \sim 0.20$ et $\tau \sim 0.005$ n/kb, et on avait même pu évaluer dans ce schéma l'ordre de grandeur de la fluence reçue par la fraction déplacée (en utilisant l'irradiation du néodyme).

Mais si ce schéma était correct, en l'appliquant à une série d'échantillons voisins, on devrait trouver des ensembles de valeurs de μ et τ cohérents. C'est ce qu'on a essayé de faire pour la série d'échantillons 1332, 1326, 1323 et 1320 ; or on constate que la suite des valeurs ainsi déterminées n'est pas plausible. Il faut donc admettre que ce schéma est encore trop simple, et qu'aux terres rares locales sont mélangés des éléments irradiés dans toute une série de fluences. Une conséquence fâcheuse est qu'il apparaît impossible d'obtenir des valeurs sûres de la fluence locale.

TABLEAU IV. ANALYSE DES TRANSFERTS DANS LES ECHANTILLONS DES SONDAGES SC 20 ET SC 44

Echantillon	Elément	nat.%	fiss.%	Isotope	nat.	fiss.	transfert
1320 (SC 20)	Sm	90.2	9.6	147	13.47	6.03	0.10
				149	12.45	2.90	6.50
	Gd	98.4	0.8	155	14.45	0.45	3.48
				157	15.39	0.10	6.20
1323 (SC 20)	Nd	78.6	21.4	143	9.57	5.75	0.37
	Sm	77.3	22.3	147	11.57	13.51	0.28
				149	10.69	6.60	7.04
	Gd	∿96	∿ 2.5	155	14.1	1.4	1.9
				157	15.0	0.3	1.5
1326 (SC 20)	Nd	58.2	41.8	143	7.08	11.34	0.61
	Sm	49.8	49.1	147	7.45	29.73	0.68
				149	6.08	14.53	15.32
	Gd	91.0	3.9	155	13.26	2.18	4.67
				157	14.23	0.48	4.64
1332 (SC 20)	Nd	46.5	53.5	143	5.65	14.95	0.58
	Sm	37.0	62.2	147	5.54	37.66	0.58
				149	5.12	18.41	21.57
	Gd	86.3	5.3	155	12.67	2.96	11.15
				157	13.50	0.65	13.35
1913 (SC 44)	Sm	95.8	4.2	147	14.34	2.56	0.23
				149	13.25	1.48	1.59
	Gd	98.8	0.7_5	155	14.50	0.42	0.41
				157	15.45	0.09	0.69
1919 (SC 44)	Sm	98.6	1.45	147	14.76	0.88	0.00
				149	13.63	0.43	0.75
	Gd	99.3	0.5	155	14.57	0.28	0.33
				157	15.52	0.06	0.47
1922 (SC 44)	Sm	90.5	9.3	147	13.55	5.67	0.10
				149	12.52	2.74	4.38
	Gd	94.5	∿ 1.6	155	13.9	0.9	2.2
				157	14.8	0.2	2.7
1933/1 (SC 44)	Nd	80.2	19.8	143	9.76	5.14	0.51
	Sm	89.0	11.0	147	13.32	6.70	0.34
				149	12.31	3.24	7.70
	Gd	97.7	1.1	155	14.34	0.64	3.61
				157	15.28	0.13	6.45
1933/3 (SC 44)	Nd	18.9	80.1	143	2.30	20.44	2.82
	Sm	15.5	83.5	147	2.32	50.71	3.54
				149	2.14	24.66	25.29
	Gd	68.5	9.5	155	10.05	5.32	8.16
				157	10.71	1.16	5.87

Des conclusions analogues peuvent être tirées de la série d'échantillons n° 1913, 1919 et 1922 du SC 44. On note que dans le 1913, qui est à 80 cm du coeur, et dans lequel l'uranium est proche de la normale, il y a encore une proportion importante de terres rares de fission, et on voit d'ailleurs que l'essentiel des transferts est dû aux produits de fission (ce qui explique que le transfert est plus grand pour ^{149}Sm que pour ^{157}Gd, bien que la section de capture soit trois fois plus petite). Il apparaît qu'il n'y a pas de relation entre les contaminations en uranium et terres rares, qui semblent obéir à des mécanismes tout à fait différents.

Dans le cas des deux échantillons 2077 et 2031 du SC 30, il est confirmé que les terres rares sont assez fortement perturbées ; pourtant dans l'échantillon 2031, la teneur du minerai est élevée et l'appauvrissement isotopique de l'uranium important ; cet échantillon pourrait être considéré comme appartenant encore au coeur. On note d'autre part que dans le 2027, on trouve des quantités notables de ^{155}Gd et ^{157}Gd ; il semble donc que le produit migrant comporte non seulement des apports depuis le coeur avec des taux d'irradiation plus ou moins élevés mais également des apports de terres rares naturelles très peu irradiées. L'analyse du dysprosium semble le confirmer : les fluences déterminées au moyen de cet élément sont non seulement plus basses que celles déterminées à partir du néodyme, mais elles semblent trop basses compte tenu de l'appauvrissement isotopique de l'uranium.

Les deux échantillons 1933/1 et 1933/3, situés à 2 cm l'un de l'autre, dont l'un comporte de l'uranium presque normal et l'autre de l'uranium très appauvri, ont des compositions de terres rares très différentes. Les concentrations atomiques relativement à l'uranium des éléments naturels et de fission sont les suivantes :

1933/1	naturel	fission	1933/3	naturel	fission
Nd/U	2658 10^{-6}	656 10^{-6}	Nd/U	1000 10^{-6}	4293 10^{-6}
Sm/U	461 "	57 "	Sm/U	141 "	759 "
Gd/U	458 "	5.2 "	Gd/U	125 "	17.3 "

On voit que dans l'échantillon 1933/1, si les terres rares de fission sont beaucoup moins abondantes que dans son voisin, la contamination des terres rares est néanmoins importante par comparaison avec celle de l'uranium.

Les résultats montrent que la migration des terres rares de fission est accompagnée d'un fractionnement. Voici les résultats pour les rapports Sm/Nd et Gd/Nd de fission, normalisés aux rendements de fission (on a comparé respectivement à 0.18 et 0.00345 en négligeant la dépendance des rendements de fission vis-à-vis de la proportion de fission dans le plutonium).

Echant.	Sm/Nd	Gd/Nd
1332	1.03	1.33
1326	0.97	1.47
1323	0.75	2.4
1933/1	0.48	2.3
1933/3	0.98	1.17

(pour les échantillons 1332 et 1323, on a simplement utilisé les rapports terres rares de fission/éléments naturels en admettant que le spectre des

terres rares naturelles soit le même dans les trois échantillons consécutifs). Malgré les approximations, les effets sont très nets : le rapport Sm/Nd diminue lorsqu'on s'éloigne des réacteurs, de 1332 à 1323, puis à 1933/1, tandis qu'au contraire le rapport Gd/Nd augmente dans les mêmes conditions. Dans l'échantillon n° 1933/1, le rapport Gd/Sm est près de cinq fois plus grand que le rapport des rendements de fission.

Dans l'échantillon 1933/3 au contraire, les proportions sont presque normales. On observe par ailleurs que les quantités de produits de fission sont en rapport avec l'appauvrissement isotopique de l'uranium et avec la fluence déduite des transferts isotopiques ; cet échantillon ressemble tellement à un échantillon du coeur qu'on ne peut s'empêcher de penser qu'il pourrait s'agir d'un fragment de minerai de coeur tombé dans le trou de sondage et incorporé dans la carotte.

L'échantillon 435, dans la coupe 2 P, est un grès immédiatement voisin d'une portion très irradiée du coeur, dans lequel on a constaté une chute brutale de l'appauvrissement isotopique de l'uranium ; l'analyse du néodyme laissait pressentir des perturbations de terres rares ; l'analyse combinée du samarium et du gadolinium confirme l'existence de ces perturbations, et permet d'affirmer que la fluence locale est certainement extrêmement faible (< 0.001 n/kb). Il est donc impossible que cet échantillon ait été aussi près du coeur à l'époque des réactions. Cela pose un problème, non résolu, mais pouvant expliquer en tout cas qu'on ait vu extrêmement peu de traces de fission induites dans la série 2 P.

Etude des bordures latérales

En bordure des zones de réaction on trouve souvent des passes riches plus minces dans lesquelles l'uranium n'est que légèrement appauvri : on ne sait pas a priori s'il s'agit d'une "queue" de réactions, ou s'il y a eu simplement contamination. Par exemple le sondage SC 56 a été classé initialement en dehors de la zone 3 : on pensait qu'on avait simplement traversé l'auréole de contamination ; de même lorsqu'on a trouvé la "minipile", on s'est demandé s'il y avait eu des réactions ou non. L'analyse isotopique combinée du samarium et du gadolinium était susceptible d'apporter une réponse, en mettant éventuellement en évidence une fluence locale rendant compte de l'appauvrissement isotopique de l'uranium.

Un autre problème qui s'est posé lorsqu'on s'est rendu compte que la remobilisation des terres rares affectait d'une manière très générale les bordures des zones de réaction, a été de rechercher jusqu'à quelle distance les terres rares naturelles sont perturbées. C'est dans cet esprit qu'on a analysé par exemple un échantillon du sondage SC 48 ter un mètre plus loin que SC 48 bis, et l'échantillon GL 1020 un mètre plus loin que GL 1016 (sur l'affleurement GL 1).

Le tableau V donne l'analyse des transferts dans quatre échantillons provenant des bordures latérales des zones de réaction.

Dans l'échantillon n° 1877 du SC 56, les transferts sont très grands, et la contamination semble faible ; les compositions du samarium et du gadolinium sont compatibles avec une fluence de l'ordre de 0.11 n/kb qui rend compte de l'appauvrissement isotopique de l'uranium. Dans l'échantillon n° 2092 de la minipile, il y a manifestement contamination ; tout se passe comme si 45 % environ du gadolinium naturel n'était pas irradié ; si on admet qu'il y a la même proportion pour le samarium, les compositions sont compatibles avec une fluence de l'ordre de 0.09 n/kb qui rend compte

TABLEAU V. ANALYSE DES TRANSFERTS DANS QUATRE ECHANTILLONS DE BORDURE LATERALE

Echantillon	Elément			Isotope			
		nat.%	fiss.%		nat.	fiss.	transfert
n° 1877 SC 56	Sm	20.8	78.3	149	2.88	23.13	23.26
	Gd	90.9	4.5	155	13.34	2.52	13.71
				157	14.22	0.55	14.30
n° 2092 minipile	Sm	21.8	77.5	149	3.01	22.94	21.48
	Gd	82.0	9.1	155	12.03	5.11	8.38
				157	12.82	1.08	6.98
KN 2694 KN 257	Sm	92.3	7.7	149	12.78	2.30	2.46
	Gd	99.5	0.5	155	14.61	0.28	1.26
				157	15.56	0.06	4.26
n° 2283	Sm	98.5	1.5	149	20.95	0.44	0.60
	Gd	99.6	0.4	155	14.62	0.22	0.16
				157	15.58	0.06	0.30

TABLEAU VI. COMPOSITIONS ISOTOPIQUES DE SAMARIUM FAIBLEMENT PERTURBEES

	KN 257	GL 1016	SC 48bis	SC 48ter	GL 1020	naturel
^{144}Sm	2.85	2.98	3.01	3.01	3.06	3.09
$^{147}Sm + ^{148}Sm$	28.95	27.21	26.79	26.74	26.36	26.21
^{149}Sm	12.62	13.35	13.36	13.40	13.61	13.83
^{150}Sm	9.15	8.05	7.93	7.71	7.60	7.44
^{152}Sm	25.27	26.33	26.53	(26.88)	26.69	26.72
^{154}Sm	21.16	22.09	22.38	(22.26)	22.68	22.71

de l'uranium. Dans les deux cas, bien qu'on ne puisse rien affirmer avec certitude, il paraît très probable que ces échantillons ont effectivement participé aux réactions, et que l'appauvrissement de l'uranium est représentatif.

Dans l'échantillon n° 2694 du KN 257 l'uranium est presque normal : 0.7194 % ; la fluence locale ne peut être qu'inférieure à 0.003 n/kb. Or, si on utilise la formule (1), on trouve que les valeurs de $\sigma\tau$ pour ^{149}Sm, ^{155}Gd et ^{157}Gd sont respectivement de 0.194, 0.088 et 0.321 ; elles correspondent à une fluence de 0.0025 n/kb pour des sections efficaces effectives respectivement de 78, 35 et 130 kb ; ces valeurs sont plausibles à température élevée (de l'ordre de 400 °C). Tout se passe donc comme si cet échantillon était équilibré ; on pourrait même en tirer argument pour

en déduire la température, mais l'expérience nous a appris à être extrêmement prudent : on ne peut pas exclure que les résultats soient légèrement perturbés par contamination (le rapport des transferts pour les deux isotopes du gadolinium prouve cependant en tout état de cause qu'on est dans cette gamme de fluence).

Dans le cas des échantillons 2283 du SC 48 bis, GL 1016 et GL 2326, l'uranium est normal. Il apparaît qu'il y a encore des terres rares de fission, et des transferts qui sont attribuables à des contaminations. On remarquera l'excès de gadolinium 152 (provenant de l'irradiation de l'europium 151) qui bien que très petit, est mesuré avec précision (dans le n° 2283 : + 0.061 ± 0.008 % ; dans GL 2326 : + 0.014 ± 0.004%).

En s'éloignant encore des zones de réaction, on voit qu'il reste une contamination significative : le SC 48 ter est à peine moins perturbé que SC 48 bis, et il y a encore une contamination décelable dans le GL 1020 ; cet échantillon est à près de 3 mètres du coeur. Il est à noter qu'il se trouve encore dans des argiles mais juste à la limite des grès ; il semble donc bien que toute la zone argilisée soit contaminée.

Le tableau VI montre l'évolution des analyses isotopiques du samarium pour les échantillons faiblement perturbés. On note la très bonne cohérence des mesures : la contamination se traduit par une baisse de ^{144}Sm, ^{152}Sm, ^{154}Sm et une hausse de (^{147}Sm + ^{148}Sm) et ($^{150}Sm/^{149}Sm$) ; tous les écarts évoluent en même temps.

Okelobondo

Lorsqu'on a trouvé dans le sondage OK 84 bis d'Okelobondo de l'uranium fortement appauvri, l'existence éventuelle d'un nouveau foyer de réaction a été prise en considération. On a donné dans le tableau III les résultats d'analyse du samarium et du gadolinium dans l'échantillon n°2724 : la grande quantité de produits de fission (82.9 % pour le samarium), l'élimination massive de ^{149}Sm, ^{155}Gd et ^{157}Gd, et l'abondance de ^{152}Gd démontrent la proximité d'un réacteur.

L'échantillon n° 2724 résultait du broyage de 1.40 m de carotte ; il intégrait donc certainement du minerai très peu irradié. C'est pourquoi l'étude a été reprise sur un petit fragment provenant de la portion la plus riche du sondage (n° 2731). Dans cet échantillon,comme on pouvait s'y attendre,l'appauvrissement isotopique de l'uranium est plus grand, de même que la proportion de produits de fission et les fluences déduites des transferts isotopiques. D'après le néodyme, la fluence serait de 0.29 n/kb. Cependant, les ^{155}Gd et ^{157}Gd ne sont pas complètement éliminés,ce qui signifie qu'il y a un peu de contamination, et les quantités de terres rares de fission rapportées à l'uranium ne sont pas équilibrées ; le sondage n'a donc probablement traversé que la bordure de la zone de réaction (d'ailleurs la teneur du minerai est seulement de 21 %).

On a également analysé le gadolinium dans un échantillon du sondage OK 48 qui se trouve à 200 mètres du précédent, et dans lequel l'uranium a été trouvé très légèrement appauvri. Il apparaît que le gadolinium est perturbé : il y a une augmentation significative de ^{152}Gd (+ 0.031 ± 0.006%), et des variations peut-être significatives des isotopes 154 et (155 + 156)/(157 + 158) qu'on peut interpréter comme un produit de fission (0.4 ± 0.25 %). Par contre il n'y a pas de transfert significatif $^{157}Gd \rightarrow {}^{158}Gd$. Cela n'est pas anormal : si on mélange par exemple 0.2 % du gadolinium de l'échantillon 2731 avec l'élément naturel, on trouve une augmentation de ^{152}Gd de l'or-

dre de grandeur de celle qui a été constatée et par contre un transfert de ^{157}Gd non appréciable.

D'après l'expérience d'Oklo, le fait que les terres rares soient perturbées dans un échantillon tend à faire exclure l'hypothèse d'une contamination lointaine. Cela pouvait donc signifier qu'il y a d'autres foyers de réaction que celui traversé par OK 84 bis.

Autres mesures

a) L'analyse isotopique des terres rares permet d'évaluer la proportion des fissions dans le plutonium : si cette proportion augmente, les quantités ^{150}Nd, $^{154}Sm/(^{147}Sm + ^{148}Sm)$ et $(^{157}Gd + ^{158}Gd)/(^{155}Gd + ^{156}Gd)$ relatives aux produits de fission sont plus grandes. Une augmentation significative de la contribution du plutonium signifie que le flux a été plus élevé d'où, par comparaison avec la fluence, une indication sur la durée.

On s'est intéressé plus particulièrement à des échantillons provenant de trois sondages SC6, SC 34 bis et KN 267. Les raisons de ces choix sont les suivantes : les réactions ayant été contrôlées par la température ont été a priori plus intenses là où l'évacuation de chaleur était plus efficace ; les transferts pouvant se faire soit par conduction aux épontes, soit par convection, on a pensé que c'était dans les passes minces et à l'aval des zones de réaction que les situations étaient a priori les plus favorables pour trouver des durées de réaction plus courtes ; SC 6 et SC 34 bis sont dans des passes minces de bordure de la zone 2, le KN 257 est situé à l'aval de l'ensemble des zones de réaction.

Il s'est révélé que dans les échantillons n° 867 du SC 6 et n° 1870 du SC 34 bis, il n'y a guère plus de 2 % de fissions dans le plutonium ; par contre dans l'échantillon n° 2194 du KN 267, il semble y en avoir 9 à 12 %. Ce taux est d'autant plus remarquable que la fluence n'est pas très élevée. Ce résultat tend à montrer que l'hypothèse faite sur le rôle de la convection pourrait avoir une certaine plausibilité. D'autre part comme le SC 6 est à l'aval de la zone 2, le résultat négatif pourrait être un argument pour penser que cette zone était en réalité reliée à la zone 5-6 à l'amont de laquelle elle se trouve.

b) Enfin on a dosé les terres rares naturelles dans plusieurs échantillons éloignés des zones de réaction.

Il apparaît d'abord que les terres rares naturelles sont moins abondantes (6 à 10 ppm de néodyme) dans les grès "normaux" de la couche C_1 que dans les argiles au voisinage des piles (40 à 60 ppm). Cela peut s'expliquer par simple effet de concentration si on admet que les "argiles de piles" proviennent d'une désilicification des grès. Une mesure dans le conglomérat thorifère de la base du Francevillien a par contre donné une valeur énorme (750 ppm).

D'autre part le spectre des terres rares dans le minerai normal d'Oklo (ainsi que celui du conglomérat) n'apparaît pas sensiblement différent de celui des zones de réaction. On sait que ce spectre est très déprimé du côté des terres rares lourdes ; la mesure faites dans le SC O (n° 2252) tendrait même à prouver que cet effet est encore un peu plus grand dans le minerai normal, mais la différence n'est peut être pas significative. Il y a une anomalie négative en europium dans le conglomérat thorifère ; par contre les anomalies europium et cérium dans les zones de réaction n'existent pas dans le minerai normal.

Annexe

RESULTATS DETAILLES DES ANALYSES ISOTOPIQUES ET DES DOSAGES

Concentrations isotopiques en atomes % du néodyme, de l'europium et de l'uranium

Echantillon	400/7	1976/3	1977/3	1978/3	2193	2194
Localisation	2L	SC/63	SC/63	SC/63	KN 267	KN 267
^{142}Nd	0,860 à 1,3 %	1,42 à 1,1%	1,41 à 1,4 %	1,80 à 5 %	7,98 à 1,1 %	2,59 à 2,6
^{143}Nd	22,09 à 0,5 %	23,72 à 0,3%	24,03 à 0,7 %	24,33 à 1 %	22,17 à 0,6 %	25,01 à 1%
^{144}Nd	32,26 à 0,3 %	30,34 à 0,2%	30,20 à 0,4 %	29,49 à 0,7%	27,18 à 0,4 %	27,93 à 0,7
^{145}Nd	17,76 à 0,6 %	17,87 à 0,4%	17,85 à 0,7 %	17,87 à 1,6%	15,57 à 0,65%	17,61 à 1,4
^{146}Nd	15,52 à 0,6 %	15,26 à 0,4%	15,20 à 0,7 %	15,13 à 1,3%	15,56 à 0,6 %	15,09 à 1,3
^{148}Nd	8,13 à 0,9 %	7,99 à 0,6%	7,99 à 1 %	7,97 à 1,5%	7,49 à 1 %	8,05 à 1,4
^{150}Nd	3,37 à 0,8 %	3,39 à 1%	3,37 à 1,3%	3,39 à 1,8%	4,04 à 1,2%	3,73 à 1,4

Echantillon	GL 2066	1933/1	1933/3	2731	867	1870
Localisation	GL 7	SC 44	SC 44	OK 84 bis	SC 6	SC 34 bis
^{142}Nd	3,34 à 1,2 %	21,75 à 0,8	5,12 à 1 %	4,13 à 1,3%	2,10 à 1,2%	2,67 à 0,8%
^{143}Nd	25,83 à 0,6 %	14,90 à 1,1	22,74 à 0,4%	25,05 à 0,5%	25,60 à 0,4%	25,08 à 0,4%

^{144}Nd	26,98 à 0,4 %	24,80 à 0,5	28,69 à 0,2%	27,32 à 0,4%	27,93 à 0,3%	28,11 à 0,2%
^{145}Nd	17,56 à 0,4 %	10,30 à 1,1	16,50 à 0,4%	17,21 à 0,7%	17,80 à 0,6%	17,59 à 0,4%
^{146}Nd	14,91 à 0,75%	16,80 à 0,9	15,46 à 0,4%	15,02 à 0,6%	15,06 à 0,6%	15,09 à 0,5%
^{148}Nd	7,86 à 0,7 %	6,26 à 1,2	7,73 à 0,5%	7,75 à 1 %	8,03 à 0,7%	7,93 à 0,5%
^{150}Nd	3,54 à 1,2 %	5,24 à 1,3	3,76 à 0,7%	3,52 à 1 %	3,49 à 0,7%	3,52 à 0,6%

Echantillon	400/7	1933/1	1933/3	2731	867
Localisation	2L	SC 44	SC 44	OK 84 Bis	S 3 C 6
^{151}Eu	15,56 à 0,4 %	46,44 à 0,1%	31,90 à 0,3 %	44,82 à 0,1 %	37,7 à 0,1 %
^{153}Eu	84 44 à 0,2 %	53,56 à 0,1%	68,10 à 0,2 %	55,18 à 0,1 %	62,3 à 0,06 %

Echantillon	1976/3	1978/3	2194	1919	1922	2731
Localisation	SC 63	SC 63	KN 267	SC 44	SC 44	OK 84 bis
^{235}U	0,426 à 1%	0,608 à 1%	0,617 à 1%	0,714 à 1%	0,711 à 1%	0,638 à 1 %
^{238}U	99,57 à 0,01%	99,39 à 0,01%	99,380 à 0,01%	99,286 à 0,01	99,289 à 0,01%	99,362 à 0,01%

Concentrations isotopiques du samarium en atomes %

Echantillon	400/7	2194	435	1320	2027	2031
Localisation	2 L	KN 267	2 P	SC 20	SC 30	SC 30
^{144}Sm	0,204 à 5 %	0,193 à 2,5 %	2,37 à 1,3 %	2,77 à 1,2 %	1,45 à 1,7%	0,47 à 1,2%
^{147}Sm	52,60 à 0,5 %	53,88 à 0,2 %	24,15 à 0,3 %	19,40 à 0,6 %	38,01 à 0,5%	48,83 à 0,3%
^{148}Sm	6,99 à 1,3 %	2,83 à 0,6 %	9,85 à 0,7 %	10,23 à 0,8 %	5,63 à 1,1%	2,964 à 1 %
^{149}Sm	0,628 à 1,5 %	0,708 à 1,5 %	9,90 à 0,8 %	8,84 à 1 %	2,013 à 1,5%	0,912 à 1,3%
^{150}Sm	25,14 à 1 %	26,32 à 0,4 %	12,69 à 0,7 %	12,98 à 0,9 %	22,29 à 0,8%	24,31 à 0,5%
^{152}Sm	11,01 à 1,3 %	12,36 à 0,5 %	22,97 à 0,5 %	25,0 à 0,4 %	17,93 à 0,8%	12,45 à 0,7%
^{154}Sm	3,46 à 2,2 %	3,70 à 0,7 %	18,06 à 0,5 %	20,80 à 0,8 %	12,68 à 1,7%	10,07 à 0,7%

Echantillon	1919	1922	1933/1	1933/3	1913
Localisation	SC 44	SC 44	SC 44	SC 44	S C 44
^{144}Sm	3,04 à 0,7 %	2,80 à 1,3 %	2,74 à 1,4 %	0,460 à 2 %	2,97 à 1,2 %
^{147}Sm	15,71 à 0,3 %	19,12 à 0,7 %	19,60 à 0,8 %	49,5 à 0,2 %	16,71 à 0,7 %
^{148}Sm	11,05 à 0,4 %	10,27 à 1 %	10,29 à 0,9 %	5,27 à 0,9 %	11,05 à 1,5 %
^{149}Sm	13,29 à 0,4 %	10,88 à 1 %	7,82 à 1,1 %	1,51 à 0,9 %	12,84 à 1 %
^{150}Sm	8,06 à 0,4 %	10,90 à 1 %	14,10 à 1 %	24,79 à 0,4 %	8,67 à 1,5 %
^{152}Sm	26,44 à 0,2 %	25,25 à 0,4 %	24,99 à 0,5 %	13,09 à 0,6 %	25,94 à 1,1 %
^{154}Sm	22,40 à 0,3 %	20,77 à 0,6 %	20,45 à 0,8 %	5,40 à 0,6 %	21,81 à 1,1 %

Echantillon	1877	2092	2283	2694	2291	GL 1016
Localisation	SC 56	minipile	SC 48 bis	KN 257	SC 48 ter	GL 1
^{144}Sm	0,629 à 1,4 %	0,657 à 2,5 %	3,01 à 2,8 %	2,85 à 1,8 %	3,01 à 1,5 %	2,98 à 1,2 %
^{147}Sm	50,01 à 0,4 %	49,32 à 0,2 %	15,88 à 1,5 %	18,52 à 1,3 %	15,79 à 0,5 %	16,24 à 0,5 %
^{148}Sm	2,90 à 1,3 %	3,11 à 0,7 %	10,91 à 1,4 %	10,43 à 1,7 %	10,95 à 0,5 %	10,97 à 0,5 %
^{149}Sm	2,75 à 1,4 %	4,47 à 0,7 %	13,36 à 1,4 %	12,62 à 1,8 %	13,40 à 0,6 %	13,35 à 0,5 %
^{150}Sm	24,17 à 0,7 %	22,55 à 0,4 %	7,93 à 1,2 %	9,15 à 1,3 %	7,71 à 0,8 %	8,05 à 0,6 %
^{152}Sm	13,06 à 0,8 %	13,17 à 0,5 %	26,53 à 0,6 %	25,27 à 0,8 %	26,88 à 0,3 %	26,33 à 0,3 %
^{154}Sm	6,48 à 1,4 %	6,72 à 0,9 %	22,38 à 0,8 %	21,16 à 1,4 %	22,26 à 0,5 %	22,09 à 0,5 %

Echantillon	GL 1020	GL 2326	2724	2731	867	1870
Localisation	GL 1	GL 8	OK 84 bis	OK 84 bis	SC 6	SC 34 bis
^{144}Sm	3,06 à 1,1%	3,11 à 0,7 %	0,480 à 1 %	0,412 à 1,2 %	0,148 à 2,7 %	0,162 à 4,2 %
^{147}Sm	15,19 à 0,4%	15,35 à 0,4 %	51,43 à 0,2 %	52,49 à 0,2 %	54,80 à 0,2 %	54,40 à 0,2 %
^{148}Sm	11,17 à 0,5%	11,25 à 0,6 %	2,80 à 0,8 %	2,53 à 0,6 %	2,92 à 1,4 %	3,15 à 0,7 %
^{149}Sm	13,61 à 0,4%	13,10 à 0,5 %	1,51 à 1 %	1,305 à 0,8 %	1,05 à 2 %	1,07 à 1,2 %
^{150}Sm	7,60 à 0,5%	8,17 à 0,5 %	25,08 à 0,3 %	25,41 à 0,4 %	26,30 à 0,9 %	26,33 à 0,3 %
^{152}Sm	26,69 à 0,2%	26,58 à 0,3 %	13,36 à 0,4 %	13,02 à 0,5 %	11,30 à 1,1 %	11,45 à 0,6 %
^{154}Sm	22,68 à 0,4%	22,44 à 0,4 %	5,34 à 0,5 %	4,84 à 0,7 %	3,59 à 2,1 %	3,41 à 0,8 %

Concentrations isotopiques du gadolinium en atomes %

Echantillon	400/7	2194	435	1320	2027	2031
Localisation	2L	KN 267	2P	SC 20	SC 30	SC 30
^{152}Gd	33,19 à 0,6 %	11,04 à 0,7 %	2,37 à 3,7 %	0,78 à 1,5 %	7,75 à 1,7 %	16,26 à 0,5%
^{154}Gd	31,47 à 0,7 %	4,13 à 0,8 %	3,49 à 3,7 %	2,27 à 0,8 %	4,01 à 2,8 %	5,15 à 0,7 %
^{155}Gd	0,677 à 1,6 %	0,489 à 1,5 %	13,03 à 1,6 %	11,44 à 0,6 %	2,40 à 1,4 %	0,741 à 1,1 %
^{156}Gd	22,79 à 1,2 %	33,36 à 0,5 %	21,46 à 1,6 %	23,70 à 0,6 %	31,12 à 0,7 %	31,34 à 0,3 %
^{157}Gd	0,394 à 3,1 %	0,200 à 2,5 %	13,15 à 1,6 %	9,27 à 0,7 %	1,09 à 1,5 %	0,086 à 2,1 %
^{158}Gd	8,87 à 2,4 %	33,51 à 0,3 %	25,72 à 0,9 %	30,80 à 0,4 %	34,68 à 0,5 %	30,31 à 0,4 %
^{160}Gd	2,61 à 2 %	17,27 à 6 %	20,79 à 1,5 %	21,65 à 0,5 %	19,95 à 0,8 %	15,52 à 0,6 %

Echantillon	1913	1919	1922	1933/1	1933/3	1877
Localisation	SC 44	SC 44	SC 44	SC 44	SC 44	SC 56
^{152}Gd	0,479 à 10%	0,335 à 1,9 %	2,63 à 8 %	1,09 à 4,6 %	15,80 à 0,8%	4,24 à 1,1 %
^{154}Gd	2,31 à 2%	2,205 à 1,4 %	3,38 à 6 %	2,40 à 2 %	7,82 à 0,8%	2,60 à 1,2 %
^{155}Gd	14,51 à 0,8%	14,51 à 0,8 %	12,61 à 2,7%	11,34 à 0,8 %	7,23 à 1 %	2,15 à 1,2 %
^{156}Gd	20,71 à 0,8%	20,69 à 0,7 %	21,52 à 2,7%	23,7 à 0,8 %	24,33 à 0,4%	33,21 à 0,4 %
^{157}Gd	14,87 à 0,8%	15,10 à 0,8 %	12,25 à 2,7%	8,98 à 0,9 %	6,01 à 0,9%	0,473 à 2,1 %
^{158}Gd	25,43 à 0,7%	25,31 à 0,4 %	26,80 à 1,5%	30,96 à 0,4 %	23,70 à 0,5%	37,33 à 0,3 %
^{160}Gd	21,69 à 0,5%	21,84 à 0,7 %	20,80 à 2,4%	21,5 à 0,8 %	15,10 à 0,9%	19,99 à 0,5 %

Echantillon	2092	2283	2694	GL 1020	2326	2724
Localisation	minipile	SC 48 bis	KN 257	GL 1	GL 8	OK 84 bis
^{152}Gd	7,85 à 1 %	0,261 à 3,8 %	0,256 à 4,2 %	0,273 à 2,5 %	0,214 à 2 %	12,52 à 1 %
^{154}Gd	2,97 à 0,8%	2,18 à 1,4 %	2,18 à 0,9 %	2,21 à 1,5 %	2,18 à 1 %	3,67 à 0,8 %
^{155}Gd	8,76 à 0,6%	14,68 à 0,9 %	13,63 à 0,6 %	14,61 à 0,7 %	14,38 à 0,9%	3,48 à 0,8 %
^{156}Gd	27,19 à 0,5%	20,56 à 0,8 %	21,62 à 0,6 %	20,70 à 0,7 %	20,97 à 0,7%	30,05 à 0,5%
^{157}Gd	6,92 à 0,6%	15,34 à 0,8 %	11,36 à 0,6 %	15,30 à 0,8 %	13,80 à 0,9%	1,17 à 0,9%
^{158}Gd	28,13 à 0,3%	25,16 à 0,5 %	29,13 à 0,3 %	25,08 à 0,5 %	26,81 à 0,5%	31,92 à 0,5 %
^{160}Gd	18,17 à 0,5%	21,82 à 0,7 %	21,83 à 0,6 %	21,82 à 0,9 %	21,65 à 1 %	17,19 à 0,5 %

Echantillon	2731		867	1870
Localisation	OK 84 bis	OK 48/5	SC 6	SC 34 bis
^{152}Gd	15,99 à 1 %	0,231 à 1,8 %	25,7 à 0,5 %	29,45 à 0,4 %
^{154}Gd	4,29 à 1,4 %	2,19 à 1,4 %	6,87 à 0,5 %	9,84 à 0,7 %
^{155}Gd	2,08 à 1,5 %	14,78 à 0,9 %	2,57 à 0,5 %	2,35 à 1,5 %
^{156}Gd	30,89 à 0,5 %	20,43 à 0,7 %	28,39 à 0,3 %	28,33 à 0,7 %
^{157}Gd	0,772 à 2,5 %	15,65 à 0,7 %	1,28 à 1,1 %	0,981 à 2,5 %
^{158}Gd	30,14 à 0,8 %	24,84 à 0,4 %	23,30 à 0,9 %	19,76 à 0,8 %
^{160}Gd	15,83 à 1 %	21,89 à 0,6 %	11,87 à 0,6 %	9,28 à 1,1 %

Dosages des europium, samarium, gadolinium, néodyme, cérium, uranium par gramme de minerai

Echantill.	Localisation	Eu µg/g	Sm µg/g	Gd µg/g	Nd µg/g	Ce µg/g	U mg/g	Nd/U
400/7	2 L	8.9 à 2 %	131 à 7 %	11.3 à 5 %	577 à 4 %		167 à 2.5%	0.00345
1933/1	SC 44	12.8 à 2 %	29.7 à 2.5%	28.2 à 3 %	183 à 3 %		90.9 à 1 %	0.00201
1933/3	SC 44	6.3 à 2.5%	52 à 4.5%	10.9 à 6 %	294 à 5 %		91.4 à 1.3%	0.00322
2252	SC 0	0.261 à 3 %	0.945 à 6 %	0.555 à 7 %	7.88 à 13%	27.4 à 3%		
2639	(conglomérat thorifère)	5.73 à 2 %	112.9 à 4 %	66.5 à 3.5%	752 à 3 %	2182 à 3%		
2673	KN 244				11.9 à 3 %			
2731	OK 84 bis	2.46 à 2 %	22.9 à 4 %	3.10 à 7 %	137 à 2.5%		210 à 0.6%	0.00065
1975/3	SC 63				1069 à 2,5%		218 à 1,5%	0.00490
1976/3	SC 63				1050 à 3 %		487 à 0.7%	0.00216
1977/3	SC 63				185 à 3 %		69.3 à 0.7%	0.00267
1978/3	SC 63				1423 à 6 %		583 à 0.7%	0.00244
2193	KN 267				64.7 à 3 %		81.1 à 0.7%	0.00080
2194	KN 267				1009 à 6 %		621	0.00162
GL 2066	GL 7				514 à 2 %		610 à 0.9%	0.00084

REFERENCES

[1] NEUILLY, Michèle, et al., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/15.
[2] DEVILLERS, C., et al., «Age de la minéralisation de l'uranium et date de la réaction nucléaire», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 293.
RUFFENACH, J.C., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/16.
[3] BASSIERE, H., et al., «Analyse isotopique et pondérale de terres rares dans divers échantillons d'Oklo», Le Phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 385.
[4] NAUDET, R., RENSON, C., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/4.
[5] COWAN, G.A., et al., «Some United States studies of the Oklo phenomenon», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 341.
[6] NAUDET, R., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/25.

DISCUSSION

W.J. MAECK: Nous avons également observé une zone de terres rares naturelles autour du réacteur – et en quantités anormalement élevées. Pouvez-vous expliquer l'accumulation de ces éléments?

R. NAUDET: Je crois que vous l'avez constatée dans la zone du SC 36 que M. Ruffenach a décrite dans sa présentation (IAEA-TC-119/16), c'est-à-dire dans cette région des échantillons 1880–1901 où effectivement on a un énorme pic de terres rares naturelles et un énorme pic de thorium. Nous pensons que dans ce gisement il y avait un certain nombre de minéraux détritiques, par exemple du type monazite. D'ailleurs, dans les échantillons 1901, je crois qu'on a vu une monazite. Ces minéraux détritiques ont été en général «digérés», si je peux dire, par la diagenèse. Les éléments étaient disséminés, mais dans quelques cas ils ont été probablement insuffisamment digérés et on observe des concentrations locales. En tout cas, il y a une anomalie; en ce qui concerne le thorium on peut faire la même constatation. Nous avons procédé à une analyse systématique du thorium naturel, c'est-à-dire du thorium non radiogénique, dans le gisement d'Oklo et trouvé en général des valeurs de l'ordre de 10 ppm dans les grès, et de 50 à 100 ppm dans les argiles de pile à proximité des zones de réaction; là aussi ce sont des concentrations qui peuvent s'expliquer par l'élimination des quartz. Dans les échantillons 1901, on trouve 2000, 3000 ou même 7000 ppm de thorium, soit une quantité absolument énorme. Ainsi il y a cinquante fois plus de thorium et de terres rares naturelles dans ces échantillons. C'est donc à l'origine un minéral mal digéré.

P.R. SIMPSON: En passant en revue les raisons qui pourraient expliquer la concentration élevée des terres rares naturelles aux environs des zones de réaction, on doit prendre en compte le fait que la matière carbonée a une affinité

marquée[1] pour ces éléments, ce qui pourrait justifier leur concentration à cet endroit.

R. NAUDET: C'est fort possible. Dans les limites de notre petite investigation, tout ce qu'on peut affirmer, c'est qu'effectivement il y a des points où les valeurs sont élevées et je crois pouvoir dire qu'il y a toujours une corrélation entre terres rares et thorium: chaque fois qu'on a beaucoup de thorium, on a beaucoup de terres rares et inversement.

F. CHANTRET: A propos du couple thorium/terres rares dans certains échantillons d'Oklo, il est bon de rappeler les observations de J. Geffroy[2], concernant l'abondance locale de zircons détritiques, fortement minéralisés, dans les grès à matériaux uranifères hydrocarbonés des parties non entrées en réaction, d'où l'intérêt de doser aussi le Zr: si une corrélation apparaît entre cet élément et le thorium ou les terres rares, il est probable que ces éléments existaient dans les zircons avant la réaction. Par ailleurs, je signale de fortes anomalies en Zr (jusqu'à 800 ppm) dans certains faciès argileux des dépôts uranifères du Carbonifère du Niger: dans ce cas, Zr est lié à la matière organique finement dispersée. Il ne paraît donc pas lié à une concentration détritique et ne présente d'ailleurs aucune corrélation avec Th d'une part, ni avec les terres rares d'autre part. Deux cas possibles de concentration (ou plutôt de reconcentration) du zirconium sont donc à envisager sur le plan géochimique.

R. NAUDET: Nous n'avons pas mesuré le zirconium dans cet échantillon. C'est dommage, mais on le fera peut-être.

---

[1] SZALAY, A., Accumulation of uranium and other micrometals in coal and organic shales and the role of humic acids in these geological enrichments, Arkiv Mineralogi Geologi 5 3 (1969) 23;

SZALAY, A., Cation exchange properties of humic acids and their importance in the geochemical enrichment of UO_2^{++} and other cations, Geochim. Cosmochim. Acta 28 (1964) 1605.

[2] GEFFROY, J., «Etude microscopique des minerais uranifères d'Oklo», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 133.

CONTRIBUTION DU PLOMB ET DU THORIUM A L'HISTOIRE DES REACTEURS D'OKLO

C. DEVILLERS, J. MENES
Division de chimie,
CEA, Centre d'études nucléaires de Saclay,
Gif-sur-Yvette, France

Résumé–Abstract

CONTRIBUTION DU PLOMB ET DU THORIUM A L'HISTOIRE DES REACTEURS D'OKLO.

On présente les résultats de mesures de plomb et de thorium sur une série d'échantillons représentatifs des surconcentrations uranifères rencontrées dans la minéralisation d'Oklo. L'interprétation de ces données fait apparaître la complexité de l'histoire du plomb dans le gisement mais permet de dégager un certain nombre de faits importants: perturbation ancienne, remobilisation récente et massive du plomb. On est conduit à admettre que la date de mise en place de l'uranium peut être supérieure à 1900 millions d'années. L'absence de teneurs importantes de thorium dans le minerai riche «normal» confirme l'intérêt de la détermination de la date de la réaction nucléaire à partir du bilan Th/U. Cette détermination, qui utilise le même ensemble de données que pour le bilan Nd/U, fournit une valeur moyenne voisine: 1,93 milliard d'années.

CONTRIBUTION OF LEAD AND THORIUM TO THE HISTORY OF THE OKLO REACTORS.

The authors report the results of measuring lead and thorium in a series of representative samples of the superconcentrations of uranium found in the Oklo mineralization. Interpretation of the data reveals the complexity of the history of lead in the deposit, but makes it possible to derive a number of important facts, namely early disturbance and recent, massive remobilization of lead. One is led to conclude that the date of the uranium emplacement may be greater than 1900 million years. The absence of high thorium contents in the "normal" rich ore confirms the importance of dating the nuclear reaction on the basis of the Th/U balance. This determination, which draws on the same set of data as for the Nd/U balance, gives a mean value close to 1930 million years.

Les premiers résultats de mesures uranium-plomb sur le site d'Oklo ont souligné la difficulté d'une détermination absolue d'âges dans le gisement. On a pu constater, en effet [1, 2], que là où existaient des surconcentrations d'uranium, c'est-à-dire dans les zones de réaction, une migration importante du plomb avait effacé en partie la corrélation attendue entre l'âge apparent du plomb radiogénique et la teneur isotopique de l'uranium parent. D'autre part,

dans les parties du gisement où l'uranium présentait une composition isotopique «normale», il s'est trouvé clairement démontré [2] que l'ensemble des mesures ne pouvait être interprété par un modèle épisodique simple correspondant à une minéralisation de l'uranium vers 1800 millions d'années suivie d'une remobilisation récente du plomb. On a vu, en effet, que ce modèle qui s'appuyait sur les données géochronologiques obtenues sur le Francevillien donnait une interprétation aussi approximative de l'ensemble des mesures qu'un modèle de minéralisation vers 2 milliards d'années suivi d'une remobilisation du plomb aux alentours de 250 millions d'années, ce dernier modèle s'appuyant lui sur la mesure de la date de la réaction nucléaire à partir du bilan produits de fission-uranium.

Il ne semble pas que les données géochronologiques supplémentaires obtenues par de nouvelles mesures Rb-Sr [3] ou une révision fine de la valeur des constantes utilisées dans le calcul de la date de la réaction nucléaire [4] permettent de trancher maintenant entre les deux interprétations.

Les nouvelles mesures uranium-plomb présentées ici ont été effectuées sur des échantillons riches en uranium et donc plus représentatifs des surconcentrations uranifères rencontrées dans la minéralisation d'Oklo. Elles confirment la complexité de l'histoire du gisement et indiquent que la date de mise en place de l'uranium pourrait être sensiblement plus élevée que celle admise jusqu'à maintenant pour la sédimentation du Francevillien.

RESULTATS DE MESURES U-Th-Pb: LES PRINCIPAUX FAITS

Le tableau I reproduit l'ensemble des mesures U-Th-Pb effectuées sur les minéralisations d'Oklo. Les mesures chimiques de plomb sur des coupes traversant complètement des zones de réaction (2 L, 2 N, 2 P) permettent d'obtenir une bonne estimation du bilan global Pb/U; la moyenne pondérée par les concentrations d'uranium de ce rapport est de l'ordre de 12%. Par comparaison, la quantité de plomb radiogénique rapportée à l'uranium devrait être de 30% pour un âge de 1800 millions d'années. Il y a donc eu *migration massive* de plomb. A cette migration massive est aussi associée une *variation locale considérable des rapports Pb/U* qui peuvent s'échelonner de 0,01 à 4 sur des échantillons de l'ordre du gramme [1, 6]. La corrélation entre teneurs en plomb et uranium reste cependant remarquable. Dans les portions riches des zones de réaction le rapport Pb/U reste très voisin de sa valeur moyenne, il augmente sensiblement dans le minerai pauvre de bordure ou dans les passes moins riches des zones de réaction (tableau I), suggérant un étalement à courte distance du plomb radiogénique. Le comportement du plomb d'échantillons plus éloignés des zones de réaction dont l'uranium présente une composition isotopique normale (série KN 220 à 270, C $y = -200$, $y = -110$) ou presque normale (SC 15 800/1) est analogue; la moyenne pondérée des rapports Pb/U est ainsi de

0,13 pour la série des KN. Ces derniers échantillons, obtenus par homogénéisation d'une quantité importante de minerai prélevée sur la partie la plus riche d'un sondage correspondant, ont cependant des rapports Pb/U plus largement variables, ce qui peut résulter de la différence de structure de l'uranium (pechblende au lieu d'uraninite) ou traduit une différence des propriétés de rétention de la gangue (argile pour KN 234, 242, 257, grès pour les autres).

Le tableau II rassemble les mesures de composition isotopique du plomb ainsi que la valeur α du rapport $^{207}Pb/^{206}Pb$ radiogénique et la valeur $\alpha' = \alpha \times 0{,}007254/N$ (N = rapport $^{235}U/^{238}U$ des échantillons d'uranium appauvri). On constate immédiatement pour les échantillons du sondage SC 36 une corrélation entre α et appauvrissement qui traduit bien la corrélation plomb-uranium évoquée plus haut. Cependant cette corrélation n'est pas très étroite et la variation de α' due à des mélanges isotopiques de plombs voisins entraîne une variation importante d'âges apparents [2].

On a rappelé au tableau II les mesures isotopiques de plomb effectuées sur l'échantillon 1413/4 (a à f) qui correspondent à six microprélèvements dans des grains d'uranium a, b, c et dans la gangue argileuse voisine d, e, f. Des mesures analogues effectuées sur l'échantillon 1418/1 (a à d) de s'appuient pas sur une séparation minéralogique aussi précise; disons simplement que l'échantillon 1418/1/a contient plus de gangue que b, c ou d. On y observe une diminution sensible des valeurs de α dans les fractions riches en uranium relativement à l'échantillon moyen correspondant. L'augmentation significative de α du plomb contenu dans les argiles est, d'autre part, corrélée à une augmentation importante des rapports Pb/U (tableau I). On a pu vérifier que la composition isotopique de l'échantillon moyen peut être reconstituée avec précision en la considérant comme un mélange d'environ 20% de la fraction f et 80% de la fraction c. Cette quantité de plomb d'âge apparent anormalement élevé ne représente donc pas un phénomène mineur. Elle pourrait à elle seule expliquer l'augmentation du rapport Pb/U moyen dans l'échantillon 1413 relativement à ses voisins 1410 et 1418 (0,132 comparé à 0,113 et 0,105). Cette observation renforce l'idée d'un étalement à courte distance du plomb radiogénique. Si cet étalement est effectif, on conçoit qu'il soit difficile de fixer avec précision l'appauvrissement de l'uranium correspondant à cette composition particulière de plomb radiogénique. On peut cependant l'estimer comme, au minimum, celle de l'échantillon 1413 (0,00410) et, au maximum, celle du 1418 (0,00574). Le rapport α' correspondant est alors compris entre 16,6 et 13,2. La valeur minimale possible de α' donne un âge apparent minimum de 2120 millions d'années et montre bien la présence de quantités importantes de plomb ancien à l'intérieur même des zones de réactions.

On doit encore souligner parmi les faits remarquables la valeur moyenne élevée du rapport 208/204 ($\geqslant$ 45,4). Elle s'interprète dans la coupe SC 36 par la présence de ^{232}Th issu de la réaction nucléaire. Elle n'est pas corrélée pour la série des échantillons KN à des teneurs élevées de thorium naturel.

TABLEAU I. TENEURS EN POIDS DE L'URANIUM, DU PLOMB ET DU THORIUM

U, Pb, Th dosés chimiquement									
Echantillon		U(%)	Pb(%)	Pb/U	Echantillon		U(%)	Pb(%)	Pb/U
2 L	395	1,7	traces	–	2 N	415	1,1	0,5	(0,45)
	396	1,3	traces	–		416	0,6	traces	–
	397	6,4	1,0	0,16		417	8	1,7	0,23
	398	14	2,3	0,16		418	17	2,0	0,12
	399	59	9,9	0,17		419	16	2,0	0,12
	400	28	5,8	0,20		420	24	2,4	0,10
	401	12	2,4	0,20		421	15	2,4	0,16
	402	64	10,4	0,16		422	12	1,3	0,11
	403	60	6,9	0,11		423	17	2,5	0,15
	404	56	6,3	0,11		424	21	3,9	0,18
	405	51	6,3	0,12		425	16	2,7	0,17
	406	37	6,0	0,16		426	15	1,7	0,11
	407	41	4,4	0,11		427	31	4,5	0,15
	408	36	3,0	0,08		428	61	6,1	0,10
	409	10	3,6	0,38		429	58	8,5	0,15
	410	30	3,2	0,11		445	42	5,5	0,13
	411	35	3,5	0,10		446	42	5,1	0,12
	412	36	2,8	0,08		447	24	3,2	0,13
	413	9	1,0	0,11		448	18	3,4	0,19
	414	0	0,4	(0,44)		449	25	2,8	0,11
2 P	430	36	3,5	0,10	SCU	468	0,4	traces	–
	431	61	6,1	0,10		470	8,7	0,9	0,13
	432	53	4,7	0,09		472	3,4	0,3	0,10
	433	59	4,7	0,08		474	4,8	0,5	0,10
	434	22	2,4	0,11		476	17	1,8	0,10
	435	1,5	1,8	(1,2)		477	33	3,0	0,09
	436	3,5	5,1	(1,5)		479	1,6	0,3	0,16
	437	3,6	2,7	(0,8)					
	438	1,4	0,6	(0,4)	SC 20	1315	$<0,1$	0,6	(>6)
	439	1,2	0,5	(0,4)		1316	3,3	0,9	0,27
	440	1,9	1,0	(0,5)		1357	18	4,3	0,24
	441	1,0	0,5	(0,5)		1358	$<0,1$	0,4	(>4)
	442	0,5	traces	–					
	443	0,1	traces	–	SC 61	1499	24	2,1	0,09
	444	0,1	traces	–		1503	5	0,85	0,17
						1505	45	4,7	0,10

TABLEAU I. (suite)

Echantillon		U(%)	Pb(%)	Pb/U	Echantillon		U(%)	Pb(%)	Pb/U
SC 52	1460	0,4	0,5	(1,2)					
	1468	36	2,9	0,08	SC 53	1763	31	6,1	0,20
	1472	32	2,9	0,09					
	1476	40	4,3	0,11					
	1482	3	0,6	0,20					

Echantillon	U(%)	Pb(%)	Pb/U	Th(ppm)
KN 220	7,1	1,02	0,144	
KN 231	11,0	2,01	0,182	6
KN 234	57,8	0,88	0,015	
KN 242	47,7	5,58	0,116	
KN 244	2,7	0,78	0,289	
KN 248	14,5	3,90	0,268	12
KN 252	19,0	0,86	0,045	100
KN 255	5,3	1,17	0,221	
KN 257	32,2	5,04	0,156	75
KN 259	47,4	7,68	0,161	
KN 266	8,5	2,91	0,342	
KN 270	13,3	2,10	0,157	

U: mesure radiométrique, Pb: mesure spectrométrique, Th: mesure chimique

Echantillon		U(%)	Pb(%)	Pb/U	Th(ppm)
KN 234	2303	~ 12	1,0	0,083	
	2305	~ 61	5,2	0,086	
KN 238		5,2	0,56	0,108	
KN 271		4,0	0,96	0,240	
SC 30 bis	2060	~ 25			290
	2066/3	~ 35			305
	2500	~ 7			95
SC 44	1933/2	~ 36			1100

TABLEAU I. (suite)

Echantillon		U(%)	Pb(%)	Pb/U	Th(ppm)
2 'P'	1179	55*			3090
	1181	21*			1950
	1183	15*			1275
	1185	43*			3185
GL 2066	(afft 7)	57*			705

U, Pb dosés par dilution isotopique, Th: mesure chimique

Echantillon		U(%)	Pb/U	Th(ppm)	N5/N8** (%)
C (y = − 200)	314	~ 10	0,07		N
C (y = − 110)	2089	~ 20	0,04		N
SC 15	800/1	37	0,11		0,712
KN 50	B3548	55	0,117	3290	
	323	7			
SC 36	1892	0,26	0,360	75	0,670
	1402	2,8	0,192	415	0,666
	1408/4	23	0,170		0,545
	1410/3	58	0,113	2555	0,527
	1413/3	37	0,132	2400	0,410
	1418	58	0,105	2615	0,574
	1421/4	1,1	0,272		0,525
	1423/5	9,4	0,156	345	0,547
	1425/1	2,0	0,393	150	0,638
	1901	9,5	0,168	7340	0,724
	1905	0,7	0,194	225	0,719
	1900–1901			3500	
	1904–1905			110	
	1413/4/a		0,088		0,393
	b		0,073		0,398
	c		0,097		0,417
	d		0,232		0,412
	e		0,466		0,436
	f		0,376		0,419
	1418/1/a		0,129		0,567
	b		0,091		0,574
	c		0,102		0,585
	d		0,087		0,580

TABLEAU I. (suite)

Echantillon		U(%)	Pb/U	Th(ppm)	N5/N8** (%)
SC 44	1932	11,8	0,314	55	0,722
	1933	10,9	0,381	530 [490]+	0,562
SC 49 bis	2428	0,036	4,64		
Conglomérat thorifère	2639	0,0041	1,19	[1136]+	N

* Dosage par dilution isotopique [5].
** Rapport $^{235}U/^{238}U$ (atomes %) -- N = 0,725.
+ Dosage par dilution isotopique.

DISCUSSION

Signification de la dispersion des âges apparents dans le minerai d'Oklo

Les premières datations sur le gisement [1, 6] ont tenté de s'appuyer sur le modèle simple de minéralisation vers 1800 millions d'années ($\alpha \sim 10{,}9$) et remobilisation récente. Les variations de α observées sur les échantillons de faible teneur en uranium (< 1%) pouvaient alors être attribuées à un héritage de plomb ancien. Cette hypothèse n'est pas entièrement gratuite si l'on considère l'excès général de plomb-208 caractérisé par un rapport 208/204 ($\geqslant 45{,}4$) supérieur à la valeur 208/204 $\simeq$ 35 attendue pour un plomb commun d'environ 2×10^9 ans. On conçoit en effet qu'à cette composante radiogénique provenant du thorium soit associée une composante en isotopes 206 et 207 ancienne susceptible de fausser la détermination de α. On constate en effet une certaine corrélation entre isotope 204 et α. Si l'on admet qu'au cours de la surconcentration les solutions d'uranium ont lessivé en partie le conglomérat thorifère, l'excédent de thorium, relativement à l'uranium, mesuré sur l'échantillon 2639 permet d'expliquer la contribution excédentaire en isotope 208 si une partie du plomb local a été lessivée en même temps que l'uranium de ce conglomérat. Les teneurs en uranium mesurées sur cet échantillon sont, pour cette hypothèse génétique, suffisamment faibles relativement aux teneurs en thorium pour que la contribution en isotopes 206 et 207 hérités reste négligeable même si un décalage significatif a pu exister entre la mise en place de ce conglomérat et les surconcentrations uranifères.

TABLEAU II. RAPPORTS ISOTOPIQUES MESURES SUR LE PLOMB

Les valeurs du rapport $^{207}Pb/^{206}Pb$ radiogénique sont calculées à partir des rapports $^{207}Pb/^{204}Pb = {}^{206}Pb/^{204}Pb = 15{,}4$ pour la contribution en plomb commun

Echantillon	204/206 (10^{-4})	207/206 (%)	208/206 (%)	208/204	α*	α'**
C (y = -200) 314	2,97	10,97	1,348	45,4	10,6	10,6
C (y = -110) 2089	2,08	6,61	1,114	53,6	6,3	6,3
SC 15 800/1	0,92	8,24	0,478	52,0	8,1	8,1
KN 50 B3548	0,73	6,92	0,537	73,6	6,8	10,6
323	1,07	7,30	0,661	61,8	7,1	10,7
SC 36 1892	1,75	8,01	0,940	53,7	7,8	8,4
1402	1,23	9,15	0,738	60,0	9,0	9,8
1408/4	0,78	8,31	0,506	64,9	8,2	10,9
1410/3	0,84	6,88	0,544	64,8	6,8	9,3
1413/3	0,97	6,95	0,656	67,6	6,8	12,0
1418	0,74	6,92	0,507	68,5	6,8	8,6
1421/4	1,19	8,69	0,711	59,7	8,5	11,8
1423/5	1,26	8,31	0,777	61,7	8,1	10,8
1425/1	1,35	9,64	0,819	60,7	9,4	10,7
1901	1,15	9,77	2,515	218,7	9,6	9,6
1905	2,00	9,31	1,317	65,9	9,0	9,1
1413/4/a	0,99	6,28	0,666	67,3	6,1	11,3
1413/4/b	0,80	6,11	0,598	74,8	6,1	10,9
1413/4/c	0,77	6,29	0,552	71,7	6,2	10,7
1413/4/d	1,82	9,72	1,069	58,7	9,4	16,6
1413/4/e	1,71	9,38	1,031	60,3	9,1	15,1
1413/4/f	1,90	9,73	1,081	56,9	9,4	16,3
1418/1/a	1,07	7,86	0,682	63,7	7,7	9,9
1418/1/b	0,67	6,71	0,478	71,3	6,6	8,4
1418/1/c	1,43	6,51	0,743	52,0	6,3	7,8
1418/1/d	0,66	6,71	0,468	70,9	6,6	8,3
KN 234	0,76	9,12	0,372	48,9	9,0	9,0
KN 252	0,59	7,66	0,309	52,4	7,6	7,6
KN 242	0,65	8,41	0,349	53,7	8,3	8,3
KN 220	2,20	10,54	1,050	47,7	10,2	10,2
KN 257	0,87	10,25	0,413	47,5	10,1	10,1
KN 231	1,17	10,49	0,531	45,4	10,3	10,3
KN 248	1,60	11,47	0,777	48,6	11,3	11,3
KN 244	1,96	11,91	0,903	46,1	11,7	11,7
KN 266	1,61	12,67	0,741	46,0	12,5	12,5
2 P 436	2,54	12,24	1,336	52,6	11,9	11,9

TABLEAU II. (suite)

Echantillon		204/206 (10^{-4})	207/206 (%)	208/206 (%)	208/204	α*	α'**
SC 49 bis	2428	3,21	12,93	1,70	53,0	12,5	
SC 44	1932	1,53	10,29	0,944	61,7	10,1	10,2
	1933	1,36	9,54	0,853	62,7	9,4	12,1
	1933'	1,36	9,58	0,862	63,4	9,4	12,1
Conglomérat thorifère	2638	272,5	49,29	823,5	302,2	12,6	12,6
	2639	409,7	67,58	645,2	1575	12,2	12,2

* $\alpha = {}^{207}Pb/{}^{206}Pb$ corrigé de la contribution du plomb commun en supposant 206/204 = 15,4 et 207/204 = 15,4.

** $\alpha' = \alpha \times 0{,}007254/N$ ($N = {}^{235}U/{}^{238}U$ de l'échantillon).

La dispersion des α peut-elle alors s'interpréter par une perturbation d'âge intermédiaire entre celui de la minéralisation et l'altération récente du gisement? S'il n'est pas possible de fixer avec précision la date de l'événement qui a fait disparaître les deux tiers du plomb radiogénique de l'ensemble du gisement, celle-ci ne peut être cependant très ancienne. Elle a, en effet, conservé à l'ensemble des échantillons analysés un âge moyen apparent élevé bien qu'un échantillon tel le 2089 (C y = − 110) présente un âge apparent assez bas (700 millions d'années) associé à un Pb/U particulièrement faible. Une perturbation d'une telle ampleur, si elle est unique, devrait de toute façon conduire à une corrélation très nette entre α et Pb/U, et cela particulièrement pour les échantillons à uranium «normal».

Pour faciliter la discussion qui suit nous utiliserons le diagramme $\alpha = f({}^{238}U/{}^{206}Pb)$ où, comme dans le diagramme Concordia, le lieu des points correspondant à une perturbation épisodique unique est une droite. Notons, cependant, que l'intersection de cette droite avec l'axe des α' fournit directement l'âge apparent du plomb à la date de la perturbation.

On a retenu dans le diagramme de la figure 1 les échantillons analysés pour lesquels la teneur en uranium est supérieure à 1%, en écartant cependant KN 51/4, 800/1, KN 234, qui sont très proches de zones de réaction et ont des α «anormalement» bas; on a conservé 330 (KN 47), KN 257 et KN 252 en n'excluant pas pour ces derniers une possibilité de contamination. Le «point moyen du SC 36» obtenu en moyennant sur l'ensemble du sondage les α' pondérés par les quantités de plomb correspondantes est porté à titre indicatif.

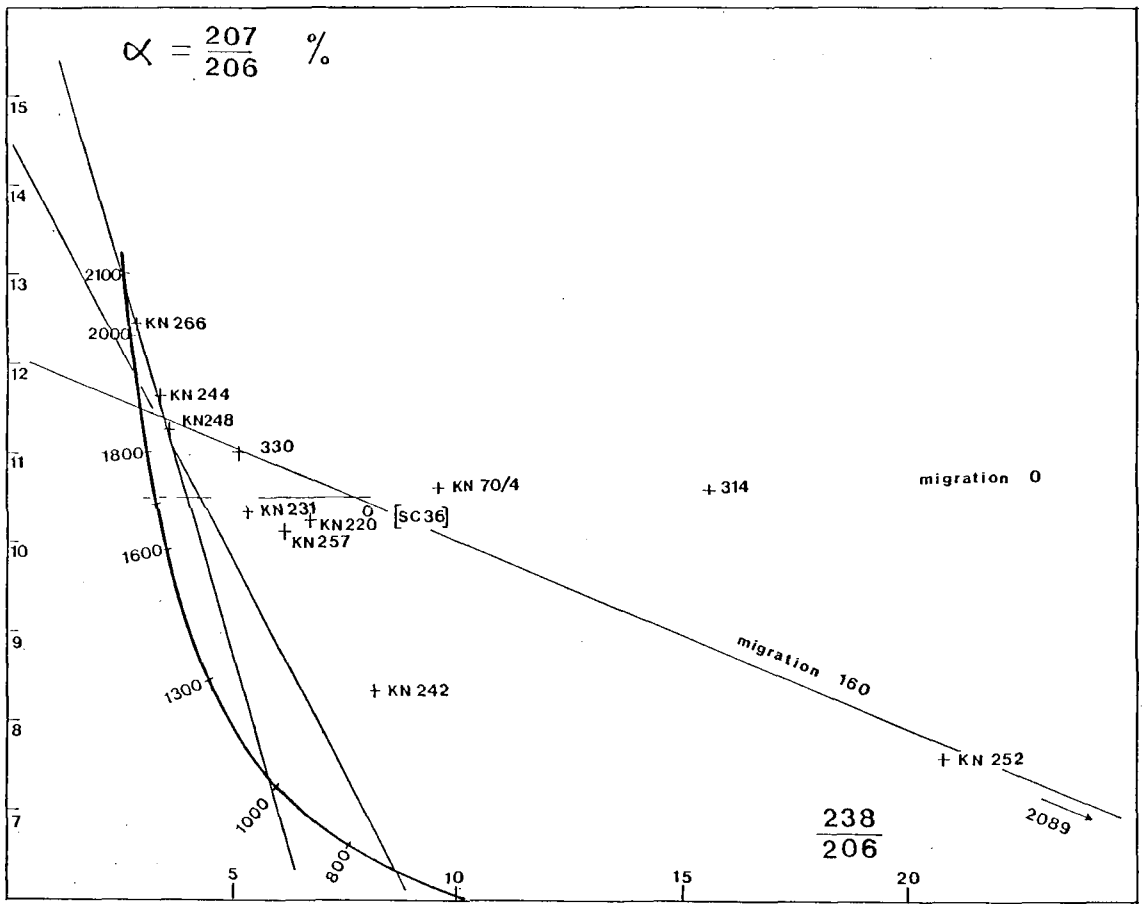


FIG.1. Diagramme $\alpha = f(^{238}U/^{206}Pb)$. Les quatre droites représentent différentes hypothèses de perturbations (voir texte).

On constate que les points sont très dispersés. La droite 1880/160 MA passe à peu près au centre de la distribution. Remarquons cependant qu'avec cette droite modèle il est difficile d'interpréter le vieillissement par migration d'un échantillon tel le KN 266, qui présente un âge apparent ($\alpha = 12,5$) supérieur à l'âge apparent du plomb migrant à 160 millions d'années ($\alpha = 12,2$). De plus, des échantillons comme KN 231, 220 et 257 auraient alors récupéré du plomb ou perdu de l'uranium par la migration récente qui permet d'interpréter la position de KN 70/4 et 314. Cette hypothèse est incompatible, d'une part, avec ce qui est connu de la stabilité de l'uranium qui pour l'essentiel semble être resté en place. D'autre part, il est difficile de supposer une rentrée de plomb dans des échantillons choisis à l'endroit d'un maximum de distribution en uranium.

On est conduit à admettre que seule une perturbation relativement ancienne permet d'interpréter la présence d'échantillons d'âges apparents élevés ayant conservé la majorité de leur plomb mais qu'à celle-ci doit être associée une perturbation récente responsable d'une perte considérable de plomb dans les zones de réaction comme dans certains échantillons «normaux». On a tracé sur le diagramme de la figure 1 deux droites «possibles», l'une (2100/1000 millions d'années) tient compte de l'alignement de KN 266, 244 et 248, l'autre (1950/700), qui s'appuie sur KN 248 (14,5% d'uranium), coupe la Concordia à une date correspondant à l'âge apparent de l'échantillon 2089 (700 millions d'années). Remarquons alors qu'entre ces deux hypothèses le rapport α du plomb migrant peut dépasser 0,14 pour la perturbation la plus récente et atteindre 18 pour la plus ancienne. Ces valeurs sont à comparer à l'estimation d'âge apparent effectuée sur l'échantillon 1413/4/f ($13,2 < \alpha' < 16,6$). On doit noter que l'analyseur ionique a permis de mesurer sur des galènes des α très élevés ($\geqslant 15$) [7] qui confirment ainsi l'existence d'une perturbation ancienne.

Cette interprétation, qui rend compte de l'ensemble des observations effectuées sur le gisement, situe la date de mise en place la plus vraisemblable de l'uranium au-delà de 1900 millions d'années. Par ailleurs cet âge n'est pas incompatible avec la géochronologie régionale si l'on admet qu'une limite supérieure pour l'âge de la sédimentation est fournie par le dernier métamorphisme du socle vers 1900 millions d'années [3]. Il faudrait cependant admettre que la date de 1800 millions d'année fournie par les alcalins dans tout le Francevillien représente un événement postérieur (volcanisme du N'goutou?), événement qui n'aurait pas perturbé sensiblement le système U-Pb.

Plomb-208 et thorium

L'augmentation significative du rapport 208/204 dans le cœur du sondage SC 36 est clairement liée aux fortes teneurs locales en thorium issues de la réaction nucléaire. Le rapport 208/206 radiogénique peut être déduit du rapport $^{232}Th/^{238}U$ moyennant une estimation raisonnable de la date de la réaction

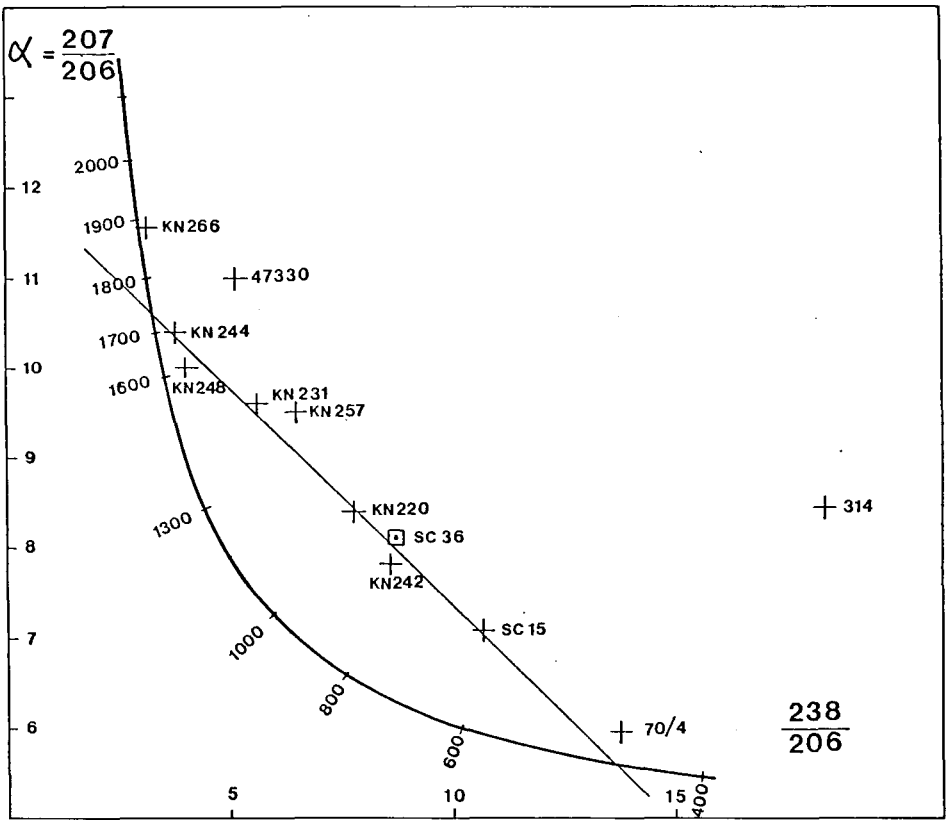


FIG.2. Diagramme $\alpha = f(^{238}U/^{206}Pb)$. Les points expérimentaux ont été corrigés d'une contribution en plomb hérité dont l'estimation est discutée dans le texte.

nucléaire; ce rapport est en effet peu sensible à ce paramètre. Avec t = 1900 millions d'années, un bon accord est obtenu entre rapport calculé et rapport mesuré à condition de fixer à 50 le rapport 208/204 du plomb commun, ce qui n'est pas en contradiction avec les observations effectuées sur KN 231 et 248, où les contributions en thorium sont négligeables. L'échantillon 1901 pose un problème particulier. Le pic de thorium et d'uranium normal est associé à un pic de terres rares naturelles. Un excellent accord entre 208/206 calculé et mesuré ne peut être obtenu qu'à partir d'une composante de plomb commun de rapport 208/204 d'environ 35. On a proposé d'interpréter cette anomalie par la présence à cet endroit du sondage d'un minéral détritique de type monazite. Remarquons que le rapport U/Th (12,9) est cependant exceptionnellement élevé pour ce type de minéral où l'on attend plutôt un rapport U/Th voisin de quelques % [8] et semble plus compatible avec celui d'une uraninite détritique ($5 < U/Th < 20$).

Si cette minéralisation de type placer est à l'origine des surconcentrations uranifères, le problème d'héritage de plomb devient alors critique. Nous avons tenté d'évaluer son influence de la manière suivante. On a supposé, d'une part, que l'excès de plomb-208 relativement à l'isotope 204 mesuré sur chaque échantillon exprime le décalage dans le temps entre la mise en place de l'uranium et sa surconcentration et, d'autre part, que les quantités d'isotope 204 associées aux surconcentrations sont représentatives de la quantité de plomb hérité. Les quantités d'isotopes 206 et 207 peuvent alors être évaluées sur la base des concentrations vers 1900 millions d'années en ^{238}U et ^{232}Th d'un minerai primaire analogue à l'échantillon 1901.

La position des points expérimentaux de la figure 1 est alors considérablement modifiée (fig. 2). On constate une meilleure corrélation de la série des KN entre eux et avec le point moyen du sondage SC 36. La mise en place des surconcentrations se situerait dans ce modèle vers 1800 millions d'années. Le dépôt primaire d'uranium serait, compte tenu des quantités de plomb héritées, d'environ 250 millions d'années antérieur.

Thorium et date de la réaction nucléaire

Les remarques précédentes montrent que mis à part l'échantillon 1901 les contributions en thorium naturel sont relativement peu importantes, ne dépassant pas 100 ppm dans les parties riches en uranium normal. Ceci justifie a posteriori l'utilisation du thorium issu de la réaction nucléaire aux fins d'estimer la date de la réaction nucléaire [2]. Ces calculs ont été repris pour le sondage SC 36 en utilisant les paramètres nucléaires proposés dans [4]. Les dates calculées à partir du bilan thorium-uranium sont comparées dans le tableau III aux valeurs calculées à partir du bilan néodyme-uranium. Un assez bon accord est observé entre ces deux types de détermination. On constate en particulier que les tendances sont conservées, augmentation de la date au centre du réacteur et dans les échantillons de bordure. Cette dernière est particulièrement frappante pour l'échantillon 1402 car elle implique un excédent d'environ 300 ppm de thorium comparé aux 415 mesurés dont l'origine est, de ce côté du sondage, difficilement interprétable.

CONCLUSION

Ces mesures ont permis de lever plusieurs ambiguïtés. Elles confirment la complexité de l'histoire du plomb, qui comporte au moins deux perturbations distinctes, l'une ancienne, l'autre relativement récente. Il n'apparaît cependant pas possible de déduire une date précise de mise en place de l'uranium. On a tenté néanmoins de reconstituer une histoire du plomb qui s'accorde au mieux

TABLEAU III. DATE DE LA REACTION NUCLEAIRE CALCULEE A PARTIR DU BILAN THORIUM-URANIUM

Echantillon	Thorium dans l'échantillon (ppm)	Date par le thorium (10^9 ans)	Date par le néodyme [4] (10^9 ans)
KN 50 3548	3290 ± 30	1,94	1,97
SC 36 1402	415 ± 15	3,45	2,03
1410	2555 ± 45	1,83	1,93
1413	2400 ± 40	2,05	2,02
1418	2615 ± 20	1,91	1,93
1423	345 ± 5	1,99	2,07
1425	150 ± 10	3,00	2,8

avec les autres données géochronologiques et les estimations de date de la réaction nucléaire. Elle comprend une mise en place de l'uranium à une date vraisemblablement supérieure à 1900 millions d'années qui rattacherait alors le cycle de sédimentation du Francevillien au dernier métamorphisme du socle; une perturbation ancienne qui pourrait coïncider avec l'intrusion des dolérites vers 900 millions d'années; une remobilisation récente dont il est impossible de fixer la date mais qui pourrait correspondre au rajeunissement des reliefs observé à l'échelle régionale et à l'altération générale du gisement.

REMERCIEMENTS

Nous exprimons nos plus vifs remerciements à Monsieur R. Naudet, à qui revient l'initiative de la plupart des mesures présentées ici et dont les nombreux commentaires oraux ou écrits ont fortement contribué à la rédaction de cette communication. Nous lui devons en particulier l'idée de l'utilisation du diagramme $\alpha = f(^{238}U/^{206}Pb)$.

REFERENCES

[1] LANCELOT, J.R., VITRAC, A., ALLEGRE, C.J., Earth Planet. Sci. Lett. **25** (1975) 189–96.

[2] DEVILLERS, C., RUFFENACH, J.-C., MENES, J., LUCAS, Monique, HAGEMANN, R., NIEF, G., «Age de la minéralisation de l'uranium et date de la réaction nucléaire», le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 293.

[3] WEBER, F., BONHOMME, M., «Données radiochronologiques nouvelles sur le Francevillien et son environnement», Ibid., p. 17.
[4] RUFFENACH, J.C., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/16.
[5] MAECK, W.J., SPRAKTES, F.W., TROMP, R.L., KELLER, J.H., «Analytical results, recommended nuclear constants and suggested correlations for the evaluation of Oklo fission-product data», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 319.
[6] HAGEMANN, R., LUCAS, M., NIEF, G., ROTH, E., Earth Planet. Sci. Lett. 23 (1974) 170–76.
[7] NAUDET, R., Communication privée.
[8] DOE, B.R., Lead isotopes, Springer Verlag, Berlin (1970).

DISCUSSION

R. NAUDET: Je souhaiterais ajouter quelques compléments à l'exposé de M. Devillers en ce qui concerne les mesures de thorium. Nous avons fait des dosages de thorium avec trois objectifs. D'une part, nous voulions le comparer au plomb et confirmer l'héritage en plomb-208 qui semblait résulter des analyses effectuées dans le sondage SC 36 (IAEA-SM-204/24)[1]. D'autre part, nous voulions tenter de dater le déplacement d'uranium appauvri, c'est-à-dire voir si dans les bordures il y avait une corrélation entre l'uranium-235 manquant et le thorium (une telle corrélation signifiant que l'uranium s'est déplacé à une époque où il y avait encore de l'uranium-236). Enfin nous voulions essayer de déterminer, par comparaison entre le thorium radiogénique et le néodyme de fission dans le cœur, s'il y avait eu un départ d'uranium au cours des réactions.

En ce qui concerne le premier point, l'héritage en plomb-208 a été confirmé; M. Devillers en a parlé, et je n'y reviens pas.

En ce qui concerne le second, les mesures ont été faites dans deux groupes d'échantillons voisins, d'une part trois échantillons de la bordure inférieure du SC 44 (nos 1932, 1933 et 1933/2), d'autre part dans trois échantillons de la bordure supérieure du SC 30 bis (nos 2060, 2066 et 2500). Dans le premier groupe, on a trouvé une corrélation spectaculaire puisque la quantité de thorium passe de 55 ppm à 1125 ppm quand on va de l'échantillon 1932 au 1933/2, et les quantités supplémentaires correspondent exactement à ce qu'on peut attendre, compte tenu des déficits en isotope 235. Malheureusement nous ne sommes pas sûrs de la validité de l'échantillonnage; je m'explique: on trouve dans cette bordure de l'uranium très appauvri (0,558%) voisinant avec de l'uranium presque naturel, mais nous nous demandons s'il ne s'agit pas d'un petit fragment de cœur qui aurait été incorporé au cours du carottage.

---

[1] FREJACQUES, C., et al., in Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 509.

M. Cesario (IAEA-TC-119/17, présents comptes rendus) et Mme Havette (IAEA-TC-119/13, présents comptes rendus) ont étudié également cette portion de sondage qui nous avait paru extrêmement intéressante, mais sur laquelle certains résultats nous ont rendus méfiants.

Dans le deuxième groupe, les résultats sont moins spectaculaires, car les quantités d'uranium-235 sont plus faibles, et les quantités de thorium radiogénique éventuelles deviennent plus voisines des quantités (inconnues) de thorium commun. Néanmoins les trois résultats, qui s'échelonnent entre 95 et 305 ppm (alors que la teneur en thorium commun est généralement de l'ordre de 50 à 100 ppm), sont également corrélés et conformes à ce qu'on peut attendre. Il semble donc bien que l'on puisse affirmer que l'uranium s'est déplacé à un moment où l'uranium-236 était présent, c'est-à-dire probablement à l'époque des réactions comme d'autres arguments le suggèrent (Mme Havette a également observé cette corrélation dans un échantillon du SC 20).

Le troisième objectif consistait à comparer directement les quantités formées de néodyme de fission et de thorium, qui toutes deux sont, en première approximation (les corrections sont faciles à faire), proportionnelles aux nombres de fission. Si par exemple on trouve un déficit de thorium par rapport au néodyme, cela signifie ou bien que le thorium a migré (ce qui est a priori peu probable) ou bien qu'il y a un excès de néodyme (mais cela ne peut être vrai partout), ou bien qu'un peu d'uranium est parti pendant les réactions (en effet dans ce cas, il a emmené avec lui l'isotope 236, alors que le néodyme formé à ce moment est resté). Les mesures faites dans le sondage SC 36 semblaient effectivement montrer un léger déficit en thorium dans le coeur (même en considérant que la totalité était radiogénique, donc a fortiori en tenant compte du thorium commun). Il a paru intéressant de faire quelques mesures dans la coupe 2'P' (étudiée aux Etats-Unis), qui présente un transitoire très marqué de teneur et de taux de réaction.

Les résultats sont assez surprenants; en effet si on a trouvé un léger déficit de thorium par rapport au néodyme dans les échantillons latéraux (1179 et 1885), il y a au contraire un assez large excédent (20 à 30%) dans les deux échantillons centraux (1181 et 1183). Faut-il admettre qu'il y a eu un départ de néodyme (mais alors le déséquilibre entre Nd/U et fluence serait encore accentué) ou au contraire une migration centripète du thorium (étonnante, parce qu'elle se serait faite longtemps après les réactions)? Peut-être faut-il reprendre cette mesure; elle montre en tout cas qu'il peut y avoir des déséquilibres importants entre des éléments pourtant réputés stables.

J'aimerais refaire des comparaisons thorium-néodyme, d'une manière non plus ponctuelle mais intégrale, c'est-à-dire en comparant les quantités globales de néodyme de fission et de thorium formées dans l'ensemble d'un sondage.

B. POTY: L'hypothèse d'une minéralisation de type placer avec des uraninites détritiques me paraît extrêmement peu vraisemblable dans le cas

d'Oklo. Le rapport U/Th dont vous parlez résulte beaucoup plus vraisemblablement d'un mélange d'oxyde d'uranium et de minéraux détritiques riches en thorium (monazites, zircons) qui sont fréquents dans ce gisement. Avez-vous effectué votre analyse à la microsonde sur un monocristal d'uraninite ou s'agit-il d'une poudre?

C. DEVILLERS: Non, il ne s'agit pas d'une analyse sur un monocristal. Le problème est de savoir si dans le gisement primaire qui est à l'origine de l'héritage constaté en plomb-208 il y avait ou non une grande quantité d'uranium par rapport au thorium. Si c'était le cas, cela voudrait dire qu'il y a aussi un héritage important en isotopes 206 et 207: c'est la question que j'ai soulevée.

J. GEFFROY: La plupart des géologues sont en accord pour considérer le granite du Chaillu comme la source première la plus vraisemblable de l'uranium capté dans les horizons carbonés du Francevillien. Ceux-ci auraient d'abord précipité l'uranium grâce à leur caractère réducteur. Or, de tels sédiments organogènes, souvent riches en soufre, constituent aussi des horizons de capture des éléments chalcophiles, dont le plomb (ceci antérieurement aux éventuels processus de surconcentration en gisements exploitables). Il est donc probable qu'on y retrouve une grande partie du plomb hérité du granite du Chaillu: éventuellement plomb non radiogénique, auquel s'ajoutent les plombs 206, 207 et 208 engendrés dans le granite depuis sa mise en place jusqu'à son érosion, notamment aux dépens de l'uranium et du thorium des zircons.

R. NAUDET: Je crois que c'est effectivement l'explication la plus plausible pour l'héritage de plomb ancien. Comme dans les granites, il y a généralement plus de thorium que d'uranium; cela veut dire que l'héritage éventuel en plomb 206 et 207 est vraisemblablement beaucoup moins grand que celui considéré par M. Devillers (sans être pour autant négligeable).

A l'appui de la remarque faite par M. Geffroy, je voudrais rappeler que dans l'ensemble du gisement d'Oklo (y compris dans les surconcentrations), on a relevé une corrélation entre le plomb commun (repéré par l'isotope 204) et l'uranium, ce qui tend à prouver que le plomb s'est mis en place dans des conditions analogues à celles de l'uranium.

Pour en revenir à l'échantillon 1901, qui est à l'origine de cette discussion, je précise qu'on a effectivement vu une monazite dans un fragment de cet échantillon, et que d'autre part dans cette portion du sondage SC 36 il n'y a pas coïncidence exacte entre les «pics» d'uranium et de terres rares naturelles. Par conséquent, il me paraît certain que, comme l'a dit M. Poty, il s'agit d'un mélange, et qu'il ne faut pas chercher une relation génétique entre le thorium et l'uranium.

U-Pb AGE (2.05×10^9 YEARS) OF THE OKLO URANIUM DEPOSIT*

A.J. GANCARZ
University of California,
Los Alamos Scientific Laboratory,
Los Alamos, New Mexico,
United States of America

Presented by G.A. Cowan

Résumé—Abstract

L'AGE DU GISEMENT D'URANIUM D'OKLO DETERMINE A PARTIR DES ISOTOPES DE U-Pb: $2{,}05 \times 10^9$ ANNEES.

Les valeurs isotopiques de U et Pb mesurées sur dix échantillons (de 10 à 100 g) prélevés à une distance de 2 à 10 m des limites de la zone de réaction d'Oklo indiquent pour le gisement d'Oklo un âge primaire de $2{,}05 \pm 0{,}03 \times 10^9$ ans et un âge secondaire de $0{,}375 \pm 0{,}025 \times 10^9$ ans. Les effets de la perte de Pb se manifestent sur tous les échantillons; la perte moyenne est de 50%. Les données isotopiques de U-Pb et de Pb sont compatibles avec un modèle qui donne au gisement un âge primaire de $2{,}05 \times 10^9$ ans, avec la diffusion volumique ininterrompue du plomb à partir de l'uraninite et avec la perte continue ou récente de ce plomb. En ce cas, l'âge de $0{,}375 \times 10^9$ ans n'est qu'un artefact sans signification temporelle. En prenant une valeur moyenne de $D/a^2 = 3{,}5 \times 10^{-11}$ a^{-1} ce modèle explique l'âge apparent fourni par Pb de $1{,}8 \times 10^9$ années observé par d'autres chercheurs. A partir des données pour $^{208}Pb/^{206}Pb$, on calcule pour le gisement d'Oklo une valeur moyenne U/Th d'environ 100.

U-Pb AGE (2.05×10^9 YEARS) OF THE OKLO URANIUM DEPOSIT.

U and Pb isotopic data on ten samples (10 to 100 g) 2 to 10 m from the borders of the Oklo reactor zones indicate a primary age of $2.05 \pm 0.03 \times 10^9$ years for the Oklo deposit and a secondary age of $0.375 \pm 0.025 \times 10^9$ years. All samples show effects of Pb loss; the average loss is 50%. Both the U-Pb and Pb isotopic data are consistent with a model of a primary 2.05×10^9-year age of the deposit, continuous volume diffusion of Pb from uraninite, and either continuous or recent loss of this Pb. In this case the 0.375×10^9-year age is an artifact without time significance. Using an average value of $D/a^2 = 3.5 \times 10^{-11}$ a^{-1} this model explains the apparent 1.8×10^9-year Pb age observed by other workers. From the $^{208}Pb/^{206}Pb$ data the average U/Th value calculated for the Oklo deposit is ~ 100.

* Work performed under the auspices of the US Energy Research and Development Administration.

INTRODUCTION

The determination of age of the Oklo uranium deposit and the time when portions of this deposit behaved as a natural uranium fission reactor have been the subject of a number of investigations. Weber and Bonhomme [1] summarized the Rb-Sr and K-Ar isotopic data and the geologic relationships, many of which appear to remain poorly defined. In general, isotopic data on rocks of the Franceville series to which the Oklo uranium deposit belongs yield ages of $\sim 1.8 \times 10^9$ years, whereas isotopic data on igneous and metamorphic rocks marginal to the sedimentary Franceville basin indicate that the age of deposition could be as great as 2.2×10^9 years. The K-Ar data on dolerite samples [1] yield ages of $\sim 0.85 \times 10^9$ years which they suggest is the time of intrusion of these dolerites into the Franceville series and also yield ages of $\sim 0.50 \times 10^9$ years which they suggest is the time of faulting and folding of the series.

U and Pb isotopic data reported by Lancelot et al. [2] do not yield a well-defined age, although these authors suggest an age of 1.75×10^9 years. Similarly, Devillers et al. [3] reported U and Pb isotopic data which do not yield a well-defined age and conclude that the age could be from 1.8 to 2.05×10^9 years.

Using data on the abundances of Nd, Sm, Ru, and Th isotopes produced in the reactor, Devillers et al. [3] deduced an age of 2×10^9 years for the reactor. Cowan et al. [4] modeled the reactor by assuming the reactor operated during the period of U deposition and by varying the accretion rate calculated ages ranging from 1.8 to 2.1×10^9 years. Similarly, Bryant et al. [5], using the different published thermal neutron capture cross-sections on ^{143}Nd, calculated ages of the reactor of 1.8 to 2.1×10^9 years. Ruffenach et al. [6] have calculated from U fission data an age of $2.0 \pm 0.1 \times 10^9$ years for the reactor.

In this report U and Pb isotopic data are presented on ten U ore samples peripheral to the reactor zones. These samples are from 2 to 8 meters from the borders of the reactor zones and were analyzed in an attempt to clarify the age of the deposit and to see to what extent Pb of anomalous isotopic composition produced from the U of anomalous isotopic composition has migrated from within the reactor zones and deposited in these peripheral regions.

ANALYTICAL TECHNIQUES

Samples weighing from 10 to 100 g along with analyses of U concentrations and U isotopic abundances were supplied through the courtesy of R. Naudet of the French Atomic Energy Commission. 2 to 10 mg aliquots were taken for the Pb isotopic analyses. The samples were dissolved in a mixture of HCl and HNO_3. This procedure does not dissolve silicate minerals and in all cases the silicate residue consisted primarily of quartz. Pb was separated using conventional ion exchange techniques. U was separated from the sample using Dowex 1-X8 (100-200 mesh) and eluting Pb with 10 N HCl, followed by an anion exchange column Dowex 1-X8 (100-200 mesh) to separate Pb from the alkalis and alkaline earths, and finally by a cation exchange column Dowex 50-X8 (100-200 mesh) incorporating the techniques described by Tera and Wasserburg [7]. Pb was analyzed on an AVCO model 9100 mass spectrometer using the silica gel-thermal ionization technique.

Pb concentrations were determined by X-ray fluorescence on 5-g aliquots of the samples.

ANALYTICAL RESULTS

The U and Pb concentration and isotopic data are presented in Table I. The U concentrations vary by a factor of 10 as do the Pb concentrations, and the Pb/U values range from 0.1 to 0.3. All of the samples have "normal" U isotopic abundances.

The Pb data are plotted on Figure 1. We have chosen to plot the data on this $^{207}Pb/^{206}Pb$ versus $^{204}Pb/^{206}Pb$ representation rather than the more conventional $^{206}Pb/^{204}Pb$ versus $^{207}Pb/^{204}Pb$ diagram because of the large $^{206}Pb/^{204}Pb$ values. For reference we have included an insert on this figure on which modern and primordial Pb isotopic abundances are plotted. The bar labelled "Figure" represents the area of the data plot. In general the data define a linear array; the line has a very steep slope indicating the presence of extremely radiogenic "initial" Pb and it intersects the $^{207}Pb/^{206}Pb$ axis at a value corresponding to a time of 0.375×10^9 years. There is deviation of the data about the line significantly outside of error, a point to which we will subsequently return. We note that these data are quite different from those reported by Lancelot et al. [2] and Devillers et al. [3]. Our measured $^{206}Pb/^{204}Pb$ values range from 4000 to 9000 whereas those reported by Lancelot et al. [2] on samples with normal U isotopic abundances range from 1000 to 5000 and those reported by Devillers et al. [3] range from only 1000 to 2000. It is not clear whether the relatively low $^{206}Pb/^{204}Pb$ values are due to large laboratory contamination of the samples by these workers or if there are large amounts of ^{204}Pb in the silicate minerals which these workers dissolved and we did not.

On a plot of $^{208}Pb/^{206}Pb$ versus $^{204}Pb/^{206}Pb$ (not illustrated) the data also define a linear array. The linearity of the data array indicates that all the samples have the same Th/U value. The steep slope of the line again indicates the presence of a very radiogenic "initial" Pb and the intersection of the line at the $^{208}Pb/^{206}Pb$ axis is consistent with an age of 0.375×10^9 years.

The data corrected for common Pb using $^{206}Pb/^{204}Pb = 15.34$ and $^{207}Pb/^{204}Pb = 15.57$ are listed in Table II. The * symbol indicates the corrected data. These data are plotted on Figure 2 and with one exception form a precise linear array whose lower intersection with concordia is $0.375 \pm 0.025 \times 10^9$ years. The upper intersection is $2.05 \pm 0.03 \times 10^9$ years which we interpret as the age of formation of the Oklo uranium deposit. This age of 2.05×10^9 years is greater than the $\sim 1.8 \times 10^9$ year age of the Franceville series determined from Rb-Sr isotopic data. It is also greater than the U-Pb age presented by Lancelot et al. [2], but as noted earlier their data did not precisely define an age. The age is, however, in agreement with the ages calculated by modeling the reactor using rare-earth element isotopic data [3,4,5].

The age of 0.375×10^9 years determined by the U-Pb data (Figure 2) is the same as the age determined by the ^{207}Pb-^{206}Pb-^{204}Pb data (Figure 1) and is consistent with the ^{208}Pb-^{206}Pb-^{204}Pb data. The usual interpretation of these U-Pb data is that 2.05×10^9 years is the primary age of the uranium deposit and 0.375×10^9 years is the time of an episodic disturbance with Pb isotopic homogenization and redistribution. All of the samples we analyzed plot to the right of concordia indicating only Pb loss during the 0.375×10^9 year "event". In Table II the fraction of Pb lost at this time (£) is tabulated for each sample. The losses range from 20% to 80%; the average loss is 50%.

TABLE I. OKLO PERIPHERAL SAMPLES: U-Pb DATA

Sample		Wt.% U	Wt.% Pb	Pb/U	$^{238}U/^{235}U$	$^{208}Pb/^{206}Pb$	$^{207}Pb/^{206}Pb$	$^{204}Pb/^{206}Pb$
KN 270	between Zones 1 & 2	13.3	1.9±0.2	.14	138.1	0.00859±1	0.10851±4	0.000180±1
SCO 2252		~3.2	0.62±0.06	.19	137.9	0.01270±1	0.12099±2	0.000256±1
KN 258	peripheral to	~2	0.27±0.03	.14	138.0	0.00773±12	0.10291±5	0.000140±3
KN 266	Zones 5 & 6	8.5	2.7±0.3	.32	137.8	0.00769±2	0.12645±3	0.000167±3
KN 244		2.7	0.83±0.08	.31	137.8	0.00877±1	0.11887±2	0.000198±1
KN 255		5.3	0.98±0.10	.18	137.9	0.01030±1	0.11310±6	0.000219±2
KN 268		~1.3	0.34±0.03	.26	138.0	0.01006±1	0.12117±3	0.000206±1
KN 224	peripheral to	3.0	0.30±0.03	.10	138.1	0.00522±1	0.09369±2	0.000112±1
KN 236	Zones 3 & 4	1.5	0.41±0.04	.27	138.9	0.01061±1	0.12630±2	0.000219±1
KN 241	15 m S. Zone 4	8.3	1.4±0.1	.19	137.9	0.00591±3	0.10760±3	0.000115±1

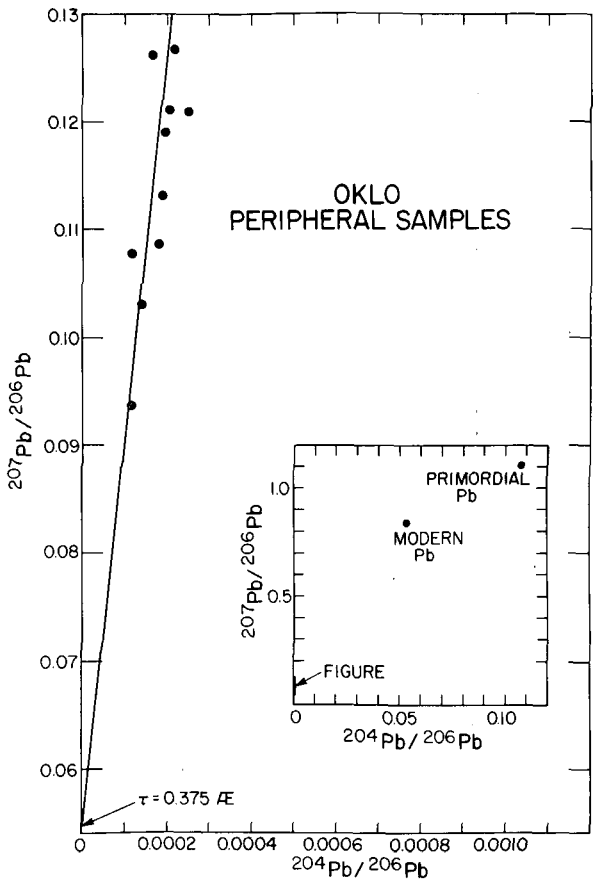


FIG.1. The data for samples peripheral to the Oklo reactor zones are plotted on this $^{207}Pb/^{206}Pb$ versus $^{204}Pb/^{206}Pb$ diagram. The linear array extrapolates to the $^{207}Pb/^{206}Pb$ axis at a point corresponding to 0.375×10^9 years. The age is calculated using $\lambda(^{238}U) = 0.155125 \times 10^{-9}\ a^{-1}$ and $\lambda(^{235}U) = 0.98485 \times 10^{-9}\ a^{-1}$.

From the U-Pb and Pb isotopic systematics we calculate for the Oklo deposit at 0.375 x 10^9 years average values of $^{208}Pb/^{204}Pb$, $^{207}Pb/^{204}Pb$, and $^{206}Pb/^{204}Pb$ of 46, 500, and 3450, respectively. Assuming normal common Pb isotopic abundances as the initial Pb at 2.05 x 10^9 years, these Pb isotopic abundances at 0.375 x 10^9 years correspond to an average $^{238}U/^{204}Pb$ value (calculated as today's equivalent) in the interval 2.05 to 0.375 x 10^9 years of 11,000 (equivalent to U/Pb = 1500) and an average U/Th value of 60 which corresponds to an enrichment of U relative to Th by a factor of ∿ 250 compared to the average U and Th abundances in rocks.

TABLE II. Pb-U DATA (CORRECTED FOR COMMON Pb)

SAMPLE	$^{238}U/^{206}Pb^*$	$^{207}Pb^*/^{206}Pb^*$	$\mathcal{L}$
KN 270	6.74	0.10600	0.72
SCO 2252	5.05	0.11747	0.56
KN 258	7.09	0.10095	0.74
KN 266	3.15	0.12417	0.18
KN 244	3.16	0.11614	0.18
KN 255	5.24	0.11006	0.58
KN 268	3.84	0.11834	0.36
KN 224	9.43	0.09210	0.85
KN 236	3.59	0.12336	0.30
KN 241	5.69	0.10600	0.63

None of the isotopic data, heretofore, presented has indicated geologic activity at 0.375×10^9 years which could be associated with Pb redistribution. Cowan [8] suggests that the extensive Pb loss observed throughout the Oklo deposit is due to diffusion of Pb out of uraninite and subsequent transport out of the deposit. Following the conventions established by Tilton [9] the locus of points for values of D/a^2 (i.e. a time and temperature independent value of the diffusion coefficient, D, and an effective grain radius, a) and an initial age of 2.05×10^9 years intersects the concordia at 2.05×10^9 years, passes through the collinear array of data points on Figure 2, and curves to a sub-horizontal line at $^{207}Pb^*/^{206}Pb^* = 0.09$. Thus, 2.05×10^9 years is the primary age and the age of 0.375×10^9 years is an artifact of diffusion as a consequence of extending the linear portion of the diffusion locus from $^{207}Pb^*/^{206}Pb^* = 0.13$ to 0.09 to intersect concordia. This age, therefore, has no time significance.

One way in which the linear array we observe could be produced is if Pb had continuously diffused from uraninite grains from 2.05×10^9 years and had recently been removed from the system in varying amounts. The value of the $^{207}Pb^*/^{206}Pb^*$ removed would be 0.14 (see Figure 2) and thus the maximum $^{207}Pb^*/^{206}Pb^*$ observable age (assuming one had a pure Pb sample) would be 2.2×10^9 years and using the value of $D/a^2 = 3.5 \times 10^{-11}$ a^{-1} (Cowan [8]) the average $^{207}Pb^*/^{206}Pb^*$ age would be 1.8×10^9 years which is that observed by Lancelot *et al.* [2] and Devillers *et al.* [3].

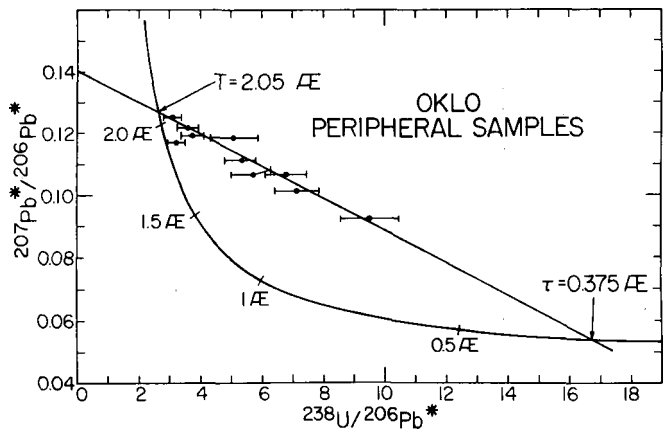


FIG. 2. U and Pb isotopic data for samples peripheral to the Oklo reactor zones. The concordia curve is calculated using $\lambda(^{238}U) = 0.155125 \times 10^{-9}\ a^{-1}$ *and* $\lambda(^{235}U) = 0.98485 \times 10^{-9}\ a^{-1}$. *The data define a linear array whose upper intersection with concordia is* 2.05×10^9 *years which we interpret as the primary age of the deposit.*

We also note that samples which at 2.05×10^9 years had the same value of $^{238}U/^{204}Pb$ will as a consequence of diffusion form a linear array on a $^{207}Pb/^{206}Pb$ versus $^{204}Pb/^{206}Pb$ plot which extrapolates to a $^{207}Pb/^{206}Pb$ value corresponding to an age of 0.375×10^9 years. The mixture then of ^{204}Pb-rich Pb from silicate minerals with the Pb remaining in the uraninite grains would produce a scatter of data points which on the $^{207}Pb/^{206}Pb$ versus $^{204}Pb/^{206}Pb$ diagram would converge to $\tau = 0.375 \times 10^9$ years. This may explain the scatter in our data array (Figure 1) and the even greater scatter when we plot the Pb isotopic data of Lancelot *et al.* [2] and Devillers *et al.* [3] and also explain the relatively ^{204}Pb-rich nature of the samples analyzed by these coworkers.

From our samples which exhibit the least Pb loss we calculate an average U/Th for the Oklo deposit of $\sim$ 100. This value is consistent with the estimate of Naudet [10].

In summary it appears that the explanation of our data in terms of a volume diffusion model explains why 0.375×10^9 years is not an age indicated by other isotopic data, explains the $\sim 1.8 \times 10^9$ year age observed by other workers and explains how Pb is lost from the deposit.

ACKNOWLEDGMENTS

Stimulating discussions with my colleagues George Cowan and Ernest Bryant were critical in developing the ideas presented in this paper.

REFERENCES

[1] WEBER, F., BONHOMME, M., in The Oklo Phenomenon (Proc. Symp. Libreville, Gabon, 1975), IAEA, Vienna (1975) 17.
[2] LANCELOT, J.R., VITRAC, A., ALLEGRE, C.J., Earth Planet. Sci. Lett. **25** (1975) 189.
[3] DEVILLERS, C., RUFFENACH, J.C., MENES, J., LUCAS, M., HAGEMANN, R., NIEF, G., in The Oklo Phenomenon (Proc. Symp. Libreville, Gabon, 1975), IAEA, Vienna (1975) 293.
[4] COWAN, G.A., BRYANT, E.A., DANIELS, W.R., MAECK, W.J., Ibid., p. 341.
[5] BRYANT, E.A., COWAN, G.A., DANIELS, W.R., MAECK, W.J., ACS Symp. Series, No.35, Actinides in the Environment (1975) 89.
[6] RUFFENACH, J.C., MENES, J., DEVILLERS, C., LUCAS, M., HAGEMANN, R., Earth Planet. Sci. Lett. **30** (1975) 189.
[7] TERA, F., WASSERBURG, G.J., Anal. Chem. **47** (1975) 2214.
[8] COWAN, G.A., IAEA-TC-119/26, these Proceedings.
[9] TILTON, G.R., J. Geophys. Res. **65** (1960) 2933.
[10] NAUDET, R., Written communication, December 1975.

DISCUSSION

J.F.W. BOWLES: Des analyses par microsonde (voir IAEA-TC-119/28, présents comptes rendus) des matériaux d'Oklo confirment l'hypothèse d'un déplacement notable de plomb dans l'uraninite. En outre, on trouve des quantités considérables de plomb sous forme de grains isolés de galène à proximité de l'uraninite et disséminées dans l'ensemble des phases argileuses, ce qui paraît appuyer votre idée d'une diffusion continue de plomb.

Vous avez présenté des résultats très intéressants et instructifs sur les rapports U/Pb. Avez-vous effectué vos analyses sur des cristaux d'uraninite séparés ou sur des échantillons de roche totale? Dans d'autres gisements où des processus diagénétiques et métamorphiques ont mobilisé le plomb et ont ainsi rendu difficile l'interprétation des données isotopiques, des résultats plus cohérents ont été obtenus au moyen d'analyses de roche totale effectuées sur des échantillons suffisamment grands pour inclure une portion importante du plomb mobilisé. Je voudrais recommander à cette réunion l'utilisation de cette technique.

G.A. COWAN: D'après ce que m'a dit M. Gancarz, les échantillons dont il est question devaient être des roches entières dont l'uraninite n'avait pas été séparée. Dans le cas contraire les résultats ne seraient pas valables car une grande partie du plomb a été en effet retenue sous forme de galène dans l'échantillon, et nous aurions obtenu des résultats tout différents. Il est vrai que M. Gancarz a examiné quelques phases d'uraninite séparée, mais je suis certain que ces analyses-ci ont été effectuées sur des roches totales.

THE MEASUREMENT OF RUTHENIUM IN URANIUM ORES AND ^{238}U SPONTANEOUS FISSION YIELDS

W.J. MAECK, J.E. DELMORE,
R.L. EGGLESTON, F.W. SPRAKTES
Idaho National Engineering Laboratory,
Allied Chemical Corporation – Idaho Chemical Programs,
Idaho Falls, Idaho,
United States of America

Résumé–Abstract

LE DOSAGE DU RUTHENIUM DANS LES MINERAIS D'URANIUM ET LE CALCUL DES RENDEMENTS DE LA FISSION SPONTANEE DE ^{238}U.

Pour déterminer le rôle que peut jouer le ruthénium comme élément de référence des réacteurs de fission naturels, on a dosé le ruthénium dans 25 échantillons provenant de gisements connus pour être riches en uranium. On a constaté dans tous ces échantillons une composition isotopique que l'on ne peut attribuer uniquement au ruthénium naturel ni à celui provenant d'une fission thermique de ^{235}U. Après avoir fait une correction pour tenir compte du ruthénium naturel on a conclu que le ruthénium restant était un mélange de ruthénium dû à la fission spontanée de ^{238}U et à la fission thermique induite de ^{235}U. A l'heure actuelle, on suppose que les valeurs isotopiques du ruthénium qui présentent les plus grandes différences avec celles qu'on peut attendre de la fission thermique de ^{235}U sont celles qui se rapprochent le plus de la répartition isotopique du ruthénium correspondant à la fission spontanée de ^{238}U. On a calculé le rendement en ruthénium des produits de la fission spontanée de ^{238}U en fixant à 6,0% la teneur isotopique normale de ^{99}Ru. L'opération d'analyse consiste à séparer le ruthénium de l'échantillon de minerai dissous en distillant le tétraoxyde, et en mesurant au moyen d'un spectromètre de masse à source thermoïonique. Cette méthode permet de mesurer des quantités de ruthénium ne dépassant pas quelques nanogrammes. Pour mesurer la concentration, on fait appel comme isotope de référence à ^{96}Ru. L'étude donne les détails des opérations de séparation chimique et de spectrométrie de masse.

THE MEASUREMENT OF RUTHENIUM IN URANIUM ORES AND ^{238}U SPONTANEOUS FISSION YIELDS.

In the process of evaluating the potential use of ruthenium as a monitor for natural fission reactors, 25 selected samples from known rich uranium ore deposits were analysed for ruthenium. All of the samples gave an isotopic composition which could not be solely attributed to natural ruthenium or from ^{235}U thermal fission. After correction for natural ruthenium, it was concluded that the residual ruthenium was a mixture of ruthenium produced from ^{238}U spontaneous fission and induced ^{235}U thermal fission. For the present, it is assumed that the ruthenium isotopic values which show the greatest divergence from that for ^{235}U thermal fission most closely approximate the ruthenium isotopic distribution for ^{238}U spontaneous fission. The ^{238}U spontaneous fission yields for ruthenium were calculated by normalizing the isotopic abundance of ^{99}Ru to 6.0%. The analysis procedure consists of separating ruthenium from the dissolved ore sample by distillation of the tetraoxide, and measurement using thermal ionization mass spectrometry.

As little as a few nanograms of ruthenium can be measured using this technique. For concentration measurements, ^{96}Ru is used as the spike isotope. Details of the chemical separations and mass spectrometry procedure are given.

1. INTRODUCTION

Since the initial discovery of the natural occurrence of a sustained nuclear chain reaction at the Oklo site in Gabon, considerable speculation has been presented relative to the occurrence of other natural reactors. While it is now generally believed that the Oklo Phenomenon was not unique, the probability of detecting another such occurrence is less clear. For reactor sites which have remained intact, measurement of the U isotopic abundances generally provides the most direct evidence for the detection of a nuclear chain reaction. However, if the site has been subjected to geologic processes which have resulted in the wide spread dissemination of the depleted uranium, sufficient dilution of this material with normal uranium will minimize the usefulness of the uranium isotopic analysis. As an alternative, and more sensitive technique, Roth and co-workers[1] at the Libreville Oklo Symposium suggested analyzing for the fission products elements selenium, ruthenium, palladium, and tellurium, which are rare in nature but which have relatively high fission yields. Of these, ruthenium is the most sensitive monitor, having a natural abundance in the earth's crust of ~1 part per billion or less, and an elemental fission yield of ~25%. Thus, the isotopic composition of natural occurring ruthenium should be significantly altered if fission product ruthenium is present.

To evaluate the use of ruthenium as a monitor for natural fission reactors, 25 selected samples from known rich uranium ore deposits were analyzed.

2. PROCEDURE

The ground ore sample is leached for several hours in a boiling mixture of 9M HCl-3M HNO_3 and filtered. Ruthenium is separated by distillation of the tetraoxide from a boiling mixture of sulfuric acid and sodium bismuthate, and collected in chilled HCl. The analysis technique is thermal ionization mass spectrometry. For concentration measurements, we have used ^{96}Ru as the spike isotope; however, ^{104}Ru

may be preferred to eliminate the possible interference from ^{96}Mo. As little as a few nanograms of ruthenium can be measured using this procedure.

A complete description of the procedure is given in the Appendix.

3. RESULTS AND DISCUSSION

As part of a survey study for other possible natural reactors, 25 selected samples have been analyzed to determine the isotopic composition of uranium and ruthenium. Included were samples from the Jabiluka and Nabarlek deposits in Australia; the Rabbit Lake, Cluff Lake, and Key Lake areas of Canada; and selected specimens from the Frondel collection at Harvard University. The latter included specimens from the Kasolo and Shinkolobwe deposits in Zaire as well as selected specimens representative of rich uranium ore deposits in Canada, S.W. Africa, Australia and Brazil.

Although none of these samples showed an obvious depletion in ^{235}U, the ruthenium isotopic composition was quite variable. In all cases, the isotopic composition of the ruthenium could not be solely attributed to natural ruthenium or that from ^{235}U thermal fission. After correction for natural ruthenium based on mass 100, the resulting isotopic composition still varied and was not representative of ^{235}U fission produced ruthenium. The results, after subtraction of the natural component, are given in Table I. Also given is the isotopic composition of ^{235}U thermal fission produced ruthenium. The natural ruthenium component varied from 0-25% of the total ruthenium.

The general trend of the data for these samples is that the isotopic fraction increases in progressing from mass 99 to 102. This is opposite from that for ^{235}U thermal fission in which the isotopic abundance decreases. We now attribute the isotopic values given in Table I to be the result of a mixture of ruthenium produced from ^{238}U spontaneous fission and induced ^{235}U thermal fission.

For an initial estimate of the isotopic composition of ^{238}U spontaneous fission produced ruthenium, we have assumed that the ruthenium isotopic values which show the greatest divergence from that for ^{235}U thermal fission most closely approximate the ruthenium fission product distribution for ^{238}U spontaneous fission. These values which are listed on the top of Table I were obtained from a rich uranium ore

TABLE I. ISOTOPIC COMPOSITION OF FISSION PRODUCT RUTHENIUM IN RICH URANIUM ORES

Sample	MASS NUMBER 99	101	102	104
Wilberforce, Ont.*	0.2320	0.2832	0.3161	0.1685
Rio Grande do Norte, Brazil*	0.2390	0.2863	0.3127	0.1619
Shinkolbwe, Zaire	0.2520	0.2814	0.3037	0.1628
Kasolo, Zaire	0.2567	0.2818	0.3027	0.1587
Gordonia, SWA	0.2539	0.2967	0.2973	0.1521
NT, Australia a	0.2581	0.2888	0.3006	0.1526
b	0.2742	0.2886	0.2853	0.1519
Jabiluka, Australia a	0.2670	0.2864	0.2964	0.1501
b	0.2813	0.2863	0.2867	0.1457
c	0.2796	0.2841	0.2891	0.1472
Nabarlek, Australia	0.2592	0.2801	0.3017	0.1590
Wilberforce, Ont.	0.2345	0.2905	0.3173	0.1576
Fay Mine, Sask.	0.2708	0.2850	0.2952	0.1491
Cluff Lake, Sask. a	0.2644	0.2814	0.2970	0.1571
b	0.2606	0.2846	0.2974	0.1575
Rabbit Lake a	0.2451	0.2816	0.3140	0.1593
b	0.2648	0.2871	0.2952	0.1530
c	0.2659	0.2861	0.2943	0.1537
d	0.2465	0.2873	0.3059	0.1603
e	0.2451	0.2827	0.3148	0.1575
f	0.2487	0.2723	0.3139	0.1651
Port Radium, NWT a	0.2426	0.2836	0.3131	0.1606
b	0.2442	0.2876	0.3116	0.1567
c	0.2450	0.2875	0.3100	0.1576
^{235}U Thermal Fission	0.3538	0.2947	0.2454	0.1061

*Reference Samples

from the Wilberforce area, Ontario, Canada. Another sample which gives a nearly equal extreme set of values is from Rio Grande do Norte area of Brazil. All of the other samples gave isotopic values which lie between these extreme values and that for ^{235}U thermal fission. For the present, we have averaged these two data sets to establish a value for ^{238}U spontaneous fission produced ruthenium.

It is recognized that the sample showing the most divergent isotopic values may still contain some ^{235}U thermal fission produced ruthenium. Hence, continued analysis of specially selected samples is warranted to confirm, or more positively, establish the most correct isotopic abundances and fission yields for ^{238}U spontaneous fission produced ruthenium. One approach is to seek a very old low-grade (1-3% U) ore. For this case, it could be assumed that the dilution factor of the bulk material would minimize the amount of ^{235}U induced fission while the age would allow measurable quantities of ruthenium to be produced. Another approach is to seek a sample which has a uranium concentration in the 5-20% range and a high neutron poison content, such that the potential for ^{235}U induced fission is low. Samples having a high lithium or boron content should be avoided because of the probability of α,n reactions. The search for such samples and subsequent analysis are active efforts in the U.S. study of natural reactors.

Using the ruthenium isotopic values which we believe are the most representative of ^{238}U spontaneous fission, the fission yields for the stable isotopes of ruthenium were calculated by normalizing the isotopic abundance of mass 99 to a fission yield of 6.0%. This value is based on three reported measurements of the ^{238}U spontaneous fission yields for 66-h ^{99}Mo[2,3,4] and one for 2.13×10^5-a ^{99}Tc[5]. Because each of these yields was based on different values for the spontaneous fission half-life of ^{238}U, we recalculated each value using a common decay constant of 8.64×10^{-17}a[6]. The simple mean of these renormalized yields and the standard deviation for mass 99 is 6.0±0.2% absolute. The ^{99}Ru, ^{101}Ru, ^{102}Ru, and ^{104}Ru yields for ^{238}U spontaneous fission are presented in Table II. Also listed are the yields for ^{235}U thermal fission, and the fractional isotopic abundances of the ruthenium isotopes for ^{238}U spontaneous fission and ^{235}U thermal fission.

TABLE II. RUTHENIUM ISOTOPIC COMPOSITION AND FISSION YIELDS

	^{238}U Spontaneous Fission		^{235}U Thermal Fission	
Mass No.	Isotopic Abund.	Fission Yield,%	Isotopic Abund.	Fission Yield,%
99	0.2356	6.0	0.3538	6.10[a]
101	0.2846	7.25	0.2947	5.08
102	0.3145	8.01	0.2454	4.23
104	0.1653	4.21	0.1061	1.83
Σ		25.47		17.24

[a] Yield for ^{99}Tc.

The ^{235}U thermal fission and ^{238}U spontaneous fission yields for the mass region 99 through 106 are shown in Figure 1. The marked fine structure indicated by the yield for mass 103 is highly suspect, and we strongly encourage remeasurement of this value.

The analysis of nanogram quantities of ruthenium in terrestrial samples using mass spectrometry is not a simple task. As noted in the detailed procedure given in the Appendix, extreme care and cleanliness must be exercised in the separation procedure. In addition, ruthenium is not noted for its ease of measurement by thermal ionization mass spectrometry. Considering that this program started as a development effort, it is false to state that all of the results were satisfactory or obtained without difficulty. In most cases, the problems were associated with insufficient sample which resulted in poor or erratic output from the mass spectrometer. For lean samples the ruthenium "burned off" too rapidly, precluding acceptable data collection, or the sample filament had to be heated to a point where interference from zirconium and molybdenum was significant. Spectral interference, from some unknown source, at times, appeared to be a problem, especially at mass 104.

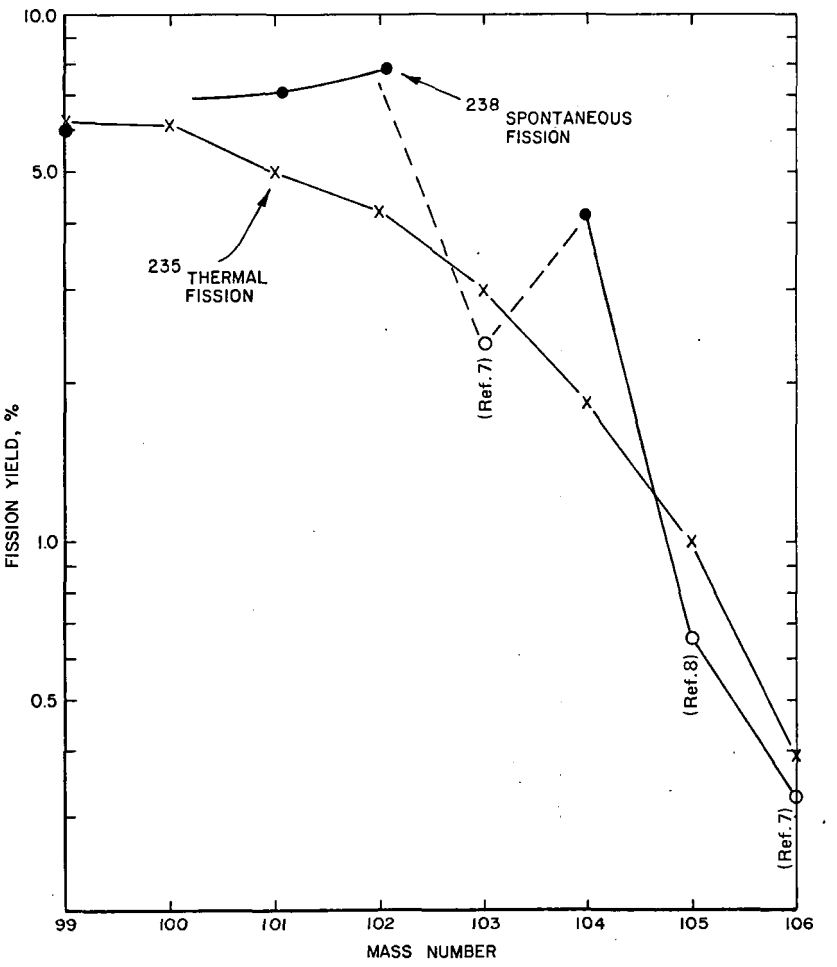


FIG. 1. Mass yield curve for ^{235}U thermal fission and ^{238}U spontaneous fission.

In this initial effort, the maximum sample size was ∿5 g, although samples as small as 0.5 g were also dissolved. Normally, the 5-g sample was leached with ∿100 ml of acid, and in all cases, from one-third to one-half of the sample was transferred to the distillation flask. The amount of ruthenium in the various aliquots varied from ∿1-25 ng. If near quantitative distillation of the ruthenium and transfer of at least one-half of the distillate to the mass spectrometer filament is assumed,

the quantity of ruthenium measured ranged from 0.5-15 ng. An average value was ∿5 ng. Although "reasonable" mass spectrometric data were obtained for these samples, it is quite apparent that 10 ng or more of ruthenium on the filament is desirable. The precision of replicate scans and sample life-time in the mass spectrometer were proportional to the sample size. Generally, the range of the measured isotopic abundance for any one isotope was within ±3% relative.

In future studies, it is apparent that larger samples must be obtained and processed. Modification of the sample leaching and separation procedures, and the mass spectrometric measurement is part of our on-going effort.

4. APPLICABILITY

Although the uranium and ruthenium mass spectrometric analyses did not identify a new natural fission reactor, this initial study did demonstrate the measurement of nanogram quantities of ruthenium in terrestrial samples. Of particular importance is the measurement of ^{238}U spontaneous fission produced ruthenium in high-grade uranium ore samples. The potential use of these data in a method for the measurement of uranium ore age is discussed in another paper[9] at this symposium.

APPENDIX

I. SAMPLE DISSOLUTION

The sample is ground and homogenized. An aliquot is transferred to a tared Erlenmeyer flask and the sample is leached for 4-24 h with a mixture of quartz distilled (QD) 9M HNO_3. The high mole ratio of HCl/HNO_3 is required to prevent the possible loss of Ru by volatilization or plateout. Filter the solution through a glass fiber filter (void of organic binder) and weigh the filtrate.

For the subsequent separation and mass spectrometric analysis, a sample size which will give 10 ng or more of Ru on the mass spectrometer filament is preferred.

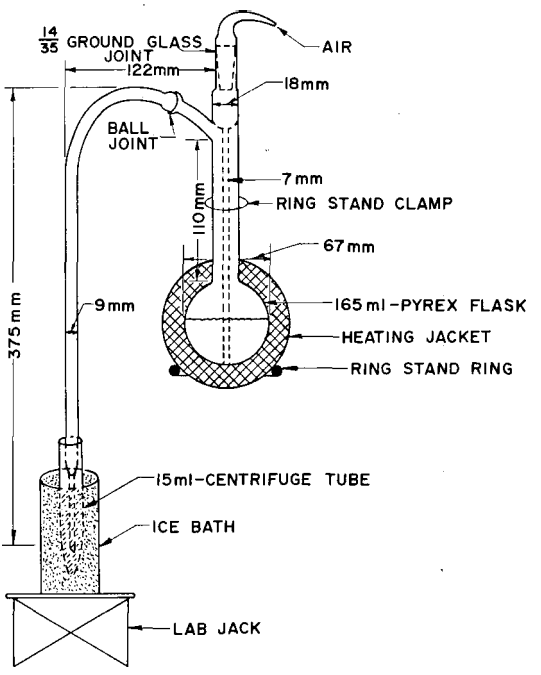


FIG.2. Ruthenium distillation apparatus.

II. RUTHENIUM SEPARATION PROCEDURE

Ruthenium is separated by distillation of RuO_4. The procedure is based on that of Larsen and Ross[10], and techniques developed in our laboratory for the mass spectrometric measurement of fission product ruthenium.

Glassware - All glassware can be fabricated from Pyrex. A schematic diagram of the distillation apparatus is given in Figure 2.

Special Reagents - Quartz distilled (QD) HCl, HNO_3, and H_2O.

Special Precautions - The successful distillation of nanogram quantities of Ru requires that all of the equipment be scrupulously clean. Grease is not to be used on any glass connections. The airline leading to the distillation apparatus (Figure 2) should be of glass or metal, with minimum use of plastic or rubber tubing. The organic vapors, when collected on the distillate, can cause problems in the subsequent mass spectrometric analysis. The purge-air should be filtered prior to use.

Ruthenium Separation Procedure

1. Weigh the appropriate amount of ^{96}Ru spike solution into a tared acid cleaned Pyrex 50-ml centrifuge tube.	Omit if only isotopic abundance is desired.
2. Weigh appropriate sample aliquot into the tube containing the spike. Mix thoroughly.	Weighed aliquot not required if only isotopic abundance is desired. If possible, the sample size should be equivalent to ~10 ng of Ru.
3. Transfer the mixed sample and spike solution to the distillation flask (Figure 2) through the air inlet joint.	
4. Add sufficient QD HCl to give the solution in the flask a mole ratio of HCl/HNO_3 of at least 5:1.	The HCl acid addition also serves to wash the sample down the air inlet tube. The high HCl ratio is required to prevent loss of Ru in Step 8.
5. Add 5 ml H_2O to a 50-ml Pyrex centrifuge tube and place in an ice bath.	
6. Connect the side arm to the flask and position the tip close to the bottom of the 50-mL collection tube. Adjust air flow to ~60 cm^3/min. (~2 bubbles/s).	
7. Remove the air inlet joint and cautiously add 10 ml 18M H_2SO_4 to the distillation flask.	This acid addition can generate large quantities of heat. The flask must be cooled to prevent splattering. If it is known that the sample contains large quantities of Pb or other insoluble sulfates, use 20 ml of H_2SO_4 to minimize eventual splattering of the solution when taken to SO_3 fumes. If 20 ml of H_2SO_4 is used, 100 ml of H_2O will be required in Step 10.
8. Place the flask in a full heating mantle and heat to fumes of SO_3. Continue heating for at least 10 min.	Continued heating aids in the destruction of organic material which may be present in the sample.
9. Remove the heating mantle and allow the solution to cool. Continue air purge. Discard the distillate.	

10. Cautiously add 50 ml QD H_2O to the distillation flask.	Cool to prevent splattering. The conc. of H_2SO_4 at this point should be ~3.3M. See comments in Step 7. After the $NaBiO_3$ additions and wash in Step 11, the conc of H_2SO_4 must be 3M or less to effect an efficient oxidation and distillation of the Ru. At 4M H_2SO_4, Bi(V) will be reduced by the H_2O before the distillation of the Ru is complete.[11]
11. Add a slurry of 1 g (minimum) of $NaBiO_3$ in 10 ml QD H_2O to the distillation flask. Wash the air inlet tube with 10 ml QD H_2O.	The $NaBiO_3$ slurry must be freshly prepared before each distillation. The required amount of $NaBiO_3$ will vary with each sample depending upon the sample size and the amount of oxidizable ions present. An excess of $NaBiO_3$ (tan color of solution) must be present at all times.
12. Remove the distillation side-arm and rinse the inside of the tube with QD H_2O to remove all traces of contaminants from the prior distillation. Discard the washings and replace the side-arm.	
13. Place a clean glass 15-ml distillate collection tube containing 5 ml of 6M QD HCl in an ice bath. Position the tube such that the tip of the distillation side-arm is within a few mm of the bottom of the collection tube.	Check to determine that the air flow through the system is ~60 cm^3/min (2 bubbles/s).
14. Heat the sample solution to a rolling boil using the heating mantle. Collect ~5 ml of condensate.	Ruthenium rapidly distills as RuO_4. The first mL of condensate should contain ~90% of the Ru.
15. Remove the collection tube from the ice bath. Using a heat lamp and hot air stream, evaporate the distillate to a volume of ~0.01 ml.	Do not evaporate the sample to dryness because it will be difficult to again solubilize the Ru.
16. Proceed with the mass spectrometric analysis.	

Cleaning of Glassware

If a new Ru distillation flask is to be used, fill with 6M HCl and and warm under a heat lamp for ∿2 h. Rinse with QD H_2O, and run a Ru procedure blank using ∿30 ml of HCl/HNO_3 in a 5:1 mole ratio. Discard the solution, wash the flask with QD H_2O, and rinse with 50 ml of a hot solution of 5% NaOCl. Rinse with QD H_2O. The flask is now ready for use.

After use, discard the contents of the flask and rinse with H_2O. Quickly, sequentially rinse the flask with 10M HF, H_2O, and 6M HCl to remove residual silicate salts. Rinse the flask with a hot solution of 5% NaOCl followed with QD H_2O and allow the flask to drain dry. Do not use acetone or alcohol to dry the flask. If the flask is not to be immediately reused, seal in a plastic bag for storage.

III. MASS SPECTROMETRIC ANALYSIS

The mass spectrometer used for the analysis of ruthenium was a Nuclide Associates tandem 90-degree sector instrument equipped with a pulse counting system.

Mass Spectrometric Procedure

1. A "high purity" Re sample filament is prebaked under high vacuum for ∿15 min at a temperature which gives a filament burnout rate of about 10%.	It is imperative that the Mo and Zr content of the filament be reduced to a minimum because of potential spectral interference in the Ru analysis.
2. Transfer as much as possible of the evaporated sample to the prebaked filament. Pass sufficient current through the filament to give an evaporation rate of ∿0.001 ml/30 s. Nominally, 5 min is required to evaporate the sample.	The rate of sample evaporation on the filament must be slow to prevent volatilization of Ru from the filament. Cease heating as soon as the evaporation is complete.
3. Insert the sample filament into the mass spectrometer and evacuate the system.	
4. Slowly increase the heating of the filament for about 1 h. Monitor hydrocarbon emission.	Do not heat above 2 A for the first hour. If hydrocarbon emission is persistent, continue heating at the 2-A level until all of the hydrocarbons are burned off.

5. Increase filament current to ~2.5 A.	If sample is clean, a Ru spectrum should appear. If a Ru spectrum is not apparent, continue to increase the filament heat at a rate of ~0.1 A/10 min.
6. Once a Ru spectrum has been identified with adequate spectral purity, slowly increase the filament temperature until measurable beam intensity is attained.	
7. Collect Data.	The final filament current may be as high as 3.5 A for impure samples. If Mo and/or Zr interference is observed, scan all masses from 90 to 104 and collect data for ^{90}Zr, ^{95}Mo, ^{97}Mo, and all Ru isotopes.

Calculations

If Mo and Zr contamination is present, first correct the Zr contribution based on ^{90}Zr (assume all contamination to be of natural occurrence). Molybdenum is corrected based on ^{95}Mo and ^{97}Mo. Natural Ru is corrected based on mass 100 after correction for Mo. The Ru concentration, both natural and fission product, is calculated relative to the number of atoms of ^{96}Ru spike added.

REFERENCES

[1] ROTH, E., LUCAS, M., LECOMTE, T., DEVILLERS, C., HAGEMANN, R., in The Oklo Phenomenon (Proc. Symp. Libreville, Gabon, 1975), IAEA, Vienna (1975) 489.

[2] PARKER, P.L., KURODA, P.K., J. Inorg. Nucl. Chem. 5 (1958).

[3] PURKAYASTHA, B.C., BHATTACHARYYA, D.K., J. Inorg. Nucl. Chem. 35 (1973).

[4] RUSSELL, I.J., Ph. D. Dissertation, University of Chicago (1956).

[5] KENNA, B.T., KURODA, P.K., J. Inorg. Nucl. Chem. 26 (1964).

[6] Evaluated Nuclear Data File, ENDF/B-V, BNL, Upton, New York.

[7] SWINDLE, D.L., WRIGHT, R.J., KURODA, P.K., J. Inorg. Nucl. Chem. 33 (1971).

[8] RAO, M.N., SHAHANI, C.J., J. Inorg. Nucl. Chem. 27 (1965).

[9] MAECK, W.J., APT, K.E., COWAN, G.A., IAEA-TC-119/32, these Proceedings.

[10] LARSEN, R.P., ROSS, L.E., Spectrophotometric determination of ruthenium, Anal. Chem. 31 (1959) 176.

[11] LARSEN, R.P., ROSS, L.E., KESSER, G., Determination of Fission Product Ruthenium, Argonne National Laboratory Rep., ANL-5810 (1957).

A POSSIBLE URANIUM-RUTHENIUM METHOD FOR THE MEASUREMENT OF ORE AGE*

W.J. MAECK
Idaho National Engineering Laboratory,
Allied Chemical Corporation – Idaho Chemical Programs,
Idaho Falls, Idaho

K.E. APT, G.A. COWAN
University of California,
Los Alamos Scientific Laboratory,
Los Alamos, New Mexico,
United States of America

Résumé–Abstract

DATATION DES MINERAIS PAR L'URANIUM ET LE RUTHENIUM.

On a mis au point une méthode qui permet de dater des échantillons de minerai d'uranium précambrien par la mesure des concentrations de ^{238}U et des isotopes du ruthénium résultant de la fission spontanée de ^{238}U. La concentration de ces derniers dépend: 1) de la quantité de ^{238}U présente, 2) du taux de décroissance de fission spontanée, 3) des rendements de fission en ruthénium de ^{238}U et 4) de la durée de la fission spontanée c'est-à-dire de l'âge du minerai. On a constaté que le ruthénium des minerais précambriens était dû, outre son abondance naturelle, à la fission spontanée de ^{238}U et à la fission, plus variable, de ^{235}U produite par les neutrons. La part du ruthénium naturel de type dit courant est ordinairement de 1 pp10^9 et on la détermine à partir des isotopes de masse 96, 98 et 100, qui ne sont pas produits dans la fission. La proportion des isotopes de masse 99, 101, 102 et 104 correspondant à la fission spontanée de ^{238}U est sensiblement différente de celle qui correspond à la fission de ^{235}U induite par les neutrons. On peut donc déterminer la quantité de ruthénium présente dans un échantillon qui résulte uniquement de la fission spontanée de ^{238}U. On a daté au moyen de cette méthode plusieurs échantillons de minerai d'uranium précambrien et les âges obtenus sont en bon accord avec les valeurs déterminées par d'autres techniques. La partie du ruthénium résultant de la fission induite de ^{235}U a été trouvée de 0 à 40% environ de la quantité résultant de la fission spontanée de ^{238}U, et la part du ruthénium ordinaire, d'environ 10% du ruthénium total. Cette technique utilisant l'uranium et le ruthénium devrait compléter les méthodes de datation radiogénique existantes car elle se fonde sur un produit radiogénique dont la géochimie est différente de celle des produits ou des intermédiaires des autres séries de décroissance.

A POSSIBLE URANIUM-RUTHENIUM METHOD FOR THE MEASUREMENT OF ORE AGE.

A technique has been devised to date Precambrian uranium ore samples by measuring the concentrations of ^{238}U and of ruthenium isotopes that result from the spontaneous fission of ^{238}U. The concentration of the latter depends on (1) the amount of ^{238}U present; (2) the spontaneous fission decay rate; (3) the ruthenium fission yields for ^{238}U; and (4) the duration

* Work performed under the auspices of the US Energy Research and Development Administration.

of spontaneous fission, i.e. the age of the ore. Ruthenium in Precambrian ores has been identified as being from the natural abundance, the spontaneous fission of ^{238}U, and the more variable neutron-induced fission of ^{235}U. The contribution from "common" natural ruthenium is typically 1 pp X 10^9 and is determined from the isotopes of mass 96, 98, and 100, which are not produced in fission. The ratio of isotopes of mass 99, 101, 102, and 104 for ^{238}U spontaneous fission has been found to be significantly different from that ratio for ^{235}U neutron-induced fission. Hence, the amount of ruthenium in an ore sample which results solely from ^{238}U spontaneous fission can be determined. Several Precambrian uranium ore samples have been dated using this technique, and the ages compare favourably to values determined by other techniques. The component of ruthenium resulting from neutron-induced fission of ^{235}U varied between about 0 and 40% of the amount from ^{238}U spontaneous fission, and the component of common ruthenium was typically about 10% of the total ruthenium. This uranium-ruthenium technique should complement existing radiogenic dating techniques because it relies on a radiogenic product whose geochemistry is different from that of products or intermediates in the other decay sequences.

INTRODUCTION

The relative geochemical stability of ruthenium in ore from the Oklo natural reactor [1,2] and its low natural abundance in the earth's crust [3] make it a very sensitive indicator of fission in uranium deposits [4]. New techniques for separating ruthenium from large geologic samples and for the analysis of the separated element by mass spectroscopy have now been developed which make quantitative measurements possible at the nanogram level [5]. Due to the significant differences that exist in the isotopic ratios of natural and fission product ruthenium, these analyses permit the calculation of the amount of ruthenium due to natural background, spontaneous fission of ^{238}U, and thermal-neutron-induced fission of ^{235}U.

In a number of samples of rich, Precambrian uranium ore from a variety of sources, the background of natural ruthenium, measured by the isotopes which do not occur in fission, has been found to be consistently about a few tenths of a nanogram per gram, with some samples at the level of nanograms per gram. The amount of uranium produced by neutron-induced fission of ^{235}U is generally a small fraction of the total ruthenium observed. This would not be true in a deposit which approached an exponentially multiplying configuration, i.e., a natural reactor. From the measurements described in Ref. [5], it can be estimated that the ruthenium method is generally 10^2 to 10^3 times more sensitive for the detection of a natural fission reactor than the measurement of depletion in the ^{235}U to ^{238}U ratio or of fission products which are much more abundant in nature than ruthenium, e.g., neodymium.

Most of the observed ruthenium in the analyzed samples was produced by spontaneous fission of ^{238}U. This means that, in principle, the number of spontaneous fissions can be calculated and the age of the ore deposit estimated.

The results of initial age calculations based on these ruthenium analyses are presented in this paper, and the problems, limitations, and potential usefulness of the method are discussed.

TREATMENT OF DATA

The age of a uranium ore samples is calculated from the relationship:

$$T = \frac{1}{\lambda_\alpha} \ln\left[\frac{\lambda_\alpha N_{SF,i}}{\lambda_{SF} N_{238} Y_{SF,i}} + 1\right] \quad (1)$$

where λ_α, the α decay constant of $^{238}U = 1.551 \times 10^{-10}/a$,
λ_{SF}, the spontaneous fission decay constant of $^{238}U = 8.46 \times 10^{-17}/a$ [6],
N_{238} = the measured number of ^{238}U atoms in the ore sample, and
$Y_{SF,i}$ = the ruthenium spontaneous fission yields in ^{238}U taken as [5] ^{99}Ru, 6.0%; ^{101}Ru, 7.25%; ^{102}Ru, 8.0%; ^{104}Ru, 4.2%.

The age can also be calculated on the basis of the $\sum_i N_{SF,i} / \sum_i Y_{SF,i}$. The $\sum_i Y_{SF,i}$ is 25.45%. The value of $\sum_i N_{SF,i}$ is obtained from the total number of atoms of ruthenium, N_m, measured by isotope dilution mass spectrometry [5] and corrected for natural ruthenium, and the fraction of total fission, F, due to spontaneous fission of ^{238}U, calculated from the relationship:

$$F = \frac{E_{m,i} - E_{th,i}}{E_{SF,i} - E_{th,i}} \quad (2)$$

where $E_{m,i}$ = measured atom fraction of ^{i}Ru in sample
$E_{SF,i}$ = atom fraction of ^{i}Ru in spontaneous fission of ^{238}U
$E_{th,i}$ = atom fraction of ^{i}Ru in thermal fission of ^{235}U.

When the age is calculated from the individual isotopes of ruthenium rather than their sum, the value of $N_{SF,i}$ is calculated from the product of $N_{m,i}$, the total number of atoms of ^{i}Ru corrected for background, and F_i, based on the relationship:

$$F_i = \frac{R_{SF}}{R_m}\left(\frac{R_m - R_{th}}{R_{SF} - R_{th}}\right) \quad (3)$$

where R_m, R_{SF}, and R_{th} are values of $E_{m,i}/E_{m,j}$, $E_{SF,i}/E_{SF,j}$, and $E_{th,i}/E_{th,j}$ for $i \neq j = 99$, 101, 102, and 104.

In practice, for calculations with Equation (2), the values obtained for masses 99, 102, and 104 were used, but the value obtained for mass 101 was discarded due to the small difference between $E_{m,101}$ and $E_{th,101}$ and the consequent large error in F.

For the calculation with Equation (3), the isotopic ratios 101/99, 102/101, 99/104, and 102/99 generally produced answers of the same precision and were used to calculate F.

TABLE I

ANALYTICAL RESULTS AND AGE VALUES

Site[a]	Total U (wt%)	Total FP Ru (ng/g Ore)	Fraction Ru from ^{238}U SF	Age (10^9a)
AFRICA				
1. Shinkolobwe, Zaire	74	6.27	0.88	0.78
2. Kasolo, Zaire	69	5.30	0.85	0.68
3. Gordonia, SWA	58	5.54	0.79	0.79
AUSTRALIA				
1. No. Territory	66	16.8	0.80	1.9
2. No. Territory	70	22.6	0.67	2.0
3. Jabiluka				
a. DH-I, 237m	63	22.2	0.74	2.4
b. DH-I, 237.3m	56	13.0	0.63	1.4
c. DH-I, 237.8m	57	13.8	0.65	1.6
4. Nabarlek	59	15.7	0.88	2.2
BRAZIL				
1. Rio Grande do Norte	56	5.78	0.96	1.0
CANADA				
1. Wilberforce, Ont.	56	7.24	1.00	1.3
2. Wilberforce, Ont.	58	5.35	0.97	0.92
3. Fay Mine, Sask.	12	2.08	0.72	1.3
4. Cluff Lake, Sask.				
a. D ore body	58	11.4	0.78	1.5
b. D ore body	62	11.8	0.80	1.5
5. Rabbit Lake, Sask.				
a. DH-I, 32.9m	7	2.24	0.94	2.6
b. DH-II, 50.0m	53	12.9	0.75	1.8
c. DH-II, 51.2m	22	5.25	0.75	1.7
d. DH-III, 39.0m	32	3.87	0.90	1.1
e. DH-IV, 36.6m	14	1.88	0.93	1.3
f. Open pit	27	1.34	0.96	0.51
6. Port Radium, NWT				
a. Solid aliquot I	43	7.16	0.95	1.5
b. Solid aliquot II	42	7.39	0.92	1.6
c. Solid aliquot III	38	6.92	0.91	1.6

[a]Diamond drill core samples are designated as DH; other samples were hand specimens.

Ideally, the same value for the atoms of spontaneous-fission produced ruthenium would be obtained from each of these calculations if each isotopic fraction were measured without error. In practice, comparison of the various results has served to monitor the internal consistency of the measurements and the relative precision of each calculational method. The calculations were performed with isotopic fractions obtained from mass spectroscopic analyses of duplicate samples, one spiked with ^{96}Ru and one left unspiked.

The results of this study showed that (1) the average standard deviation of the values for the atoms of spontaneous-fission produced ruthenium calculated by each method was $\sim$ 5%; and (2) there was no significant difference in the quality of the data obtained by each calculational method. For the age calculation, we have excluded data with a deviation $\geq$ 15%. The ages listed in Table I are based on the average value for the atoms of spontaneous-fission produced ruthenium obtained from Equation (2).

An estimate of the random error associated with the tabulated ages was obtained by an error propagation calculation based on Equation (1). The following relative uncertainties were assigned: N_{238}, 1%; λ_α, 0.5%; λ_{SF}, 3%; $\sum_i N_{SF,i}$, 5%; $\sum_i Y_{SF,i}$, 3%; and $E_{SF,i}$, 3%. The propagated random error in T was 9.6% with 64% of the error associated with the uncertainty in $E_{SF,i}$ and 20% from the uncertainty in $\sum_i N_{SF,i}$. The uncertainties in $Y_{SF,i}$ and λ_{SF} each contributed 7% of the total error, and the other factors each contributed less than 1%.

An estimate of the precision of the measurement is obtained from the analysis in triplicate of an ore sample from the Port Radium district of Canada. Analyses were made for uranium and ruthenium. For ruthenium, the sample size taken was $\sim$ 5 grams, and the amount of ruthenium on the filament was $\sim$ 15 ng. The age calculated from the three samples was $1.57 \pm 0.02 \times 10^9$ a. The uncertainty is smaller than for most of the other ages because, in this case, a sufficiently large samples was available for analysis, unlike many of the samples analyzed.

DISCUSSION

In general the uranium-ruthenium ages listed in Table I fall into a reasonable pattern and are not in great disagreement with commonly quoted ages for these formations. They do, however, seem to be consistently higher than uranium-lead ages [7]. We propose three possible explanations for such a systematic difference:

1. The basic assumption implicit in this method of age dating is that the uranium and ruthenium exist in a closed system. But it is not uncommon for uranium deposits to experience uranium remobilization. In such cases, ruthenium and uranium may be expected to undergo chemical separation. The measured uranium-ruthenium age of the primary emplacement would then be too high.

2. Lead loss is a common problem with uranium-lead dating and, even with lead-lead measurements, discrepancies occur because of differences in the chemistry of the lead precursors, e.g., radium and radon. In contrast, fission product ruthenium is produced nearly instantaneously (except for ^{99}Ru which is the daughter of 2×10^5-a ^{99}Tc). Given a relative loss of lead, the uranium-lead method could give ages which are systematically low.

3. The values taken for the spontaneous-fission yields of ^{238}U may be in error. They were taken from two ore samples which may still have a contribution from thermal-neutron-induced fission of ^{235}U, although they were assumed to be representative of nearly pure spontaneous fission [5]. If, in fact, a 5% fission component from ^{235}U remained in these samples, the calculated ages would be ∿ 8% too high. Clearly, in the further application of this method, it will be necessary to better establish the relative and absolute fission yields for spontaneous fission of ^{238}U.

An extreme disparity (such as in the Rabbit Lake sample from DH-I which gave an age of 2.6×10^9 a, in contrast with the 1.1×10^9 a date given for the primary uranium emplacement [8]) could conceivably be explained by ruthenium accretion but seems much more likely to be due to relative loss of uranium. The ore in question contained 7.3% uranium compared to surrounding regions which occasionally exceeded 50% uranium content.

A point which also must be kept in mind is that uranium-lead ages were not determined on the same samples and in precisely the same locations as the uranium-ruthenium ages, and that some of the discrepancies may be real.

Future studies of the uranium-ruthenium technique should be supplemented with isotopic lead data on the same samples. These samples should be taken from well documented regions of Precambrian uranium deposits. Petrographic examinations should complement the isotopic analyses. Agreement in ages via the two techniques would indicate the absence of geochemical alteration; differences could be used to identify the extent of relative losses of uranium, ruthenium, and lead. Taken together, uranium-ruthenium-lead isotope systematics and petrographic results would provide valuable information on the geochemical history of Precambrian uranium ores.

ACKNOWLEDGMENTS

We are grateful for samples from Prof. C. Frondel, Harvard University, Eldorado Nuclear Ltd., Amok Ltée, Gulf Minerals Canada, Ltd., Queensland Mines Ltd., and Pancontinental Mining Ltd.

REFERENCES

[1] RUFFENACH, J.-C., et al., "Analyses isotopiques fines des produits de fisssion et détermination des principaux paramètres des réactions nucléaires", The Oklo Phenomenon (Proc. Symp. Libreville, Gabon, 1975), IAEA, Vienna (1975) 371.

[2] MAECK, W.J., et al., "Analytical results, recommended nuclear constants and suggested correlations for the evaluation of Oklo fission-product data", Ibid., 319.

[3] AHRENS, L.M., TAYLOR, S.R., Spectrochemical Analysis, Addison Wesley, Reading, Mass. (1961) Table 8.

[4] ROTH, E., et al., "Essai de contribution par la géochimie à l'évaluation de l'importance et de la fréquence des phénomènes du type Oklo", The Oklo Phenomenon (Proc. Symp. Libreville, Gabon, 1975), IAEA, Vienna (1975) 489.

[5] MAECK, W.J., et al., IAEA-TC-119/35, these Proceedings.

[6] Evaluated Nuclear Data File, ENDF/B-V, Brookhaven National Laboratory, Upton, New York, in preparation.

[7] RICH, R.A., HOLLAND, H.D., PETERSON, V., Hydrothermal Uranium Deposits, Elsevier Scientific Publishing Co., New York (1977).

[8] HOEVE, J., SIBBALD, T.I.I., "Rabbit Lake uranium deposit", Uranium in Saskatchewan, Geol. Soc. Special Pub. No.3, Regina (1976) 331.

DISCUSSION

SUR LES MEMOIRES IAEA-TC-119/35 ET 32

U. FARINELLI: Dans votre première communication vous avez dit que les analyses du ruthénium dans les échantillons de minerai sont extrêmement difficiles; d'autre part, vous avez montré que l'interprétation n'est pas simple à cause des fissions spontanées de l'uranium-238 et des fissions induites dans l'uranium-235. Estimez-vous toujours que cette méthode est utile en regard des mesures d'appauvrissement?

W.J. MAECK: Oui, je la considère utile. Si l'on tient compte du fait que ces observations résultent de travaux de mise au point, elles me paraissent encourageantes; je suis convaincu qu'il sera possible de surmonter les problèmes au fur et à mesure du développement des méthodes.

U. FARINELLI: Etant donné la grande différence entre les rendements de fission en ruthénium dans l'uranium-238 et l'uranium-235, la composition isotopique du ruthénium dans les échantillons permet la mesure du rapport des fissions induites par les neutrons dans l'uranium-235 aux fissions spontanées dans l'uranium-238 et par suite du coefficient de multiplication effectif. Il me semble que cette procédure constitue une méthode prometteuse pour l'identification de réacteurs naturels subcritiques.

W.J. MAECK: Je vous remercie pour cette intéressante suggestion.

INTERPRETATION DES ANALYSES CHIMIQUES ET ISOTOPIQUES DU RUTHENIUM EFFECTUEES SUR DES ECHANTILLONS D'OKLO ET SUR DES ECHANTILLONS D'ORIGINES GEOLOGIQUES VARIEES

R. HAGEMANN, C. DEVILLERS, T. LECOMTE
Division de chimie,
CEA, Centre d'études nucléaires de Saclay,
Gif-sur-Yvette, France

Résumé–Abstract

INTERPRETATION DES ANALYSES CHIMIQUES ET ISOTOPIQUES DU RUTHENIUM EFFECTUEES SUR DES ECHANTILLONS D'OKLO ET SUR DES ECHANTILLONS D'ORIGINES GEOLOGIQUES VARIEES.

Les compositions isotopiques de ruthénium d'origines terrestres diverses ont été comparées entre elles et à celle du ruthénium extrait d'un échantillon de la météorite de Cañon Diablo. Il n'a pas été possible de détecter d'anomalies isotopiques à la précision des mesures près. Ce résultat indique, dans l'hypothèse faite d'une réhomogénéisation complète du ruthénium dans la croûte terrestre, que moins de 0,05% de l'uranium de la croûte terrestre a participé à des réactions nucléaires du type de celle d'Oklo. L'analyse chimique et isotopique du ruthénium de fission le long du sondage SC 36 de la zone 2 indique une différenciation notable entre le ruthénium et le technétium à l'époque de la réaction nucléaire, et une distribution du ruthénium légèrement plus étroite par comparaison avec celle du néodyme de fission.

INTERPRETATION OF CHEMICAL AND ISOTOPIC ANALYSES OF RUTHENIUM MADE WITH OKLO SAMPLES AND OTHER SAMPLES OF DIFFERENT GEOLOGICAL ORIGIN.

The isotopic compositions of ruthenium of varied terrestrial origin were compared with one another and also with the isotopic composition of ruthenium extracted from a sample from the Cañon Diablo meteorite. It was not possible to detect isotopic anomalies within the accuracy of the measurements. The result indicates, on the assumption of a complete rehomogenization of the ruthenium in the earth's crust, that less than 0.05% of the uranium in the earth's crust participated in nuclear reactions of the Oklo type. Chemical and isotopic analysis of fission ruthenium along the borehole SC 36 of zone 2 shows a marked differentiation between ruthenium and technetium at the time of the nuclear reaction, and a ruthenium distribution that is slightly narrower by comparison with the fission neodymium.

L'intérêt initial porté à l'analyse du ruthénium dans les réacteurs naturels d'Oklo se trouve justifié à plusieurs titres.

En premier lieu c'est un des éléments les plus abondants dans la fission induite de l'uranium et la mesure de sa concentration et de sa composition

isotopique offre une possibilité de confirmer l'évaluation des paramètres nucléaires déduits de l'étude des terres rares. En outre certains de ses isotopes ont des rendements de fission très différents selon le noyau fissile considéré: ^{235}U, ^{238}U, ^{239}Pu; sa composition isotopique permet donc de préciser les proportions de fissions dues à l'uranium-238 et au plutonium-239 [1].

Par ailleurs, le ruthénium-99 n'est pas formé directement par la réaction nucléaire mais il apparaît par décroissance radioactive du technétium-99 de période $2{,}13 \times 10^5$ ans, et les deux isotopes ^{99}Ru et ^{99}Tc conduisent tous les deux par capture neutronique au ^{100}Ru. La mesure du rapport isotopique $^{100}Ru/^{99}Ru$ permet donc d'évaluer à partir de la compétition qui se produit pour ^{99}Tc entre les deux réactions, de décroissance radioactive et de capture neutronique, la durée de la réaction nucléaire [2].

Le ruthénium est de plus un élément très rare dans la croûte terrestre; cette dernière remarque avait amené Roth et al. [3] à le proposer comme un moyen sensible d'estimer la fréquence de phénomènes du type d'Oklo à partir de l'observation éventuelle de variations de sa composition isotopique primordiale par mélange avec du ruthénium de fission. Ce dernier objectif n'a été que partiellement atteint, dans la mesure où seuls quelques minéraux riches en ruthénium ont pu être analysés isotopiquement avec une précision suffisante sans qu'il soit possible de détecter une anomalie isotopique quelconque à la précision des mesures près [4]. Après un bref rappel des résultats acquis lors de cette précédente étude, les résultats des analyses chimiques et isotopiques du ruthénium effectuées sur des échantillons du sondage SC 36 de la zone 2 d'Oklo seront présentés et discutés.

1. COMPOSITIONS ISOTOPIQUES DU RUTHENIUM DE DIVERSES ORIGINES GEOLOGIQUES

La recherche d'anomalies de compositions isotopiques par comparaison entre des ruthénium de diverses origines et en particulier entre le ruthénium météoritique et le ruthénium terrestre a été effectuée en mesurant avec précision les compositions isotopiques de deux échantillons du commerce utilisés comme standards du laboratoire: $RuCl_3$, nH_2O (Engelhard Industries, USA) et $(NH_4)(Ru(H_2O)Cl_5)$ (aquochlororuthénite d'ammonium, Johnson-Matthey, UK), le ruthénium extrait d'un échantillon de platine natif de Nijni-Taghilsk (Oural) contenant environ 1000 ppm de ruthénium, le ruthénium extrait d'un échantillon de laurite de Bornéo contenant 60% de ruthénium, et enfin le ruthénium extrait d'un échantillon de 20 grammes de la météorite de Cañon Diablo contenant 6 ppm de ruthénium.

Le mode opératoire utilisé pour l'extraction et la purification du ruthénium contenu dans ces échantillons ainsi que l'évaluation des phénomènes de discrimination de masse qui se produisent lors de l'analyse isotopique du ruthénium par spectrométrie de masse à thermoïonisation ont été décrits en détail dans une publication antérieure [4].

TABLEAU I. RAPPORTS ISOTOPIQUES MESURES DU RUTHENIUM EXTRAIT D'ECHANTILLONS TERRESTRES ET METEORITIQUES

Tous les rapports isotopiques 104/99 sont normalisés à la valeur 1,4650

Echantillon	96/99	98/99	100/99	101/99	102/99	104/99
Météorite Cañon Diablo	0,4339	0,1463	0,991	1,343	2,476	1,4650
Laurite	0,4361	0,1487	0,989	1,341	2,479	1,4650
Platine natif	0,4316	0,1459	1,000	1,341	2,479	1,4650
Standard du laboratoire	0,4333	0,1463	0,9890	1,3385	2,4786	1,4650
Variation possible des rapports isotopiques si le ruthénium actuel contient 0,6% de ruthénium de fission[a]	−2,4%	−2,1%	−1,3%	−0,1%	−0,4%	

[a] La composition isotopique du ruthénium de fission est supposée celle de l'échantillon KN 50 323; 0,6% est équivalent à une variation de 1% sur l'abondance de l'isotope ^{99}Ru.

Les résultats des analyses isotopiques sont présentés dans le tableau I; ces résultats sont normalisés à la même valeur du rapport 104/99 pris égal à 1,4650.

On constate qu'aucune différence appréciable supérieure à 0,2% ne peut être détectée entre les divers échantillons sur les isotopes majeurs 101 et 102. Pour les isotopes 96, 98 et 100 des interférences très difficiles à éliminer sont responsables des variations observées, celles-ci restent cependant très limitées. Dans le tableau I sont données aussi les variations possibles des rapports isotopiques entraînées par la présence de 0,6% de ruthénium de fission dans le ruthénium terrestre actuel; cette quantité entraîne une variation de 1% de la teneur en ^{99}Ru, variation prise en considération par Roth et al. [3]. On observe que les différences entre les rapports isotopiques normalisés du ruthénium météoritique et des ruthénium terrestres, y compris les standards du laboratoire, sont plus petites que ces valeurs. Ce résultat pourrait indiquer que moins de 0,05% de l'uranium de la croûte terrestre a participé à une réaction nucléaire du type d'Oklo. Nous devons cependant rappeler que l'hypothèse d'une réhomogénéisation totale du ruthénium de fission dans la croûte terrestre peut ne pas être valable et que des variations de compositions isotopiques du ruthénium peuvent être observées localement.

2. TENEURS ET COMPOSITIONS ISOTOPIQUES DU RUTHENIUM LE LONG DU SONDAGE SC 36

2.1. Mode opératoire

a) Mise en solution

Une étude des conditions de dissolution des échantillons de minerai sans perte de ruthénium a permis de retenir deux méthodes de mise en solution.

Les échantillons dont la teneur en uranium dépasse 1% sont simplement dissous par l'action d'un mélange à chaud d'acide chlorhydrique 6 N et d'acide nitrique 1,6 N. Les autres échantillons sont d'abord attaqués par le mélange acide chlorhydrique 6 N, acide nitrique 1,6 N, puis par l'acide sulfurique. La silice est ensuite chassée par action d'acide fluorhydrique et la solution est chauffée jusqu'à formation de fumées blanches.

b) Extraction du ruthénium

Le ruthénium contenu dans la solution d'attaque est ensuite distillé en milieu acide (acide sulfurique, dichromate de potassium) à 108°C, sous forme de tétroxyde qui est recueilli dans de l'acide chlorhydrique 6N.

Pour le dosage chimique du ruthénium par dilution isotopique, le traceur (^{101}Ru) est ajouté à l'échantillon avant l'addition des réactifs d'attaque. La solution de traceur est étalonnée par dilution isotopique avec une solution de référence préparée par pesée précise d'aquochlororuthénite d'ammonium (Johnson-Matthey, de grande pureté chimique), dont la stoechiométrie a été vérifiée. L'échange isotopique du mélange constitué par la solution de référence et le traceur est réalisé selon le mode opératoire décrit ci-dessus.

c) Analyse par spectrométrie de masse

La solution obtenue après distillation est évaporée presque à sec, puis déposée sur un filament de rhénium; la quantité déposée est d'environ 5 μg.

2.2. Résultats et discussion

Les résultats des dosages chimiques du ruthénium dans onze échantillons du sondage SC 36 sont réunis dans le tableau II. Les concentrations, exprimées en ppm dans le minerai, varient de 0,66 à 1000 ppm pour le ruthénium de fission. Il est à remarquer que les trois échantillons de bordure SC 36 1905, 2559 et 2560 ne contiennent pratiquement que du ruthénium naturel, à une concentration inattendue, très supérieure à celle estimée pour la croûte terrestre (1 ppb).

TABLEAU II. CONCENTRATIONS EN RUTHENIUM LE LONG DU SONDAGE SC 36

Echantillon	Quantité de ruthénium en ppm poids dans le minerai	Pourcentage d'uranium dans le minerai
SC 36 1892	0,66	0,28
1402	12,7	2,73
1408	385	23,3
1410	1000	57,8
1413	604	40
1418	825	57,9
1425	5	2
1901	1	9,5
1905	1,5[a]	0,7
2559	0,024[a]	≅ 0,18
2560	0,006[a]	≅ 0,03

[a] La composition isotopique du ruthénium dans ces trois échantillons est pratiquement celle du ruthénium naturel.

Les compositions isotopiques du ruthénium de huit échantillons du sondage SC 36 sont présentées dans le tableau III et comparées à celles de deux échantillons du sondage KN 50 et à la composition isotopique calculée du ruthénium de fission. On constate, même pour l'échantillon 1901 voisin de 1905, que ces compositions correspondent bien à celle du ruthénium de fission, dont la composition isotopique varie légèrement avec les pourcentages des fissions dues à ^{238}U et ^{239}Pu.

Pour l'échantillon SC 36 1425 on observe ainsi que les rapports (99 + 100)/104 et (101 + 102)/104 correspondent pratiquement aux rapports attendus pour 99% de fissions dues à ^{235}U, ce qui semble indiquer, d'une part que le spectre neutronique était très bien thermalisé à ce niveau, d'autre part qu'aucune différenciation notable ne s'est produite pendant la durée de la réaction nucléaire entre le ruthénium et le technétium de fission. Par contre, pour les autres échantillons les teneurs en ^{99}Ru sont très variables; ainsi le rapport (99 + 100)/104 varie de 2,16 à 3,67. Seul l'échantillon SC 36 1892 présente un excès en ^{99}Ru qu'on peut estimer à 10 à 20% environ. Les échantillons suivants présentent un défaut qui augmente assez régulièrement pour atteindre près de 30% au niveau du SC 36 1418. Les deux échantillons SC 36 1425 et 1901, situés en bordure, côté mur, présentent une composition isotopique normale.

TABLEAU III. COMPOSITIONS ISOTOPIQUES MESUREES DU RUTHENIUM LE LONG DU SONDAGE SC 36

Echantillon	99	100	101	102	104	(99 + 100)/104	(101 + 102)/104
Ruthénium naturel[a]	12,74	12,60	17,05	31,57	18,66	1,358	2,606
Ru de fission (94% ^{235}U + 3% ^{238}U + 3% ^{239}Pu)	34,80	–	29,0	24,55	11,65	2,99	4,60
100% ^{235}U	35,65	–	29,33	24,42	10,60	3,36	5,07
KN 50 323	34,35	0,82	28,56	24,63	11,64	3,02	4,57
3548	31,35	0,95	29,48	25,87	12,35	2,62	4,48
SC 36 1892	39,18	0,29	26,69	23,09	10,75	3,67	4,63
1408	32,77	0,46	29,65	25,37	11,75	2,83	4,68
1410	29,25	0,59	30,63	26,76	12,76	2,34	4,50
1413	29,59	0,86	30,33	26,57	12,66	2,40	4,49
1418	27,70	0,82	30,97	27,33	13,18	2,16	4,42
1423	29,51	0,99	30,08	26,64	12,78	2,39	4,44
1425	35,43	0,11	29,28	24,37	10,81	3,29	4,96
1901	34,4	0,8	28,6	24,6	11,6	3,03	4,58

[a] Le ruthénium naturel possède en outre deux isotopes, 96 et 98, dont les teneurs sont respectivement 5,52% et 1,86%.

TABLEAU IV. COMPARAISON DES QUANTITES DE RUTHENIUM ET DE NEODYME DE FISSION LE LONG DU SONDAGE SC 36

Echantillon	Ru/U X 10^6	Nd/U X 10^6	Ru/Nd mesuré	$\frac{(Ru/Nd)\ mesuré}{(Ru/Nd)\ calculé}$
SC 36 1892	560	3265	0,172	0,20
1402	1100	3935	0,280	0,32
1408	3922	3917	1,00	1,16
1410	4120	5287	0,780	0,90
1413	3580	6769	0,529	0,61
1418	3360	4809	0,699	0,81
1425	590	6275	0,094	0,11
1901	25	936	0,027	0,03

Comme le montre une étude détaillée des terres rares le long du sondage SC 36 [5] le néodyme de fission est resté particulièrement bien lié à l'uranium dans le cœur de la zone de réaction puisqu'on le retrouve totalement à mieux que 5% près dans la zone située entre les échantillons 1408 et 1418. Si l'on admet cette stabilité il est intéressant de comparer les quantités relatives de ruthénium et de néodyme de fission. Cette comparaison est faite dans le tableau IV. Dans la dernière colonne sont portés les rapports Ru/Nd mesurés normalisés à la valeur calculée de ce rapport. Sous une autre forme, la comparaison est faite sur la figure 1, sur laquelle sont portées les teneurs mesurées en néodyme et en ruthénium de fission le long du sondage SC 36, ainsi que les quantités de ^{99}Ru. Le tableau IV et la figure 1 font apparaître un léger excès de ruthénium dans l'échantillon 1408 et un défaut variant de 10 à 40% dans les échantillons 1410, 1413 et 1418. Pour les échantillons de bordure les déficits apparents en ruthénium sont très grands mais il faut considérer que les concentrations sont ici extrêmement faibles et que les très petites quantités de néodyme de fission mesurées dans les échantillons 1892 et 1901 peuvent facilement être attribuées à des migrations; par contre pour l'échantillon 1425 cet excès de néodyme ne saurait dépasser un facteur 1,5 à 2.

Le fait de trouver des valeurs très petites des rapports Ru/Nd pour les deux échantillons extrêmes 1892 et 1901 n'est donc pas directement attribuable au départ du ruthénium mais plutôt probablement à un excès de néodyme. Un excès possible de néodyme d'un facteur 2 au niveau de l'échantillon 1425 montre cependant qu'au moins 80% du ruthénium de fission a quitté le minerai à ce niveau. La composition isotopique normale en ^{99}Ru du ruthénium de cet échantillon semble indiquer par ailleurs que cette migration a eu lieu après la décroissance du ^{99}Tc en ^{99}Ru, à la différence de tous les autres échantillons situés au-dessus dans le sondage.

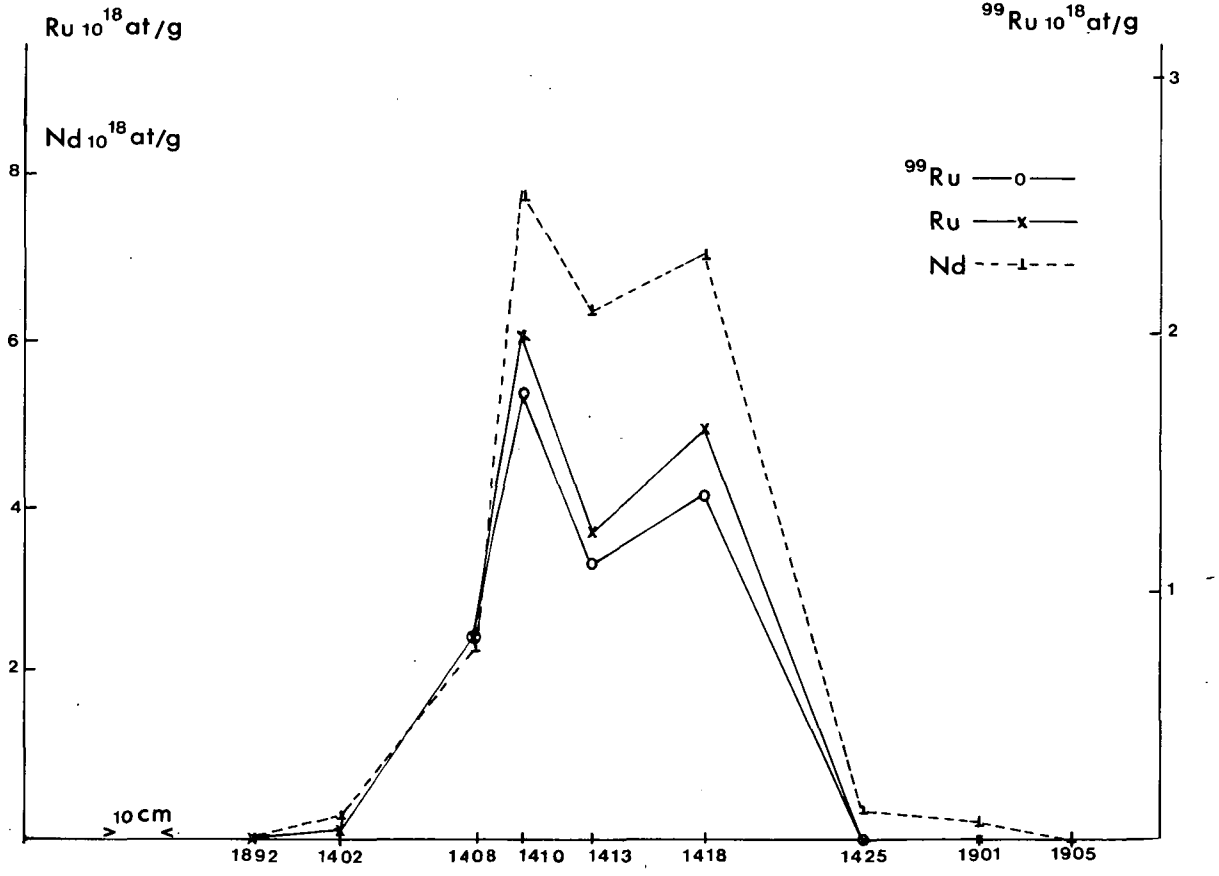


FIG.1. Concentrations en néodyme et en ruthénium de fission le long du sondage SC 36.

3. CONCLUSION

La recherche de variations de compositions isotopiques entre des ruthénium d'origines terrestres diverses et surtout entre le ruthénium primordial météoritique et le ruthénium terrestre n'a pas permis de détecter d'anomalies appréciables qui auraient été l'indice de la participation d'une proportion importante (supérieure à 0,05%), de l'uranium de la croûte terrestre à des phénomènes nucléaires du type d'Oklo.

La découverte d'anomalies à une échelle locale plus petite est cependant encore possible si l'hypothèse d'une complète réhomogénéisation du ruthénium de fission dans la croûte terrestre n'est pas valable.

L'étude détaillée des teneurs et des compositions isotopiques du ruthénium le long du sondage SC 36 montre clairement que les comportements du ruthénium et du néodyme de fission dans le minerai ont été assez voisins. Des variations locales de teneurs importantes sont cependant observées, principalement dans les échantillons des bordures. L'examen des compositions isotopiques montre par ailleurs un comportement différent du ruthénium et du technétium de fission à l'époque de la réaction nucléaire qui se traduit maintenant par des teneurs variables en ^{99}Ru aussi bien en excès qu'en défaut par rapport aux valeurs calculées à partir des rendements de fission.

Si on compare les quantités de ruthénium et de néodyme présentes on constate que globalement la quantité de ruthénium de fission correspond assez bien à la quantité attendue; en première approximation il semble donc que le ruthénium est resté aussi bien fixé dans la zone de réaction que le néodyme mais avec une distribution différente. Il a toujours été admis jusqu'à maintenant que le néodyme et l'uranium sont restés très bien en place. Si on retient donc l'hypothèse, pour expliquer les anomalies observées sur les rapports Ru/Nd, que le ruthénium et le technétium ont quitté l'uranium, il est difficile d'expliquer l'absence très nette de ruthénium dans les échantillons de bordures aussi bien côté toit (1892) que côté mur (1905, 2559, 2560). La distribution du ruthénium de fission apparaît ainsi plus étroite par rapport à celle du néodyme. Cette observation pourrait s'expliquer par une très grande stabilité du ruthénium dans le minerai et par contre une certaine mobilité du néodyme conduisant à un léger étalement de ce dernier élément.

La concentration élevée en ruthénium naturel (1 ppm) dans un échantillon de bordure (1905) doit aussi être notée. Ce résultat montre que la répartition du ruthénium dans la croûte terrestre peut s'écarter de plusieurs ordres de grandeur de la teneur moyenne admise.

REFERENCES

[1] RUFFENACH, J.-C., MENES, J., LUCAS, Monique, HAGEMANN, R., NIEF, G., «Analyses isotopiques fines des produits de fission et détermination des principaux paramètres des réactions nucléaires», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 371.

[2] HAGEMANN, R., DEVILLERS, C., LUCAS, Monique, LECOMTE, T., RUFFENACH, J.-C., «Estimation de la durée de la réaction – Limitations imposées par les données neutroniques», Ibid., p. 415.

[3] ROTH, E., LUCAS, Monique, LECOMTE, T., DEVILLERS, C., HAGEMANN, R., «Essai de contribution par la géochimie à l'évaluation de l'importance et de la fréquence des phénomènes du type Oklo», Ibid. p. 489.

[4] DEVILLERS, C., LECOMTE, T., LUCAS, M., HAGEMANN, R., 7^{e} Conf. Int. de spectrométrie de masse, Florence, 30 août – 3 septembre 1976, à paraître.

[5] RUFFENACH, J.C., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/16.

DISCUSSION

V.A. PCHELKIN: Y a-t-il des différences entre la composition isotopique de l'échantillon de Nijni Taghilsk (Oural) et celle des échantillons d'autres régions que vous avez étudiés?

R. HAGEMANN: Dans les limites des incertitudes expérimentales, il n'y a pas de différence notable entre l'échantillon de Nijni Taghilsk et les autres échantillons analysés.

EVALUATION DES TEMPERATURES NEUTRONIQUES DANS LES ZONES DE REACTION D'OKLO PAR L'ETUDE DES RAPPORTS ISOTOPIQUES $^{176}Lu/^{175}Lu$ ET $^{156}Gd/^{155}Gd$

P. HOLLIGER, C. DEVILLERS, G. RETALI
Division de chimie,
CEA, Centre d'études nucléaires de Saclay,
Gif-sur-Yvette, France

Résumé–Abstract

EVALUATION DES TEMPERATURES NEUTRONIQUES DANS LES ZONES DE REACTION D'OKLO PAR L'ETUDE DES RAPPORTS ISOTOPIQUES $^{176}Lu/^{175}Lu$ ET $^{156}Gd/^{155}Gd$.

Certains isotopes à sections de capture particulièrement sensibles à la température, présentant des résonances dans le domaine thermique, sont susceptibles de fournir une estimation de la température d'équilibre entre les neutrons générés par la fission et l'eau jouant le rôle de modérateur. Le lutétium-176 et le gadolinium-155 ont principalement retenu l'attention. Le calcul théorique nécessite de faire quelques approximations sur le spectre de neutrons dans un domaine proche de la thermalisation. Un modèle consiste à assimiler le spectre à un spectre de Maxwell auquel s'ajoute une branche asymptotique pour les énergies supérieures à quelques kt; cette asymptote rend compte des corrections sur le spectre purement Maxwellien (contribution banale) et de la contribution épithermique. Ce modèle est assimilable à celui d'un gaz lourd représentant convenablement le modérateur à eau légère; les sections efficaces effectives utilisées sont définies au sens de Westcott par $\hat{\sigma} = \sigma_0 (g + rs)$. La détermination des paramètres nucléaires est faite à partir des couples d'isotopes (^{143}Nd-^{144}Nd) et (^{147}Sm-^{148}Sm). Les sections efficaces effectives adoptées sont celles déduites des irradiations Triton. Les échantillons choisis doivent présenter des fluences inférieures à un certain seuil au-delà duquel les nucléides absorbeurs disparaissent par capture neutronique: la fluence $0{,}23 \times 10^{21}$ n/cm^2 de l'échantillon SC 52 1472 (zone de réaction 3) semble convenir parfaitement pour la détermination de la température des neutrons; à la valeur 0,0107 ± 0,0001 du rapport isotopique $^{176}Lu/^{175}Lu$ correspond une température de 280°C ± 10°C sans contamination postérieure en lutétium naturel (400°C pour une contamination de 10%).

EVALUATION OF THE NEUTRON TEMPERATURES IN THE OKLO REACTION ZONES, BASED ON A STUDY OF $^{176}Lu/^{175}Lu$ AND $^{156}Gd/^{155}Gd$ ISOTOPE RATIOS.

Certain isotopes having particularly temperature-sensitive capture cross-sections with resonance in the thermal range can be used for estimating the equilibrium temperature between the neutrons generated by fission and the water acting as moderator. In this case the authors have chosen to work with lutetium-176 and gadolinium-155. For the theoretical calculation it is necessary to perform a number of approximations of the neutron spectrum in a range close to thermalization. One model consists in comparing the spectrum with a Maxwell spectrum, to which an asymptotic branch is added for the energies higher than a few kt; this asymptote takes into account corrections to the purely Maxwellian spectrum (ordinary contribution) as

well as the epithermal contribution. This model is comparable to that of a heavy gas which corresponds suitably to the light-water moderator; the effective cross-sections used are defined in Westcott's terms, i.e. by $\hat{\sigma} = \sigma_0(g + rs)$. The nuclear parameters are determined on the basis of the isotope pairs (^{143}Nd-^{144}Nd) and (^{147}Sm-^{148}Sm). The effective cross-sections used were deduced from Triton irradiations. The samples chosen must have fluences below a certain threshold beyond which the absorber nuclides disappear due to neutron capture. The fluence 0.23×10^{21} n/cm^2 of the sample SC 52 1472 (reaction zone No.3) seems to be perfect for determining neutron temperature; a temperature of 280°C ± 10°C corresponds to a ^{176}Lu/^{175}Lu isotope ratio of 0.0107 ± 0.0001 without subsequent contamination with natural lutetium (400°C for 10% contamination).

La température atteinte pendant la réaction nucléaire dans les zones de réaction est un paramètre important pour définir les conditions de fonctionnement des réacteurs; d'autre part, son influence est capitale sur la cinétique des processus d'altération des minéraux. La température atteinte permet aussi de fournir des précisions sur des conditions compatibles de modération et d'enfouissement. L'étude d'une méthode de détermination de la température basée sur l'interprétation de certains rapports isotopiques de terres rares à partir d'un modèle neutronique a été entreprise. Sa validité repose sur les autres travaux effectués qui ont permis de bien connaître les paramètres nucléaires fondamentaux (fluence, indice de spectre, etc.) et surtout de démontrer la stabilité remarquable des terres rares associées à l'uranium.

1. ECHANTILLONS ETUDIES

Les échantillons étudiés sont situés dans des zones de réaction de caractéristiques bien distinctes: zone 2 pour les échantillons des sondages KN 50 et SC 36, zone 3 pour l'échantillon 1472 du sondage SC 52. Le choix particulier de l'échantillon SC 52 1472 pour la détermination de la température est justifié par les conditions suivantes:

– La teneur en uranium et l'appauvrissement en ^{235}U sont sensiblement constants à 20 cm de part et d'autre de l'échantillon (fig. 1). (Les mesures de teneur et appauvrissement en ^{235}U sont reportés dans le tableau I.) La remarquable homogénéité du minerai dans cette portion du sondage SC 52 (le plus riche de la zone 3) implique que d'éventuelles migrations des terres rares sur quelques dizaines de centimètres modifient très peu leur composition isotopique.

– La fluence suffisamment faible laisse apparaître encore les isotopes à section de capture élevée tels que ^{155}Gd, ^{167}Er, ^{168}Yb, ^{176}Lu.

– L'indice de spectre voisin de 0,1 indique une contribution faible des neutrons épithermiques; les neutrons semblent donc relativement bien thermalisés. L'échantillon KN 50 321, dont la matrice minéralogique a fait l'objet d'études

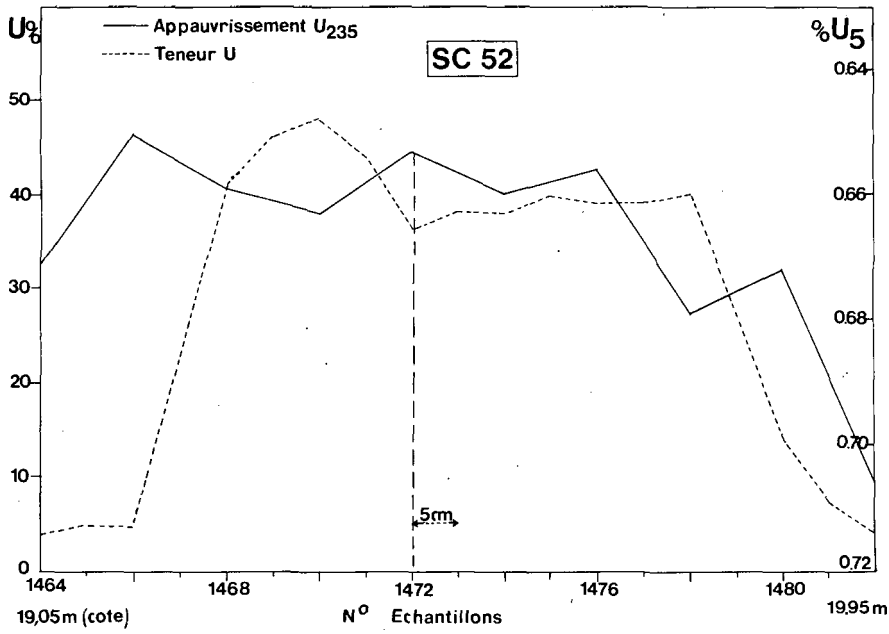


FIG.1. Teneurs et appauvrissements en uranium (sondage SC 52).

TABLEAU I. RAPPORT ISOTOPIQUE $^{235}U/^{238}U$, APPAUVRISSEMENT ET TENEUR PONDERALE EN POURCENTAGE PAR RAPPORT AU MINERAI SEC

Échantillon	$^{235}U/^{238}U$	Appauvrissement	U%
KN 50 321	0,00602	0,830	31
SC 36 1901	0,00725	1	9
SC 52 1472	0,00664	0,917	32

microscopiques détaillées [1], a été analysé par Loubet et Allegre [2]. La fluence déduite des compositions isotopiques des néodyme, samarium et dysprosium est voisine de $0,62 \times 10^{21}$ n/cm^2, l'indice de spectre étant égal à 0,1.

L'échantillon SC 36 1901 est constitué presque exclusivement d'éléments naturels irradiés. Les compositions isotopiques des gadolinium et samarium ont

été déterminées par Ruffenach [3]. Les pourcentages des isotopes ^{155}Gd, ^{157}Gd et ^{149}Sm sont connus avec précision compte tenu de la faible irradiation subie par l'échantillon.

2. TECHNIQUE ANALYTIQUE

La séparation chimique des différentes terres rares entre elles s'avère indispensable en raison des interférences de masses qui rendent les résultats isotopiques ininterprétables. A titre d'exemple, le rapport des deux seuls isotopes du lutétium: $^{176}Lu/^{175}Lu$ est perturbé par l'isotope ^{176}Yb, l'oxyde de gadolinium $^{160}Gd\ ^{16}O$ et le sel de baryum $^{138}Ba\ ^{137}Cl$. La méthode chimique de séparation, basée sur les échanges d'ions sur résine cationique, est inspirée des travaux d'Eugster et al. [4] sur le gadolinium.

La séparation des autres terres rares a été mise au point au laboratoire à l'aide de traceurs radioactifs émetteurs γ [5]. Après une attaque complète de l'échantillon en poudre (50–100 mg) par un mélange HF-HNO_3 à 120°C, une double précipitation ammoniacale à 70°C élimine les alcalins. La séparation globale des terres rares s'effectue par élution sur résine cationique (Dowex 50 W×8, 100–200 mesh) avec HCl 4N; la séparation fine des terres rares entre elles est réalisée sur résine cationique AG 50 W×4. L'éluant choisi est l'acide α-hydroxy-isobutyrique: 0,2N à pH 4,10 pour les terres situées entre le lanthane et le gadolinium, 0,1N à pH 4,00 pour celles situées entre le dysprosium et le lutétium. Les blancs sont inférieurs à 0,2 ng pour les terres légères et à 0,05 ng pour le lutétium. Le baryum est retenu au sommet de la colonne lors de la deuxième séparation.

3. RESULTATS ET DISCUSSION

3.1. Evaluation des caractéristiques neutroniques

La fluence et l'indice de spectre de l'échantillon 1472 ont été déterminés à partir des compositions isotopiques des néodyme et samarium (tableau II). Les sections de capture utilisées ont été définies par Lucas et al. [6]. La contamination en terres rares naturelles postérieure à la réaction apparaît négligeable. Ainsi, le dysprosium irradié par des neutrons de fluence $0{,}23 \times 10^{21}$ n/cm^2 et d'indice de spectre 0,13 – valeurs déduites des couples (^{143}Nd-^{144}Nd) et (^{147}Sm-^{148}Sm) – présente une contamination maximale éventuelle postérieure à la réaction inférieure à 12% (tableau III).

En raison des incertitudes sur les sections de capture, nous considérerons que le groupe des terres rares légères est resté stable durant et après la réaction nucléaire.

TABLEAU II. COMPOSITION ISOTOPIQUE DES TERRES RARES LEGERES (EN ATOMES POUR CENT)
Echantillon SC 52 1472

Nd-142	5;76 ± 0,02	Sm-144	0,53 ± 0,005
143	24,33 ± 0,04	147	51,55 ± 0,06
144	26,84 ± 0,04	148	2,73 ± 0,01
145	16,57 ± 0,03	149	1,32 ± 0,005
146	15,15 ± 0,03	150	25,36 ± 0,03
148	7,62 ± 0,02	152	$12{,}94 \pm 0{,}01_5$
150	$3{,}73 \pm 0{,}01_5$	154	5,57 ± 0,01
Eu-151	48,69 ± 0,04	Gd-152	8,55 ± 0,06
153	51,31 ± 0,04	154	3,08 ± 0,05
		155	1,62 ± 0,04
Dy-160	2,8 ± 0,05	156	32,89 ± 0,09
161	18,8 ± 0,2	157	0,97 ± 0,02
162	28,7 ± 0,3	158	34,26 ± 0,09
163	28,9 ± 0,3	160	18,63 ± 0,07
164	20,8 ± 0,2		

TABLEAU III. TEST DE CONTAMINATION SUR LE DYSPROSIUM A PARTIR DE LA FLUENCE DEDUITE DU NEODYME ET DU SAMARIUM
Echantillon SC 52 1472

	160/161	162/161	163/161	164/161
Dysprosium naturel	0,123	1,342	1,311	1,479
Dysprosium naturel irradié $\tau = 0{,}23 \times 10^{21}$ n/cm^2 r = 0,13	0,149	1,567	1,534	1,092
Dysprosium mesuré	0,149	1,527	1,537	1,106
Contamination maximale par Dy naturel (%)	0	12	0	4

TABLEAU IV. TENEURS PONDERALES DES TERRES RARES
(ppm poids par rapport au minerai)
Echantillon SC 52 1472

	Total/minerai	Avant réaction	Avant réaction/Nd	Avant réaction/chondrites
Nd	308 ± 6	64,1 ± 1,5	1	111
Sm	51,5 ± 1	8,8 ± 0,2	0,138	42
Eu	6,0 ± 0,2	0,9 ± 0,1	0,014	12
Gd	7,2 ± 0,2	6,1 ± 0,2	0,095	23,5
Dy	5,90 ± 0,1	5,90	0,092	19
Er	2,70 ± 0,05	2,70	0,042	13
Yb	2,15 ± 0,05	2,15	0,034	11
Lu	0,30 ± 0,01	0,30	0,005	9,5

3.2. Pattern des terres rares

Les concentrations des terres rares avant la réaction et leur normalisation par rapport aux chondrites sont reportées dans le tableau IV. La figure 2 illustrant ces résultats définit un pattern granitique des terres rares compte tenu du fractionnement important observé pour les terres légères. La normalisation par rapport aux sédiments fait apparaître une différenciation qui augmente avec le numéro atomique. Cette observation, qui semble générale pour les échantillons des zones minéralisées, peut être liée aux coefficients de partage des terres rares entre la minéralisation de l'uranium et la solution de dépôt. L'allure de la courbe permet de déduire que les contaminations en terres lourdes ont été, elles aussi, faibles en raison de la répartition continue des différents éléments. Les compositions isotopiques des erbium, ytterbium et lutétium mesurées sont donc supposées contemporaines de la réaction nucléaire.

3.3. Spectre des neutrons en énergie

D'autres tests de contamination identiques à celui du dysprosium ont été effectués sur les isotopes ^{168}Yb et ^{170}Yb des échantillons SC 52 1472 (contamination maximale 14%) et KN 50 321 (contamination maximale 25%).

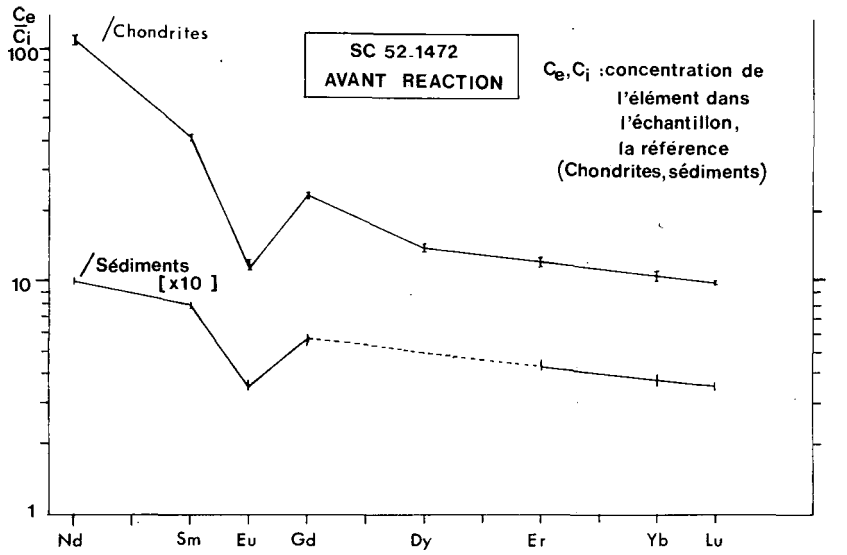


FIG.2. Pattern des terres rares de l'échantillon SC 52 1472. Normalisation des concentrations par rapport aux chondrites et aux sédiments précambriens.

En partant de l'hypothèse d'une contamination faible sur l'erbium (10%) compte tenu des tests effectués sur des éléments de numéros atomiques situés de part et d'autre de celui-ci, la section de capture de l'erbium-167 est calculée à partir des rapports isotopiques mesurés. Le tableau V fait apparaître une cohésion parfaite des résultats pour une section de capture de l'erbium-167 égale à 1500 barns. Le calcul par la formule simplifiée d'une section typiquement en 1/v : $\hat{\sigma} = \sigma_0 + rI$ fournit comme valeur 1050 barns (σ_0 est la section efficace à 2200 m/s, r l'indice de spectre obtenu par les mesures isotopiques des Nd et Sm, I l'intégrale de résonance tenant compte des absorptions des neutrons de hautes énergies). Si l'on applique une formule plus adéquate du type $\sigma_0(g + rs)$ pour des isotopes ayant des résonances proches du domaine thermique (pic de l'ordre de 10 000 barns à 0,5 eV pour ^{167}Er), une contribution de neutrons d'énergies plus élevées est observée ($g + rs = 2{,}24$ pour $\hat{\sigma} = 1500$ barns). (Pour la définition de g et s voir paragraphe 3.4 ci-après.)

Cette approche du spectre neutronique met l'accent sur un décalage vers des énergies plus élevées, lié à la température.

TABLEAU V. TEST DE CONTAMINATION SUR L'YTTERBIUM – AJUSTEMENT DES RAPPORTS ISOTOPIQUES THÉORIQUES EN ERBIUM
$\hat{\sigma}_{Er\text{-}167}$ = 1500 barns, contamination en Er nat. 10%

	Naturel	Naturel irradié théorique $\tau = 0{,}23 \times 10^{21}$ n/cm^2	Mesuré	Calculé (contamination estimée)	
$^{168}Yb/^{174}Yb$	0,00424	0,00108	$0{,}0015_1$	0,00152	(14%)
$^{170}Yb/^{174}Yb$	0,0982	0,129	$0{,}126_1$	0,1253	(12%)
$^{167}Er/^{166}Er$	0,686	0,492	0,510	0,511	(10%)
$^{168}Er/^{166}Er$	0,810	0,979	0,950	0,952	(10%)
$^{167}Er/^{168}Er$	0,847	0,505	0,537	0,539	(10%)

3.4. Température des neutrons déduite du rapport $^{176}Lu/^{175}Lu$

Le système Yb-Lu-Hf (fig.3) conduit à un ensemble d'équations différentielles résolu à l'aide d'un calculateur digital. Le lutétium-176g est produit par capture neutronique sur ^{175}Lu à raison de 29,2% de la réaction (n, γ); le lutétium-175 produit en majorité (70,8%) du lutétium-176m décroissant immédiatement en hafnium-176 par radioactivité β^-. L'équation de variation du lutétium-176 disparaissant simultanément par capture neutronique et radioactivité β^- (constante de désintégration $\lambda = 0{,}2 \times 10^{-10}$ s^{-1}) s'écrit:

$$\frac{d^{176}Lu}{dt} = 0{,}292\ \hat{\sigma}_{Lu\text{-}175}\ ^{175}Lu\ \Phi - \hat{\sigma}_{Lu\text{-}176}\ ^{176}Lu\ \Phi - \lambda_{Lu\text{-}176}$$

D'après l'hypothèse d'une contamination postérieure en lutétium nulle, les valeurs mesurées du rapport $^{176}Lu/^{175}Lu$ sont ajustées par un calcul itératif dans lequel varie principalement la section efficace effective du lutétium-176 du type $\hat{\sigma} = \sigma_0(g + rs)$. Le facteur g représente l'écart par rapport à une loi de variation en 1/v; s rend compte de la contribution épithermique; ces deux paramètres dépendent de la température des neutrons d'autant plus étroitement que les isotopes présentent des énergies résonantes dans le domaine thermique.

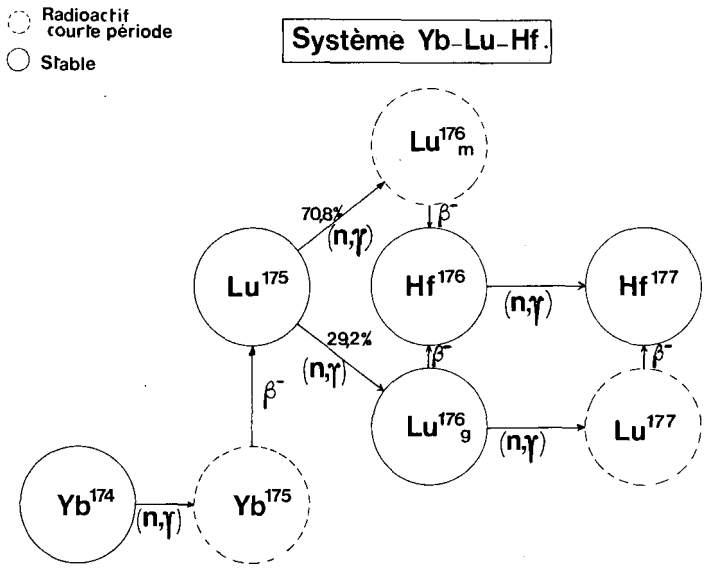


FIG.3. Réactions utilisées dans le système Yb-Lu-Hf.

La figure 4 indique les variations de g avec la température. On constate une augmentation rapide avec la température pour ^{176}Lu tandis qu'une diminution lente est observée pour ^{155}Gd et ^{157}Gd; pour ^{149}Sm g varie peu entre 200 et 600°C; pour ^{143}Nd il diminue lentement. Ces valeurs calculées au laboratoire sont en bon accord avec celles de Westcott [7]. Le tableau VI contient les rapports isotopiques en lutétium de chaque échantillon et la section efficace effective ajustée de l'isotope ^{176}Lu sans contamination en lutétium naturel postérieure à la réaction.

La température des neutrons est déduite de la figure 5 paramétrée en indice de spectre.

D'une manière identique le rapport ^{156}Gd/^{155}Gd est employé comme détecteur de température (tableau VII).

La section de capture du lutétium-175 est en 1/v dans le domaine thermique. Nous appliquerons l'approximation $\hat{\sigma} = \sigma_0 + rI$. Pour l'échantillon SC 52 1472 cette section est égale à 132 barns. Si l'on fait intervenir davantage les neutrons d'énergies plus élevées, $\hat{\sigma}_{Lu\text{-}175}$ augmente, ce qui a pour effet d'augmenter le rapport ^{176}Lu/^{175}Lu. Il s'ensuit que $\hat{\sigma}_{Lu\text{-}176}$ doit être plus élevé pour rétablir le rapport à la valeur mesurée; une contamination en lutétium naturel postérieure à

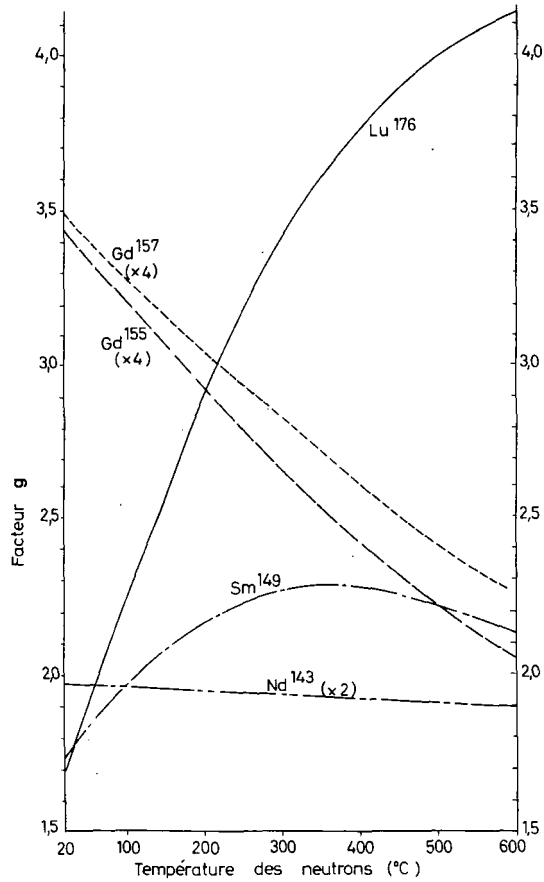


FIG. 4. Variations du facteur g avec la température pour les isotopes ^{143}Nd, ^{149}Sm, ^{155}Gd, ^{157}Gd, ^{176}Lu.

TABLEAU VI. TEMPERATURE MOYENNE DES NEUTRONS CALCULEE A PARTIR DU RAPPORT $^{176}Lu/^{175}Lu$ (SANS CONTAMINATION)

Echantillon	$^{176}Lu/^{175}Lu$	r	τ (X 10^{21} n/cm^2)	$\hat{\sigma}$ ^{176}Lu(b)	T neutrons (°C)
KN 50 321	0,0054 ± 0,0003	0,1	0,62	6200 ± 100	260 ± 20
SC 36 1901	0,0254 ± 0,0003	0,01	0,0061	7000 ± 550	250 ± 40
SC 52 1472	0,0107 ± 0,0001$_5$	0,13	0,23	6400 ± 50	280 ± 10

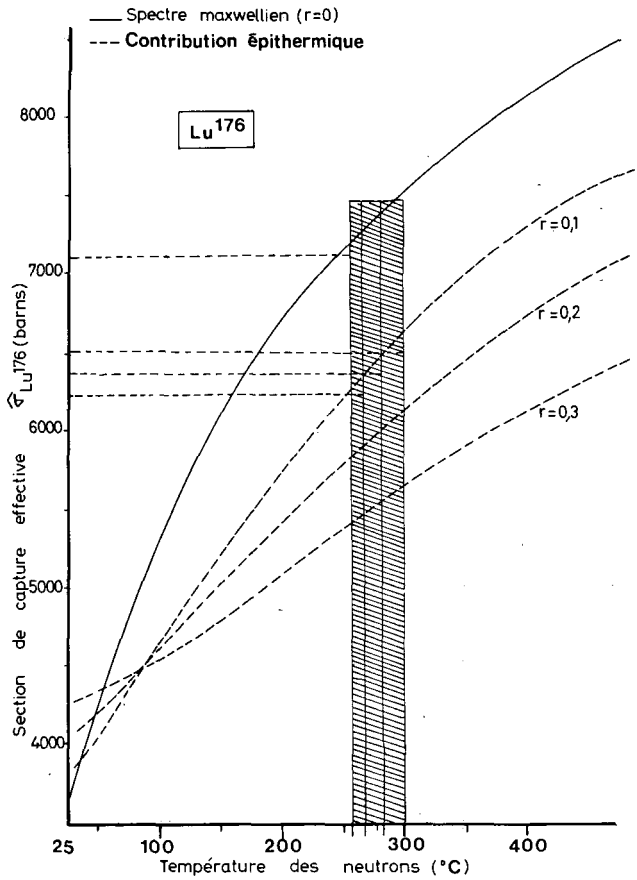


FIG.5. Variations de la section efficace effective σ̂ de l'isotope ^{176}Lu en fonction de la température des neutrons et de l'indice de spectre r.

TABLEAU VII. TEMPERATURE MOYENNE DES NEUTRONS CALCULEE A PARTIR DU RAPPORT $^{156}Gd/^{155}Gd$ (SANS CONTAMINATION)

Echantillon	$^{156}Gd/^{155}Gd$	σ̂ ^{155}Gd (b)	T neutrons (°C)
SC 36 1901	2,00 ± 0,02	42 000 ± 500	380 ± 20
SC 52 1472	44,5 ± 0,3	32 500 ± 500	450 ± 20
Naturel	1,39		

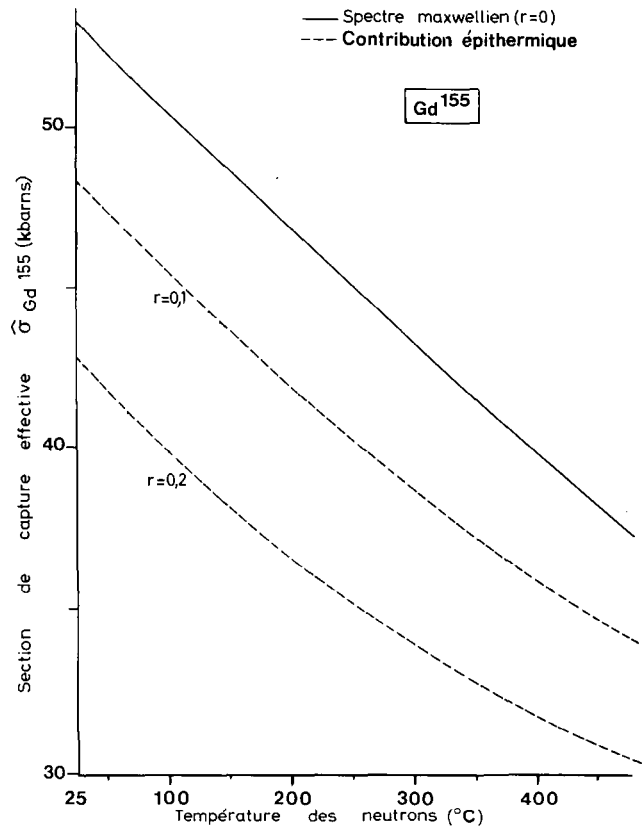


FIG. 6. Variations de la section efficace effective $\hat{\sigma}$ de l'isotope ^{155}Gd en fonction de la température des neutrons et de l'indice de spectre r.

la réaction a le même effet. Ces incertitudes minorent la température moyenne des neutrons, qui peut atteindre 400°C pour une contamination postérieure en lutétium naturel de 10% (la section efficace de ^{176}Lu est alors de 7000 barns). Cette valeur coïncide avec celle issue du gadolinium sans contamination où à $\hat{\sigma}_{Gd\text{-}155} = 32\,500$ barns correspond une température de 450°C environ (fig. 6).

3.5. Comparaison avec les températures déterminées par d'autres méthodes

Dans la limite des approximations utilisées pour caractériser le spectre des neutrons, la température déterminée à partir de la mesure de rapports isotopiques

n'est pas incompatible avec celles déterminées par d'autres méthodes (inclusions fluides, structure des argiles, traces de fission). Les données des inclusions fluides [8] fournissent à cette température une pression correspondant à un enfouissement de plusieurs milliers de mètres; à cette pression, sous cette température (proche de la température critique), l'eau salée considérée comme le modérateur de la réaction est dans un état condensé: son origine, son élimination, constituent des problèmes difficiles à résoudre, si l'on exclut que le réacteur a chauffé.

4. CONCLUSION

La température mesurée à partir des sections de capture neutronique représente une température intégrée sur le temps n'excluant pas des valeurs plus fortes ou plus faibles au cours de la réaction nucléaire. Si la température mesurée est due à la chaleur dégagée par la réaction nucléaire seule, une régulation à 400°C environ par vaporisation de l'eau peut être envisagée. La tension de vapeur saturante correspondante, proportionnelle à $(T/100)^4$, impose aux réacteurs un enfouissement de quelques centaines de mètres. Compte tenu de la température de surface (peut-être 70°C lors du Précambrien), du gradient géothermique (40°C/km), un enfouissement minimum de 300 mètres (pression correspondante: 80 bars) est nécessaire pour placer l'eau dans un état d'équilibre liquide-vapeur sous 400°C.

REFERENCES

[1] GEFFROY, J., LISSILOUR, J., Bull. Inf. Sci. Tech. (Paris) n° 193 (1974) 51–58.
[2] LOUBET, M., ALLEGRE, C.J., Geochim. Cosmochim. Acta **41** (1977) 1539–48.
[3] RUFFENACH, J.C., Communication personnelle.
[4] EUGSTER, O., TERA, F., BURNETT, D.S., WASSERBURG, G.J., J. Geophys. Res. **75** (1970) 2753.
[5] RUFFENACH, J.C., LUCAS, M., HAGEMANN, R., 32^{e} Congrès du Groupement pour l'avancement des méthodes spectrographiques (GAMS), Paris, décembre 1974.
[6] LUCAS, Monique, et al., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/14.
[7] WESTCOTT, C.H., AECL-CRRP-960 (nov. 1960).
[8] OPENSHAW, R., et al., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/9.

PHYSIQUE DES REACTEURS
(Séance IV, deuxième partie)

REACTOR PHYSICS
(Session IV, second part)

Président (Chairman): V.A. PCHELKIN

ETUDES NEUTRONIQUES COMPLEMENTAIRES SUR LE PHENOMENE D'OKLO

R. NAUDET
CEA, Centre d'études nucléaires de Saclay,
Gif-sur-Yvette, France

Résumé–Abstract

ETUDES NEUTRONIQUES COMPLEMENTAIRES SUR LE PHENOMENE D'OKLO.

On a montré au colloque de Libreville (Gabon, 1975) que les méthodes classiques de physique des réacteurs étaient applicables au phénomène d'Oklo. On a donc poursuivi ce genre d'études, et en premier lieu on a perfectionné les outils de calcul. Le code BINOCLE, qui calcule de manière détaillée le bilan neutronique dans un milieu multiplicateur tel que le minerai d'Oklo à l'époque des réactions, a été perfectionné: plusieurs effets sont calculés de manière plus détaillée, en particulier les effets des températures; le code a été ajusté avec plus de précision, et on a amélioré sa commodité d'emploi par adjonction de boucles supplémentaires. Le code CRITO calcule les distributions de flux et caractéristiques associées dans un réacteur formé d'une juxtaposition de milieux différents. On donne quelques exemples d'applications. Les indices de spectre et coefficients de conversion sont des caractéristiques accessibles aux mesures qui donnent des renseignements sur les quantités d'eau présentes au moment des réactions; on discute leur interprétation. On a examiné la question des «réflecteurs», c'est-à-dire le rôle joué par le minerai plus pauvre entourant le cœur des réacteurs; en particulier on a calculé la vitesse de décroissance du flux neutronique dans ces milieux en fonction de leurs caractéristiques. Enfin on a cherché à retrouver les distributions de taux de réaction mesurés dans un certain nombre de cas: coupe 2'P, sondages SC 30, SC 30 bis et SC 36; on retrouve extrêmement bien la forme des courbes, et on peut discuter le rôle de certains paramètres comme la répartition de l'eau ou les quantités de poison neutronique présentes à l'époque des réactions. Il ne s'agit que de quelques exemples; d'autres applications ont été présentées au cours de la même réunion (mémoires IAEA-TC-119/22 et 23) et les études se poursuivent.

ADDITIONAL NEUTRON STUDIES ON THE OKLO PHENOMENON.

It was shown at the Libreville (Gabon) Symposium in 1975 that the conventional methods of reactor physics were applicable to the Oklo phenomenon. This type of studies was therefore continued and particular attention was paid to improving the calculation tools. The BINOCLE code, which makes detailed calculations of the neutron balance in a multiplying medium such as the Oklo ore at the time of the reactions, has been improved: a number of effects, in particular that of temperature, have been calculated in greater detail; the code has been adjusted more accurately and, with the addition of supplementary loops, is now more convenient to use. The CRITO code calculates the flux distributions and associated characteristics in a reactor formed by the juxtaposition of different media. Some examples of applications are given. The spectral indices and conversion coefficients are characteristics which are accessible to measurements which provide information on the amounts of water present at the time of the reactions. The interpretation of these characteristics is discussed. The paper also considers the question of reflectors, i.e. the role played by the lower grade ore surrounding the core of the reactors; more particularly, the rate of

decrease in neutron flux in these media has been calculated as a function of their characteristics. An effort has been made to determine the distributions of the reaction rates measured in a number of cases: sector 2'P, boreholes SC 30, SC 30 bis and SC 36; the shape of the curves is reproduced extremely well and it is possible to discuss the role of certain parameters, such as the distribution of water or the amounts of neutron poison present at the time of the reactions. These are only a few examples; other applications have been described at this meeting (papers IAEA-TC-119/22 and 23). The studies are being continued.

Les études neutroniques présentées au colloque de Libreville [1] [2] montraient que les méthodes classiques de physique des réacteurs étaient applicables au phénomène d'Oklo. On pouvait non seulement justifier la criticité et les ordres de grandeur des principaux paramètres neutroniques, mais également retrouver les corrélations et même la forme des distributions de taux de réaction dans les terrains en fonction de la configuration de l'uranium.

Il a donc paru intéressant de poursuivre ce genre d'études, afin d'essayer d'obtenir, à partir des résultats de mesures, davantage d'informations sur les conditions dans lesquelles les réactions s'étaient déroulées, et pouvoir en particulier aborder de manière plus approfondie les problèmes fondamentaux du contrôle et de la propagation des réactions nucléaires. Dans cette optique, il a paru justifié de commencer par perfectionner les outils de calcul sous l'angle à la fois de la représentativité et de la commodité. Dans ce qui suit, on présente ce qui a été fait dans ce domaine, ainsi qu'un ensemble de nouveaux résultats ; d'autres applications sont décrites [3] et [4] ; il faut souligner que ces études se poursuivent, et que les résultats présentés ne font qu'en illustrer quelques aspects.

1 - Améliorations des outils de calcul

a) Le code BINOCLE, qui calcule de manière détaillée le bilan neutronique en fonction de la composition du milieu, a été décrit dans [1]. Rappelons qu'on a cherché à disposer d'un outil qui donne une précision comparable à celle des codes "sophistiqués", tout en étant beaucoup plus simple, et qui ait surtout une très grande commodité d'emploi, tant au niveau des entrées qu'à celui des sorties. Les améliorations suivantes ont été apportées depuis le colloque de Libreville.

1. Tout d'abord, on a modifié un peu la définition de la composition du milieu : Plus précisément, on a introduit l'âge des réactions comme paramètre ; on a reformulé la manière dont l'eau est prise en compte, de manière à disposer du maximum de souplesse, tout en gardant une définition correcte de la densité ; enfin on a introduit de manière plus systématique un paramètre d'hétérogénéité, qui caractérise la situation granulaire de l'uranium au sein de la gangue.

La formulation est précisée en annexe. L'eau est supposée exister dans le milieu sous deux formes : une fraction liée chimiquement à la gangue (eau de structure des argiles) et de l'eau supplémentaire occupant un

volume v ("porosité ouverte"). v dépend a priori de la teneur du minerai d'une manière qui n'est pas connue ; on a prévu une relation faisant intervenir deux paramètres m_1 et μ ; dans le cas le plus simple (μ = 0), v est supposé proportionnel à la somme des volumes de l'uraninite et de la gangue ; m_1 est alors le coefficient de proportionnalité (si m_1 = 0.5 par exemple, v est le tiers du volume total). On écrit ensuite que la quantité d'eau correspondante est $\frac{m}{m_1} d_{H^2O}$ v, ce qui laisse plusieurs possibilités : dans les études paramétriques, on fixe la densité d_{H^2O} et on fait varier $m = m_1$; dans les études de contrôle, on fixe $m = m_1$ et on fait varier d_{H^2O} en fonction de la température ; enfin, pour simuler la vaporisation, on fixe m_1 et d_{H^2O} et on fait varier m/m_1.

Le paramètre d'hétérogénéité s (qui représente un pas de réseau élémentaire) peut être introduit soit explicitement, soit automatiquement en fonction de la teneur du minerai.

2. La température semblant avoir joué un rôle important, on a pris en compte ses effets de manière plus détaillée. Les sections efficaces effectives de fission et de capture de l'uranium 235 ont été représentées paramétriquement en fonction de l'indice de spectre r et de la température ; on a introduit l'effet Doppler sur les résonances de l'uranium 238 ainsi que l'effet sur les fuites thermiques ; enfin on a représenté la densité de l'eau en fonction de la température pour différentes pressions. Le domaine a été étendu jusqu'à 440 °C. Enfin on a promu la température au rang de paramètre principal, ce qui permet de la faire varier systématiquement.

3. La première version de BINOCLE avait été ajustée de manière approchée ; les distorsions devenaient assez importantes pour des réseaux fortement sous-modérés. On a repris un ajustement très soigné, en prenant comme référence le code Apollo [5] ; ce code, longuement mis au point à Saclay, traite explicitement tous les noyaux à 99 groupes d'énergie.

On a ajusté séparément chacun des facteurs de bilan. Le facteur de fission rapide ne posait pas de difficulté, car on en fait un calcul détaillé (10 groupes d'énergie) ; l'obtention de p (résonances de l'uranium 238) posait plus de problèmes, car on cherche à couvrir un vaste domaine où le rapport eau/uranium peut varier d'un facteur supérieur à cent : on a utilisé des ajustements différents, suivant la valeur de la diffusion associée. Pour η et f, les sections effectives sont représentées explicitement, et on a tenu compte le cas échéant de la contribution des captures rapides (cas de l'oxygène). Enfin en ce qui concerne le calcul des fuites, on a introduit des termes correctifs pour décrire les variations avec le spectre des contributions de l'hydrogène à l'intérieur des groupes.

Le tableau I (en annexe) montre les paramètres calculés par Binocle et par Apollo pour un ensemble de milieux dont les teneurs en uranium vont de 2 à 60 % ; la comparaison est excellente. Pour le coefficient de multiplication effectif, comme pour chacun des cinq facteurs qui le définissent, les écarts ne dépassent pas en général 100 à 200 pcm (soit 0.1 à 0.2 %), sur des grandeurs telles que la proportion de fission dans l'uranium 238, ou la capture relative de l'uranium 238 (facteur de conversion), le calcul est correct à 1 % près. Cette précision est sans doute excessive compte tenu des incertitudes qui existent sur la composition des milieux (ou même sur les données de base), mais on peut au moins affirmer que la simplification du formalisme n'introduit pas d'erreur significative par rapport aux meilleurs calculs que l'on sache faire.

4. On a amélioré la commodité d'emploi du code, par une refonte de l'organigramme. Rappelons que la criticité peut être obtenue par ajustement de n'importe lequel des paramètres, c'est-à-dire les fuites ou la quantité de poison, ou la teneur du minerai ou l'appauvrissement isotopique de l'uranium, ou la quantité d'eau présente ; on va ajouter la température ; les procédures ont été optimisées pour éviter les calculs inutiles lors des itérations. Les données sont réparties en données semi-permanentes (par exemple composition de la gangue, certaines données sur l'eau) et paramètres proprement dits. L'âge, la température et le paramètre d'hétérogénéité s peuvent ou bien figurer au nombre des données semi-permanentes ou être introduits explicitement : on peut alors faire des boucles sur l'âge (en amont) ou sur s (en aval). On enchaîne des séries de cas ; pour chaque série on donne les paramètres proprement dits : teneur du minerai (t), poison (x), appauvrissement de l'uranium (e), laplacien géométrique (B^2), quantité d'eau (m), et éventuellement température (T) ; à l'intérieur d'une série on peut donner pour un quelconque de ces paramètres, un nombre quelconque de valeurs. Il est donc possible de faire traiter successivement par exemple une centaine de milieux en ne perforant que quelques cartes.

Le code sort pour chaque milieu un ensemble de résultats qui traduisent le bilan de manière condensée et claire ; il calcule à la demande les constantes multigroupe pour les calculs de diffusion. Le traitement d'un milieu, y compris les itérations permettant de le rendre critique, ne demande que quelques centièmes de secondes à l'ordinateur IBM de la série 360.

b) Le code CRITO couple Binocle à un code de diffusion multigroupe. On a extrait d'un code beaucoup plus lourd un module (quatre groupes ; une dimension) de manière à réduire l'encombrement machine, et simplifier les entrées et sorties. Pour décrire un réacteur, il suffit, après avoir introduit les données Binocle pour les milieux qui le composent, d'indiquer pour chacune des tranches successives le numéro du milieu et son épaisseur. Binocle ajuste le laplacien-matière de chaque milieu, et le B^2 qui est introduit au nombre des paramètres prend le sens d'un laplacien transversal : autrement dit, on prend en compte, pour chaque tranche, les fuites dans les deux autres dimensions. CRITO ajuste la criticité de l'ensemble en calculant un coefficient k_{eff} global.

Le code fournit l'évolution du flux thermique selon un découpage donné à l'avance, après normalisation en un point choisi ; on sort également en chaque point l'indice de spectre r et le facteur de conversion C, d'une manière cohérente avec le calcul fait par Binocle en milieu "infini" (c'est-à-dire qu'on retrouve la valeur Binocle loin des frontières). Le temps de calcul pour un réacteur comportant par exemple une quinzaine de milieux est de l'ordre de 3 secondes.

2 - Applications - Indices de spectre et coefficients de conversion

On a repris, à l'aide de Binocle, l'étude détaillée du bilan neutronique ; on trouvera dans [3] une étude paramétrique de la criticité, notamment en fonction de l'âge des réacteurs, et dans [4] une analyse des effets de température. Les tableaux II et III (en annexe) donnent les quantités R_8 (proportion des fissions dans l'uranium 238), r (indice de spectre) et C (facteur de conversion) en fonction de divers paramètres, et notamment de s qui caractérise l'hétérogénéité. Ces trois quantités sont accessibles

aux mesures, et dépendent toutes trois du rapport eau/uranium ; il est donc intéressant de leur prêter une attention particulière et d'examiner la manière dont ils sont corrélés.

Rappelons tout d'abord la définition choisie pour l'indice de spectre r. On sait qu'en première approximation, la densité neutronique n(v) varie dans le domaine de ralentissement comme $1/v^2$; en réalité v^2 n(v) décroît quand la vitesse diminue (à cause des neutrons qui disparaissent par fuite et par capture dans les résonances, principalement de l'uranium 238, et parce que le pouvoir de ralentissement $\xi\Sigma_s$ est légèrement croissant). Cependant on peut toujours trouver au moins un petit domaine en dehors des résonances où la loi en $1/v^2$ est vérifiée ; extrapolons la jusqu'à l'infini, et substituons cette courbe asymptotique à la courbe réelle n(v) ; r est alors le rapport de $\frac{1}{2} v^2$ n(v) dans cette portion à l'intégrale $\int$ n(v) v_0 dv. Dans Binocle, r est défini en prenant comme référence la transition du troisième au quatrième groupe, c'est-à-dire en se plaçant immédiatement au-dessus du domaine de thermalisation.

Il est bien clair que cette définition est conventionnelle ; par exemple, les valeurs de r seraient plus grandes si la référence était choisie à une énergie plus élevée. L'important est que la définition soit cohérente avec celle de l'indice qui peut être déduit des analyses isotopiques. On en est maintenant certain, à la suite des mesures qui ont été faites sur des isotopes irradiés dans le réacteur Triton [6] ; en effet ces mesures ont permis notamment de comparer dans deux spectres différents les rapports de capture de ^{147}Sm et ^{143}Nd d'une part, et de ^{240}Pu et ^{235}U d'autre part, chaque couple comportant un isotope très sensible au spectre. Parallèlement, le code Apollo calcule avec précision le dernier rapport pour différentes compositions de milieux, et ces mêmes milieux traités par Binocle sont caractérisés par des valeurs de r. On sait donc désormais rattacher les rapports de transferts isotopiques dans le néodyme et le samarium à des "r Binocle" bien définis.

L'ajustement qui a été fait permet d'affirmer que le r Binocle est celui que fournirait Apollo pour la même définition ; on a pu le vérifier en comparant les taux de réaction calculés par Apollo à ceux obtenus directement à partir d'un modèle de thermalisation explicitant la valeur de r. A titre indicatif, le tableau IV (en annexe) donne des sections efficaces effectives d'isotopes intervenant dans le phénomène d'Oklo pour deux valeurs de r (0.05 et 0.25) et deux valeurs de la température (120 et 360 °C).

Le facteur de conversion C est défini ici comme le rapport $N_8\ \hat{\sigma}_8/N_5\ \hat{\sigma}_5$: c'est le nombre d'atomes de plutonium 239 formés pour un atome d'uranium 235 détruit : ce coefficient est un peu plus grand que le "facteur de restitution" C* déduit des analyses isotopiques, qui ne prend en compte que le plutonium non détruit par les réactions (c'est-à-dire qui a eu le temps de décroître en uranium 235). On passe aisément de l'un à l'autre si on connaît la proportion des fissions dans le plutonium. Puisqu'il s'agit d'un rapport de sections efficaces effectives, C est directement fonction de r et il dépend également de N_5/N_8, c'est-à-dire e ; mais $\hat{\sigma}_8$ dépend en outre du facteur d'autoprotection des résonances, donc de la diffusion associée (quantités d'eau et de gangue), et de l'hétérogénéité.

La figure 1 montre les variations de C et r en fonction de t, pour deux valeurs de m et plusieurs valeurs de s (e est maintenu constant et égal à 0.62). Les deux quantités croissent évidemment quand on augmente t ou quand on diminue m, puisque ce sont deux façons de faire baisser le

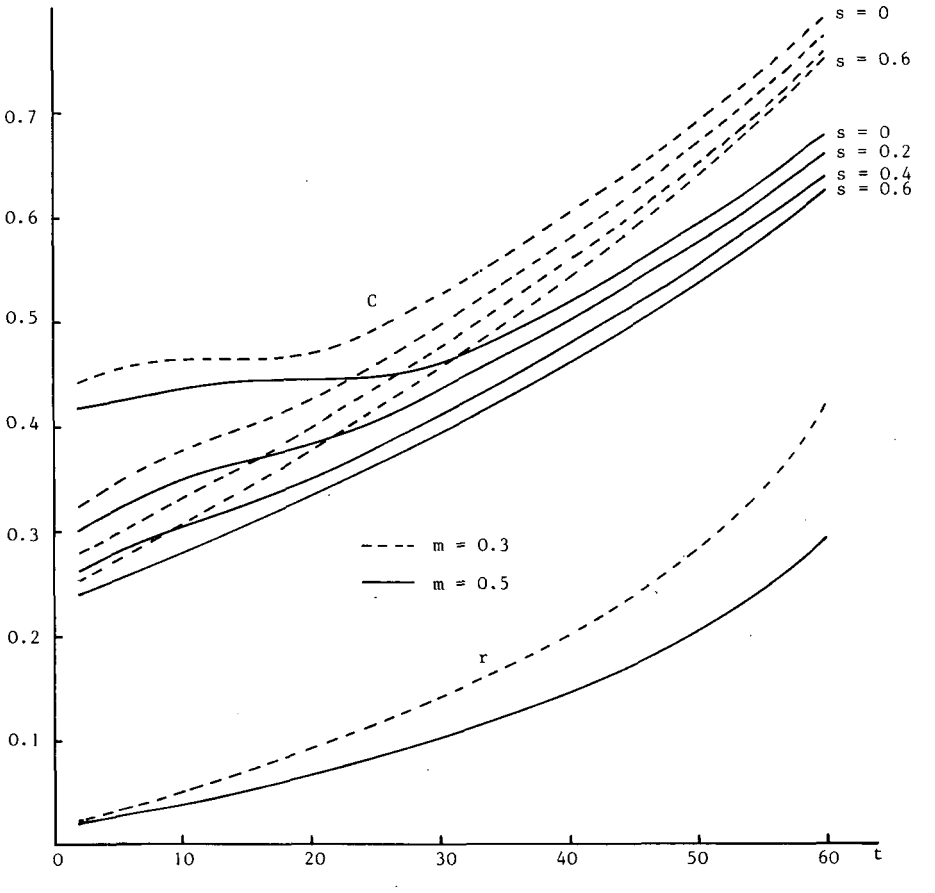


FIG.1. Facteur de conversion C et indice de spectre r en fonction de t, m et s.

rapport eau/uranium ; d'autre part C diminue quand l'hétérogénéité du milieu augmente. On voit que l'effet de s est plus grand pour les basses teneurs ; en effet quand t diminue, la croissance de l'intégrale de résonance en milieu dilué compense en grande partie la croissance du pouvoir de ralentissement et C ne diminue plus guère ; au contraire en milieu hétérogène, l'effet de diffusion associé est considéralement réduit, et C continue de décroître. En sens inverse, l'effet de m est plus marqué à haute teneur. On note que pour un minerai à 10 % par exemple, C ne peut guère s'abaisser au-dessous de 0.25 même pour des valeurs élevées de m et s.

On peut estimer en effet que s = 0,6 représente un maximum pour les minerais d'Oklo (équivalence en hétérogénéité d'un modèle où l'uranium est concentré aux noeuds d'un réseau dont la maille est 6 mm). D'ailleurs cette valeur est presque toujours trop grande pour le minerai pauvre ; si

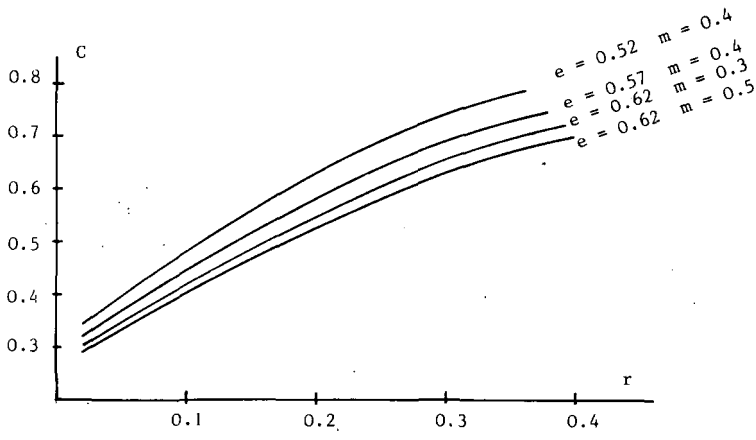


FIG.2. Facteur de conversion C en fonction de r, e et m (s = standard).

on observe en effet souvent une structure à gros grains dans le minerai riche ("faciès-pile"), l'uranium est beaucoup plus disséminé dans les argiles de bordure. Il semble donc approprié de faire croître s en fonction de r ; dans Binocle on peut le faire automatiquement en donnant les valeurs de s pour t = 1 et 60 %, la loi étant en $\sqrt{t}$. On a défini une hétérogénéité "standard", qui peut être considérée comme représentative du minerai moyen, en faisant croître s de 0.1 à 0.4 (0.3 étant atteint dès 26 %).

C'est en utilisant cette loi standard qu'ont été calculées les valeurs de la figure 2, qui représente C en fonction de r pour plusieurs valeurs de e et m. On remarque que m intervient peu (car lorsque le rapport eau/uranium est donné, C ne se différencie que par l'effet de dilution de la gangue). Pour un échantillon dont on connaît la teneur et l'appauvrissement isotopique (moyenne au cours de l'irradiation) il y a entre C et r une relation obligée dans laquelle le seul degré de liberté est une hétérogénéité plus ou moins grande, mais on voit bien qu'on ne peut pas jouer beaucoup sur ce paramètre.

Au moment de Libreville, les incertitudes sur les sections efficaces ne permettaient pas de tirer des conclusions trop précises des valeurs mesurées de r ou C. Après les expériences Triton, la situation est différente. Les valeurs de r mesurées permettent de calculer de manière sûre les rapports eau/uranium (il s'agit des moyennes au cours de l'irradiation, compte tenu du contrôle), et d'autre part il y a entre les trois quantités mesurées r, C et R_8 (proportion de fissions dans l'uranium 238) des relations nécessaires. Si donc on rencontre des anomalies, on peut être amené à suspecter les mesures. On sait qu'à Libreville, on a rencontré à plusieurs reprises des valeurs de C trop basses [7] ; de nouvelles mesures ont confirmé l'existence de ces anomalies [8]. Il semble certain que celles-ci résultent de la remobilisation du néodyme qui, par mélanges isotopiques, a déformé les courbes de fluence.

En tout état de cause, pour interpréter correctement les valeurs de r et C, il faut tenir compte des effets d'environnement ; la discussion est reprise plus loin, à propos de l'étude de la distribution des taux de réaction le long du sondage SC 36.

3 - Etude des réflecteurs

Le minerai pauvre qui entoure les réacteurs proprement dits joue un rôle dans le bilan neutronique ; même si le coefficient de multiplication des neutrons est très inférieur à l'unité, il n'est pas nul, et de toute façon le milieu renvoie des neutrons par diffusion : on dit qu'il joue le rôle de "réfecteur". Si l'épaisseur critique d'un milieu de référence ayant la forme d'une plaque est 2 H_e, lorsqu'il est entouré de vide, et si l'épaisseur suffisante pour qu'il soit critique lorsqu'il est entouré d'un autre milieu est 2 H, H_e-H est ce qu'on appelle le "gain de réflecteur" de ce milieu. Il a paru intéressant de rechercher les ordres de grandeur de ce gain en fonction de la teneur du minerai en uranium, en eau et en poison, de manière à apprécier plus directement les conditions de criticité. D'autre part, il est intéressant de connaître la vitesse de décroissance du flux neutronique dans les réflecteurs en fonction de leurs caractéristiques ; des expériences ont été tentées pour mettre en évidence cette décroissance en mesurant la densité de traces de fission induites dans les impuretés uranifères des quartz en bordure des zones de réaction [9].

L'étude a été faite de la manière suivante : on choisit un milieu de référence (on a pris t = 40 %, e = 0.56 %, x = 0, m = 0.40 ; ce milieu a un k_∞ de 1.1538, et un M^2 de 54.7 cm^2), et une série de milieux réflecteurs (on a fait varier t de 2 à 30 %, x = 20 ou 50 ppm de ^{10}B, m = 0.4 ou 0.3, e est dans tous les cas 0.72). On choisit chaque fois l'épaisseur 2 H du milieu de référence pour que k_{eff} soit voisin de l'unité, le réflecteur ayant de part et d'autre une épaisseur très grande ; H_e est alors défini par $k_\infty/k_{eff} = 1 + M^2 \pi^2/(2 H_e)^2$, d'où le gain H_e - H (on vérifie que ce gain varie peu quand on modifie H, donc k_{eff}). Les résultats sont les suivants :

	x = 50 m = 0.4	x = 20 m = 0.4	x = 50 m = 0.3
t = 2 %	δ = 8.8 cm	9.7 cm	9.2 cm
5 %	9.4	10.6	9.9
10 %	10.6	12.5	11.2
20 %	13.9	17.9	
25 %	17.4		

Le gain de réflecteur augmente évidemment avec t, et diminue avec x et m (le réflecteur est meilleur s'il y a plus d'uranium, moins de poison et moins d'eau) ; on voit néanmoins que m intervient peu, et que le gain reste du même ordre de grandeur, soit à peu près 10 cm pour un domaine de variation assez large de teneur et de poison (t = 2 à 10 %, x = 20 à 50 ppm). On peut donc retenir ce chiffre ; par exemple pour le milieu de référence dans

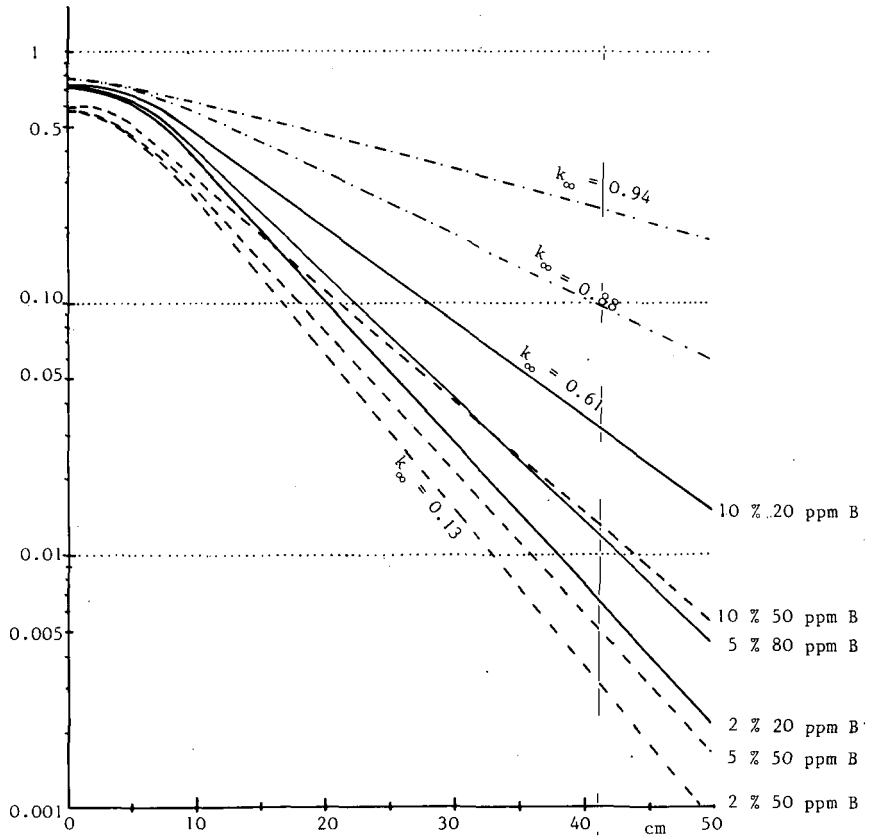


FIG.3. Décroissance du flux dans le réflecteur.

lequel 2 H_e est de l'ordre de 60 cm, il suffit d'une épaisseur réelle voisine de 40 cm pour que le milieu soit critique, même s'il est entouré de minerai relativement pauvre. Lorsque la teneur en uranium du réflecteur croît davantage, c'est-à-dire que son k_∞ se rapproche de l'unité, le gain croît beaucoup plus vite. Par exemple, pour t = 30 %, x = 50 ppm, le gain est de 23.5 cm, c'est-à-dire qu'il ne faut plus qu'une mince épaisseur du milieu de référence pour être critique, ce qui se comprend bien puisque le réflecteur est alors lui-même proche de la criticité (k_∞ = 0.968).

Sur la figure 3, on a reporté le flux thermique dans le réflecteur en fonction de la distance à la limite du coeur, en le normalisant à sa valeur au centre du milieu de référence. Bien entendu, quand le réflecteur est plus efficace, la valeur du flux à la limite du coeur est plus élevée, et la décroissance dans le réflecteur est plus lente. On remarque qu'après un transitoire à la sortie du milieu de référence, la décroissance est pratiquement linéaire en coordonnées logarithmiques, c'est-à-dire

que c'est une exponentielle à peu près pure. On peut caractériser le milieu par la distance au bout de laquelle le flux décroît d'un facteur 2 dans cette portion asymptotique. Les résultats sont les suivants :

	x = 50ppm m = 0.4	x = 20ppm m = 0.4	x = 50 ppm m = 0.3
t = 2 %	5.2 cm	4.2 cm	5.0 cm
5 %	6.1	5.4	5.8
10 %	8.1	6.7	7.1
20	12.9	9.6	7.1

On voit que la longueur caractéristique varie de la même façon en fonction des paramètres t, x et m que le gain de réflecteur ; elle est de l'ordre de 5 cm pour un minerai pauvre (c'est le chiffre qui avait été avancé à Libreville), mais elle augmente sensiblement lorsque le minerai de bordure est plus riche. On constate qu'à 50 cm du coeur, le flux est de l'ordre du millième du maximum lorsque la bordure est pauvre (par exemple dans un grès à 1 ou 2 %, comme c'est le cas pour les expériences de traces de fission), mais qu'on a dix fois plus, c'est-à-dire de l'ordre du centième, quand la bordure est constituée de minerai à 10 %. Pour des teneurs plus élevées, il est préférable de caractériser le réflecteur par son k_∞ ; la décroissance devient très lente lorsque le milieu est presque critique ; on en verra des applications dans les problèmes de propagation des réactions [4].

4 - Etude des distributions de taux de réaction

On avait montré dans [2] qu'on pouvait retrouver par le calcul la forme des courbes mesurées de taux de réaction pour des configurations d'uranium typiques. On a mis à profit la commodité d'emploi du code CRITO pour étudier d'autres cas de figure et examiner l'influence de paramètres tels que les quantités d'eau ou de poison à l'époque des réactions.

La figure 4 illustre le cas d'une distribution analogue à la coupe 2'P, avec un "creux" de teneur au centre, et une chute rapide en bordure du coeur ; on a supposé pour simplifier la distribution symétrique (les teneurs des milieux successifs sont représentées en grisé ; les distances ont été multipliées par le cosinus de l'angle que fait la coupe avec la direction de la couche, car on suppose que les caractéristiques ne varient significativement que dans le sens perpendiculaire à la stratification). Une telle distribution avait déjà été considérée dans [2], et on avait justifié la forme de la courbe de flux ; on a examiné plus particulièrement cette fois comment varie la remontée de flux en bordure du coeur en fonction de m et x, c'est-à-dire des quantités d'eau et de poison. On examine la situation finale, c'est-à-dire qu'il ne reste de poison que là où la fluence est très faible.

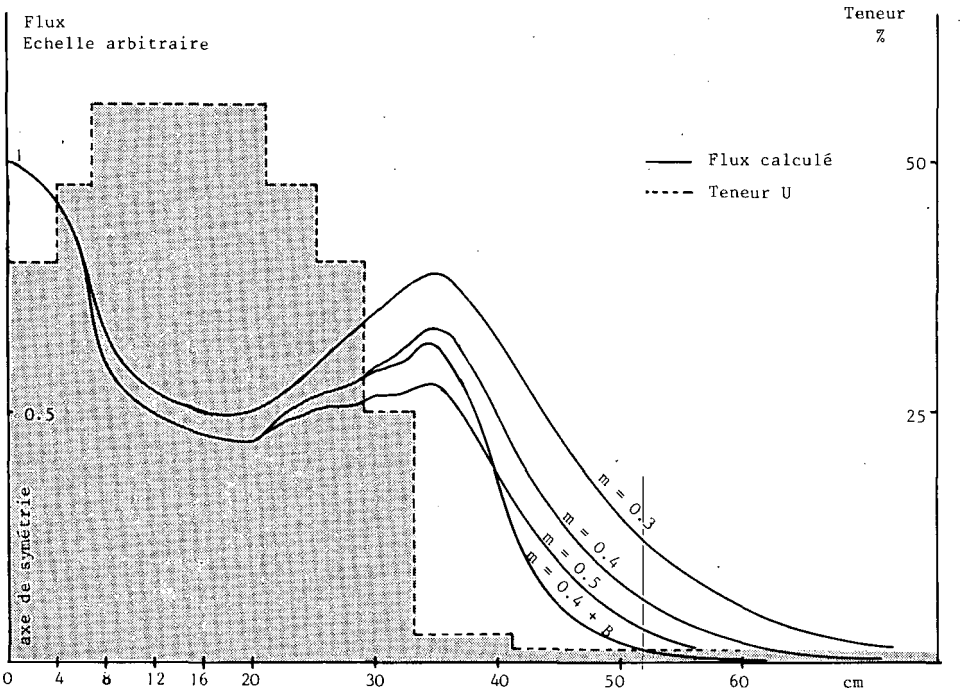


FIG.4. Coupe 2'P: distribution des taux de réaction.

La chute de teneur étant brutale, on passe rapidement d'un milieu très capturant et sous-modéré à un milieu ralentisseur et peu capturant : la remontée de flux est d'autant plus grande que le coeur est davantage sous-modéré, donc que m est plus petit. La présence de poison provoque une décroissance plus rapide du flux (on l'a vu au paragraphe précédent), mais joue un rôle plus modeste sur la remontée.

Les figures 5 et 6 illustrent des situations très différentes. Dans les sondages SC 30 et SC 30 bis, on a trouvé, au toit des réacteurs proprement dits, du minerai moyennement riche (20 à 25 %). Dans le SC 30 ce minerai est directement accolé au coeur, tandis que dans le SC 30 bis il est à teneur un peu plus élevée mais séparé du coeur par une passe plus pauvre. La situation en réactivité est a priori plus favorable dans le cas du SC 30 ; c'est bien ce qui confirme le calcul, et il est remarquable qu'on ait trouvé effectivement des appauvrissements isotopiques plus grands dans le SC 30 que dans le SC 30 bis.

Dans ce cas, la teneur en poison joue un grand rôle ; on a vu en effet que lorsque le K_∞ du réflecteur approche l'unité, son efficacité croît très vite. On a fait le calcul dans chaque cas pour trois valeurs initiales du poison (x = 0, 50 ou 100 ppm de bore 10), les valeurs résiduelles dans la situation finale étant estimées en fonction de la fluence.

(suite du texte p.584)

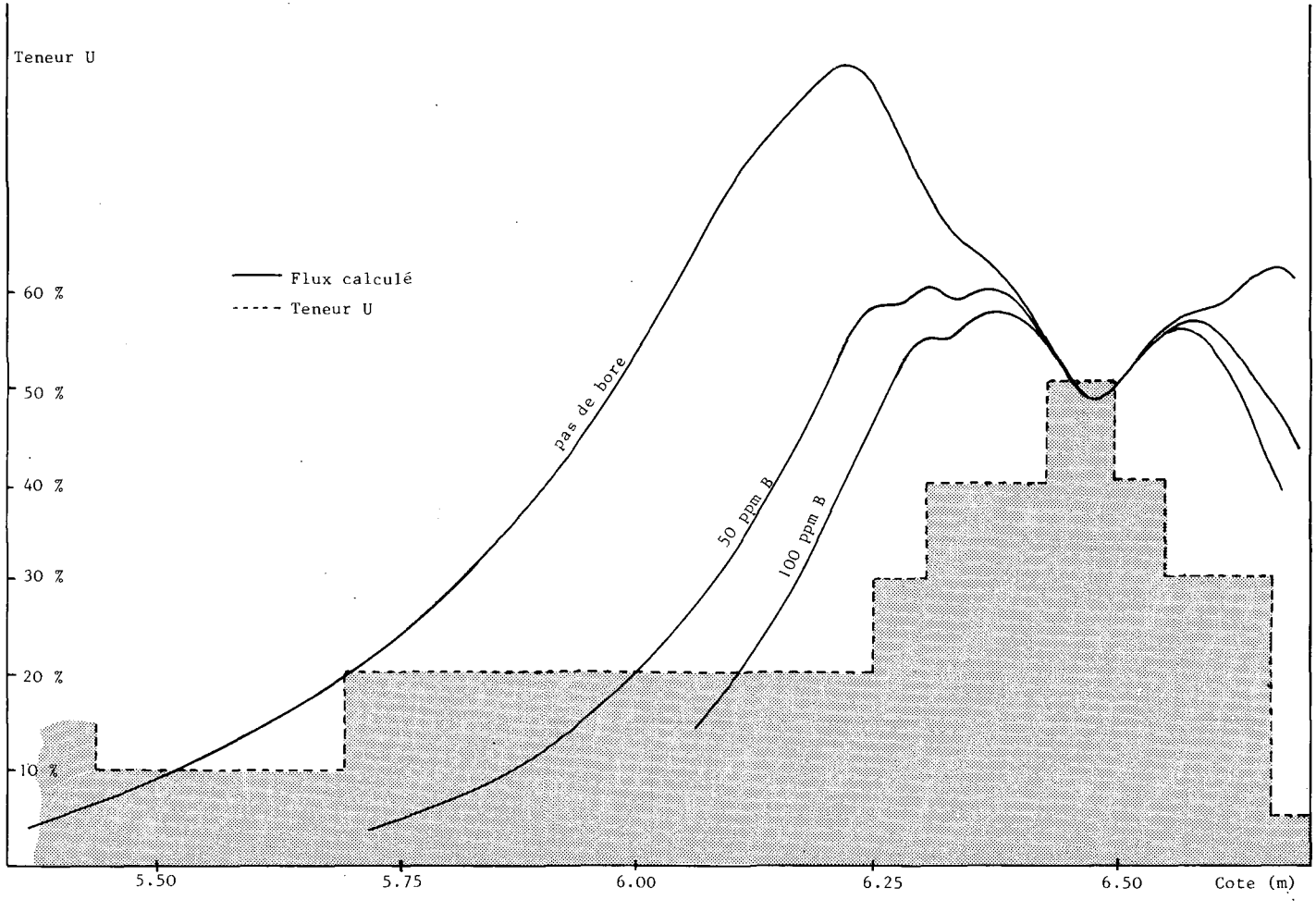


FIG.5. Sondage SC 30: distribution des taux de réaction.

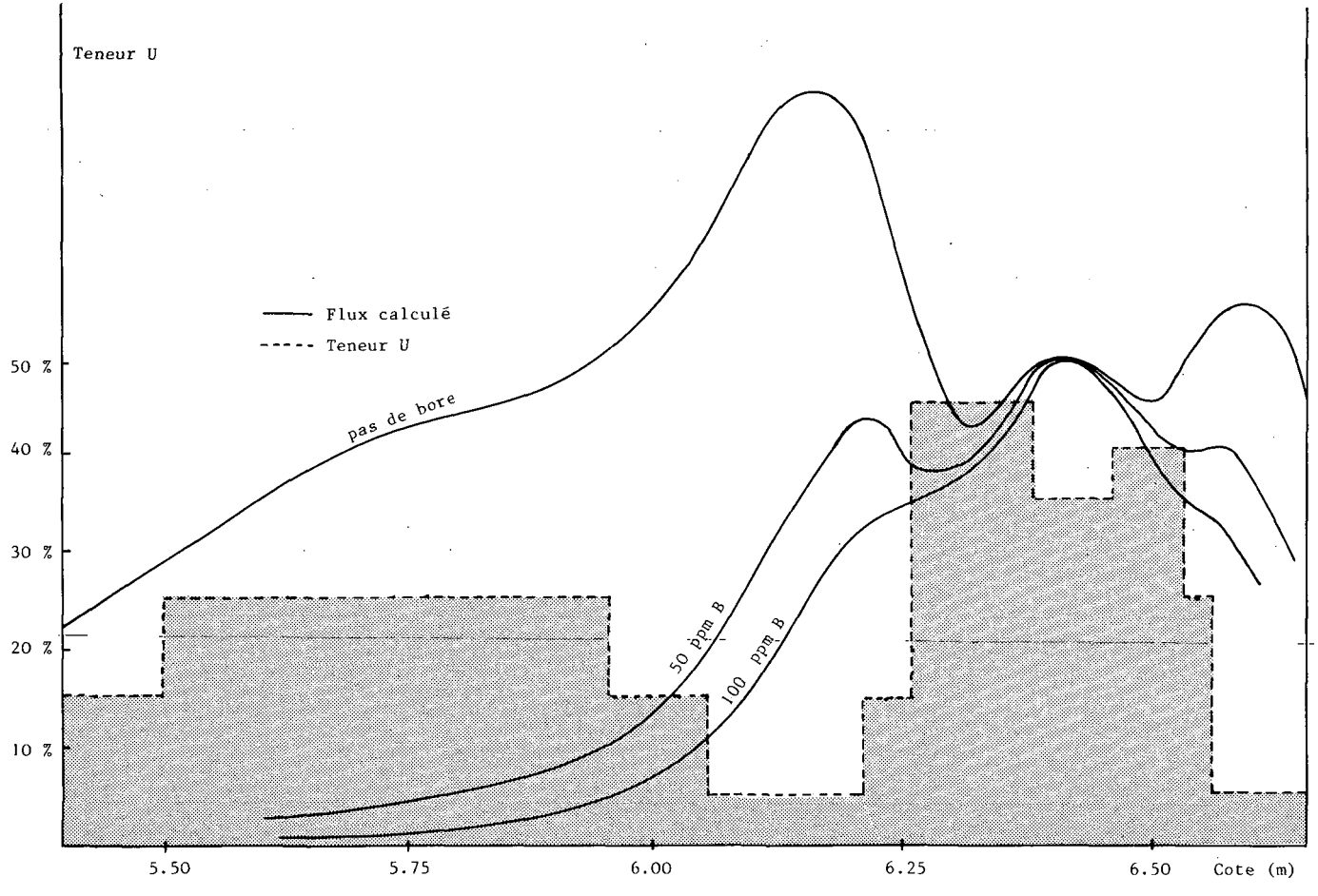


FIG.6. Sondage SC 30 bis: distribution des taux de réaction.

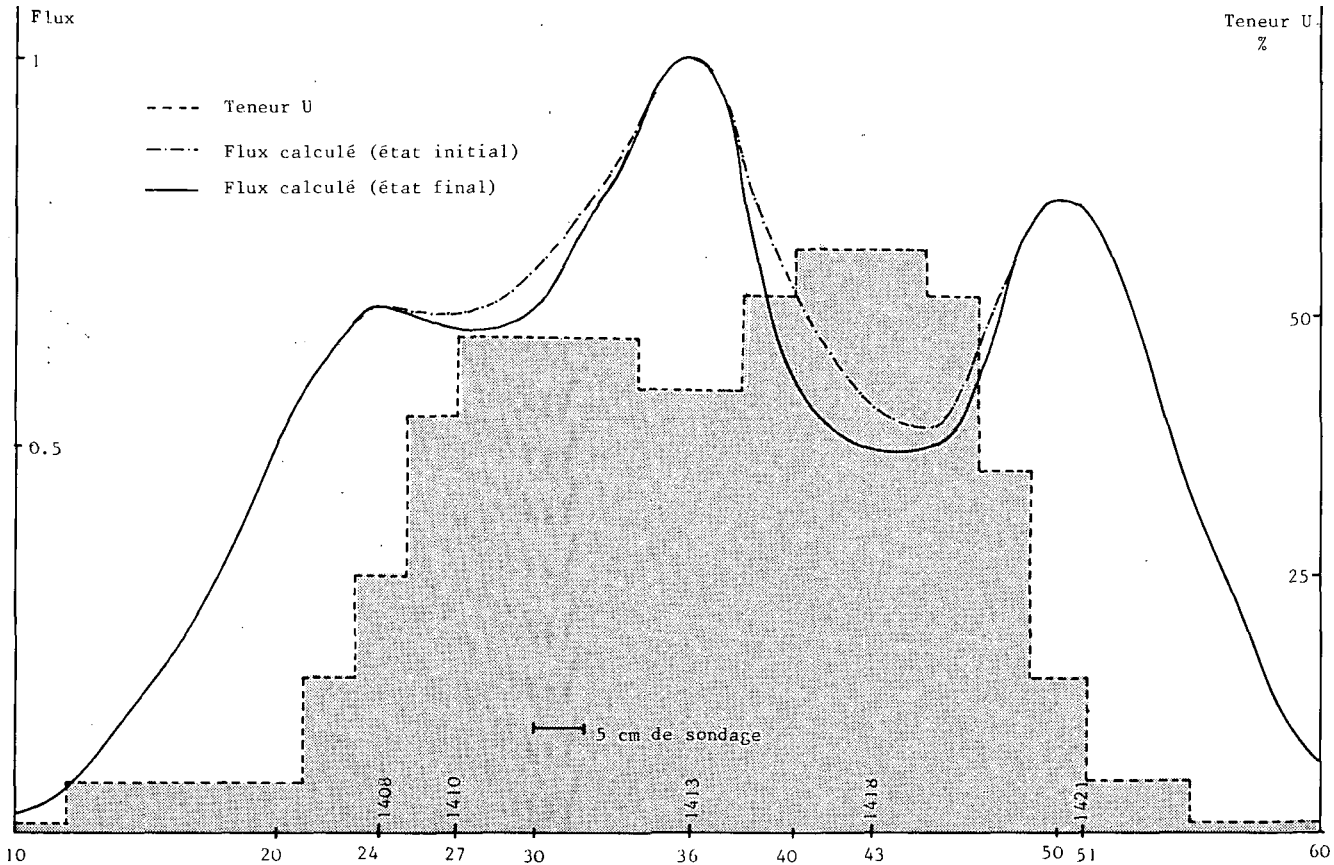


FIG. 7. Sondage SC 36: distribution des taux de réaction.

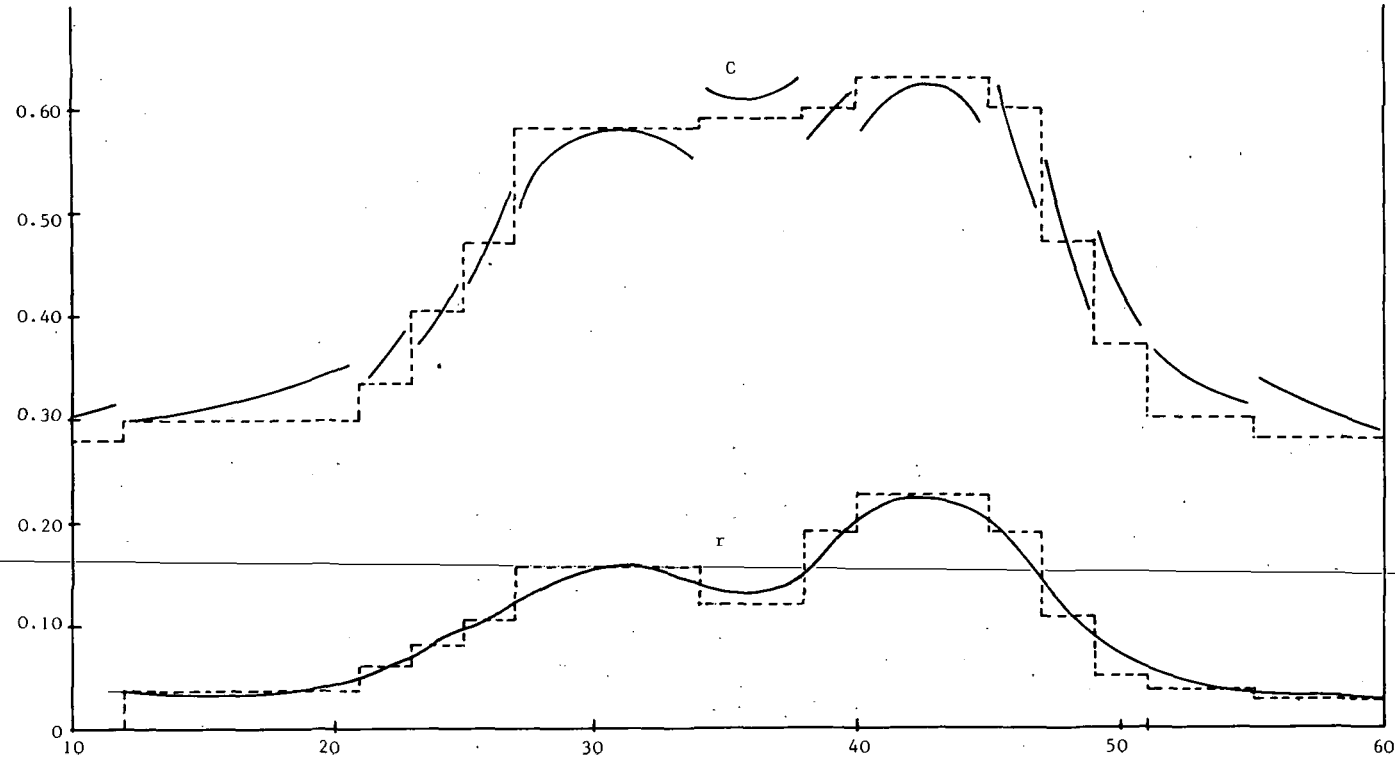


FIG.8. Sondage SC 36: C et r (état final).

On voit que s'il n'y a pas de bore, la remontée de flux devient considérable (en effet le minerai à 25 % est presque critique). Par contre pour 50 ou 100 ppm de bore, le flux décroît beaucoup plus vite, surtout pour le SC 30 bis. On comparera avec la figure 6 de la référence [10] qui montre les courbes d'appauvrissement isotopique de l'uranium dans ces deux sondages : les courbes calculées pour x = 50 ont tout à fait la même allure, ce qui tend à prouver que c'est l'ordre de grandeur du poison qui se trouvait dans le minerai au moment des réactions.

Enfin, on a examiné une distribution qui est en gros celle du sondage SC 36 (figure 7). L'uranium a une configuration dissymétrique, et le creusement de flux et la remontée à la sortie du coeur sont plus importants côté mur (en réalité la dissymétrie existe surtout dans l'environnement : on obtiendrait une courbe de flux plus voisine de la réalité en introduisant des laplaciens transversaux différents côté mur et côté toit). On a fait le calcul à la fois pour la situation initiale (uranium naturel partout, avec 50 ppm de bore dans la gangue) et la situation finale (le poison étant presque totalement détruit, et l'uranium appauvri). Les deux courbes de flux obtenues ne sont pas très différentes.

La figure 8 représente l'indice de spectre r et le facteur de conversion C dans la situation finale. On a fait figurer à la fois les valeurs "Binocle" correspondant à chaque milieu, et les valeurs "locales" obtenues en chaque point par le calcul de diffusion, c'est-à-dire tenant compte de l'environnement (dans le cas de C, les discontinuités sont purement artificielles ; elles proviennent de ce qu'il faudrait faire varier l'intégrale de résonance de manière continue au passage des frontières ; la figure donne néanmoins une idée de la variation le long du sondage). On voit que l'environnement peut avoir des effets appréciables : par exemple r est plus grand si le minerai voisin est en moyenne à plus forte teneur.

Les calculs ont été faits pour deux valeurs de m, 0.4 et 0.5 ; voici les valeurs de R_β, r et C pour m = 0.5, dans les deux situations, en cinq points du sondage qui correspondent à peu près aux échantillons n° 1408, 1410, 1413, 1418 et 1421:

	R_β	r initial	r final	C initial	C final
1408	2.1 %	0.134	0.096	0.405	0.435
1410	3.2	0.189	0.133	0.475	0.525
1413	4.3	0.200	0.130	0.490	0.610
1418	6.8	0.297	0.229	0.585	0.623
1421	1.3	0.080	0.058	0.350	0.382

C'est la moyenne au cours de l'irradiation qui doit être comparée aux valeurs mesurées. Il serait certainement très intéressant de discuter de manière approfondie les résultats obtenus sur ce sondage en les confrontant aux calculs ; ce n'est pour le moment qu'une première approche. Elle montre déjà qu'on ne peut guère être inférieur à 0.5, compte tenu des valeurs mesurées de R_β, r et C, donc que la porosité du milieu était grande

(un tiers de vide). D'autre part, on remarque que les courbes de flux sont plus contrastée que celles qui ont été obtenues expérimentalement, ce qui tend à prouver que la remobilisation des terres rares a eu pour effet d'aplatir les courbes de fluence.

Annexe

1. Formules utilisées dans Binocle pour définir la composition du milieu

Les quantités suivantes sont rapportées à 1 g d'oxyde d'uranium : X poids de gangue anhydre, X (1 + m') poids de la gangue compte tenu de l'eau de structure ; Y poids total d'eau, v_p volume occupé par l'oxyde d'uranium et la gangue, v volume occupé par l'eau "supplémentaire". On désigne par d, d_{UO^2}, d_g et d_{H^2O} les densités respectives du milieu, de l'oxyde d'uranium, de la gangue et de l'eau supplémentaire ; la dernière quantité est multipliée par le rapport m/m_1 pour tenir compte d'une vaporisation partielle ou d'une modification de densité au cours de l'évolution. Dans ces conditions :

$$Y = m' X + \frac{m}{m_1} d_{H^2O} v$$

$$v_p = \frac{1}{d_{UO^2}} + \frac{X(1 + m')}{d_g}$$

$$d = \frac{1 + X + Y}{v_p + v}$$

On considère que le milieu est constitué de "grains", comprenant l'oxyde d'uranium mélangé à un poids n de gangue, et d'un "diluant" formé du reste de la gangue et de l'eau supplémentaire ; soient v_0 et v_1 les volumes des deux milieux

$$v_0 = \frac{1}{d_{UO^2}} + \frac{n}{d_g} \qquad v_1 = v_p - v_0 + v$$

On écrit $v = m_1 (v_p - \mu v_0)$

(quand $\mu = 0$, v est proportionnel à v_p ; quand $\mu = 1$, v est proportionnel à v_1).

Les calculs ont généralement été faits avec les données semi-permanentes suivantes : $m' = 0.11$, $n = 0.20$, $\mu = 0$, $m_1 = m$, $d_{UO^2} = 10.5$, $d_g = 2.5$, d_{H^2O} est donné soit directement, soit comme fonction de la température.

Pour caractériser l'hétérogénéité, on considère un réseau de petites sphères de rayon a assemblées au pas s ; le rapport entre le volume des sphères et celui du milieu extérieur est supposé égal à v_0/v_1, ce qui définit a/s. On peut calculer les longueurs des cordes moyennes dans les deux milieux du réseau, d'où on déduit un paramètre qui caractérise la probabilité pour qu'un neutron ayant eu un choc dans l'uranium ait son choc suivant dans l'uranium ou dans le diluant. Le paramètre sert à définir la diffusion associée dans le calcul de l'intégrale de résonance effective de l'uranium.

X est défini en fonction de la teneur t du minerai actuel, en tenant compte des quantités moyennes d'eau et de plomb radiogénique contenues présentement dans le minerai, et de son âge τ (en 10^9 ans):

$$X = \frac{100 - 1.235\ t}{1.324\ t} \cdot e^{-0.175\ \tau}$$

On distingue dans la gangue en plus de l'eau et des poisons six constituants majeurs, dont les proportions sont indexées sur la teneur t. Les pourcentages de X adoptés pour les calculs sont les suivants :

SiO^2 : 44.5 - 0.05 t	Al^2O^3 : 30.5 - 0.05 t	MgO : 11.7 - 0.06 t
FeO : 10.0 + 0.15 t	K^2O : 2.5	MnO : 0.8 + 0.01 t

La composition isotopique de l'uranium naturel (e = 0.72) est donnée en fonction de l'âge τ par :

$$N_5/N_8 = \frac{0.72}{99.28}\ e^{0.8168\ \tau}$$

(formule valable au voisinage de τ = 1.9).

2. Comparaison Binocle-Apollo

Le tableau I montre comment se comparent les principaux paramètres caractérisant le bilan neutronique $k_\infty = \eta f p \varepsilon$ et M^2, exprimés avec la même définition dans Apollo et Binocle, pour une série de teneurs de minerai allant de 2 à 60 % (e = 0.62, x = 0, m = 0.3565, T = 120 °C).

TABLEAU I. PRINCIPAUX PARAMETRES DU BILAN NEUTRONIQUE

		t = 2	t = 10	t = 20	t = 30	t = 40	t = 50	t = 60
η	B	1.7818	1.7777	1.7715	1.7640	1.7543	1.7415	1.7240
	A	1.7807	1.7769	1.7707	1.7629	1.7533	1.7415	1.7263
f	B	0.1262	0.4350	0.6281	0.7399	0.8143	0.8688	0.9115
	A	0.1262	0.4345	0.6279	0.7397	0.8143	0.8690	0.9104
p	B	0.9504	0.8849	0.8563	0.8186	0.7753	0.7308	0.6828
	A	0.9505	0.8850	0.8565	0.8162	0.7758	0.7324	0.6826
ε	B	1.0011	1.0063	1.0128	1.0215	1.0324	1.0464	1.0653
	A	1.0012	1.0053	1.0137	1.0225	1.0333	1.0466	1.0639
k_∞	B	0.2140	0.6874	0.9650	1.0912	1.1434	1.1571	1.1430
	A	0.2139	0.6876	0.9653	1.0882	1.1445	1.1600	1.1436
M^2	B	73.6	68.8	63.2	59.4	56.8	54.5	53.4
	A	75.1	67.3	61.4	58.9	56.8	54.7	52.9

3. Indices de spectre et coefficients de conversion

Le tableau II donne R_8, r et C en fonction de t, pour deux valeurs de m et plusieurs valeurs de s ; dans la dernière colonne l'hétérogénéité "standard" correspond à un s croissant de 0.1 à 0.4 en fonction de la teneur. Dans tous les cas e = 0.62 et x = 0 ; B^2 est ajusté.

TABLEAU II. QUANTITES R_8, r et C EN FONCTION DE t

a) m = 0.3

t	R_8	r	C				
			s = 0	s = 0.2	s = 0.4	s = 0.6	s "standard"
2 %	0.16 %	0.024	0.442	0.323	0.279	0.254	0.342
10	0.84	0.053	0.466	0.376	0.328	0.305	0.357
20	1.85	0.092	0.468	0.422	0.398	0.380	0.407
30	3.10	0.138	0.526	0.496	0.473	0.454	0.479
40	4.67	0.199	0.651	0.575	0.554	0.537	0.557
50	6.70	0.286	0.685	0.665	0.647	0.632	0.648
60	9.42	0.421	0.786	0.771	0.757	0.474	0.756

b) m = 0.5

t	R_8	r	C				
			s = 0	s = 0.2	s = 0.4	s = 0.6	s "standard"
2 %	0.13	0.020	0.415	0.301	0.262	0.241	0.319
10	0.68	0.043	0.437	0.349	0.303	0.278	0.331
20	1.51	0.071	0.445	0.379	0.353	0.336	0.361
30	2.52	0.105	0.465	0.435	0.412	0.395	0.418
40	3.80	0.148	0.525	0.498	0.477	0.459	0.480
50	5.45	0.205	0.592	0.569	0.550	0.533	0.551
60	7.66	0.291	0.671	0.652	0.636	0.622	0.636

Le tableau III donne C en fonction de r pour différentes valeurs de e (m = 0.4, hétérogénéité "standard").

TABLEAU III. FACTEUR DE CONVERSION C EN FONCTION DE r

	e = 0.67		e = 0.62		e = 0.57		e = 0.52	
	r	C	r	C	r	C	r	C
10 %	0.050	0.325	0.047	0.342	0.045	0.362	0.043	0.386
20	0.084	0.364	0.080	0.381	0.076	0.401	0.072	0.424
30	0.126	0.427	0.119	0.444	0.113	0.464	0.106	0.488
40	0.180	0.495	0.170	0.513	0.160	0.534	0.149	0.558
50	0.254	0.574	0.240	0.593	0.224	0.614	0.209	0.639
60	0.367	0.669	0.344	0.687	0.321	0.709	0.298	0.734

4. Sections efficaces effectives

Le tableau IV donne les sections efficaces effectives de différents noyaux calculées pour deux valeurs de r et deux valeurs de la température.

TABLEAU IV. SECTIONS EFFICACES EFFECTIVES

	r = 0.054 T = 120 °C	r = 0.054 T = 360 °C	r = 0.246 T = 120 °C	r = 0.245 T = 360 °C
^{235}U abs	658	642	680	670
fis	554	539	558	548
^{239}Pu abs	1 415	1 890	1 831	2 214
fis	965	1 236	1 197	1 416
^{240}Pu	778	797	2 241	2 249
^{143}Nd	323	321	306	304
^{147}Sm	82	79	187	184
^{149}Sm	77 800	87 600	72 700	77 900
^{151}Eu	7 830	7 240	8 540	8 270
^{153}Eu	480	460	665	651
^{155}Gd	43 700	35 600	35 500	29 700
^{157}Gd	186 000	157 000	151 000	127 000
^{161}Dy	592	534	826	790
^{164}Dy	2 675	2 665	2 585	2 578
^{176}Lu	5 336	7 596	5 951	7 186

REFERENCES

[1] NAUDET, R., FILIP, A., «Etude du bilan neutronique des réacteurs naturels d'Oklo», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 527.

[2] NAUDET, R., FILIP, A., «Interprétation neutronique des distributions de taux de réaction dans les réacteurs d'Oklo», Ibid., p. 557.

[3] NAUDET, R., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/22.

[4] NAUDET, R., Ibid., IAEA-TC-119/23.

[5] KAVENOKY, A., LORAIN, H., APPOLLO, code multigroupe de résolution de l'équation du transport pour les neutrons thermiques et rapides, CEA-N-1610 (1973).

[6] LUCAS, Monique, et al., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/14.

[7] NEUILLY, Michèle, NAUDET, R., «Etude de la distribution des fluences dans les réacteurs naturels d'Oklo, par analyse isotopique des terres rares», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 541.

[8] CESARIO, J., et al., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/17.

[9] DRAN, J.C., et al., Ibid., IAEA-TC-119/12.

[10] NAUDET, R., RENSON, C., «Résultats des analyses systématiques de teneurs isotopiques de l'uranium», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 265.

ETUDE PARAMETRIQUE DE LA CRITICITE DES REACTEURS NATURELS

R. NAUDET
CEA, Centre d'études nucléaires de Saclay,
Gif-sur-Yvette, France

Résumé–Abstract

ETUDE PARAMETRIQUE DE LA CRITICITE DES REACTEURS NATURELS.

Les conditions de criticité des réacteurs naturels sont examinées d'un point de vue général; une étude paramétrique est présentée qui exprime la possibilité de réactions en chaîne en fonction de cinq paramètres: l'âge du gisement, la teneur du minerai, le volume de minerai riche, la capture neutronique de la gangue, et la quantité d'eau associée à l'uranium. On montre que bien que la criticité puisse théoriquement être réalisée pour des âges ne dépassant pas 1000 à 1200 MA, les conditions doivent être néanmoins exceptionnellement favorables lorsque les gisements sont nettement plus jeunes que celui d'Oklo. Cette étude permet en définitive de mieux apprécier la probabilité de découvrir d'autres réacteurs naturels de fission.

PARAMETRIC STUDY OF THE CRITICALITY OF NATURAL REACTORS.

The criticality conditions of natural reactors are examined from a general point of view; the paper presents a parametric study which expresses the possibility of chain reactions as a function of five parameters: age of deposit, content of ore, volume of rich ore, gangue neutron capture and amount of water associated with uranium. It is shown that although in theory criticality can be reached in the case of ages of not more than 1000 to 1200 million years, the conditions must nevertheless be extremely favourable when the deposits are definitely younger than that of Oklo. All things considered, this study provides a means of better evaluating the probability of discovering other natural fission reactors.

Le code Binocle [1], spécialement mis au point pour l'étude neutronique du phénomène d'Oklo, a été utilisé pour étudier le rôle des principaux paramètres qui conditionnent la criticité d'un réacteur naturel, en fonction de son âge.

PARAMETRES PRIS EN COMPTE

L'âge est une donnée tout à fait essentielle, puisque c'est d'elle que dépend la teneur en noyaux fissiles. En plus de l'âge, on a fait varier systématiquement quatre paramètres, à savoir la teneur du minerai, le volume d'uranium accumulé, la capture neutronique de la gangue, et la quantité de ralentisseurs présents au moment des réactions. On précise ci-après la manière dont ces paramètres ont été pris en compte dans le calcul.

a) Teneur du minerai

Ce qui intervient dans le calcul est le rapport gangue sur uranium à l'époque des réactions ; il est commode de substituer à cette quantité une notion plus "parlante" qui est la teneur du minerai actuel. Mais il faut pour cela tenir compte de la décroissance radioactive de l'uranium, qui depuis cette époque s'est transformé partiellement en plomb, de l'eau résiduelle du minerai prise en compte par ailleurs (car on admet que celle-ci n'est pas représentative), enfin de ce qu'il a pu y avoir des migrations. La formule utilisée est adaptée au minerai d'Oklo, dans lequel une grande partie du plomb radiogénique a migré : pour un minerai dans lequel les proportions d'eau ou de plomb radiogénique seraient différentes, il faudrait modifier un peu la valeur de t pour que la transposition soit correcte.

A Oklo, la teneur du minerai dans les zones de réaction est généralement comprise entre 30 et 50 % ; on trouve également du minerai plus riche, pouvant exceptionnellement dépasser 60 %;

b) Volume d'uranium accumulé

On a utilisé le modèle du réacteur homogène "nu", c'est-à-dire qu'on fait comme si le minerai était homogène (avec la teneur t) à l'intérieur d'un certain volume supposé entouré de vide ; ce volume est caractérisé par son "laplacien géométrique" B^2 (en m^{-2}). Dans la réalité bien entendu, la teneur du minerai varie en tout point, et il n'existe pas de limite définie entre le minerai riche du "coeur" et le minerai pauvre qui l'entoure, et qui d'ailleurs joue un rôle comme "réfecteur" de neutrons. On peut continuer d'utiliser le paramètre B^2 qui intervient dans le bilan pour caractériser globalement les fuites de neutrons, mais c'est une grandeur qui devrait être calculée dans chaque cas particulier en tenant compte de la répartition détaillée de l'uranium dans toutes les directions.

On rappelle que pour une sphère de rayon R, $B^2 = \pi^2/R^2$, et pour un parallélépipède des côtés a, b, c, $B^2 = \frac{\pi^2}{a^2} + \frac{\pi^2}{b^2} + \frac{\pi^2}{c^2}$; dans le cas d'une plaque infinie d'épaisseur H, on a en particulier $B^2 = \pi^2/H^2$. Si l'uranium se présente sous forme d'une couche de minerai riche, cette dernière formule donne le B^2 e, fonction de ce qu'on peut appeler "l'épaisseur équivalente" H de la couche riche. Dans la définition de cette épaisseur équivalente, il faut tenir compte du minerai plus pauvre qui se trouve de part et d'autre de la passe riche (le "gain de réflecteur" est souvent de l'ordre de 10 cm, ce qui augmente donc de 20 cm environ l'épaisseur de la passe), mais il faut aussi tenir compte des limitations ou variations de teneur dans les deux autres dimensions (H doit être diminué si on trouve latéralement du minerai plus pauvre, ou si la passe riche va en s'amincissant).

A Oklo, le B^2 dans les zones de réaction est généralement de l'ordre de 10 à 30 m^{-2}, soit une épaisseur équivalente de 60 à 100 cm. (Pour un amas à peu près sphérique, la même gamme de B^2 correspondrait à un volume de l'ordre de 1 à 4 m^3).

c) Capture neutronique de la gangue

Là encore, il faut faire intervenir bien entendu la composition de la gangue au moment des réactions (il a pu y avoir des migrations depuis cette époque). On a pris comme référence la composition moyenne du minerai

d'Oklo actuel, hors eau, hors poison, et on a défini les variations de capture par rapport à cette référence au moyen d'une quantité x, qui est un nombre de ppm de bore 10 équivalent.

La gangue à Oklo est argileuse, formée de silicoaluminates ferromagnésiens et potassiques ; en dehors des éléments majeurs des phyllosilicates, il y a très peu d'éléments absorbants (principalement un peu de manganèse). Mais il faut tenir compte en outre des "poisons", principalement les terres rares et le bore. Les terres rares (samarium, gadolinium) peuvent être représentées par un x de l'ordre de 10 à 15. On ne sait pas quelle était la teneur en bore, car celui-ci a été renouvelé, mais dans le minerai actuel on trouve 50 à 250 ppm de bore naturel (soit 10 à 50 ppm de B 10) ; les autres poisons semblent avoir été peu abondants. On peut donc admettre que le x du minerai d'Oklo était vraisemblablement de l'ordre de 20 à 70 (cet ordre de grandeur peut d'ailleurs être retrouvé par différentes considérations neutroniques).

Certains minerais d'uranium ont des gangues nettement plus capturantes que ceux d'Oklo. On peut imaginer à l'inverse une capture plus réduite ; par exemple le minerai "normal" d'Oklo a une gangue gréseuse, avec quelquefois plus de 90 % de silice et moins de 2 % de fer, et une section de capture pouvant descendre à 40 % de celle du minerai des zones de réaction ; le gain est dans ce cas équivalent à 20 ppm de B 10. Dans le cas idéal d'un minerai qui ne contiendrait aucun poison, on pourrait donc descendre théoriquement jusqu'à x = - 20. C'est pourquoi on a étudié la gamme - 20 à + 100.

d) Quantité d'eau présente

On a admis que l'eau était présente sous deux formes : l'eau de structure liée à la gangue, et l'eau imprégnant l'ensemble du minerai (ce pouvait être d'ailleurs plus généralement un liquide hydrogéné ; on raisonne sur une équivalence en pouvoir modérateur). Cette dernière quantité est fonction de ce qu'on peut appeler la "porosité ouverte" du minerai ; on l'a définie par le rapport m du volume occupé par le liquide au volume du minerai proprement dit (oxyde d'uranium + gangue).

Lorsqu'on fait varier la teneur du minerai en gardant m constant, on fait varier le rapport de modération ; pour un même m un minerai pauvre peut se trouver sur-modéré et un minerai très riche sous-modéré. Nous pensons qu'il est préférable de raisonner de cette manière, plutôt que d'admettre que le rapport de modération est toujours voisin de l'optimum. L'étude des distributions de taux de réaction le long des sondages a montré qu'il y avait effectivement une liaison entre la teneur et le rapport de modération. D'autre part il n'y a aucune raison de supposer qu'on se trouve à l'optimum ; celui-ci pour un minerai très riche exige une porosité ouverte considérable qui n'est pas forcément réaliste.

L'analyse des taux de réaction, qui permet de calculer des "indices de spectre", conduit à penser qu'à Oklo le m était de l'ordre de 0.4 à 0.5 (on a admis que la gangue contenait en outre environ 10 % de son poids en eau de structure). Il s'agit d'une porosité très grande, qui peut s'expliquer par les actions tectoniques qui auraient broyé et étiré les roches dans lesquelles l'uranium est venu se loger. Pour les calculs présentés, on a utilisé le même formalisme en faisant varier m dans la gamme 0.3 à 0.5 (on a considéré exceptionnellement des valeurs de 0.2 à 0.7).

TABLEAU I. RESULTATS OBTENUS POUR DES AGES COMPRIS ENTRE 2000 ET 1000 MA, B^2 AJUSTE

Age	Teneur	x = 0 m = 0.40	x = 20 m = 0.40	x = 50 m = 0.50	x = 50 m = 0.40	x = 50 m = 0.30	x = 100 m = 0.40
2000 MA	30 %	B^2=43 m^{-2}	29 m^{-2}	11 m^{-2}	10 m^{-2}	8 m^{-2}	- 17 m^{-2}
	40 %	51	41	32	28	23	7
	50 %	52	46	43	36	28	22
	60 %	48	44	47	38	27	29
1800 MA	30 %	32	16	- 4	- 4	- 5	- 34
	40 %	42	31	19	16	12	- 7
	50 %	45	38	33	27	20	11
	60 %	42	38	39	31	21	21
1600 MA	30 %	30	3	- 22	- 20	- 19	- 51
	40 %	32	20	4	3	0	- 22
	50 %	37	28	21	16	11	- 2
	60 %	36	30	30	23	14	11
1400 MA	30 %	7	- 12	- 40	- 36	- 34	- 69
	40 %	21	7	- 12	- 12	- 13	- 38
	50 %	28	18	8	4	0	- 16
	60 %	28	22	19	13	6	0
1200 MA	30 %	- 8	- 28	- 59	- 54	- 49	
	40 %	8	- 7	- 29	- 27	- 26	
	50 %	17	6	- 7	- 9	- 11	
	60 %	19	13	7	3	- 3	
1000 MA	30 %	- 25					
	40 %	- 5					
	50 %	6					
	60 %	10					

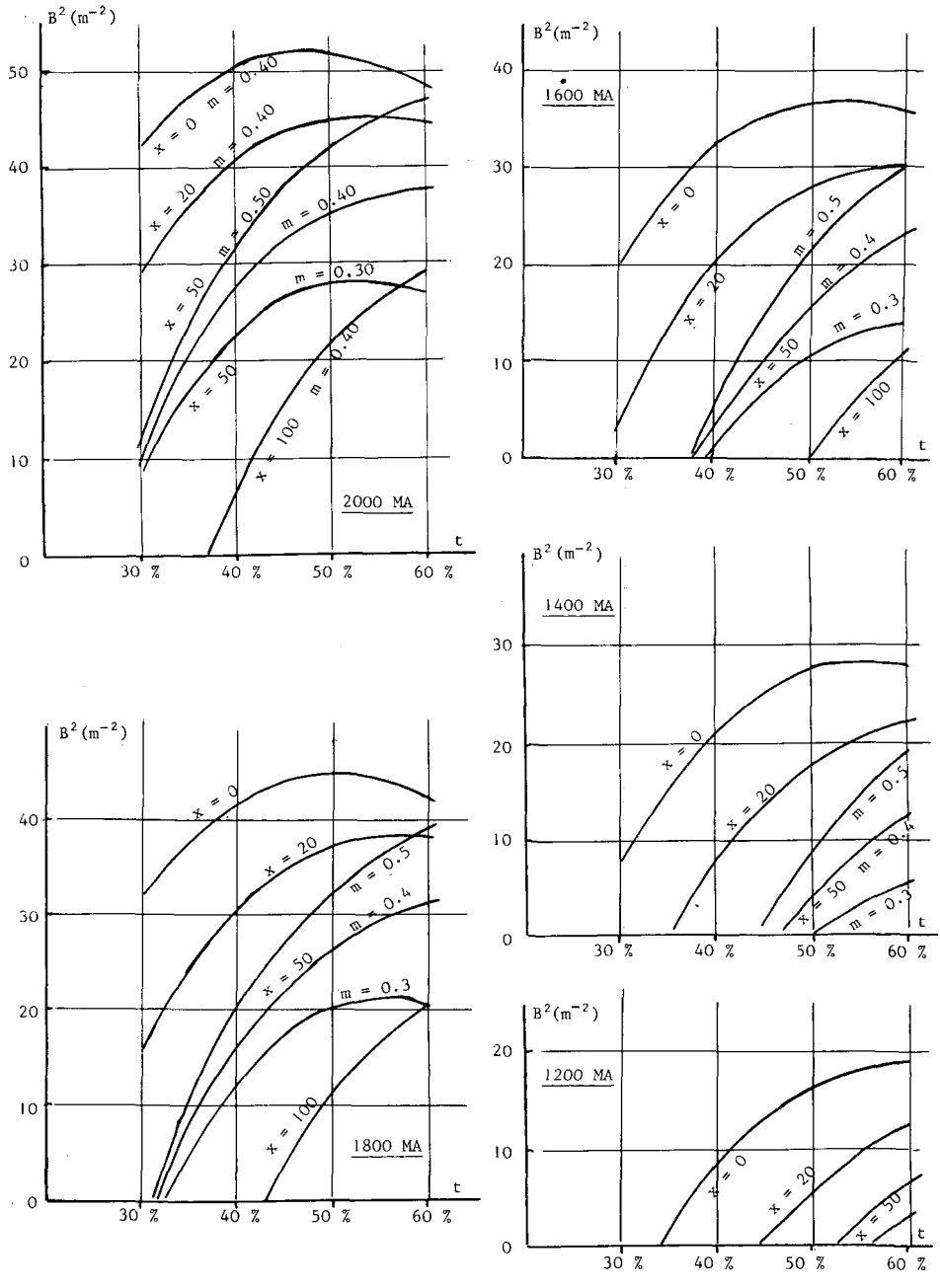


FIG.1. Variation de B^2 en fonction de t pour différentes valeurs de x.

Deux autres paramètres, qui interviennent de manière mineure dans le bilan neutronique, n'ont pas fait l'objet de variations systématiques : il s'agit de la température et de l'hétérogénéité du minerai. Les calculs ont été faits pour une température de 120 °C (qui correspond à un recouvrement de l'ordre de 3000 à 4000 mètres), et pour une structure granulaire assez représentative d'un minerai riche tel que celui d'Oklo (l'hypothèse d'un uranium dilué de manière homogène dans la gangue est un peu plus défavorable).

CALCULS EFFECTUES ET RESULTATS

Le code Binocle est un outil très commode pour les études paramétriques ; on peut enchaîner les paramètres, et obtenir la condition critique par itération sur n'importe lequel de ces paramètres. Tous les résultats présentés sont donc relatifs à des milieux où la criticité est effectivement réalisée.

On a calculé plus de 240 milieux qui sont groupés en quatre séries. Dans les deux premières, on a considéré des âges compris entre 2000 et 1000 MA, et on a donné deux présentations différentes aux résultats en ajustant soit le B^2 soit le x critique. On a examiné ensuite les adaptations nécessaires lorsqu'on passait à des âges plus élevés (→ 3000 MA) ou contraire des âges plus récents (gamme 1200 à 700 MA). Les groupements de paramètres utilisés sont les suivants :

a) Ages 2000 - 1800 - 1600 - 1400 - 1200 MA

t = 30 - 40 - 50 - 60 %	B^2 ajusté	x = 0	m = 0.4
"	"	x = 20	"
"	"	x = 50	m = 0.3 - 0.4 - 0.5
"	"	x = 100	m = 0.4

Les résultats sont donnés dans le tableau I (figure 1).

b) Ages 2000 - 1800 - 1600 - 1400 - 1200 - 1000 MA

t = 30 - 40 - 50 %	B^2 = 30 m^{-2}	x ajusté	m = 0.4
"	B^2 = 10 m^{-2}	"	"
t = 50 - 60 %	"	"	m = 0.5

Les résultats sont donnés dans le tableau II (figure 2).

c) Ages 3000 - 2800 - 2600 - 2400 - 2200 MA

t = 10 - 20 %	B^2 = 30 m^{-2}	x ajusté	m = 0.2
5 - 10 - 15 - 20 %	B^2 = 10 m^{-2}	"	"

Les résultats sont donnés dans le tableau III (figure 3).

d) Ages 1200 - 1100 - 1000 - 900 - 800 - 700 MA

t = 50 %	B^2 = 10 m^{-2}	x ajusté	m = 0.4 - 0.5 - 0.6 - 0.7
t = 70 %	B^2 = 4 m^{-2}	"	"

Les résultats sont donnés dans le tableau IV (figure 4).

TABLEAU II. RESULTATS OBTENUS POUR DES AGES COMPRIS ENTRE 2000 ET 1000 MA, x AJUSTE

	B^2 = 30 m^{-2} m = 0.4			B^2 = 10 m^{-2} m = 0.4			B^2= 10m^{-2} m = 0.5	
Age	t = 30 %	40 %	50 %	30 %	40 %	50 %	50 %	60 %
2000	x = 21	47	73	50	92	144	159	251
1800	4	24	43	29	62	102	110	182
1600	- 19	5	18	11	37	67	74	125
1400	- 21	- 11	- 3	- 3	16	37	42	78
1200	- 30	- 24	- 21	- 16	- 2	13	15	38
1000	- 38	- 35	- 36	- 26	- 16	- 7	- 6	6

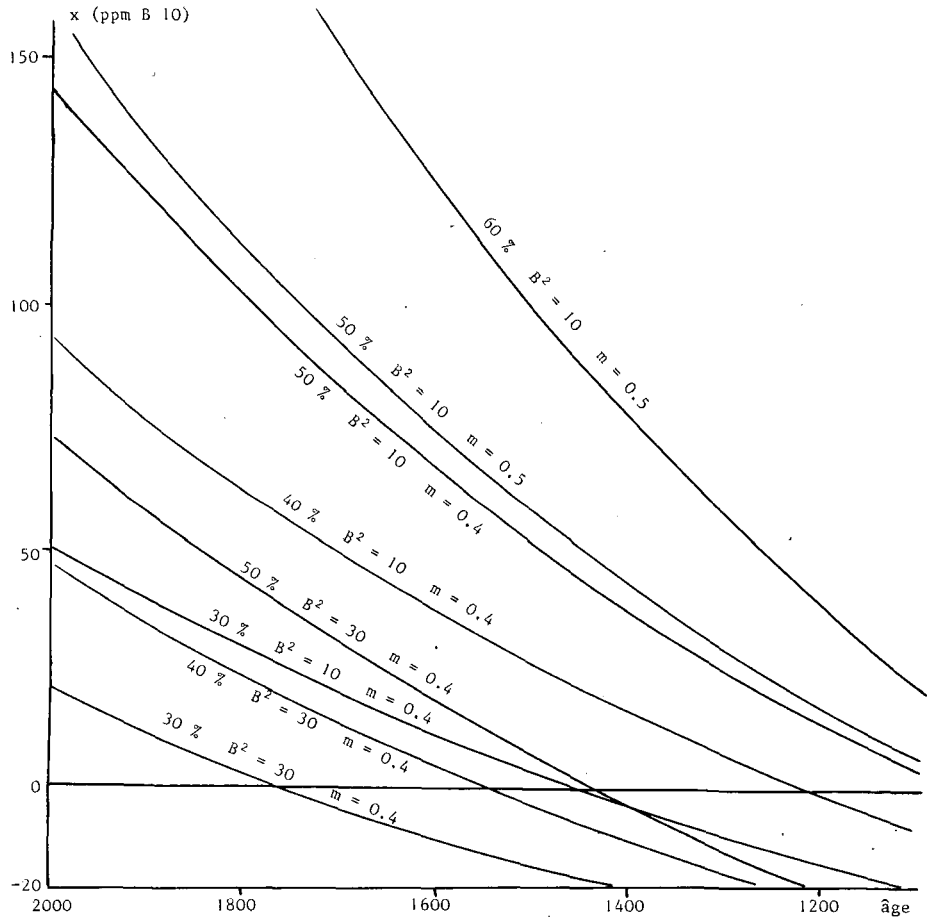


FIG.2. Variation de x en fonction de l'âge pour plusieurs combinaisons des paramètres t, B^2 et m.

TABLEAU III. RESULTATS OBTENUS POUR DES AGES COMPRIS ENTRE 3000 ET 2200 MA, x AJUSTE

	B^2 = 30 m^{-2} m = 0.2			B^2 = 10 m^{-2} m = 0.2			
Age	t = 10 %	20 %	30 %	5 %	10 %	15 %	20 %
3000	x = 17	69	110	- 1	40	79	117
2800	7	49	82	- 8	26	58	89
2600	- 3	32	59	- 14	13	40	66
2400	- 10	17	39	- 20	3	25	46
2200	- 17	5	23	- 24	- 6	12	29

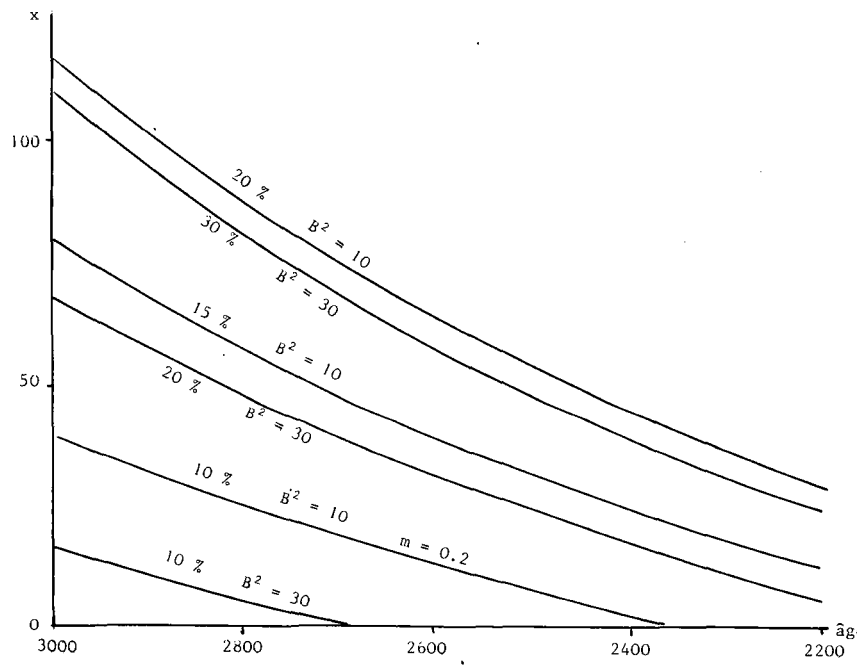


FIG.3. Variation de x pour des âges plus élevés et des teneurs plus basses.

COMMENTAIRES

Pour la première série on a représenté, pour chaque âge, B^2 en fonction de t pour une série de valeurs de x (et plusieurs valeurs de m dans le cas moyen x = 50). Chaque courbe donne donc l'épaisseur de la passe critique en fonction de la teneur du minerai (si B^2 devient négatif, cela veut dire que la criticité n'est plus possible, même pour des accumulations de minerai riche très grandes). On remarque que ces courbes ont parfois un

TABLEAU IV. RESULTATS OBTENUS POUR DES AGES COMPRIS ENTRE 1200 ET 700 MA, x AJUSTE

	t = 50 % B^2 = 10 m^{-2}				t = 70 % B^2 = 4 m^{-2}			
Age	m = 0.4	0.5	0.6	0.7	0.4	0.5	0.6	0.7
1200	12	17	20	22				
1100	2	6	8	10	28	63	90	109
1000	- 8	- 5	- 3	- 2	4	34	58	74
900	- 17	- 14	- 13	- 12	- 18	9	29	42
800	- 24	- 22	- 21	- 21	- 38	- 10	2	14
700					- 56	- 35	- 22	- 10

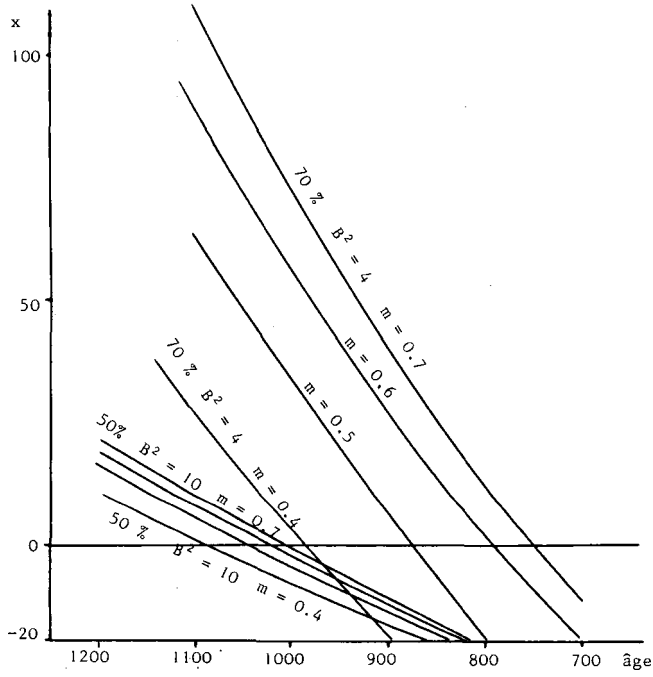


FIG.4. Variation de x pour des âges plus récents et des teneurs élevées.

maximum : on ne gagne plus rien à augmenter la teneur du minerai : c'est l'effet de la sous-modération qui devient alors excessive. Les courbes x = 50 montrent d'ailleurs que la variation de m, qui a peu d'effet au voisinage de t = 30 %, joue au contraire beaucoup pour les teneurs élevées (précisément à cause de cet effet de sous-modération).

On voit que pour les âges 1800 à 2000 MA (c'est-à-dire de l'ordre de celui d'Oklo), la criticité est effectivement obtenue pour des gammes de

TABLEAU V. VALEURS DU FACTEUR DE CONVERSION C POUR DES AGES COMPRIS ENTRE 2000 ET 800 MA

Facteur de conversion		2000	1800	1600	1400	1200	1100	1000	900	600
$B^2=10m^{-2}$	t=30%	=0.420	0.436	0.455	0.478	0.505	-	0.538	-	-
m = 0.4	t=50%	0.602	0.619	0.639	0.663	0.691	0.707	0.724	0.743	0.764
$B^2= 4m^{-2}$	m=0.6	-	-	-	-	-	0.876	0.896	0.917	0.939
t = 70 %	m=0.4	-	-	-	-	-	0.974	0.994	(1.015)	(1.036)

valeurs de t, B^2, x et m qui sont bien celles indiquées plus haut. Lorsqu'on descend l'échelle des âges, toutes les courbes se déplacent vers le bas. Pour obtenir la criticité il faut donc des combinaisons de conditions plus favorables ; les résultats permettent d'apprécier ce qu'il faut gagner. On voit que pour 1400 MA par exemple, la criticité est encore possible, mais à condition d'avoir à la fois du minerai très riche ($t > 40$ %, $B^2 < 20\ m^{-2}$), bien modéré, et avec peu de captures ($x < 50$).

Dans la figure 2, on a représenté le x critique en fonction de l'âge pour plusieurs combinaisons de t (30 à 50 %) et B^2 (10 à 30 m^{-2}) ; pour ces valeurs on a gardé m = 0.4, mais on a aussi considéré du minerai plus riche (50 à 60 %) avec un m mieux adapté (0.5). Cette présentation met en évidence le maximum de capture "autorisée" en fonction de l'âge ; plus on descend l'échelle des âges, plus le x, même pour un minerai très riche, doit être petit.

La figure 3 comporte une présentation analogue, pour des âges plus élevés, et des teneurs plus basses. On a choisi un m de 0.2 mieux adapté (encore que ce paramètre ne joue pas un très grand rôle pour cette gamme de teneurs, mais une trop grande valeur commence à être défavorable). On voit que même pour 3000 MA, on ne peut guère aller au-dessous de 10 %.

Enfin on s'est intéressé à des âges plus récents, pour voir jusqu'où on peut descendre dans les conditions les plus favorables. On a d'abord considéré un minerai très riche sans être tout à fait exceptionnel (un mètre à 50 %) en augmentant m pour approcher l'optimum de modération. On voit que le x autorisé décroît en gros de + 20 à - 20 lorsqu'on passe de 1200 à 800 MA. Puis on a considéré le cas limite d'une accumulation énorme de minerai 0.70 % ; dans ce cas l'augmentation de m devient très payante : pour m = 0.7, le x autorisé décroît de 100 à - 10 lorsqu'on passe de 1100 à 700 MA.

D'après ces résultats, on peut considérer 700 MA comme une limite absolue, mais il faut bien voir que déjà au-dessus de 1000 MA les conditions requises ne sont plus guère réalistes. Il est impossible de supposer que le minerai ne contient aucun poison : il y a toujours au moins des terres rares, un certain nombre d'éléments mineurs et presque toujours un peu de bore ; même dans le cas d'une gangue gréseuse très pure, il n'est guère pensable de descendre au-dessous de x = 0. En outre, si on considère du minerai extrêmement riche, il est sans doute irréaliste d'admettre que l'optimum de modération a été réalisé : une porosité de 70 % est tout de même

tout à fait exceptionnelle (et d'ailleurs si on admet que la gangue est formée de grès, il n'y a plus d'eau de structure, et il faudrait donc une porosité encore plus grande pour la même quantité d'eau). Par contre jusqu'à 1200 ou même 1000 MA, la criticité n'est pas impossible dans des conditions très favorables.

REMARQUE

Les calculs effectués fournissent chaque fois une décomposition complète du bilan neutronique ; on obtient en particulier la valeur du "facteur de conversion" C, qui est le rapport des neutrons absorbés dans ^{238}U aux neutrons absorbés dans ^{235}U (c'est aussi un taux de régénération des noyaux fissiles). Le tableau V donne à titre indicatif quelques valeurs de C.

On voit que si on raisonne à t, B^2 et m constants, C augmente quand on descend l'échelle des âges. C'est normal, puisque dans ce cas x va en diminuant ; en effet les neutrons sont absorbés soit dans ^{235}U, soit dans ^{238}U, soit dans la gangue ou l'eau, soit disparaissent en fuites ; dans un milieu critique on augmente donc C si on diminue les captures compétitives et les fuites. Pour un âge donné C augmente lorsqu'on augmente t ou qu'on diminue B^2 et m ; le maximum est obtenu dans le cas t = 70 %, B^2 = 4 ; il devient alors proche de l'unité. Même dans ce cas extrême, C ne dépasse très légèrement 1 que pour x négatif. On peut donc dire que C est toujours inférieur à l'unité dans les cas de criticité "réalistes".

REFERENCE

[1] NAUDET, R., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/21.

PRISE EN COMPTE DES EFFETS THERMIQUES DANS L'ETUDE DU CONTROLE ET DE LA PROPAGATION DES REACTIONS NUCLEAIRES

R. NAUDET
CEA, Centre d'études nucléaires de Saclay,
Gif-sur-Yvette, France

Résumé–Abstract

PRISE EN COMPTE DES EFFETS THERMIQUES DANS L'ETUDE DU CONTROLE ET DE LA PROPAGATION DES REACTIONS NUCLEAIRES.

Il est extrêmement probable que les réactions nucléaires ont été contrôlées par la température; celle-ci agissait principalement sur le rapport de modération en modifiant la densité de l'eau. Comme il semble bien que les réacteurs fonctionnaient sous un fort recouvrement, donc sous une pression élevée, l'eau était surcritique, et il fallait mettre en jeu des températures élevées pour stabiliser les réacteurs (350 à 400°C au moins dans certains cas). Quelques exemples de calculs sont présentés montrant l'évolution de la température de contrôle au cours de l'irradiation. La vitesse des réactions – et donc leur durée – était déterminée par la nécessité de maintenir à tout moment la température nécessaire à la criticité compte tenu des conditions d'évacuation de la chaleur. Celles-ci sont discutées: les durées apparentes mesurées sont compatibles avec une déperdition de chaleur par conduction pure; il est probable néanmoins que des courants de convection existaient, dont les effets se superposaient à ceux de la conduction, et qui déformaient en particulier sensiblement les isothermes. On étudie ensuite la propagation des réactions; celle-ci doit nécessairement être prise en considération, car la criticité ne pouvait être réalisée simultanément partout. La présence dans le minerai de poisons à forte section de capture (gadolinium, samarium) rendait possible l'extension des réactions dans des portions initialement sous-critiques, par destruction progressive des poisons grâce à la diffusion neutronique; mais on montre que ce phénomène est fortement perturbé par les effets thermiques. Des exemples de calculs sont présentés; les résultats dépendent de manière très sensible des hypothèses faites sur les distributions de température; lorsque le couplage thermique est important, la propagation peut être rendue impossible. Une des conclusions de l'étude est que, s'il y a des courants de convection, il y a un sens privilégié pour la propagation qui est l'inverse de celui du courant, donc a priori en direction de l'aval des réacteurs. Toutefois, cette conclusion pourrait être remise en cause en faisant intervenir d'autres considérations.

ALLOWANCE FOR THERMAL EFFECTS IN STUDIES ON THE CONTROL AND PROPAGATION OF NUCLEAR REACTIONS.

It is highly probable that the nuclear reactions were controlled by temperature, the effect of which was exerted mainly on the moderating ratio by modification of the density of water. Since it appears that the reactors were operating under a thick overthrust, and therefore under elevated pressure, the water was supercritical and high temperatures (at least 350 to 400°C in some cases) had to come into play for stabilization of the reactors. The paper presents some examples of calculations showing the pattern of control temperature

evolution during irradiation. The rate of the reactions – and therefore their duration – was determined by the need for the temperature necessary for criticality to be maintained at all times, with due allowance for the conditions of heat removal. The paper discusses these conditions: the apparent durations which have been measured are compatible with a heat loss by pure conduction; it is nevertheless probable that there were convection currents whose effects were superposed on those of conduction and which had the effect, in particular, of considerably deforming the isotherms. A study is then made of the propagation of the reactions, a matter which must of necessity be taken into consideration since criticality could not be reached everywhere at the same time. The presence in the ore of poisons with a high capture cross-section (gadolinium, samarium) made possible the extension of the reactions to portions which were initially subcritical, by progressive destruction of the poisons as a result of neutron diffusion; it is shown, however, that this phenomenon is greatly disturbed by the thermal effects. Examples of calculations are presented; the results depend very critically on the assumptions made with respect to temperature distributions; when there is extensive thermal coupling, propagation may become impossible. One of the conclusions of the study is that if there are convection currents there is a privileged direction for propagation which is the opposite of that of the current, and therefore of necessity downstream from the reactors. However, this conclusion could be called into question by introducing other considerations.

Dans [1], l'étude du contrôle des réacteurs a été abordée sans référence particulière à la température. Lorsqu'on parlait de contrôle par élimination d'une certaine quantité d'eau, le modèle qu'on avait à l'esprit était celui de la vaporisation ; si les réactions s'étaient déroulées sous un faible recouvrement, donc sous une pression modérée, c'est effectivement ce phénomène qui serait intervenu, et les températures auraient été limitées à la température d'ébullition. Mais les géologues nous ont appris que les réactions s'étaient très probablement déroulées sous un fort recouvrement - 3 000 à 5 000 m - donc sous une pression supérieure à la pression critique. Dans ces conditions il ne pouvait y avoir ébullition.

On peut garder le même principe de contrôle, puisque à température élevée la densité de l'eau surcritique s'abaisse fortement ; mais cela signifie que, pour que les réacteurs soient contrôlés, il fallait atteindre des niveaux de température de l'ordre de grandeur de la température critique (350 à 400 °C) au moins dans certains cas. Effectivement, la suite des études a confirmé cette prévision, puisqu'on a démontré l'existence de températures de cet ordre [2][3].

Les problèmes de contrôle se posent alors un peu différemment ; il n'y a plus de risque d'assèchement local, mais en revanche il faut tenir compte d'un grand échelonnement de températures, et les conditions de transfert thermique prennent de l'importance. C'est surtout dans les problèmes de propagation des réactions que ces phénomènes interviennent ; cette question avait été seulement esquissée à Libreville ; il apparaît qu'elle est tout à fait fondamentale pour la compréhension du phénomène d'Oklo ; or on ne peut l'étudier qu'en combinant au couplage neutronique un couplage thermique.

1. Contrôle par la température

On peut considérer comme acquis que l'eau a joué un rôle essentiel dans le contrôle des réactions nucléaires. En effet, en premier lieu, on est certain qu'au moment de leur déclenchement, le déroulement des réactions comportait un facteur d'instabilité, puisque la destruction des "poisons" nucléaires (gadolinium, samarium, bore) libérait plus de réactivité que la destruction des noyaux fissiles n'en consommait. Il fallait donc un mécanisme stabilisant, qui fût capable en outre d'assurer une large compensation (l'excédent de réactivité pouvant atteindre plusieurs milliers de pcm par rapport aux conditions initiales). L'élimination d'eau par élévation de température semble le seul moyen à la fois suffisamment souple et suffisamment efficace pour avoir joué ce double rôle.

D'autre part, on sait qu'il y avait au moment des réactions une quantité d'eau très nettement supérieure à l'eau de structure des argiles de la gangue ; cette eau d'imprégnation occupait une fraction importante du volume total (probablement de l'ordre du tiers) et les calculs [1] montrent que le contrôle des réactions pouvait être exercé par l'élimination d'une fraction seulement de cette eau "supplémentaire" (de l'ordre de la moitié), et donc sans qu'il soit nécessaire de chasser de l'eau de structure. Autrement dit, le contrôle par l'eau apparaît à la fois nécessaire et possible ; enfin le fait qu'on ait trouvé en inclusion dans les quartz un liquide à basse densité, qui avait donc été fortement chauffé au moment de son piégeage [2], tend à montrer que ce mécanisme de stabilisation est bien intervenu.

Pour réduire le rapport eau sur uranium dans le minerai, il suffit en principe d'augmenter par élévation de température le volume spécifique de l'eau occupant la porosité ouverte. On donne en annexe un tableau de valeurs de ce volume spécifique en fonction de la température et de la pression (il s'agit bien entendu d'eau pure ; on sait que les température et pression critiques augmentent avec la salinité). La figure 1 illustre la baisse de densité de l'eau en fonction de la température pour trois pressions particulières. On peut en déduire les températures nécessaires pour multiplier la densité de l'eau par un facteur compris par exemple entre 0.8 et 0.5.

pression	20	100	200	300	400	500 bars
facteur 0.8	212°C	254°C	266°C	277°C	289°C	302°C
facteur 0.5	212°C	311°C	366°C	385°C	405°C	426°C

Les températures "utiles" s'élèvent évidemment avec la pression. Toutefois, on remarque que si la température nécessaire pour obtenir un facteur important sur le volume spécifique augmente vite aux très basses pressions, cette croissance est ensuite plus lente ; par conséquent, dès que les pressions sont élevées, même pour une très grande marge (par exemple entre 300 et 800 bars) la marge correspondante pour les températures reste modérée. Des exemples sont donnés plus loin.

Il faut noter qu'en plus de son effet indirect par le biais de la densité de l'eau, la température a un rôle direct dans le bilan neutronique, en modifiant les sections efficaces effectives d'absorption et de fission de l'uranium 235 (et de certains poisons), en augmentant la capture de l'uranium 238 (effet Doppler), enfin en augmentant un peu les fuites. Cette contribution réduit la quantité d'eau qu'il est nécessaire d'éliminer pour une quantité donnée de réactivité à compenser.

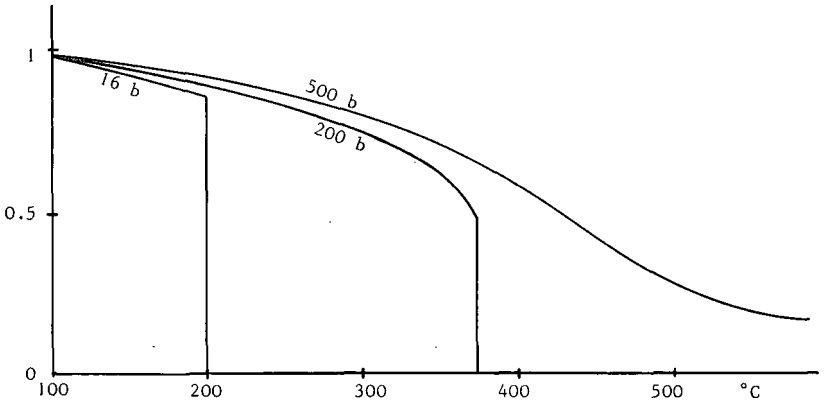


FIG.1. Densité de l'eau en fonction de la température.

A tout moment, il existe donc une température, ou plus exactement un niveau de températures (car celles-ci ne sont pas identiques en tous les points du réacteur) nécessaire pour que la réaction en chaîne soit stabilisée. Le flux neutronique, et donc la puissance, doivent être tels que cette température soit maintenue compte tenu des conditions d'évacuation de la chaleur ; ce sont donc ces dernières qui modulent la vitesse des réactions et par conséquent leur durée.

Dans ce qui suit, on illustre sur deux exemples la manière dont intervient la température dans le contrôle, puis on s'interroge sur les conditions d'évacuation de la chaleur en recherchant quelles vitesses de réaction étaient compatibles avec le maintien de ces températures.

2. Exemples d'évolution

Comme on l'a déjà fait dans [1], on a examiné au moyen du code Binocle [4] comment se présente l'évolution du bilan neutronique dans un "réacteur-point" au fur et à mesure du déroulement des réactions, mais cette fois on a introduit la température comme paramètre. Les hypothèses de base sont les mêmes, c'est-à-dire qu'on suppose qu'il n'y a pas de modification de composition du milieu au cours des réactions (en dehors de la teneur en eau), que la géométrie reste la même, et que la compensation est obtenue uniquement par destruction neutronique des poisons. Le milieu de référence a une teneur en uranium de 40 %, le paramètre m caractérisant l'eau supplémentaire est de 0.40, le laplacien géométrique B^2 est de 15 m^{-2} (soit une épaisseur équivalente de 81 cm), la température initiale de 120 °C. On trouve alors que la criticité en uranium neuf est obtenue avec x = 47.2 ppm de bore 10 ou l'équivalent. Dans la situation finale, la criticité est obtenue à nouveau, sans poison, pour la même quantité d'eau et la même température, avec un appauvrissement isotopique de l'uranium e = 0.485 % ; cet exemple correspond donc à des conditions de criticité très favorables, d'où un taux de réaction élevé.

TABLEAU I. EXEMPLE D'EVOLUTION

τ n/kb	e %	x ppmB	m critique T= 120°	m critique T= 360°	m critique T= 440°	T critique P= 200b	T critique P= 500b	C T= 120°	C P= 500b
0	0.720	47.2	m=0.40			T= 120	T= 120	C=0.520	C=0.520
0.01	0.718	39.3	0.338	0.465	0.507	185	190	0.547	0.530
0.1	0.696	23.8	0.236	0.306	0.326	310	330	0.609	0.587
0.3	0.691	11.1	0.193	0.257	0.267	345	375	0.637	0.624
0.5	0.627	5.1	0.187	0.245	0.261	350	380	0.651	
0.7	0.595	2.4	0.199	0.264	0.282	340	370	0.652	
0.9	0.565	1.1	0.222	0.301	0.325	310	330	0.647	
1.1	0.535	0.5	0.258	0.365	0.401	290	285	0.636	
1.3	0.507	0.2							
1.47	0.485	-	0.40			120	120	0.589	0.589

Le tableau I décrit les étapes : pour chaque valeur de la fluence τ, on a de nouvelles valeurs de **x** et e (pour simplifier, on a défini e pour un facteur de conversion constant (il faudrait faire une itération en utilisant les résultats du calcul) ; d'autre part on a ventilé le poison en bore, samarium et gadolinium). Plutôt que de rechercher directement la température qui assure la criticité en calculant la densité de l'eau en fonction de la température, on a fait varier indépendamment cette densité en écrivant $d = \frac{m}{m_0} d_0$, et on a ajusté m pour plusieurs valeurs de T ; cet artifice permet d'une part de séparer les effets directs et indirects de la température, et d'autre part d'examiner comment la température de contrôle varie avec la pression.

On note d'abord que le m critique croît sensiblement avec T, cela illustre la remarque faite plus haut : à cause des effets directs de la température sur le bilan neutronique, la quantité d'eau à enlever pour assurer la criticité est moindre à température élevée. Par exemple pour τ = 0.1, à un moment où la moitié des poisons a été consommée, il faudrait enlever environ 40 % de l'eau supplémentaire si la température restait 120 °C ; il suffit d'en enlever 23 % si la température est de 360 °C. En effet lorsqu'on passe de 120 à 360 °C, la baisse de réactivité, à quantité d'eau constante, est de l'ordre de 2570 pcm (2.57 %) ; elle se décompose de la manière suivante : effet des sections efficaces effectives de l'uranium 235 sur η : ∿ 1250 pcm, sur f : ∿ 270 pcm ; effet Doppler (sur p) : ∿ 735 pcm ; effet sur les fuites ∿ 280 pcm ; la variation est en moyenne de 10.5 pcm/°C. On trouve finalement que l'action directe de la température représente près d'un tiers de l'effet total, ce qui a pour conséquence d'abaisser la température de contrôle par rapport à ce qui serait calculé en ne tenant compte que de l'action sur l'eau.

Connaissant la densité de l'eau qui rend le milieu critique en fonction de la température, et d'autre part la relation entre densité et température pour une pression donnée, on déduit facilement la température

TABLEAU II. DEUXIEME EXEMPLE D'EVOLUTION

τ n/kb	e %	x ppmB	m critique			T critique		C
			T=120 °C	T=360 °C	T=440 °C	P = 200b	P = 500b	T=120 °C
0	0.720	30	0.393	0.562	0.633	120	120	0.500
0.1	0.697	20.4	0.334	0.456	0.495	185	190	0.527
0.3	0.652	9.5	0.302	0.409	0.443	215	223	0.551
0.5	0.611	4.4	0.317	0.447		190	195	0.556
0.7	0.572	2.0	0.370			130	135	0.546

de contrôle pour chaque pression : le tableau donne les valeurs pour P = 200 et 500 bars. On voit que dans le premier cas la température maximale est de 350 °C ; la température d'ébullition qui est de 362 °C n'est donc pas atteinte : à cette pression, le contrôle peut être assuré sans avoir recours à la vaporisation. On voit d'autre part que lorsqu'on passe de 200 à 500 bars, la température maximale augmente de 30 °C.

En fait, il faudrait lier la température de départ à la pression ; l'une et l'autre sont fonction de l'enfouissement, d'une manière d'ailleurs mal connue (pression hydrostatique ou lithostatique, valeur du degré géothermique). Si par exemple, pour P = 200, la température de départ est 70 °C, la température maximale est seulement de 335 °C (en fait elle s'abaisse peu, car la densité de l'eau varie beaucoup moins vite à basse température). Finalement on constate que l'élévation de température imposée par le contrôle reste du même ordre à 200 et 500 bars, soit en gros 260 °C (de 70 à 335 °C dans le premier cas, de 120 à 380 °C dans le second).

Le tableau donne également l'évolution du facteur de conversion, dans le cas où la température est maintenue à 120 °C, et dans celui où le réacteur est contrôlé par la température à 500 bars ; la valeur moyenne est un peu plus basse dans le second cas, malgré l'effet Doppler, parce qu'on enlève moins d'eau.

Le tableau II donne un deuxième exemple ; c'est en fait le même milieu mais on a réduit son épaisseur donc augmenté les fuites (B^2 = 24 m^{-2}, ou H = 64 cm) ; la criticité initiale n'est obtenue qu'avec x = 30 ppm de bore 10 (on a supposé que les isotopes capturants des terres rares étaient déjà détruits au moment de la criticité), et dans la situation finale l'appauvrissement isotopique est modeste.

Dans ce cas, l'élévation de température imposée par le contrôle est seulement d'un peu plus de 100 °C. La figure 2 représente l'évolution de la température dans les deux cas. On note également que le facteur de conversion moyen est nettement plus petit, bien qu'on ait la même teneur de minerai, et la même quantité d'eau à l'arrêt : cela résulte à la fois de ce que l'uranium est moins appauvri, et qu'on a moins enlevé d'eau au cours des réactions.

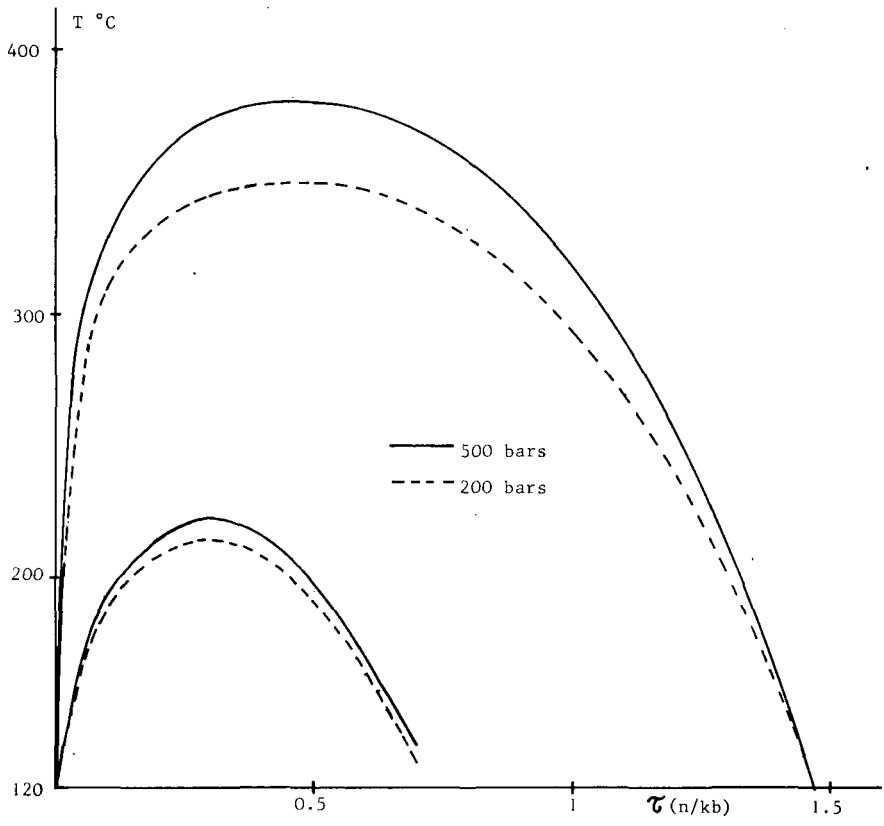


FIG.2. Evolution de la température de contrôle en fonction de l'irradiation.

Remarque. L'étude des inclusions fluides [2] semble indiquer qu'il y a eu des températures élevées (∿ 400 °C), ou ce qui revient au même des densités de fluides basses (∿ 0.55), même dans des secteurs où les appauvrissements isotopiques ont été modestes. Les calculs précédents peuvent conduire à des températures plus grandes, si on suppose la pression plus élevée (par exemple 1000 bars), et aussi si on augmente m : en effet, au-delà d'une certaine quantité, on gagne beaucoup moins en augmentant la quantité d'eau et la fraction à enlever pour le contrôle devient donc plus grande. Néanmoins, ce n'est sans doute pas suffisant pour justifier des températures aussi élevées dans le cas de la zone 4 par exemple.

Si l'interprétation des mesures est maintenue, on peut chercher une explication dans plusieurs directions. Ou bien l'eau "supplémentaire" était davantage liée à la gangue, et il fallait atteindre un seuil de température élevé pour l'extraire. Ou bien d'autres éléments sont intervenus dans l'évolution du bilan neutronique ; par exemple si le poison était éliminé par voie géochimique dès le début des réactions, ou si la géométrie du

milieu était modifiée pendant les réactions, la quantité de réactivité à compenser pouvait être plus grande que celle qui a été prise en compte ici. Il est bien clair qu'il s'agit d'un modèle simple qui peut être remis en question dans la suite des études ; en tout état de cause, ces calculs ont l'intérêt de donner des ordres de grandeur de l'élévation de température pour une marge donnée de réactivité à compenser.

3. Considérations élémentaires sur les transferts thermiques

On connaît la quantité totale de chaleur qui a été dégagée au cours des réactions, puisqu'on peut la déduire de l'uranium 235 manquant ; on sait que cette énergie est de l'ordre de 500 milliards de mégajoules, ou 120 milliards de thermies. C'est en gros la quantité de chaleur nécessaire pour élever de 200 °C la température de 1 km^3 de terrain, soit à peu près un million de fois le volume des zones de réaction. C'est donc une quantité de chaleur considérable, dont les effets ont pu être importants. Mais la quantité dégagée par unité de temps était très faible. Si par exemple les réactions ont duré en tout 1 million d'années, soit $0.32\ 10^{14}$ secondes, la puissance moyenne a été de 16 kW. Il est d'ailleurs possible et même probable que les réactions ont été échelonnées, et ont duré au total plus longtemps, et donc que la puissance a été en moyenne plus faible.

Dans le sondage SC 36 et en son voisinage (KN 50), la durée de réaction a été évaluée à 600 000 ans [7], à partir des taux de fission dans le plutonium ; ce chiffre doit être porté à au moins 800 000 ans, si on admet que la température était proche de 400 °C (la section effective de fission du plutonium croissant fortement avec la température). A cet endroit, l'accumulation d'uranium est très grande, et les appauvrissements isotopiques très élevés, et il est probable que les réactions ont été plus longues qu'ailleurs, mais il est justifié d'examiner l'évacuation de chaleur dans ce secteur particulier, puisque c'est le seul pour lequel nous avons une indication de durée relativement précise.

Dans le SC 36, on a mesuré tout au long les teneurs en uranium et les appauvrissements isotopiques ; on connaît donc la quantité cumulée d'uranium 235 manquant ; c'est 0.286 grammes par cm^2 de section droite du sondage. Cette quantité correspond à l'époque des réactions à environ 2.9 grammes d'uranium fissionné, soit $0.6\ 10^{11}$ calories, d'où en rapportant cette énergie à 800 000 ans une puissance de $2.4\ 10^{-3}$ cal/s, toujours par cm^2 de section droite (ou encore une densité de puissance de l'ordre de 10^{-4} w/cm^3 si on admet que cette puissance a été produite sur un mètre).

Supposons d'abord que les échanges de chaleur aient été négligeables dans la couche elle-même, toute la puissance étant évacuée par les épontes (figure 3 ; flèches 2). La couche étant inclinée d'environ 45 °, le flux de chaleur traversant chaque éponte était en moyenne de $0.8\ 10^{-3}$ $cal/cm^2.s$.

La conductivité thermique des terrains est a priori très mal connue ; on trouve dans la littérature un facteur 10 entre les valeurs extrêmes de conductivité possible ; celle-ci dépend en effet non seulement de la nature des minéraux, mais aussi et surtout de leur texture, de leur degré de fracturation, de la quantité d'eau qui les imprègne, etc. Un ordre de grandeur que l'on peut risquer est 0.001 à 0.002 cal/cm.s.°C ; la conductivité est nettement plus grande dans les roches grenues et compactes (marbre, granite 0.005 à 0.006) ; la moyenne de la croûte terrestre est évaluée à

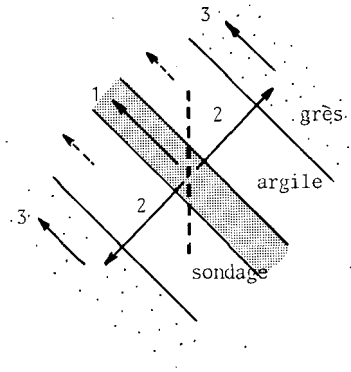


FIG.3. Schéma d'évacuation de la chaleur: 1 – convection dans la couche; 2 – chaleur transmise par les épontes; 3 – convection dans les épontes.

0.004 ; mais elle peut être encore plus faible que 0.001 dans des roches très délitées (et sèches) ; il semble raisonnable de choisir une valeur intermédiaire entre les extrêmes, car si les terrains étaient probablement très facturés au voisinage des réacteurs, ils étaient imprégnés d'eau, et la conductivité de l'eau est voisine de 0.0015. Pour une conductivité de cet ordre, et pour le flux de chaleur indiqué, on est conduit à un gradient de température de 40 à 80 °C par mètre (il s'agit, précisons-le bien, de la moyenne au cours du temps du gradient à la frontière du réacteur).

On doit d'abord se demander si ces chiffres sont compatibles avec une évacuation de la chaleur qui se serait faite uniquement par conduction. Considérons le cas théorique d'une sphère de rayon R, plongée dans un milieu homogène infini de conductivité k. On montre facilement qu'à l'équilibre le flux de chaleur transmis à travers la surface est : $k\Delta T/R$, ΔT désignant la différence de température entre la surface et l'infini. Si on fait par exemple R = 60 cm, ΔT = 200 °C, k = 0.0015, on trouve 0.005 cal/cm^2.s, et si on suppose que la densité d'énergie produite dans la sphère est au total de 0.6 10^9 cal par cm^3 (moyenne du SC 36), la durée pendant laquelle la température peut être maintenue sur la surface est de 75 000 ans (calculéesur le flux asymptotique ; en réalité elle est un peu plus courte si on suppose la température maintenue dès le début car le flux est plus grand pendant la mise en régime). Donc, pour un réacteur isolé de l'ordre du mètre cube, la nécessité de maintenir une température élevée pour le contrôle entraîne une déperdition de chaleur nettement plus grande que celle qui a été observée, d'où une durée sensiblement plus courte.

Si maintenant on groupe un ensemble de réacteurs fonctionnant simultanément, la déperdition de chaleur est moins importante en valeur relative : la formule montre que , si on maintient la densité d'énergie dans la sphère , la durée croît comme le carré du rayon ; pour un réacteur sphérique de 130 m^3, avec les chiffres indiqués, la durée serait de 2 millions d'années. Dans le cas d'Oklo, le groupement des réacteurs en "galette" donne lieu à un facteur de forme (rapport surface sur volume) moins favorable

que la sphère, et la durée serait plus petite pour un volume donné. On voit néanmoins que dans ce modèle simple une durée de l'ordre de 800 000 ans pourrait être retrouvée pour un groupement convenable des réacteurs.

En réalité le problème n'est pas posé correctement. Si on augmente le volume en maintenant la densité de puissance uniforme dans la galette, la température croît beaucoup plus au centre que sur les bords et tend à devenir énorme. Or il est nécessaire de considérer qu'on a un ensemble de réacteurs élémentaires dont chacun doit être régulé séparément. Pour maintenir les températures, il faut que la densité de puissance soit beaucoup plus grande sur les bords, et pratiquement nulle au centre. Autrement dit les réacteurs ne peuvent fonctionner simultanément, et dans la mesure où ils le font, ceux du centre fonctionnent beaucoup plus lentement que ceux de la périphérie. On remarque que la manière de poser le problème compte énormément ; en réalité elle reste de toute façon artificielle, car on voit bien qu'on ne peut pas séparer l'étude thermique de celle du contrôle neutronique. Il serait donc illusoire de poursuivre l'étude de ces modèles trop schématiques. On a simplement voulu montrer que l'ordre de grandeur trouvé pour la durée pourrait être justifié en ne faisant appel qu'à la conduction.

Cependant, tout un ensemble de raisons tendent à montrer que la convection n'a pas été absente ; on en voit les effets géochimiques qui semblent très importants, et en tout état de cause, il est naturel de penser que dans ces terrains fortement tectonisés, des circulations ont été induites par les différences de température. Les marges sur les calculs de transferts par conduction sont suffisantes pour qu'on puisse admettre que l'évacuation de chaleur ait pu être accélérée par convection. Simplement, il faut admettre que ces courants de convection ne pouvaient être que très lents - sans quoi les réactions n'auraient pas duré si longtemps - et que leurs effets ne faisaient que se superposer à ceux des pertes par conduction qui sont probablement restées significatives.

Les observations minéralogiques [5] montrent que les effets thermiques ont été limités assez étroitement aux zones de réaction ; dans les épontes, au-delà de la distance où des restructurations se sont produites à cause des dégâts d'irradiation, on retrouve rapidement des minéraux de basse température ; il semble qu'au moment où la température était maximale le gradient ait atteint 80 à 100 °C par mètre sur les deux premiers mètres. Ce chiffre n'est pas incompatible avec celui cité plus haut (il tend à montrer cependant que la conductivité n'était probablement pas supérieure à 0.001) ; mais il suggère qu'une certaine convection devait exister dans les épontes à quelque distance du réacteur (fig. 3, flèche 3) ; il suffit en effet d'une très faible circulation dans les grès qui se trouvent au-delà des "argiles de pile" pour que ceux-ci aient été maintenus à basse température, et que par suite le gradient ait été plus marqué dans les argiles.

On peut aussiimaginer qu'une certaine convection existait au sein de la couche riche très fracturée (fig. 3, flèche 1). Cherchons un ordre de grandeur du débit de circulation admissible. Supposons par exemple que la moitié de la puissance ait été emmenée par ce courant (soit une densité de puissance de $1.2\ 10^{-5}$cal /cm^3.s) ; supposons encore que l'eau occupait près du tiers du volume, et que l'échauffement à la traversée du réacteur était de 100 °C par mètre ; on trouve une vitesse de l'eau devant être alors de l'ordre de $4\ 10^{-5}$ cm/s, soit en gros 12 mètres par an. Bien entendu tous ces chiffres sont assez arbitraires, en particulier le gradient d'échauffement, mais ils confirment la modestie du débit de circula-

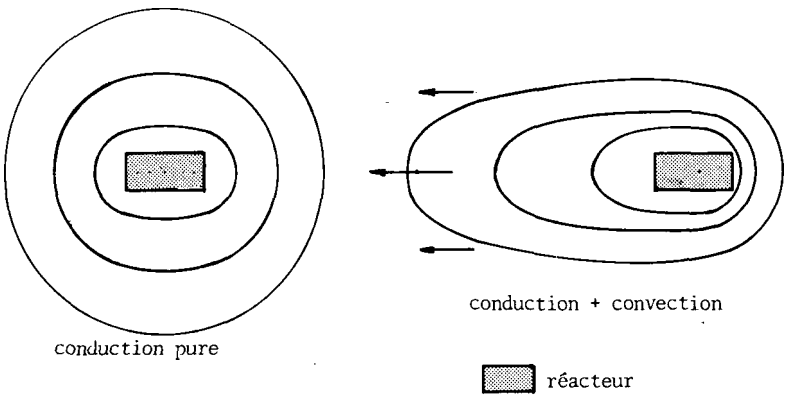


FIG.4. Déformation des isothermes.

tion, puisque la valeur trouvée est plutôt un maximum ; inversement, même pour des perméabilités assez faibles, des vitesses de cet ordre semblent a priori possibles.

Ces courants de convection, dans la mesure où ils ne constituaient qu'un appoint dans l'évacuation de chaleur, avaient surtout pour effet de déformer les isothermes. La figure 4 illustre qualitativement cette déformation telle qu'on peut la prévoir : les isothermes tendent à s'aplatir en se rapprochant de la couche, et d'autre part ils s'allongent en avant dans le sens de la circulation (qui était a priori de bas en haut).

4. Etude de la propagation des réactions

Le milieu ne peut pas avoir été critique partout ; cela n'est d'ailleurs pas nécessaire : la criticité est un phénomène global gouverné par la diffusion des neutrons. Il y a des effets de moyenne, et en particulier du minerai pauvre intégré au sein de minerai plus riche participe aux réactions à condition que ses dimensions soient suffisamment petites. En outre on a montré dans [1] que la présence de poisons à très forte section de capture (gadolinium, samarium) rend possible la propagation des réactions dans de vastes portions initialement sous-critiques, la criticité étant réalisée par destruction progressive des poisons. On a étudié en détail le phénomène au moyen du code CRITO, et on présente dans ce qui suit quelques résultats de calcul ; comme on va le voir, le problème n'est pas aussi simple qu'on l'a cru initialement, à cause des effets de température.

4.1 L'étude a été faite à une dimension, dans le sens de la couche ; les fuites de neutrons dans le sens transversal sont décrites au moyen d'un laplacien géométrique B_t^2 ; dans ce qui suit on appelle coefficient de multiplication k le coefficient obtenu après prise en compte de ces fuites

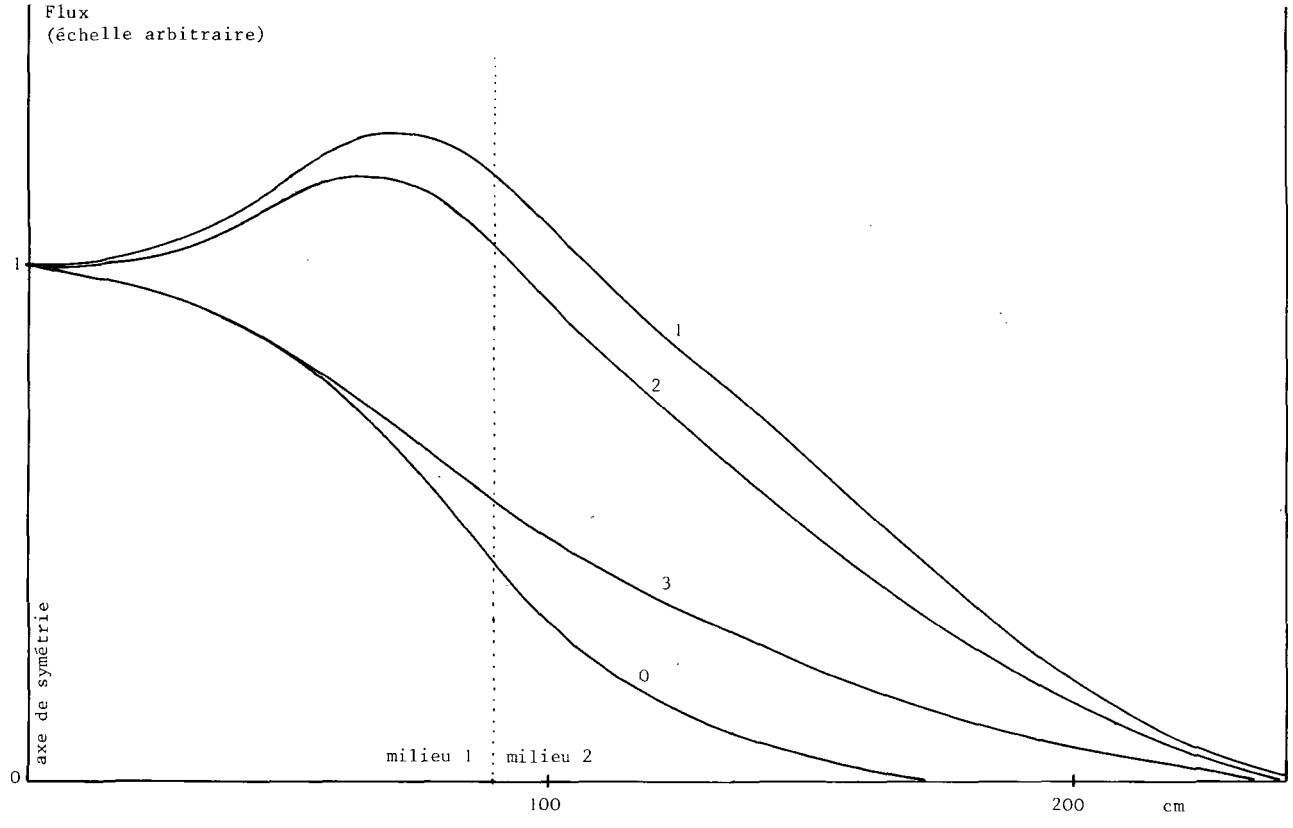


FIG.5. Etude de propagation : 0 – situation initiale; 1, 2, 3 – première étape calculée pour plusieurs distributions de températures.

transversales. Le problème est schématisé de la manière suivante : à partir d'un plan de symétrie, on considère d'abord un milieu de référence s'étendant sur 90 cm : ce milieu, analogue à celui traité plus haut en évolution ponctuelle, a une teneur de 40 %, un m de 0.40 et un B_t^2 de 13 m^{-2} (épaisseur équivalente : 87 cm) ; au départ l'uranium est neuf, la température 120 °C, et le poison est équivalent à 50 ppm de bore 10 ; le milieu est alors légèrement surcritique : k = 1.0089. A la suite, on place un milieu identique mais d'épaisseur plus faible : B_t^2 = 20 m^{-2} (épaisseur équivalente : 70 cm), qui est sous-critique : k = 0.9729. Pour l'ensemble, on trouve k_{eff} = 1.0005 : la criticité est pratiquement réalisée ; on remarque que dans le milieu de référence les fuites latérales ne représentent que 840 pcm (contre 7200 pcm pour les fuites transversales).

La figure 5 illustre la courbe de flux obtenue (indice 0). Si on se réfère à l'étude de réflecteurs présentée dans [4], on voit que le milieu 2 joue le rôle d'un "réflecteur" tout à fait excellent : le "gain" est de 38 cm, et dans la portion où la décroissance du flux est exponentielle, la distance caractéristique (au bout de laquelle le flux est divisé par deux) est de 18.5 cm. Il en résulte que les poisons à forte capture vont se détruire rapidement dans le milieu 2, comme le montre un raisonnement simple. Les poisons représentent à peu près 11 000 pcm et il faut en détruire environ le quart pour atteindre la criticité dans le milieu 2 ; si on suppose que 30 % de la capture se trouve dans les terres rares, il suffit pour cela d'une fluence de 0.013 n/kb. Lorsque la fluence au centre est de 0.1 n/kb, cette valeur de 0.013 est atteinte à 122 cm, soit 32 cm après la limite du milieu 2 (52 cm pour 0.2 n/kb), on voit donc que la portion où k est supérieur à l'unité s'accroît rapidement de plusieurs décimètres. Cela va même encore plus vite, puisque au fur et à mesure que le domaine critique s'étend, la courbe de flux s'allonge, ce qui permet de détruire des poisons plus loin.

La propagation, apparemment, va donc extrêmement vite ; cela provient du fait que le déficit initial en réactivité peut être couvert par la destruction des isotopes capturants des seules terres rares (le bore, lui, est détruit plus lentement). Toutefois, notre raisonnement suppose que, dans ce milieu 2, la température a gardé sa valeur initiale. Or la réactivité croît encore plus vite dans le milieu 1, et pour la contrôler les températures doivent s'élever assez fortement ; le milieu 2 ne peut donc rester à 120 °C d'abord parce qu'il comporte lui aussi des sources de chaleur, et parce qu'il y a propagation (au moins par conduction) à partir du milieu 1. Et c'est justement là où la diffusion neutronique est la plus efficace, c'est-à-dire en bordure immédiate du réacteur, que les températures ont le plus de chance de s'élever. Il y a donc compétition entre les deux processus qui agissent en sens inverse sur la réactivité, et il n'est pas si facile pour le milieu 2 de "rattraper" le milieu 1.

4.2 On a fait le calcul pour une distribution de fluences déduite de la courbe (0), avec 0.3 n/kb au centre, et plusieurs distributions de températures. Les températures doivent être telles que la criticité globale soit maintenue. Pratiquement, à toute distribution, on en fait correspondre une autre comportant des températures un peu plus élevées, et on cherche à encadrer k_{eff} = 1 ; la distribution critique est alors obtenue par interpolation. Les courbes (1)(2) et (3) de la figure 5 représentent le flux pour trois distributions critiques distinctes, qui sont décrites dans le tableau III.

Pour chaque milieu partiel, on calcule les poisons résiduels et l'appauvrissement isotopique de l'uranium en fonction de la fluence moyenne,

TABLEAU III. ETUDE DE LA PROPAGATION DES REACTIONS
Première étape, avec trois distributions de températures

	cm	$\bar{\tau}$(n/kb)	T(1)	T(2)	T(3)	k(1)	k(2)	k(3)
Milieu 1	0 - 40	0.285	383 °C	378 °C	355 °C	0.9934	0.9967	1.0104
	40 - 60	0.245	352	352	355	1.0112	1.0112	1.0088
	60 - 80	0.192	318	322	355	1.0221	1.0208	1.0055
	80 - 90	0.150	283	290	345	1.0293	1.0270	1.0068
Milieu 2	90 - 100	0.120	254	263	314	0.9915	0.9886	0.9714
	100 - 120	0.090	234	243	284	0.9936	0.9908	0.9781
	120 - 140	0.070	219	228	264	0.9952	0.9924	0.9812
	140 - 160	0.040	199	208	234	0.9952	0.9925	0.9842
	160 - 180	0.018	170	180	210	0.9950	0.9921	0.9826
	180 - 200	0.009	160	170	200	0.9886	0.9867	0.9766
	200 - 220	0.003	155	165	193	0.9775	0.9747	0.9665
	220 - 240	0.0006	150	160	190	0.9708	0.9680	0.9574

et la densité de l'eau en fonction de la température. La comparaison des valeurs de k met en évidence le coefficient de température ; celui-ci augmente beaucoup lorsque la température s'élève à cause de l'effet de densité de l'eau : il croît en gros de 28 à 65 pcm/°C quand la température passe de 150 à 360 °C.

Une hypothèse simple pour choisir la distribution de températures consiste à écrire qu'en tout point l'écart de température avec l'ambiante est proportionnel au flux local. C'est ce qu'on a voulu faire en choisissant les distributions (1) ou (2) (en anticipant sur la déformation du flux). En fait, celle-ci n'a pas été conforme à ce qu'on attendait ; ce n'est pas un simple étalement, et la série des valeurs de k montre bien pourquoi : la réactivité est meilleure en bordure du milieu 1 qu'au centre, à cause des températures plus basses, d'où le relèvement de flux dans cette région. Il faut donc choisir une distribution de température plus plate ; c'est ce qu'on a fait en (3) ; mais cette fois on a été trop loin, le flux chute très rapidement. On voit que la courbe de flux répond avec une extrême sensibilité au choix de la distribution de températures ; pour satisfaire à la règle proposée, il faudrait une distribution intermédiaire entre (2) et (3). Mais est-il justifié de respecter cette règle, qui est assez artificielle ? elle suppose que les conditions d'évacuation de la chaleur sont exactement les mêmes partout dans le sens transversal, et qu'il n'y a aucun couplage latéral ; or il y a au moins un couplage par conduction et éventuellement par convection ; finalement le calcul montre que ce sont essentiellement les conditions de transfert thermique qui gouvernent la propagation des réactions.

On note que même dans le cas 1, la criticité n'est atteinte nulle part dans le milieu 2 : l'effet "nocif" de la température est plus important que la destruction des poisons ; a fortiori dans le cas 3, la situation est à peine plus favorable qu'au départ. Néanmoins, même dans ce cas,

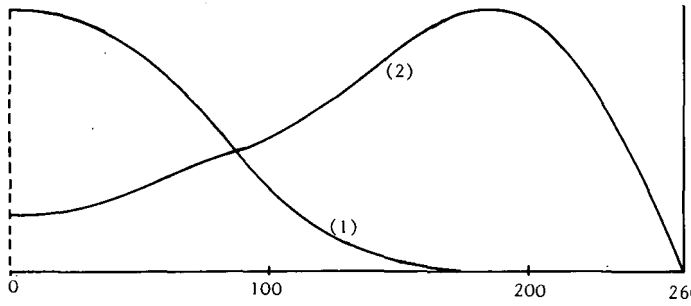


FIG.6. Etude de propagation : 1 – situation initiale; 2 – situation finale.

les réactions ont un peu progressé, et le fait que des quantités importantes de poison soient détruites facilite la suite de l'évolution : quand les températures s'abaissent, parce que l'uranium du milieu 1 s'épuise, le milieu 2 redevient critique et prend le relais. Dans ce cas les effets de température retardent la propagation des réactions, mais ne le rendent pas impossible. On va voir plus loin que ce n'est plus le cas, dès que l'écart avec la criticité devient trop grand.

4.3 Si le milieu 2 continuait indéfiniment, cette propagation se poursuivrait ; on a examiné ce qui se passe lorsque le milieu est limité ; on l'a arrêté à 260 cm du plan de symétrie. La figure 6 représente la distribution de flux finale, c'est-à-dire au moment où la température est revenue à 120 °C partout. Pour cela on a réalisé une série d'étapes d'irradiation ; lorsque les réactions ont gagné tout le milieu, elles ne se poursuivent qu'à condition d'abaisser les températures partout ; dans la dernière étape, la température étant supposée uniforme, on réalise la criticité en ajustant le dernier pas de fluence. La distribution des fluences et des k est alors la suivante :

	0-40	40-60	80-90	90-100	120-140	160-180	200-220	220-260
τ	1.61	1.49	1.30	1.24	1.01	0.86	0.58	0.28
k	0.9690	0.9828	1.0041	0.9726	0.9960	1.0101	1.0313	1.0377

On voit que le milieu 1 est devenu sous-critique, cela n'empêche pas, bien entendu de continuer à fonctionner ; au centre, le taux de réaction est sensiblement plus élevé que celui qui aurait été atteint en l'absence d'échanges latéraux (1.35 n/kb dans les conditions du calcul). De même dans le milieu 2, au contact du milieu 1 le taux de réaction est plus grand que la valeur d'équilibre (0.98 n/kb) ; en revanche les taux finals décroissent fortement au contact de la frontière. Cet exemple aide à comprendre que la corrélation entre "richesse locale" du minerai et taux de réaction ne peut être réalisée exactement ; les effets d'environnement sont essentiels, et ils ne s'exercent pas seulement à courte distance : un milieu bien entouré peut dépasser largement son taux d'équilibre, et en sens inverse, on voit que jusqu'à un mètre de la frontière les taux d'équilibre ne sont pas atteints.

4.4 Un deuxième exemple a été étudié, avec la même géométrie mais en remplaçant le milieu 2 par un milieu un peu moins réactif : on a réduit encore l'épaisseur, en portant B_t^2 à 27 m^{-2}, d'où k = 0.9387. Cette fois la destruction des poisons est beaucoup moins rapide, d'abord parce que le milieu est un moins bon réflecteur, et parce qu'il faudrait détruire du bore pour approcher la criticité à la température initiale. Compte tenu de l'élévation de la température, le milieu reste fortement sous-critique, et le flux continue d'y décroître rapidement. Lorsque la température commence à baisser dans le milieu 1 par épuisement de l'uranium, la destruction des poisons a été insuffisante pour que le milieu 2 prenne le relais ; les réactions s'arrêtent donc sans que le milieu 2 ait été fortement touché. On voit que la marge est étroite : à cause des effets de température, les réactions ne peuvent se propager que dans les milieux très proches de la criticité.

4.5 Toutefois, les conditions sont différentes s'il y a un courant de convection et si on considère ce qui se passe dans cette direction. La distribution des températures est dissymétrique ; les réactions ne peuvent absolument pas se propager dans le sens du courant, puisque c'est à la sortie du réacteur que la température est maximale ; par contre à l'entrée il y a un fort gradient de température car le courant arrive froid, et la propagation peut donc se faire sans être gênée par les effets de température. Bien plus le maximum de flux est déplacé du côté de l'entrée, ce qui favorise la distribution des poisons dans la bordure. La zone de réaction va donc avoir tendance à se déplacer en sens inverse du courant. Comme en principe les courants de convection vont de bas en haut, le sens privilégié de propagation est donc l'aval des réacteurs.

Nous n'avons pas encore étudié en détail ce mode de propagation ; il serait certainement très intéressant de le faire, et d'expliciter un certain nombre d'aspects qu'on peut d'ailleurs prévoir qualitativement. Par exemple, dans ce modèle, les réactions ont tendance à "s'éteindre" à la sortie du réacteur avant que tout le potentiel de réactivité ait été consommé, par suite des températures trop élevées ; mais au fur et à mesure de la progression, les pertes par conduction vont abaisser la température, et les réactions vont pouvoir reprendre ; la zone de réaction va donc avoir tendance à s'allonger, avec une "trainée" qui fonctionne très lentement. Il serait intéressant d'examiner différentes situations, en faisant varier la répartition des réactivités initiales, mais aussi les conditions de transfert thermique ; il est clair qu'un paramètre essentiel dans ce genre de problème est le rapport entre la quantité de chaleur emportée par convection et celle qui est transmise aux épontes par conduction ; il est sans doute possible de schématiser de manière relativement simple cette répartition.

4.6 Il y a donc là un domaine d'études a priori très intéressant ; nous avons désormais les outils de calcul appropriés pour examiner en détail toutes ces questions et donc essayer de mieux comprendre le déroulement du phénomène. Les quelques résultats que nous avons présentés n'avaient pour but que de mettre en évidence l'importance et la complexité des interférences entre le couplage neutronique et le couplage thermique.

En réalité, il semble bien que cette complexité soit encore plus grande. Les géologues nous apprennent en effet que de profondes modifications de la composition du milieu se sont vraisemblablement produites pendant le déroulement des réactions, peut-être au sein des réacteurs eux-mêmes et en tout cas dans leur environnement. En particulier il semble que la

désilicification du milieu se poursuivait ; celle-ci se faisait préférentiellement dans le sens des courants de convection, et donc en direction de l'amont. La conclusion de notre étude, qui indique l'aval comme direction privilégiée de propagation, est donc peut-être à remettre en cause si on intègre tous les aspects du problème. Ceux-ci sont discutés d'une manière plus générale, dans un "rapport de synthèse" présenté à cette même réunion [6].

Annexe

VOLUME SPECIFIQUE DE L'EAU PURE EN FONCTION DE LA TEMPERATURE ET DE LA PRESSION

	100 °C	200 °C	300 °C	350 °C	400 °C	450 °C	500 °C
100 at	1.038	1.148	1.398	-	-	-	-
150	1.036	1.144	1.378	-	-	-	-
200	1.034	1.140	1.361	1.671	-	-	-
250	1.031	1.135	1.346	1.600	6.35	9.44	11.39
300	1.029	1.131	1.333	1.552	3.08	6.98	8.90
350	1.027	1.127	1.320	1.522	2.19	5.16	7.12
400	1.025	1.123	1.309	1.495	1.96	3.85	5.79
450	1.023	1.120	1.299	1.468	1.85	3.03	4.77
500	1.020	1.116	1.292	1.450	1.78	2.63	4.14

Source : VDI - Wasserdampftafeln (1 at = 0.9807 bar)

Point critique : T = 374.1 °C p = 225.7 bars

Dans Binocle, on a représenté la densité de l'eau à 500 bars par le développement suivant :

$$\frac{1}{d_{H^2O}} = 1.035 - 0.0379\ x + 0.1934\ x^2 - 0.0961\ x^3 + 0.0176\ x^4$$

avec $x = 0.0125\ (T - 120)$ (T en °C).

REFERENCES

[1] NAUDET, R., «Mécanismes de régulation des réactions nucléaires», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 589.
[2] OPENSHAW, R., et al., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/9.
[3] HOLLIGER, P., et al., Ibid., IAEA-TC-119/20.
[4] NAUDET, R., Ibid., IAEA-TC-119/21.
[5] GAUTHIER-LAFAYE, F., WEBER, F., Ibid., IAEA-TC-119/8.
[6] NAUDET, R., Ibid., IAEA-TC-119/27.
[7] HAGEMANN, R., et al., «Estimation de la durée de la réaction – Limitations imposées par les données neutroniques», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 415.

DISCUSSION

SUR LES MEMOIRES IAEA-TC-119/21, 22 ET 23

V.A. PCHELKIN: Avez-vous pris en considération la nature de l'eau (cristallisée, libre) dans les modèles de fonctionnement du réacteur, et dans l'affirmative, selon quel principe?

R. NAUDET: J'ai supposé qu'une fraction de l'eau est liée à la gangue (eau de structure), et que le reste occupe la porosité ouverte et peut donc circuler librement (eau libre). L'eau de structure est supposée ne pouvoir être éliminée qu'à très haute température; ainsi elle reste dans le minerai; au contraire par élévation de température une partie de l'eau libre est éliminée physiquement par suite de la diminution de densité. Je reconnais que ce modèle est peut-être trop simple; on s'est demandé si la gangue ne pouvait pas contenir de l'eau moins liée que l'eau de structure, mais nécessitant néanmoins un certain seuil de température pour pouvoir être éliminée. Le problème est posé, c'est une question de géochimie.

E. ROTH: Si des hydrocarbures ont joué le rôle de modérateur, vos calculs seraient-ils substantiellement modifiés?

R. NAUDET: Non, puisqu'on raisonne à pouvoir de ralentissement équivalent; même dans les hydrocarbures c'est essentiellement l'hydrogène qui ralentit les neutrons (le carbone des hydrocarbures et l'oxygène de l'eau n'intervenant que de manière secondaire) et d'ailleurs la densité n'est pas très différente pour un même pouvoir de ralentissement.

B. POTY: J'ai cru comprendre qu'il fallait au moins un tiers de vide pour que la réaction de déclenche; est-ce bien cela?

R. NAUDET: Ce n'est pas exactement ce que j'ai dit. Il faut, certes, une quantité d'eau minimale pour qu'il y ait des réactions, mais l'eau est un paramètre parmi d'autres, et les réactions auraient pu avoir lieu avec une valeur plus faible. C'est compte tenu des indices de spectres neutroniques *mesurés* que l'on peut affirmer que les quantités d'eau présentes à Oklo étaient grandes, et donc la porosité importante. J'ai effectivement cité, comme ordre de grandeur, un tiers du volume du minerai occupé par l'eau; mais je dois souligner que la seule chose que l'on mesure avec précision est la moyenne du rapport en poids eau/uranium au cours des réactions; le volume occupé par cette eau dépend de l'évolution des températures, et donc de la pression et du modèle de contrôle.

B. POTY: Il me semble qu'un volume de vide aussi grand ne peut se maintenir que si la pression des fluides est égale à celle des solides, et que vous apportez donc un argument à l'appui de notre hypothèse d'une pression lithostatique.

A propos de la probabilité d'existence des réacteurs naturels en fonction de l'âge des gisements, je constate que beaucoup de « candidats » sont bien jeunes. A Cluff, si je ne m'abuse, les fortes concentrations datent de 1200 MA, et à Jabiluka, les dernières mesures permettent d'attribuer aux grosses concentrations un âge de 900 MA seulement.

R. NAUDET: 900 MA, c'est en effet insuffisant. En ce qui concerne Cluff, on s'est posé le problème depuis longtemps. On y trouve des concentrations assez énormes d'uranium; d'après les courbes que j'ai présentées, s'il n'y avait pas le problème des poisons (particulièrement de grandes quantités de bore, sous forme de tourmaline), la criticité aurait pu être atteinte en certains endroits malgré cet âge de 1200 MA. Or les poisons n'étaient peut-être pas homogènes; si on pouvait trouver en même temps des accumulations importantes et très peu de poison, les conditions de criticité seraient peut-être réunies; c'est un peu à la limite, mais pas tout à fait impossible.

J. GEFFROY: Je rappelle le caractère particulièrement concentré de certains corps minéralisés de Cluff: lors d'une excursion du Congrès géologique de Montréal (1972) une carotte de sondage a été présentée aux participants: correspondant à la traversée d'une lentille, elle accusait sur plusieurs mètres de longueur une teneur en uranium métal de l'ordre de 40%.

P.R. SIMPSON: Pouvez-vous expliquer pourquoi les teneurs en vanadium, qui est un poison, sont tellement basses à l'emplacement des réacteurs? L'accumulation initiale de vanadium était-elle peu importante, ou a-t-il été détruit pendant la réaction de fission en chaîne?

R. NAUDET: Le vanadium a effectivement une section de capture gênante; s'il y en avait eu autant qu'à Mounana, il aurait considérablement gêné les réactions; mais il n'a quand même pas une section de capture assez grande pour être détruit d'une manière significative. Et d'ailleurs dans tout le gisement d'Oklo, même en dehors des zones de réaction, on a peu de vanadium: de l'ordre de 400 ppm, parfois jusqu'à 1000 ppm. C'est effectivement une des chances du site; je ne suis pas sûr d'ailleurs qu'on ait parfaitement compris pourquoi la teneur en vanadium est aussi faible à Oklo par rapport à celle de Mounana.

TABLES RONDES
Synthèse et conclusions
(Séances V et VI)

ROUND TABLES
Summary and conclusions
(Sessions V and VI)

HISTOIRE GEOLOGIQUE DES ZONES DE REACTION. GEOLOGICAL HISTORY OF THE REACTOR ZONES

Animateur (Discussion Leader): F. WEBER

Introduction

ELEMENTS POUR UNE SYNTHESE DES RESULTATS OBTENUS DANS LE DOMAINE DE LA GEOLOGIE SUR LES REACTEURS NATURELS D'OKLO ET LEUR ENVIRONNEMENT

IAEA-TC-119/24

F. WEBER
Institut de géologie,
Université Louis Pasteur,
Centre de sédimentologie et géochimie
de la surface (CNRS),
Strasbourg, France

Résumé–Abstract

ELEMENTS POUR UNE SYNTHESE DES RESULTATS OBTENUS DANS LE DOMAINE DE LA GEOLOGIE SUR LES REACTEURS NATURELS D'OKLO ET LEUR ENVIRONNEMENT.

Les caractères très particuliers du minerai des zones de réaction seraient dus aux effets des réactions nucléaires elles-mêmes: destructuration de la gangue par effets neutroniques et lessivage hydrothermal dû à la mise en route, par les réactions nucléaires, d'un véritable siphon thermique. Ce mécanisme concourt à la propagation des réactions à partir de quelques foyers initiaux. Ces foyers initiaux se sont déclenchés dans certaines parties du gisement, enrichies à la suite d'un épisode tectonique par des circulations oxydantes dans des couloirs de cisaillement. Ces zones enrichies se présentent comme des anomalies au sein d'un gisement préexistant dont la mise en place pose encore bien des problèmes d'ordre métallogénique.

CONTRIBUTION TO A SUMMARY OF THE RESULTS OBTAINED IN THE FIELD OF GEOLOGY ON THE OKLO NATURAL REACTORS AND THEIR ENVIRONMENT.

The very special characteristics of the ore in the reaction zones may be attributed to the effects of the nuclear reactions themselves: de-structuration of the gangue by neutronic effects and hydrothermal leaching due to the generation of a true thermal syphon by the nuclear reactions. This mechanism contributes to the propagation of reactions from a number of initial reaction sites. The latter were initiated in certain parts of the deposit, enriched as a result of a tectonic episode, by oxidizing currents in the shear troughs. These enriched zones occur as anomalies within a pre-existent deposit, the formation of which still poses many questions of a metallogenic nature.

Peu après la découverte du *phénomène d'Oklo* on s'aperçut avec un certain étonnement que le minerai ayant participé aux réactions nucléaires était très différent du minerai commun d'Oklo, sa gangue étant argileuse alors que dans l'ensemble du gisement le minerai est gréseux. Pendant longtemps on crut que cette particularité du minerai des réacteurs naturels était due à des conditions exceptionnelles de mise en place de l'uranium qui expliqueraient sa teneur élevée. La disparition des horizons gréseux de la couche minéralisée C1 était tour à tour attribuée à des variations sédimentologiques locales et à un «boudinage» tectonique [1]. On pensait que la découverte d'un minerai à gangue argileuse hors des zones de réaction permettrait de connaître certaines caractéristiques de ce minerai qui avaient éventuellement été modifiées par les réactions nucléaires. Cependant, si l'on a parfois trouvé des minerais à gangue argileuse dont la teneur isotopique était pratiquement normale ceux-ci étaient toujours en bordure des zones de réaction (p.ex. SC 47 à 48 ter) et l'on ne pouvait absolument pas les considérer comme des témoins de minerais argileux «normaux» totalement épargnés par les réactions nucléaires. Peu à peu on dut se convaincre que ce minerai riche à gangue argileuse n'existait pas en dehors des zones de réaction et de leur périmètre d'influence, que ce minerai avait été en quelque sorte façonné dans son état actuel par les réactions nucléaires elles-mêmes à partir d'un minerai gréseux normal.

Les travaux sur les dégâts d'irradiation [2–4] ont montré que tous les minéraux ont dû être détruits dans le cœur des réacteurs par le bombardement neutronique. L'étude des inclusions fluides [5] ayant mis en évidence un fluide surcritique dans l'environnement immédiat des réacteurs, il est naturel de penser que les minéraux fragilisés ou déjà détruits par le bombardement neutronique ont été facilement mis en solution par ce fluide. La chaleur dégagée par les réactions nucléaires a dû mettre en mouvement un puissant siphon thermique; il n'est donc pas étonnant que dans ces conditions certains éléments, notamment la silice, dont la solubilité augmente beaucoup avec la température, aient pu être évacués en grande quantité. Ainsi les grès de la couche minéralisée ont-ils été en quelque sorte dissous et l'UO_2 peu soluble s'est concentré dans la mince passe minéralisée des zones de réaction, où il a recristallisé sous sa forme de haute température, l'uraninite. L'alumine étant, dans les conditions hydrothermales, beaucoup moins soluble que la silice, on conçoit que la gangue se soit enrichie en alumine relativement à la silice et que, après l'arrêt des réactions, sa recristallisation ait donné naissance à des minéraux phylliteux avec les cations apportés par les eaux, Mg notamment. Les épontes ont été soumises à une altération de type hydrothermal qui se traduit par une épigénie des matériaux préexistants par de la chlorite magnésienne et de la séricite 2 M_1 (forme de haute température) selon une zonéographie bien déterminée [6].

Deux observations étayent solidement cette hypothèse:

– le passage des grès aux argiles par dissolution des quartz, vu sur le terrain, a été confirmé par les études pétrographiques [6];

– les figures tectoniques traduisent le réajustement des terrains après dissolution des grès de C1: affaissement du toit et surtout glissement de la couche C1 vers l'aval pendage, ce qui a pour conséquence le glissement et le «bourrage» vers l'aval pendage des pélites du toit; la couche minéralisée enrichie, plus rigide, est flexurée, parfois elle se dédouble par chevauchement sur de petits accidents inverses, plus rarement elle est impliquée dans de vrais plis (aval de la zone 1) [7].

Néanmoins une difficulté considérable subsiste: comment concilier ce modèle où tout est en mouvement pendant les réactions nucléaires avec celui des neutroniciens [8], qui atteste d'une très grande stabilité? Peut-on envisager que les dissolutions et les réajustements tectoniques qui leur ont fait suite se soient achevés très rapidement après le déclenchement de la réaction qui se serait ensuite développée pendant le maximum de sa durée dans un environnement déjà stabilisé? Peut-être même que dans bien des cas la réaction ne s'est amorcée qu'après enrichissement de la couche par dissolution des grès sous l'action d'un foyer voisin. La dissolution de la silice par les solutions hydrothermales issues des réacteurs deviendrait alors le principal mécanisme de propagation des réactions à partir d'un nombre restreint de foyers initiaux.

Il ne suffit pas cependant de décrire un tel mécanisme de propagation des réactions, encore faut-il qu'il y ait eu au départ un ou plusieurs foyers dans lesquels les conditions de criticité nécessaires au déclenchement des réactions aient été spontanément atteintes. De plus, l'accumulation en uranium par unité de surface de la couche minéralisée est plus élevée d'un ordre de grandeur dans les zones de réaction que dans le reste du gisement. Il faut donc expliquer l'existence de concentrations en uranium anormales dans certaines parties du gisement et retrouver les témoins de telles concentrations hors des zones de réaction. Bien que l'on ait à l'origine [9] surtout insisté sur l'existence de deux types de minerais, Geffroy [10], dès 1975, en avait distingué trois. Le type A correspondait au minerai *normal,* dans lequel l'uranium est exprimé sous forme de pechblende ou de coffinite en inclusion dans les matériaux asphaltiques formant le ciment des grès. Le type B était le minerai des zones de réaction à uraninite dans une gangue phylliteuse. Le type C enfin était interprété comme un type intermédiaire, il s'agissait de minerais riches en uranium à *pechblende isolée,* c'est-à-dire en plages distinctes du matériau carboné du type A, ce dernier pouvant cependant coexister avec la pechblende isolée, dans les mêmes échantillons. Si l'on en exclut les faciès de transition aux zones de réaction (échantillon 600), qui ont été à tort confondus avec les minerais gréseux, le type C correspond au *minerai riche à taches hématiteuses* que les mineurs connaissent bien maintenant, c'est-à-dire au minerai de type 2 décrit par Gauthier-Lafaye et al. [11, 12]. D'une teneur en uranium de 5 à 25%, ces minerais riches peuvent conduire à des accumulations par unité de surface du même ordre de grandeur que celles des zones de réaction. On peut envisager que, localement, la criticité y ait été atteinte.

Exceptionnels dans l'ensemble du gisement ces minerais sont assez fréquents dans l'environnement des zones de réaction, mais on les rencontre également en

des sites très éloignés de celles-ci. On ne peut donc, comme pour les minerais riches argileux, attribuer un rôle quelconque aux réactions nucléaires dans leur genèse.

Ces minerais se rencontrent toujours dans des parties du gisement fortement tectonisées, associés à des couloirs de cisaillement dans lesquels on observe des remobilisations de silice: dissolution dans les plans de cisaillement tandis que des filons de quartz se déposent dans des fentes d'ouverture et dans les plans de couches. La pechblende se trouve fréquemment en tapissage des plans de cisaillement qui recoupent les auréoles de nourrissage des grains de quartz. Ces faits suggèrent que ce minerai résulte d'une remobilisation tardive d'uranium à la suite d'une phase tectonique. Cette phase intervient alors que le sédiment avait déjà été soumis à un enfouissement important et une lithification avancée. On peut envisager qu'il s'agit d'un épisode tectonique coïncidant avec le début de la remontée du bassin, ce qui paraît en accord avec les résultats de l'étude des inclusions fluides [5].

La présence de taches hématiteuses, plus ou moins denses ou dispersées, suggère que la remobilisation de l'uranium résulte de percolations d'eaux oxydantes dans les couloirs de cisaillement avec reprécipitation de l'uranium sur un front d'oxydoréduction. Les observations récentes faites dans la carrière par B. Michel (voir [12]) confirment l'existence, en amont des grès riches à taches hématiteuses, d'une zone oxydée lessivée en uranium; un dépôt de cuivre natif précède celui de l'uranium.

Les relations dans le détail de la minéralisation uranifère et des taches hématiteuses, toujours séparées des plages à pechblende par une petite auréole décolorée, n'offrent cependant pas l'image d'un vaste front oxydant, mais plutôt de multiples fronts réducteurs progressant à partir de nombreux centres locaux; le fer se concentrait alors sous forme d'hématite au centre de taches résiduelles à contours concaves. Les eaux oxydantes pénétraient donc profondément dans la zone où précipitait l'uranium, et les matières organiques contenues dans le sédiment n'avaient pas un pouvoir réducteur suffisant pour maintenir tout le fer à l'état réduit. On peut donc penser que les agents réducteurs produits par l'oxydation ménagée des pyrites ont joué à cette étape de l'histoire des gisements un rôle important dans la précipitation et la reconcentration de l'uranium, selon le mécanisme décrit par Granger et Warren [13].

Ce mécanisme permet d'expliquer la genèse de surconcentrations dans lesquelles les réactions nucléaires ont pu s'amorcer; ainsi s'explique la situation des réacteurs nucléaires dans des zones fortement tectonisées. L'étude détaillée de ces surconcentrations — dont le lien avec les réacteurs nucléaires n'avait pas été vu clairement jusqu'à une date récente — devrait fournir de nombreuses informations sur les conditions initiales des réactions nucléaires.

Ces surconcentrations se sont produites au sein d'un gisement préexistant, qui constitue la majeure partie du gisement d'Oklo; rappelons que le minerai qui forme l'essentiel des réserves d'Oklo est un grès dont la teneur en uranium est

de 0,2 à 0,5%. Les conditions de mise en place de cette première concentration ont une incidence moindre que celle des surconcentrations sur les problèmes qui nous intéressent ici, mais elles offrent un intérêt certain dans une optique métallogénique classique. La genèse du gisement d'Oklo ne peut cependant être dissociée de celle de l'ensemble des gisements du Francevillien, dont il convient de rappeler quelques caractères communs [14–16]:

- localisation stratigraphique des gisements dans la tranche supérieure des grès du FA;
- situation des gisements dans des flexures ou des structures tectoniques plus complexes évoquant des pièges à hydrocarbures; la fermeture de ces pièges est généralement assurée par les pélites du FB en contact normal ou sur failles; ces dernières sont une roche-mère possible pour les matières organiques trouvées dans les niveaux supérieurs du FA;
- état réduit du fer avec présence de pyrite dans les gisements eux-mêmes et leur environnement proche, mais existence à une certaine distance, qui peut se chiffrer en kilomètres, à un niveau stratigraphique équivalent, de faciès rouges dans lesquels le fer est principalement sous forme d'hématite; cette couleur rouge a été acquise par une oxydation secondaire, mais ancienne, des grès;
- silicification par nourrissage des quartz des grès constituant la gangue des gisements; cette silicification résulte d'une évolution diagénétique qui a amené les grès du sommet du FA à la limite de l'anchizone.

L'association très étroite, dans le minerai banal d'Oklo, de la minéralisation uranifère avec des matériaux asphaltiques [9, 10], probablement migrés, suggère fortement que ces derniers ont joué un rôle prépondérant dans la fixation, voire dans le transport de l'uranium. Il convient de souligner que, contrairement à ce que l'on observe dans les surconcentrations, le pouvoir réducteur des matières organiques était ici suffisant pour maintenir tout le fer à l'état réduit. On se serait cependant attendu à trouver les gisements sur les fronts d'oxydoréduction au contact grès rouges-grès noirs ou tout au moins à faible distance de ce contact. La barrière de potentiel étant plus élevée pour l'oxydation du fer que pour celle de l'uranium [17], il est possible que le grand espace qui sépare le front hématite-pyrite des concentrations uranifères traduise simplement le fait que le gradient des potentiels d'oxydoréduction était très faible. Toutefois, en l'absence d'une zonéographie géochimique précise, d'autres explications peuvent être invoquées: déplacements ultérieurs des fronts d'oxydoréduction, transport de l'uranium sous forme de complexes organo-métalliques, etc.

La chronologie relative des silicifications et de la mise en place des matières organiques est mal établie, les observations pétrographiques, encore trop fragmentaires, conduisent à des conclusions contradictoires [11]; peut-être y a-t-il eu plusieurs phases de silicification et plusieurs époques de migration des matières organiques. Il semble, d'après les résultats de l'étude des inclusions fluides [6], que la silicification coïncide avec l'enfouissement maximal atteint par la série. Les matières organiques, qui, actuellement, ont atteint la «diagenèse à gaz»

[18–20], ont-elles également atteint dès cette époque leur degré d'évolution maximal? S'il en est bien ainsi, la mise en place des matières organiques, l'apport d'uranium par circulation de nappes oxydantes et sa rétention par les matières organiques dans les pièges sont antérieurs à l'enfouissement maximal et aux silicifications et les matières organiques n'ont plus joué aucun rôle dans les étapes ultérieures de l'histoire du gisement.

Il est possible, et même vraisemblable, que les gisements actuels aient été précédés de préconcentrations synsédimentaires ou diagénétiques précoces. A plusieurs reprises l'idée d'une préconcentration détritique dans les conglomérats thorifères du FA a été émise [11, 14]; les analyses isotopiques du plomb de ces conglomérats infirment cette hypothèse [21]; d'autres possibilités existent mais aucun fait ne permet actuellement de les étayer.

CONCLUSION

Les mécanismes d'enrichissement qui ont conduit au déclenchement des réactions nucléaires et les effets de celles-ci tant sur le minerai lui-même que sur son encaissant commencent à être compris. Il reste toutefois beaucoup à faire: établir un bilan précis des transformations hydrothermales liées aux réactions, inclure ces transformations dans un modèle thermodynamique précis . . . Le minerai riche précurseur des réactions nucléaires est encore fort mal connu; il est possible que son étude détaillée réserve des surprises. Toutefois, c'est sur les premières étapes de la genèse du gisement que les incertitudes sont les plus grandes. La mise en place des matières organiques et de l'uranium devrait être située dans une chronologie précise des événements diagénétiques. Une étude minutieuse des fronts d'oxydoréduction devra être entreprise dans un site favorable qui n'est pas forcément celui d'Oklo.

REFERENCES

[1] GAUTHIER-LAFAYE, F., RUHLAND, M., WEBER, F., «Analyses tectoniques du gisement d'Oklo», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 118.

[2] DRAN, J.C., MAURETTE, M., PETIT, J.C., DROZD, R., HOHENBERG, C., DURAND, J.P., LE GRESSUS, C., MASSIGNON, D., «A multidisciplinary analysis of the Oklo uranium ores», Ibid., p. 223.

[3] PETIT, J.C., Contribution de l'étude des dégâts d'irradiation à la compréhension du phénomène d'Oklo, Thèse de 3^{e} cycle, Université Paris VII (1977).

[4] DRAN, J.C., et al., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/12.

[5] OPENSHAW, R., et al., Ibid., IAEA-TC-119/9.

[6] GAUTHIER-LAFAYE, F., WEBER, F., Ibid., IAEA-TC-119/8.

[7] GAUTHIER-LAFAYE, F., Ibid., IAEA-TC-119/3.
[8] NAUDET, R., RENSON, C., «Résultats des analyses systématiques de teneurs isotopiques de l'uranium», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 265.
[9] GEFFROY, J., LISSILOUR, J., Etude microscopique des minerais d'Oklo, Bull. Inf. Sci. Tech. (Paris) n° 193 (1974) 51–58.
[10] GEFFROY, J., «Etude microscopique des minerais uranifères d'Oklo», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 133.
[11] GAUTHIER-LAFAYE, F., Oklo et les gisements d'uranium du Francevillien, aspects tectonique et métallogénique, Thèse de 3e cycle, Université Louis Pasteur, Strasbourg (1977).
[12] GAUTHIER-LAFAYE, F., et al., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/2.
[13] GRANGER, H.C., WARREN, C.G., Unstable sulfur compounds and the origin of roll-type uranium deposits, Econ. Geol. **64** (1969) 160–71.
[14] WEBER, F., Une série précambrienne du Gabon: le Francevillien, Sédimentologie, géochimie, relation avec les gîtes minéraux associés, Mém. Serv. Carte Als. Lorr. n° 28 (1968).
[15] BOURREL, J., PFIFFELMANN, J.P., La province uranifère du bassin de Franceville, Miner. Deposita 7 3 (1972) 323.
[16] PFIFFELMANN, J.-P., «L'uranium dans le bassin de Franceville», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 37.
[17] HARSHMAN, E.N., «Distribution of elements in some roll-type uranium deposits», Formation of Uranium Ore Deposits (C.R. Coll. Athènes, 1974), AIEA, Vienne (1974) 169.
[18] CASSOU, A.-M., CONNAN, J., CORREIA, M., ORGEVAL, J.-J., «Etudes chimiques et observations microscopiques de la matière organique de quelques minéralisations uranifères», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 195.
[19] VANDENBROUCKE, Mireille, Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/10.
[20] ALPERN, B., Ibid., IAEA-TC-119/11.
[21] NAUDET, R., Communication orale (1977).

Discussion générale

F. WEBER: Je propose que nous articulions la discussion autour de quatre thèmes principaux. Le premier serait le rôle des matières organiques au cours des trois étapes de formation du gîte, depuis le minerai normal d'Oklo jusqu'à celui des zones de réaction, ainsi que les mécanismes d'oxydoréduction. Ce sont deux problèmes qu'on ne peut pas dissocier et qu'il faut donc traiter ensemble. Le deuxième thème serait l'évolution des températures au cours de la diagenèse et pendant les réactions nucléaires; il faudrait essayer de replacer tous les événements dans une chronologie précise. Le troisième thème serait les transformations géochimiques et minéralogiques de la gangue au cours des réactions nucléaires; en particulier certains aspects thermodynamiques n'ont pas été beaucoup abordés, et il y a peut-être des personnes dans la salle qui ont des idées sur cette question. Enfin, en quatrième lieu, je voudrais qu'on discute un peu de l'orientation à donner aux études futures: quels sont les points qui paraissent actuellement les plus obscurs, et sur lesquels on devrait porter le plus d'efforts dans l'avenir?

1. Rôle des matières organiques

F. WEBER: Puisque Mme Vandenbroucke et M. Alpern ont travaillé sur ce sujet, je pense qu'il serait bon qu'ils nous donnent leur point de vue, qui a pu évoluer au cours de cette réunion par rapport aux communications qu'ils ont présentées. Ensuite naturellement, tout le monde pourra intervenir sur ce thème.

Mireille VANDENBROUCKE: Mon point de vue n'a pas beaucoup changé: je pense que les matières organiques ont eu un rôle uniquement dans l'accumulation primaire d'uranium. L'uranium n'est probablement pas synsédimentaire; la matière organique a eu le temps d'évoluer suffisamment pour donner un gisement d'hydrocarbures; et ce seraient ces hydrocarbures qui auraient précipité l'uranium apporté par des eaux de lessivage, soit directement par leur pouvoir réducteur, soit par l'action de bactéries sulfato-réductrices. Celles-ci sont apportées en général en même temps par les eaux de lessivage et, en détruisant le gisement d'hydrocarbures, elles libèrent de l'hydrogène sulfuré capable de précipiter l'uranium. En ce qui concerne les mécanismes de surconcentration, il est possible qu'il y ait eu un second phénomène d'oxydoréduction, où la matière organique n'entrait pas en jeu, et qui a conduit à des concentrations suffisantes pour que certaines zones fonctionnent comme des piles. Je pense que la matière organique était déjà très évoluée au moment où ces phénomènes se sont produits, et il est très possible qu'elle ait déjà été en grande partie détruite. C'est pourquoi je ne pense pas qu'elle ait eu un rôle dans les phénomènes de surconcentration.

B. ALPERN: Je n'ai pas d'idées très précises encore sur cet ensemble de problèmes, mais je pense qu'on peut faire une observation. Aussi bien la fenêtre pétrolière, c'est-à-dire celle de la production des hydrocarbures capables de migrer

et de donner ces asphaltes et bitumes que nous avons vus, que la fenêtre cokéfiante, c'est-à-dire celle où les matières organiques sont capables de donner du coke fondu, correspondent à une zone de température où les charbons ont un pouvoir réflecteur qui est de l'ordre de 1 à 1,5%. Elles sont à peu près au même niveau de diagenèse, qui n'est pas très élevé; ce sont des matières organiques de faible niveau de maturation. Et le fait qu'elles existent dans toute la région d'Oklo prouve que le degré de transformation de la matière organique à l'époque n'était pas très poussé et en tout cas pas supérieur à une réflectance d'environ 1,5%, qui est à peu près le maximum à la fois pour la formation des hydrocarbures et pour la fenêtre cokéfiante.

F. WEBER: Je vous remercie. J'aimerais savoir si Mme Vandenbroucke ou M. Alpern pensent qu'il ait pu y avoir des migrations importantes d'uranium avec les matières organiques. Je précise: à mon avis ces migrations ont pu se produire à deux moments: l'uranium qui avait précipité de manière synsédimentaire dans les schistes noirs du FB à des teneurs relativement faibles, par exemple de l'ordre de 50 ppm, a pu migrer avec les matières organiques pour se trouver ensuite reconcentré par un autre phénomène; ou encore l'uranium a pu migrer avec les matières organiques après enrichissement, c'est-à-dire à des teneurs beaucoup plus élevées, de l'ordre de celles qu'on voit actuellement dans le gisement.

Mireille VANDENBROUCKE: En ce qui concerne l'uranium de la couche C1, je pense qu'on ne peut pas trouver de liaison directe avec les matières organiques parce que les analyses montrent qu'il y a très peu de phosphore, et que s'il y a une liaison directe uranium-matières organiques, il devrait y avoir une relation avec le phosphore. En dehors de cela, la fixation de l'uranium par les matières organiques se fait essentiellement par l'intermédiaire de ce qu'on appelle les acides humiques, qui sont des composés de dégradation de la lignine, qui donc ne peuvent se former qu'à partir de végétaux supérieurs; les chiffres qui ont été avancés pour la concentration de l'uranium par les matières organiques sont des chiffres qui ne sont valables que pour des sédiments actuels ou du moins ayant pris naissance à partir du Primaire; ils ne sont pas valables, à mon avis, pour le Précambrien. En ce qui concerne le déplacement de l'uranium par des matières organiques qui auraient déjà migré, je pense que c'est peu vraisemblable car ce sont essentiellement des hydrocarbures qui n'ont pas de groupe fonctionnel capable d'accrocher l'uranium. Les matières organiques migrantes qui sont des hydrocarbures n'ont pas de polarité, et ne peuvent que très peu fixer l'uranium; seule la fraction asphaltène des matières organiques pourrait le faire, mais dans des matières organiques migrées elle ne représente que quelques pour cent. Donc je pense que l'uranium a plutôt été transporté, au moins dans la phase de dépôt primaire, sous forme d'un complexe minéral et non organique.

F. CHANTRET: Il faut quand même expliquer tous les nodules de matériaux organiques fortement uranifères qu'on trouve scellés dans les grès du Francevillien, et ceci n'est pas sans rappeler certains matériaux organiques uranifères de Lodève

qu'on trouve dans les décollements des lits des pélites du toit ou dans les fractures des grès au mur des couches; il est à peu près certain, à mon avis, qu'il y a eu à Oklo un certain stock d'uranium qui a migré avec la matière organique.

D'autre part, je voudrais revenir sur le minerai de type 2 (et qui correspond au type C défini par M. Geffroy); comme je l'ai dit, je suis convaincu que les taches d'hématites sont des îlots résiduels d'hématites qui préexistaient à la mise en place de l'uranium. Maintenant je joins les deux remarques en me demandant si on n'a pas là, dans les zones de grès fracturés qui avaient été primitivement hématisés, des matériaux organiques fortement uranifères qui se seraient mis en place à la faveur de ces fractures, et qui auraient provoqué une décoloration en réduisant le fer en bordure. C'est un schéma dont on pourrait discuter.

B. ALPERN: A propos de la concentration de l'uranium par les matières organiques, je m'écarte un peu du point de vue de Mme Vandenbroucke: les algues qu'on pouvait avoir à l'époque d'Oklo étaient probablement en grande partie cellulosiques et il n'est pas impossible qu'on ait eu des phénomènes de concentration en milieu algaire; on en trouve à l'heure actuelle dans un certain nombre de schistes bitumineux tout à fait classiques, qui ne comportent pas de restes de plantes supérieures mais seulement des algues. Donc, on ne voit pas pourquoi cette loi quasi générale de liaison entre l'uranium et la matière organique dans les milieux sédimentaires n'aurait pas joué.

En deuxième lieu, je reviens sur le fait que si les matières organiques syngénétiques ont pu atteindre le niveau des méta-anthracites (réflectance 6,90%) que nous avons décrit dans les charbons de Mikouloungou, compatible avec la profondeur maximale d'enfouissement, celles que l'on trouve dans le secteur des réacteurs, généralement sous forme de bitumes, sont beaucoup moins évoluées. Il est probable que la diagenèse n'était pas achevée à l'époque des réactions. Les bitumes qui ont atteint une réflectance de 2% ne peuvent avoir été soumis à la température de 240°C, car leur réflectance serait plus élevée. Ils se sont donc mis en place plus tardivement.

Mireille VANDENBROUCKE: Puis-je faire une remarque en ce qui concerne la liaison uranium-matières organiques? Si une telle liaison a existé, la matière organique du FB, c'est-à-dire dans la roche-mère avant la migration dans la couche C1, doit être enrichie en uranium. Alors je pose la question: a-t-on trouvé de l'uranium dans le FB?

F. WEBER: Oui, on a fait des dosages d'uranium dans le FB et aussi dans les formations supérieures; il faut avouer que dans le FB, les informations ne sont pas très nombreuses, et les teneurs en uranium ne sont pas très élevées, mais dans le FC et le FD on a trouvé des concentrations uranifères liées aux matières organiques. Ce sont toujours de faibles concentrations, de l'ordre de 50 ppm en roches, pour des roches qui peuvent faire quelques pour cent (jusqu'à 10%) de matières organiques, et je dois signaler qu'on a effectivement une très bonne corrélation dans certains cas entre le phosphore et l'uranium.

Par ailleurs, je voudrais préciser que même en dehors des gisements proprement dits, dans les zones du FA qui sont à tendance plutôt réductrice, il y a toujours un petit peu de matières organiques migrées; il se trouve qu'on observe une très légère augmentation géochimique d'uranium dans ces zones-là. C'est très faible, cela ne joue que sur quelques ppm; mais on peut quand même penser – c'est une idée que je propose – qu'on a pu avoir dans les niveaux ampélitiques une préconcentration sédimentaire d'uranium qui a été entraîné avec les matières organiques au cours de la migration dans les niveaux supérieurs du FA, et qu'ultérieurement, par les fronts oxydants qui ont balayé le sommet du FA, cet uranium qui était initialement très disséminé dans les matières organiques a pu se concentrer au niveau des pièges. Les ordres de grandeur ne sont pas invraisemblables: pour former un gisement de l'ordre de celui d'Oklo-Okelobondo, il aurait fallu balayer environ un carré de 10 kilomètres de côté sur 100 ou 200 mètres au sommet du FA.

B. ALPERN: Il y a un point qu'on n'a pas évoqué jusqu'à présent, c'est que chaque fois que l'uranium et la matière organique sont au voisinage l'un de l'autre, la matière organique est transformée par le rayonnement alpha. En général, on observe une augmentation de la réflectance, j'en ai montré des exemples. Mais dans les photographies que j'ai jointes à ma communication, il y a d'importantes zones noires de bas pouvoir réflecteur entourées par des zones claires. Or je crois savoir que l'action des rayonnements, comme d'ailleurs l'oxydation, peut empêcher la diagenèse normale de se poursuivre, ce qui fait qu'on peut très bien avoir fossilisation de la matière organique dans l'état où elle se trouvait au moment de sa mise en place. La phase noire que nous voyons dans les photographies a une réflectance qui n'est que de 0,80%, ce qui pourrait prouver que l'uranium et la matière organique ont coexisté à un stade très précoce, et les zones claires qui sont autour sont peut-être des zones de production d'hydrocarbures qui, eux, ont pu continuer d'évoluer. Dans les gisements d'anthracite, par exemple, on observe souvent des zones qui ont été bloquées dans leur évolution à cause de l'oxydation, et je pense que les dégâts d'irradiation peuvent avoir des effets analogues.

R. NAUDET: Je voudrais revenir à la première question posée. Je regrette un peu qu'on ait éliminé aussi rapidement et radicalement l'hypothèse d'un rôle des matières organiques dans les surconcentrations. Je rappelle d'abord que, si on a trouvé des grès riches en différents points du gisement, on n'a jamais trouvé d'accumulations d'uranium aussi grandes, aussi énormes, que dans les zones de piles. Cela résulte vraisemblablement de ce que les actions tectoniques ont été beaucoup plus intenses dans ce secteur-là. Encore faut-il expliquer par quel mécanisme on a pu faire précipiter tout cet uranium. On avait fait l'hypothèse suivante: puisqu'il y avait à un certain moment des hydrocarbures susceptibles de migrer, la tectonique, en créant des zones de détente et d'extension, donc de grande porosité, pouvait avoir favorisé une migration de ces hydrocarbures. Et ceux-ci, en se concentrant dans les zones de détente, étaient de nature à créer un

potentiel réducteur capable de précipiter de très grandes quantités d'uranium. C'était tout de même une idée logique (même s'il restait à expliquer comment les matières organiques avaient été ensuite éliminées des zones de réaction).

Actuellement on écarte cette hypothèse pour deux raisons semble-t-il: En premier lieu, on dit que les matières organiques devaient être déjà détruites, parce qu'on avait atteint un stade d'enfouissement profond et des températures de l'ordre de 200 à 240°C. Je pense que le degré de destruction des matières organiques dépend de la rapidité avec laquelle l'enfouissement s'est fait, et de la précocité de la remontée (puisqu'on a suggéré qu'on était déjà dans une phase de remontée). On n'a pas beaucoup d'informations sur la durée; M. Alpern ne semble pas convaincu qu'on ait atteint un degré d'évolution très élevé. D'ailleurs il a pu y avoir plusieurs phases de mise en place des matières organiques. Je ne suis pas sûr qu'on puisse affirmer en toute certitude qu'il n'y avait pas – qu'il ne pouvait pas y avoir – à ce moment-là d'hydrocarbures susceptibles de migrer (et d'ailleurs peut-on expliquer ce qu'on observe dans les zones de réaction et leur environnement immédiat sans faire appel à une migration contemporaine des réactions?)

D'autre part, on a parlé de la possibilité d'autres mécanismes, en particulier faisant intervenir le fer. Cela est basé sur des observations effectuées dans quelques échantillons de minerai de type 2. Je me demande si la généralisation de ces observations n'est pas prématurée. M. Chantret a dit tout à l'heure qu'il n'est pas sûr que les taches hématiteuses doivent être interprétées de cette manière-là. D'autre part, si on fait le bilan dans les zones de réaction aussi bien du fer qui était nécessaire que de l'hématite qui reste, les ordres de grandeur apparemment n'y sont pas. En outre il semble que cette hématite, formée selon cette hypothèse au moment du dépôt et qui aurait dû rester stable, n'ait pas «vu» les neutrons, puisqu'on a fait des analyses de fer et qu'on ne trouve pas les transferts d'isotopes qu'on devrait rencontrer. Donc, il me semble qu'il reste beaucoup de points obscurs et qu'on n'est pas tout à fait sûr d'avoir une hypothèse de rechange pour expliquer l'existence d'un potentiel réducteur capable de précipiter d'aussi grandes quantités d'uranium. C'est pourquoi je me demande si on a raison d'éliminer totalement l'hypothèse *matières organiques*; je ne suis pas sûr qu'on ait apporté tous les arguments permettant d'affirmer qu'elles n'ont pas pu jouer un rôle dans les surconcentrations.

B. POTY: J'irai dans le sens de M. Naudet, car il y a quelque chose que je ne comprends pas dans l'histoire de ces matières organiques. Quand on examine l'échantillon dont M. Gauthier-Lafaye a présenté une photographie dans l'un de ses rapports, on voit l'uranium associé à la matière organique entre des grains de quartz qui comportent des auréoles de silicification. Donc cet uranium et cette matière organique ont dû se mettre en place après les silicifications qui, selon nous, se sont formées à relativement haute température, à un moment où la matière organique ne devait plus bouger. Il y a une contradiction qui me gêne énormément.

Est-ce que de la matière organique peut encore circuler aux environs de 240°C, ou est-ce complètement impossible?

F. WEBER: Effectivement cette question nous embarrasse beaucoup; les observations pétrographiques ne donnent pas une idée claire de la succession des événements entre silicification et matières organiques, et on peut avoir dans certains cas le sentiment que les matières organiques se sont mises en place après la silicification. J'avoue que c'est une hypothèse qui me gêne, parce qu'il me semble qu'après la silicification, la porosité du grès devait être très fortement réduite, et j'imagine difficilement de grandes migrations de matières organiques à cette époque-là. D'autre part, comme le dit M. Poty, est-il possible qu'un gisement d'hydrocarbures se fasse à un enfouissement correspondant à des températures de l'ordre de 240°C? Je me demande s'il n'y a pas une autre explication et je voudrais poser une question à Mme Vandenbroucke. J'ai appris à l'école que dans les gisements pétroliers en général l'huile ne mouille pas les grains, mais qu'il y a une pellicule d'eau entre l'huile et le grain, et qu'il y a des possibilités de circulation d'eau à travers un gisement de pétrole sans déplacer le pétrole. Pourrait-on avoir une silicification qui se développerait ainsi dans cette eau interstitielle entre le quartz et la matière organique?

Mireille VANDENBROUCKE: Je pense que cette explication est plausible, parce que dans un grand nombre de cas les gisements d'hydrocarbures sont effectivement contenus dans des roches qui sont mouillées à l'eau et non à l'huile, et cette eau forme une couche continue; cela résulte du fait que, avant que les hydrocarbures aient migré dans ces roches réservoirs, ces roches contenaient de l'eau, qui n'a pas été chassée complètement, et c'est l'eau qui forme un film continu. La circulation d'eau est donc possible dans un gisement, même quand il contient des hydrocarbures.

F. WEBER: Je crois qu'il faut arrêter la discussion sur le problème des matières organiques. Pour répondre brièvement à l'intervention de M. Naudet, je suis conscient qu'il reste beaucoup de points obscurs en ce qui concerne les mécanismes de surconcentration. Il faut bien dire que les grès riches d'Oklo ne sont pas tellement bien connus, qu'ils ont été peu étudiés dans la mesure où on s'est focalisé soit sur les minerais des piles, soit sur le minerai banal d'Oklo, et que ce n'est qu'assez récemment qu'on s'est rendu compte de l'importance que pouvaient avoir ces minerais. Je pense que l'étude de la surconcentration dans les grès sera un sujet important pour les études à venir.

2. Evolution des températures et des pressions

F. WEBER: Le deuxième thème que j'avais suggéré pour nos discussions était l'évolution du régime des températures et des pressions au cours de la diagenèse, et également la chronologie de ces événements. Je propose de donner la parole à M. Poty.

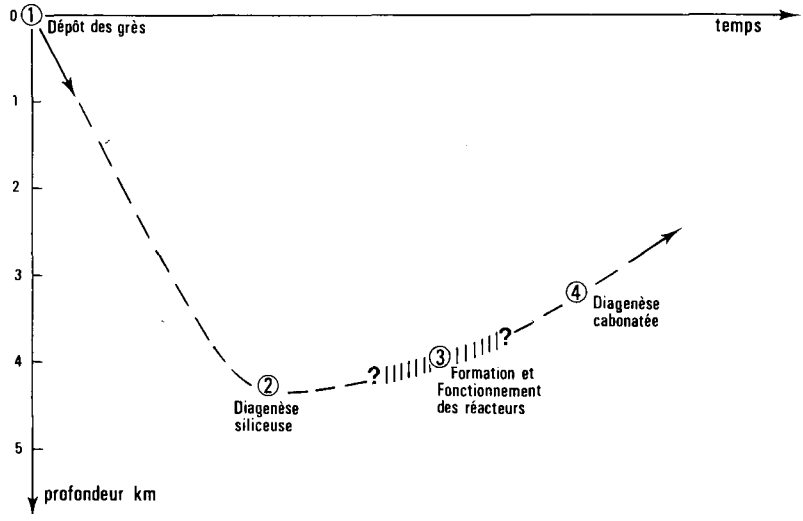


FIG.1. Histoire du gisement d'Oklo.

B. POTY: A la fin de cette réunion nous pouvons préciser, je crois, les conditions de température et pression qui ont régné durant la réaction nucléaire.

Les faits acquis auparavant sont un enfouissement des grès du FA tel que leur diagenèse siliceuse commence aux environs de 240°C et 1000 bars de pression des fluides. Cette pression a été interprétée comme une pression lithostatique car la perméabilité des grès à ce moment est faible. Cela correspondrait à un enfouissement proche de 4,3 km.

La deuxième diagenèse se produit à une pression légèrement moins élevée: 800 bars. Si le gradient et le régime de circulation des fluides n'ont pas changé, ceci correspond à une remontée proche de 1000 mètres.

Les réacteurs ont fonctionné entre ces deux diagenèses et comme leur formation semble liée au bombement des couches observé en carrière, on peut penser que les mouvements tectoniques ayant formé le dressant et le crochon sont ceux qui ont provoqué la remontée tectonique de l'ensemble.

L'évaluation des températures de fonctionnement des réacteurs est difficile car nous ne connaissons pas le régime de pression des fluides au moment de la réaction nucléaire.

Si les fluides ont pu circuler librement jusqu'à la surface leur pression sera celle d'une colonne de fluide. Par contre, si la perméabilité est nulle ou très faible, elle sera égale ou proche de la pression des roches, c'est-à-dire entre 1000 et 800 bars. Et l'étude des inclusions fluides seule ne permet pas de trancher entre ces deux hypothèses.

Trois raisons tendent à plaider, semble-t-il, en faveur de la deuxième hypothèse:

1) L'observation de la carrière d'Oklo, à fin novembre 1977, ne montre pas les grandes fractures verticales qui auraient permis une circulation aisée des fluides. Au contraire on observe, particulièrement au niveau du crochon, des bancs de grès compétents, fracturés, entre des lits de grès argileux d'aspect très imperméable. L'observation des affleurements milite donc en faveur d'une circulation difficile des fluides.

2) Par l'étude des inclusions fluides nous sommes arrivés à la conclusion que les températures durant la réaction nucléaire, en zone 2, avaient été voisines de 410–450°C si la pression était hydrostatique, mais avaient pu dépasser 600°C si la pression était lithostatique. Or durant cette réunion, Mme Vidale nous a indiqué qu'elle avait observé la sillimanite dans le cœur de la zone 2. La sillimanite nécessitant des températures de formation supérieures à 600°C, cette observation peut être considérée comme la preuve que la pression des fluides était très proche de la pression des roches.

3) Enfin, si les circulations de fluides avaient été aisées, les réactions nucléaires auraient entraîné la formation de circuits convectifs qui auraient lessivé non seulement la silice, ce que nous observons, mais également l'uranium, dont la solubilité à haute température et haute pression n'est pas négligeable.[1] Or au cours de la présente réunion nous avons précisément appris que l'uranium, dans les réacteurs et autour de ceux-ci, avait été très peu mobile.

Toutes ces considérations militent donc en faveur d'une pression des fluides très proche de la pression des solides, c'est-à-dire comprise entre 1000 et 800 bars, et de températures allant jusqu'à 600°C et au-delà.

On peut alors schématiser l'histoire du gisement d'Oklo de la manière suivante (voir figure 1): après dépôt des grès ①, la série est enfouie jusqu'à une profondeur voisine de 4,3 km ②; à ce moment commence la diagenèse siliceuse. Puis un événement tectonique plisse les séries et soulève la région, entraînant une érosion. Le phénomène de concentration de l'uranium qui conduira aux réacteurs se produit et les réactions nucléaires ont lieu ③. L'érosion se poursuit et les grès subissent une diagenèse carbonatée ④ aux environs de 800 bars (3,2 km de profondeur) et 180°C.

F. WEBER: On serait tenté de situer la mise en place du minerai primaire au cours de l'enfouissement, dans la fenêtre pétrolière.

B. ALPERN: La fenêtre pétrolière classique se situe à peu près entre 60–65°C et 130–140°C; pour la profondeur, cela dépend du paléogradient à l'époque, disons 2 à 3 kilomètres.

---

[1] NGUYEN TRUNG, C., POTY, B., Solubilité de UO_2 en milieu aqueux à 400 et 500°C et 1 kilobar, Rapport annuel 1976, Centre de recherches pétrographiques et géochimiques, Nancy (1977) 37–39.

D.G. BROOKINS: Un gradient de 50°C par kilomètre me paraît très élevé pour le Précambrien. Pendant combien de temps croyez-vous que ce thermogradient a pu persister? Est-ce qu'on le trouvait seulement dans la zone du réacteur?

B. POTY: Je ne pense pas que ce gradient ait été local puisque nous le retrouvons dans trois sondages situés à 25 km les uns des autres; donc il existait à l'échelle régionale. Il ne s'agit pas d'une aire géothermique fossile, mais d'une élévation de température due à un enfouissement. Pour ma part, je ne considère pas que c'est un gradient considérable: nous avons un bassin subsident lié à du volcanisme, or 50°C par kilomètre, c'est relativement classique dans un tel bassin.

P.R. SIMPSON: Je suis d'accord avec M. Poty sur son dernier commentaire. C'est un gradient très élevé, mais ce gradient nous le trouvons dans des granites uranifères, et je pense qu'il peut s'expliquer par la proximité de granites uranifères dans le bassin.

D.G. BROOKINS: Dans les conditions de température indiquées (240°C), pendant combien de temps la matière organique pouvait-elle survivre sans être détruite? D'autre part, il est difficile de comprendre comment les illites 1M, datées par Bonhomme à 1,75 milliard d'années, ont pu conserver leur argon radiogénique; d'ailleurs, si ce gradient a persisté, la transformation 1M → 2M aurait dû se produire à cette profondeur.

B. ALPERN: Les matières organiques ont en effet certainement été détruites à cette température, ou plutôt carbonisées; car je rappelle que l'évolution se termine par le stade des méta-anthracites ou même la graphitisation, mais il n'y a jamais destruction totale, il reste toujours du carbone. Dans l'échantillon de Mikouloungou on a trouvé près de 7% de pouvoir réflecteur, j'ai deux exemples dans la littérature où cette valeur est dépassée, mais c'est pratiquement un maximum.

F. WEBER: Effectivement la température de ~ 240°C est sûrement très proche de celle où se fait la transformation illite 1Md → 2M. On peut faire deux remarques: a) si dans l'environnement des réacteurs on a toujours de l'illite 1Md, à la base du FA, c'est-à-dire à un niveau stratigraphique 1000 m plus profond, on trouve environ 50% 1M + 50% 2M. On est donc très proche de la zone de passage 1Md → 2M; b) je pense que c'est un argument pour affirmer que la diagenèse siliceuse dont M. Poty a mesuré la température correspond à l'enfouissement maximal atteint par la série et que la série n'est restée que peu de temps aussi profondément enfouie.

E. ROTH: Ne peut-on pas concevoir que ce soit l'enfouissement au cours de la vie du réacteur même, et donc l'augmentation de température et de pression, qui ait d'une certaine façon contribué à l'arrêt du réacteur?

B. POTY: Je ne suis pas sûr d'avoir compris la question, mais je voudrais rappeler d'abord que nous avons apporté la preuve que les réacteurs n'ont pas fonctionné durant un enfouissement mais durant une remontée. D'autre part le fonctionnement du réacteur ne devrait pas changer le régime des pressions, même

à l'intérieur du réacteur. Les spécialistes de la pétrologie expérimentale savent qu'il est très difficile de maintenir une surpression dans une bombe, même dans une bombe très bien usinée; dans les réacteurs d'Oklo, qui sont fracturés, on peut penser que toute surpression due au fonctionnement du réacteur va immédiatement s'éliminer dans les roches voisines. La pression est un paramètre imposé par la masse de sédiments qui se trouvent au-dessus du réacteur et par le degré de perméabilité des roches, mais celles-ci, à mon avis, ne pouvaient en aucun cas être suffisamment imperméables pour maintenir longtemps des surpressions.

3. *Transformations géochimiques au cours des réactions*

F. WEBER: Je pense que cette intervention constitue une très bonne transition pour aborder le sujet suivant. Comme vient de le dire M. Poty, le terrain n'était pas assez étanche pour maintenir une surpression – d'ailleurs il ne faut pas oublier que nous sommes dans une zone fracturée, dans un couloir de cisaillement – donc l'élévation de température a provoqué un mouvement de fluides. C'était d'ailleurs indispensable pour évacuer la chaleur des réactions, parce que si la chaleur s'était évacuée par conduction, on aurait dû avoir des effets thermiques considérables sur les terrains encaissants; or, ce n'est pas le cas: les effets thermiques se limitent à 1,50 mètre, 2 mètres au maximum autour des zones de réaction; donc la chaleur a été évacuée principalement par la circulation des fluides. On peut supposer qu'il y a eu mise en route d'une sorte de siphon thermique, et celui-ci a été à l'origine d'un certain nombre de transformations minéralogiques de la gangue. C'est ce point qu'il serait intéressant de discuter maintenant.

La conséquence la plus importante a été l'évacuation de la silice: l'ordre de grandeur de la quantité de silice évacuée pendant les réactions nucléaires est de 10 tonnes par mètre carré de surface de la couche C1. C'est un chiffre absolument énorme. D'autre part les eaux qui étaient ainsi drainées par les réactions nucléaires n'étaient pas pures; elles étaient chargées en sulfate, en magnésium; elles comportaient au moins des traces de tous les éléments existant dans les grès, et elles ont ainsi apporté des éléments dans cette bouillie de silico-aluminates destructurés. Celle-ci en particulier a piégé du magnésium; là aussi, on peut donner un chiffre qui est assez impressionnant, puisque la quantité fixée est de l'ordre de une tonne par mètre carré de gangue; donc c'est un phénomène très spectaculaire. Il serait nécessaire de faire des études beaucoup plus poussées, en particulier dans le domaine de la thermodynamique des équilibres de minéraux, pour décrire ce qui s'est passé. Je pense qu'il y a là un champ d'action très grand.

Rosemary J. VIDALE: Je vais jouer les avocats du diable pendant quelques instants. Puisqu'il y avait un gradient de température très élevé pendant une longue période de temps, n'a-t-il pas pu y avoir des mouvements très importants de composés chimiques par diffusion, et pas seulement par convection? Nous le

voyons dans des systèmes expérimentaux, surtout pour la silice. Je ne dis pas que c'est ainsi que les choses se sont passées, mais c'est peut-être une éventualité à envisager.

F. WEBER: Oui, il y a sûrement eu des mouvements par diffusion dans les épontes puisqu'on y observe des phénomènes d'épigénie minérale, mais ces diffusions vers les épontes sont restées limitées, puisque, à partir de 2 mètres ou au plus de 3 mètres des zones de réaction, on retrouve partout le sédiment normal intact, tel qu'il était avant la zone de réaction. C'est pourquoi je pense que l'essentiel des circulations fluides s'est fait par le système de fractures dans lequel s'étaient installés les réacteurs naturels.

Rosemary J. VIDALE: Jusqu'à quelle distance des réacteurs pensez-vous qu'on peut observer des effets de transport de silice?

B. POTY: Il semble qu'on observe les fluides chauffés par les réacteurs jusqu'à une cinquantaine de mètres (encore qu'il s'agisse d'échantillons qui prêtent à discussion). Il est sans doute plus facile de voir des inclusions fluides surchauffées que de mettre en évidence une silicification qui peut être très ténue et qu'on aura beaucoup de mal à prouver.

D.G. BROOKINS: Je voudrais souligner quelques points concernant le transport du magnésium et la silicification. D'abord, dans les gisements d'uranium sédimentaires formés près de la surface, la montmorillonite réagit avec la matière organique pour former des chlorites magnésiennes, le fer étant habituellement dans la pyrite. Si ultérieurement il y a oxydation, la pyrite est oxydée en hématite, mais le magnésium retourne en solution. Donc le magnésium se sépare du fer très facilement. C'est un phénomène très commun dans les gisements d'uranium.

D'autre part, les acides organiques peuvent attaquer certaines roches détritiques formant des silicates, et la silice dissoute va nourrir les grains de quartz. Là encore, c'est très classique.

F. WEBER: Je ne doute pas qu'on puisse trouver des choses similaires dans beaucoup d'autres gisements. Ce que je voulais souligner, c'est qu'ici la formation des chlorites magnésiennes est le résultat de transformations hydrothermales dues au «siphon thermique» mis en route par les réactions nucléaires.

B. FRITZ: Pensez-vous que la circulation des fluides a été très loin dans les épontes?

F. WEBER: Dans la zone de transformation illite 1M → 2M, on peut faire un bilan relativement précis puisque la structure de la roche est parfaitement conservée; on est à volume constant, on constate qu'il y a un léger départ de silice et un léger apport d'alumine et potasse, mais il est vrai que ces transferts de matière sont faibles, et pourraient être dus à une simple diffusion. Il en va tout autrement dans la zone à chlorite, où les transferts de matière sont considérables. Et d'ailleurs la structure est totalement détruite dans une partie de la zone. Il y a donc eu vraisemblablement des circulations importantes.

En ce qui concerne les distances, quand j'ai parlé de 2 à 3 mètres, il s'agit de la partie externe de la zone à illites 2M; la zone à chlorite ne va pas si loin, elle

s'arrête en général à moins d'un mètre du cœur des réactions. Bien entendu, en suivant les fractures, les fluides ont pu aller beaucoup plus loin; c'est ce dont M. Poty a parlé tout à l'heure à propos des filons de quartz qu'il observe à une certaine distance des réacteurs.

R. NAUDET: Je voudrais rappeler l'ordre de grandeur des quantités de chaleur qu'il a fallu évacuer. Le total est de l'ordre de 500 milliards de mégajoules, c'est-à-dire en gros 1 million de fois la quantité de chaleur permettant d'élever de 200°C la température des zones de réaction. On peut en tirer deux conséquences. En premier lieu, si on admet que les réactions ont duré au total au moins un million d'années, et même si toute la chaleur avait été évacuée par convection, le débit d'eau nécessaire était très faible. Comme ordre de grandeur, l'eau des réacteurs devait être renouvelée en l'espace d'un an; autrement dit la progression était de l'ordre de quelques dizaines de mètres par an. L'image du «siphon thermique» de M. Weber ne doit pas faire illusion; il ne peut s'agir que d'une convection très lente, et cela rejoint une remarque que M. Poty a faite tout à l'heure.

D'autre part, le facteur 1 million dont j'ai parlé signifie qu'il a bien fallu emmener la chaleur assez loin. On peut imaginer qu'il y a eu toute une série de courants de convection en parallèle; il y avait des circulations dans la zone de réaction, mais il pouvait y avoir d'autres courants convectifs dans les bordures, par exemple dans les grès; ces courants induits étaient à un niveau de température plus bas, et pouvaient être complètement découplés du point de vue de la géochimie.

4. *Orientation des études futures*

F. WEBER: Il reste très peu de temps; j'aurais voulu tout de même qu'on dise quelques mots des problèmes sur lesquels il faudra mettre l'accent dans les études futures. Plusieurs ont été évoqués au cours des discussions. J'en retiens deux principaux, mais il y en a certainement beaucoup d'autres. Premièrement, l'étude des grès riches d'Oklo, y compris l'étude de leurs fluides, est un premier thème, qui me paraît d'une importance fondamentale. J'en vois un autre qui est également très important: il faut reprendre l'étude des transformations hydrothermales liées aux réactions nucléaires dans une optique thermodynamique, et essayer d'interpréter les observations à l'aide de diagrammes d'équilibre, de manière à obtenir des schémas cohérents. Pour l'instant, il faut d'abord rassembler et compléter les observations. il est souhaitable d'ailleurs de confronter les nôtres et celles de Mme Vidale parce qu'elles sont complémentaires. Nous n'avons pas tout vu, je crois qu'elle n'a pas tout vu non plus. Il faut également faire de nouvelles analyses pour établir plus solidement les bilans; ensuite on pourra combiner tout cela dans une interprétation à l'aide des diagrammes thermodynamiques de manière à mieux comprendre ce qui s'est passé.

STABILITE GEOCHIMIQUE DES REACTEURS
GEOCHEMICAL STABILITY OF THE REACTORS

Animateur (Discussion Leader): W.J. MAECK

Introduction

SYNTHESE DES DONNEES CONCERNANT LA STABILITE ET LES REMOBILISATIONS DE L'URANIUM ET DES TERRES RARES

IAEA-TC-119/25

R. NAUDET
CEA, Centre d'études nucléaires de Saclay,
Gif-sur-Yvette, France

Résumé–Abstract

SYNTHESE DES DONNEES CONCERNANT LA STABILITE ET LES REMOBILISATIONS DE L'URANIUM ET DES TERRES RARES.

Malgré la très remarquable stabilité dont ont fait preuve l'uranium et les terres rares au sein des zones de réaction, il y a eu des remobilisations partielles. Celles-ci sont étudiées de manière très détaillée, en rassemblant toutes les informations disponibles provenant des différents laboratoires. En ce qui concerne l'uranium, les petites anomalies isotopiques de la bordure résultent, semble-t-il, de la superposition de plusieurs phénomènes. Le plus important date de l'époque des réactions, et doit être attribué aux courants de convection mus par les dégagements de chaleur; la contamination, très irrégulière, est confinée dans une «auréole» de l'ordre du mètre, et s'étend préférentiellement vers l'amont. Il s'y superpose des perturbations minimes dues à des altérations: à l'époque subactuelle, une petite fraction de l'uranium des bordures s'est restructurée en coffinite; la phase d'altération la plus récente (oxydante) n'a entraîné, semble-t-il, que des quantités insignifiantes d'uranium à l'aval des réacteurs, où l'on trouve parfois jusqu'à vingt mètres une très légère contamination sporadique. On peut considérer comme bien confirmé, au moins en zone 2, qu'il n'y a pas eu d'apport significatif d'uranium dans le cœur postérieurement au début des réactions. Cette affirmation n'est pas contradictoire avec l'existence de déplacements liés aux courants de convection; en effet, dans un contexte de propagation vers l'amont, le redépôt pouvait avoir lieu avant l'arrivée des réactions. L'hypothèse de déplacements relativement massifs, qui auraient au moins dans certains cas reconcentré progressivement l'uranium vers l'amont, n'est pas exclue. Il est probable que dans ce cas la solubilisation se produisait en majeure partie au début des réactions, avant que la pechblende disséminée se restructure en uraninite massive. En ce qui concerne les terres rares, la remobilisation est systématique, et elle affecte aussi bien les éléments naturels que les produits de fission. Elle est également liée à l'existence de courants de convection au moment des réactions, mais elle est complètement découplée de celle de l'uranium. Sauf pour le cérium et l'europium, dont une fraction a été éliminée des zones de réaction, il s'agit de déplacements erratiques à courte distance (décimétrique), qui ont eu pour effet d'étaler légèrement les distributions et de provoquer des mélanges isotopiques. La proportion de

produits de fission entraînée à l'extérieur des réacteurs n'est que de quelques %, mais la contamination est encore décelable à plusieurs mètres du cœur. Les terres rares migrantes sont sorties de l'uranium soit par effet de recul, soit au moment de la restructuration de pechblende en uraninite, soit par solubilisation de l'uranium; elles sont rentrées à nouveau dans les grains d'uranium après recristallisation des argiles. Un fractionnement assez notable entre les éléments a accompagné cette remobilisation: en particulier les terres rares lourdes (gadolinium, dysprosium) ont migré davantage et plus loin que les terres rares légères (néodyme, samarium). Les effets des remobilisations des terres rares dans le cœur sont souvent masqués par des compensations; néanmoins ils sont loin d'être négligeables. Les courbes de fluence déduites des transferts isotopiques sont systématiquement déformées, et on observe parfois des anomalies importantes dans les quantités de produits de fission. Il résulte de ces différentes remarques qu'il convient d'être très prudent dans l'application des mesures sur l'uranium et les terres rares à l'estimation de la date du phénomène.

SUMMARY OF THE DATA ON THE STABILITY AND THE REMOBILIZATIONS OF URANIUM AND RARE EARTHS.

In spite of the very remarkable stability shown by uranium and the rare earths in the reaction zones, there have been some partial remobilizations. These have been studied in great detail by assembling all the information available from different laboratories. As far as the uranium is concerned, the slight isotopic anomalies at the edge appear to be the result of the superposition of several phenomena. The most important of these dates from the period of the reactions and must be attributed to the convection currents set in motion by the emission of heat; the contamination, which is very irregular, is confined in an "aureole" of approximately one metre and extends preferentially in an upstream direction. In addition, there are very small perturbations due to alterations: in the more recent period a small fraction of the uranium of the edges has become restructured into coffinite; the most recent (oxidizing) phase of alteration appears to have carried only insignificant amounts of uranium downstream from the reactors, where a sporadic, very slight, contamination is sometimes found at a distance of up to 20 metres. It may be considered as fully confirmed, at least in zone 2, that there has been no significant uranium deposit in the core subsequent to the beginning of the reactions. This statement is not in contradiction with the fact that there are displacements associated with convection currents, since in a context of upstream propagation redeposition could take place before the arrival of the reactions. The assumption of relatively substantial displacements, which at least in certain cases would have gradually re-concentrated the uranium in an upstream direction, cannot be ruled out. It is probable that in this case solubilization took place for the most part at the beginning of the reactions, before the disseminated pitchblende became restructured into massive uraninite. In the case of the rare earths, the remobilization is systematic and it affects the natural elements as well as the fission products. It is also linked with the existence of convection currents at the time of the reactions, but it is completely separate from the uranium remobilization. Except for cerium and europium, a fraction of which has been eliminated from the reaction zones, we are dealing with erratic, short-distance (decimetric) displacements which have had the effect of spreading out the distributions slightly and of resulting in mixtures of isotopes. The proportion of fission products carried to outside the reactors is only a few per cent but the contamination is still detectable several metres from the core. The migrating rare earths issued from the uranium by a recoil effect, or when the pitchblende was restructured into uraninite, or by solubilization of the uranium; they re-entered the grains of uranium after recrystallization of the clays. This remobilization was accompanied by a fairly considerable splitting up among elements: more particularly, the heavy rare earths (gadolinium, dysprosium) migrated further and to a greater extent than the light ones (neodymium, samarium). The effects of the rare-earth remobilizations in the core are often masked by compensations; nevertheless, they are by no means

negligible. The fluence curves deduced from isotopic transfers are systematically deformed and sometimes considerable anomalies are observed in the quantities of fission products. It follows from what has been stated above that great caution should be exercised in applying measurements on uranium and rare earths to estimates of the date of the phenomenon.

Dès le début des études sur le phénomène d'Oklo, il est apparu que l'uranium et les terres rares avaient fait preuve, au sein des zones de réaction, d'une remarquable stabilité. Toutefois, on a su également dès le début qu'il y avait un peu d'uranium appauvri déplacé, et la suite des études a montré que les terres rares, comme d'ailleurs d'autres éléments apparemment très stables, avaient été partiellement remobilisés.

La stabilité géochimique des réacteurs, avec ses limites, est un problème essentiel, qu'il convient de discuter avec soin ; la question a d'autre part des incidences très directes sur la géochronologie. Les données sur les remobilisations de l'uranium et des terres rares sont complexes et proviennent de différentes sources : au moins sept ou huit laboratoires ont apporté des contributions ; des analyses isotopiques d'uranium ont été faites dans plus d'un millier d'échantillons, et des analyses isotopiques de terres rares dans près de deux cents échantillons. Il a donc paru intéressant de regrouper toutes ces informations en les présentant de manière ordonnée.

1 - L'URANIUM

1.1 Stabilité dans le coeur

Dès les premières études sur Oklo, on a été frappé par l'existence de nombreuses corrélations qui tendaient à prouver que les réacteurs n'avaient pas été gravement altérés. Dans chaque échantillon, il y a cohérence entre les indications de fluence fournies par les différents isotopes capturants, et proportionnalité des produits de fission aux rendements correspondants. D'autre part, dans une suite d'échantillons, le long d'une coupe ou d'un sondage, toutes les indications liées aux taux de réaction varient simultanément de manière corrélée. En outre ces variations sont régulières, et sont en relation avec la configuration actuelle de l'uranium, conformément à ce que peut prédire la physique des réacteurs ; bien plus, au deuxième degré, les indices de spectre ou les facteurs de conversion, obtenus par rapprochement entre plusieurs mesures, sont eux-mêmes corrélés à la distribution de l'uranium. Tous ces faits ont été abondamment décrits et commentés à Libreville [1] [2] [3] [4] [5] [6] [7]. Ils prouvent que l'uranium et les terres rares sont restés en place - au moins en première approximation - depuis l'époque des réactions.

Il convient naturellement de regarder les choses de plus près : on s'aperçoit que ces corrélations ne sont pas parfaites : dans le coeur, on observe de petites fluctuations [8] et parfois des anomalies importantes [9] ; surtout les corrélations cessent d'être strictement respectées quand on approche des bordures des zones de réaction. Soulignons qu'il s'agit de déséquilibres relatifs : faut-il incriminer l'uranium, ou les terres rares, ou les deux ? On dira plus loin que ces désaccords peuvent

s'expliquer en totalité par la remobilisation des terres rares, et comme on va le voir, il y a beaucoup d'autres faits qui ne concernent que l'uranium. Pour pouvoir trancher, ce sont ces derniers qu'il faut plus particulièrement passer en revue.

Le long d'une coupe ou d'un sondage, l'appauvrissement isotopique de l'uranium varie de manière très régulière, et les courbes comportent parfois des gradients très aigus. D'autre part, dans chaque échantillon, il y a une excellente homogénéité de composition isotopique. Il faut remarquer tout de suite que cette homogénéité ne permet pas par elle-même d'exclure qu'il y ait eu des remobilisations, car elle pourrait s'expliquer par une restructuration ultérieure (l'uranium s'étant rehomogénéisé en solution) ; mais cette dernière hypothèse doit être totalement écartée, car elle se heurte à de nombreux faits. Notons d'abord que s'il y avait eu rehomogénéisation, il ne devrait pas subsister de pics très aigus d'appauvrissement isotopique (on observerait des courbes "molles", peu contrastées ; c'est le cas justement pour les "fluences néodyme" comme on le verra plus loin). Mais surtout tout un ensemble d'observations tendent à prouver qu'il subsiste des grains d'uranium actuels datant de l'époque des réactions.

L'analyse ionique montre que les grains d'uranium contiennent de nombreux produits de fission, y compris des éléments qui n'ont pas une affinité particulière pour l'uranium, et qu'on ne les trouve en général que là, ce qui tend à prouver qu'ils sont restés là où ils sont nés. C'est ainsi qu'on y trouve non seulement toutes les terres rares et le thorium radiogénique, mais aussi des éléments comme le ruthénium, le rhodium et le palladium. De même on trouve dans les grains d'uranium du zirconium qui est exclusivement de fission [10], alors que l'élément naturel, toujours présent, est lié à la gangue argileuse ; il est important de noter que là où l'uranium n'a pas réagi, il ne contient pas de zirconium, ce qui prouve que celui-ci n'a pas eu tendance à entrer spontanément dans les grains. La proportionnalité de la teneur en thorium radiogénique au taux de fission mérite aussi une mention particulière, puisque ce thorium a été formé à partir de l'isotope 236 quelques dizaines de millions d'années après les réactions. En outre la sonde ionique montre que tous les grains d'une même plage ont des teneurs comparables pour chacun de ces éléments.

Un autre argument très important, et à vrai dire décisif, est que les grains d'uranium ont conservé la marque de dégâts d'irradiation; les observations pétrographiques avaient déjà conduit à la conclusion que les grains d'uraninite ne semblaient pas provenir d'une recristallisation récente [11]. Mais les observations au microscope électronique ont mis en évidence l'existence des cristallites qui sont les témoins des réactions [12]. En effet : 1. ces cristallites n'existent pas dans des grains d'uraninite d'âge comparable provenant d'autres gisements ; 2. elles peuvent être reproduites artificiellement par irradiations dans un accélérateur ; 3. A Oklo, leur densité est corrélée à l'appauvrissement isotopique de l'uranium.

Les grains d'uranium ont donc "vu" les réactions. C'est une conclusion très importante, mais qui ne suffit pas à prouver qu'il n'y a pas eu de remobilisation partielle ou contamination ultérieure, car bien entendu les observations précédentes sont beaucoup moins nettes lorsqu'il s'agit des petites fractions d'uranium disséminé dans la gangue. Mais c'est là qu'intervient, pour exclure cette hypothèse, l'argument d'homogénéité de composition isotopique : si dans un échantillon il y avait eu apport d'uranium venant de l'extérieur, celui-ci n'aurait eu aucune raison d'être à la même teneur isotopique que les grains d'origine.

Rappelons que cette homogénéité a été vérifiée à différentes échelles. Si on découpe en plusieurs fragments un échantillon centimétrique, les fragments ont la même composition isotopique. Si d'autre part on cherche à séparer les parties dures, formées généralement de gros grains d'uraninite, et les parties molles constituées d'argiles avec un peu d'uranium disséminé, on trouve des teneurs isotopiques identiques ou très voisines [11]. A l'échelle beaucoup plus fine, à l'analyseur ionique on trouve sensiblement les mêmes teneurs isotopiques dans chaque grain ou chaque petite plage de quelques dizaines de µm [10]. Enfin une mesure américaine extrêmement fine et précise a montré que même à l'intérieur des grains, on ne pouvait pas observer de zonage significatif [13].

Cette question de l'homogénéité des teneurs isotopiques étant très importante (elle montre en même temps qu'il n'y a pas eu de migration significative du plutonium), il convient de la discuter avec soin, car on observe malgré tout de petites fluctuations. La longueur de migration des neutrons étant de l'ordre de la dizaine de centimètres, il ne peut y avoir de grandes variations de fluence à l'échelle centimétrique ; néanmoins les variations ne sont pas tout à fait négligeables lorsqu'il y a de forts gradients. D'autre part, il peut y avoir des différences de facteur de conversion à cette échelle, celui-ci étant normalement un peu plus grand là où l'uranium est plus disséminé (effet d'autoprotection des résonances). Les fluctuations observées semblent pouvoir s'expliquer totalement par ces deux effets,datant des réactions elles-mêmes ; en particulier il semble y avoir une petite différence systématique entre les grains et l'uranium des fractions argileuses, celui-ci étant en général légèrement moins appauvri (cf. en particulier les analyses isotopiques dans les échantillons 1413 et 1418 du SC 36 [14], et les observations à l'analyse ionique dans l'échantillon 400/7 [10]). Cependant, en toute rigueur, on ne peut pas exclure l'existence de très petites perturbations ; on peut seulement dire que, si elles existent, ces perturbations ne dépassent pas en général quelques % en valeur relative.

On peut donc conclure, avec beaucoup de force, qu'il n'y a pas eu de remobilisation significative de l'uranium dans le coeur, c'est-à-dire que l'uranium qu'on y trouve était là au moment des réactions, qu'il n'a pas été déplacé, et qu'il n'y a pas eu d'apport notable postérieur au début des réactions.

Par contre, les remarques qui précèdent ne permettent pas d'exclure qu'un peu d'uranium ait été éliminé définitivement de la zone de réaction par solubilisation ; ce point est discuté plus loin.

1.2 Remobilisations dans les bordures

Au vu de cette conclusion, les observations faites dans les bordures des zones de réaction (c'est-à-dire là où on retrouve du minerai pauvre et des taux de réaction faibles) peuvent paraître un peu troublantes.

D'une part, on trouve assez souvent de l'uranium légèrement appauvri dans des portions où il ne peut s'expliquer par des réactions locales ;en outre on observe parfois des fluctuations assez notables de teneur isotopique et des corrélations beaucoup moins nettes entre l'uranium et les éléments associés (produits de fission ou radiogéniques). D'autre part, une petite partie de l'uranium se trouve sous forme de coffinite, et les observations pétrographiques tendent à prouver que celle-ci est de formation récente [11] ; en effet ce minéral se métamictise facilement et ici il est

TABLEAU I. DISTINCTION ENTRE LES DEUX FACIES URANINITE ET PECHBLENDE

Ce tableau résume les observations effectuées par M. GEFFROY (COGEMA, Service Minéralogie). On a groupé les échantillons en 5 catégories : 1. coeur - 2. épontes - 3 bordures latérales (riches) - 4. argiles pauvres de bordure - 5. grès. Les distances au coeur sont approximatives.

	Localisation	n° échant.	Distance au coeur	Teneur U	% ^{235}U	Diagnostic
1.	Coupe 2 L	n° 400/7	coeur	20 %	0.323	uraninite
	Coupe 2'P'	n° 1182	"	18 %	0.323	"
	Coupe 2'Q'	n° 1284	"	9 %	0.348	"
	KN 50	B. 3548	"	40 %	0.444	"
	"	n° 321	"	10 %	0.557	"
	Coupe 2 L	n° 405	"	62 %	0.578	"
	SC 11	n° 475	"	17 %	0.615	"
	"	n° 477	"	34 %	0.621	"
	Coupe 2'N	n° 699	"	48 %	0.658	"
	Front 119	GL 600	"	42 %	0.670	"
2.	SC 20	n° 1357	0.20 m	18 %	0.676	uraninite
	"	n° 1336	0.40	8 %	0.669	? (coffinite)
	"	n° 1332	0.60	17 %	0.663	uranin.+pechbl.(+coffin)
	"	n° 1326	0.90	7 %	0.678	"
	"	n° 1317	2.20	4 %	0.712	pechblende
	SC 36	n° 1424	0.10	1 %	0.634	? (coffinite)
	"	n° 1809	0.30	0.4%	0.714	"
	"	n° 1905	0.60	0.7%	0.713	"
	SC 44	n° 1912	0.90	7 %	0.717	pechblende(+coffinite)
3.	KN 242	n° 2610	proche	48 %	0.690	uraninite
	Coupe 1 U	n° 911	"	32 %	0.694	"
	KN 259	n° 2322	"	50 %	0.694	uraninite+pechblende
	KN 234	n° 2304	"	58 %	0.698	"
	SC 47	n° 1878	0.80 m	30 %	0.717	"
	SC 53	n° 1763	1.00	32 %	0.719	pechblende
	SC 48 bis	n° 2283	2.30	∿ 25 %	0.720	"
4.	Afft. n°2	n° 600	∿0.50 m			pechblende+uraninite
	Ech. géol.	n° 762	∿1.00			? (coffinite)
		n° 764	∿1.40			? coffinite
		n° 596	∿2.20			pechblende
		n° 594	∿2.50			"
		n° 780	∿5.00			"
		n° 781	∿5.00			"
5.	Carrière	n° 312	loin	∿ 2 %	0.720	pechblende
	SC 1	n° 1216	∿1.50 m	"	"	"
	SC 23	n° 1252	∿1.00	∿ 1 %	0.710	"

bien cristallisé (et d'ailleurs dans un échantillon de coffinite on a trouvé extrêmement peu de plomb radiogénique [15]). Ainsi, dans les bordures, on trouve fréquemment de l'uranium déplacé, et une fraction au moins semble avoir été restructurée.

Une question importante se pose alors : faut-il admettre que les bordures ont eu un comportement différent ; ou bien ces indices de remobilisation existent-ils partout, et dans ce cas doit-on conclure simplement qu'ils sont moins visibles là où l'uranium est plus massif et plus dégradé isotopiquement ?

Les petites fluctuations de teneur isotopique observées dans le coeur, semblent toujours d'un ordre de grandeur nettement plus faible que ce qu'on observe parfois en bordure (même en valeur absolue). D'autre part, on n'a trouvé de coffinite que dans la bordure ; celle-ci est très souvent associée à la présence de kaolinite dans les argiles ; il résulte de cette dernière observation et de quelques autres, qu'il semble y avoir eu dans les argiles broyées à la limite du coeur une zone d'altération préférentielle.

Il convient de rappeler par ailleurs que dans les zones de réaction, l'oxyde d'uranium se trouve sous forme d'uraninite et non de pechblende comme partout ailleurs (il s'agit de deux formes d'un même minéral, l'uraninite étant mieux cristallisée, la pechblende en partie concrétionnée). Une étude systématique a permis de confirmer que la présence d'uraninite est une propriété exclusive du coeur du réacteur [11](voir tableau I). On la trouve même dans les portions du coeur où les teneurs sont basses ; inversement on n'en trouve pas dans le minerai argileux où il n'y a pas eu de réactions, ni dans les grès riches. On constate qu'il suffit de s'éloigner du coeur de quelques décimètres pour que l'uraninite soit remplacée d'abord par un mélange d'uraninite et de pechblende (avec éventuellement de la coffinite) puis, à un mètre environ, uniquement par de la pechblende. On sait que la formation de l'uraninite suppose généralement des températures plus élevées que la pechblende (> 350 °C) ; il semble donc bien que ce soit les réactions nucléaires qui, par effet de température, ont fait recristalliser l'oxyde d'uranium en uraninite. D'ailleurs, puisqu'on sait maintenant que le minerai des réacteurs résulte de la désilicification des grès de C_1, il faut bien admettre que l'uranium était initialement sous forme de pechblende et qu'il y a eu restructuration.

Dans le coeur l'uraninite se présente sous forme massive, avec de gros grains (c'est ce qu'on a appelé le "faciès-pile"), alors que dans les bordures l'uranium est plus disséminé. Des essais faits à l'Institut Français du Pétrole ont montré que par attaque ménagée (acide dilué à basse température) le minerai de bordure est beaucoup plus facilement soluble que le minerai du coeur, même à teneur égale [16]. Il se pourrait donc que la restructuration de l'uranium du coeur, survenue au début des réactions nucléaires, ait rendu celui-ci moins vulnérable aux altérations ultérieures. Cette remarque, jointe à l'observation selon laquelle les circulations récentes auraient eu lieu préférentiellement dans les bordures, justifierait donc la différence de comportement relevée.

Il convient cependant d'apporter une attention particulière au fait qu'on trouve dans les bordures de petites quantités d'uranium déplacé ; il n'est pas évident en effet que celui-ci soit le résultat d'altérations récentes.

1.3 Problème de l'uranium déplacé

1.3.1 Il est nécessaire tout d'abord de préciser les faits ; on ne peut pas en effet les résumer de manière simple, ce qui pourrait signifier qu'il y a superposition de plusieurs phénomènes. On distinguera les épontes des zones de réaction, les bordures latérales, et les portions de terrain plus éloignées.

a) En ce qui concerne les épontes, on observe presque toujours des anomalies, mais celles-ci ont plus ou moins d'ampleur ; on constate d'autre part qu'elles peuvent être ou ponctuelles ou au contraire plus massives.

Dans certains cas les anomalies sont inexistantes ou insignifiantes. Par exemple, au mur du sondage SC 36, l'appauvrissement isotopique décroît très régulièrement jusqu'à l'échantillon 1901 où la teneur en 235 est 0.7181 %, et le très faible appauvrissement dans cet échantillon est encore justifié par la fluence déduite de l'étude des terres rares [8] ; toutefois l'échantillon 1905, 20 cm plus loin, montre une très légère anomalie (0.7132 %). On peut faire des observations analogues au toit du SC 44. Dans d'autres cas, les anomalies sont plus importantes ; par exemple au mur du SC 20, l'échantillon 1360, d'ailleurs très pauvre en uranium (0.06 %) a un appauvrissement isotopique anormalement élevé (0.628 %). Toute la série 435 à 444 de la coupe 2 P contient de l'uranium appauvri déplacé ; la distribution est aléatoire, et dans des fragments voisins on peut trouver des teneurs en 235 très différentes (allant par exemple de 0.717 à 0.558 %) [1].

En revanche, au toit des sondages SC 36, SC 20, SC 30 et SC 30bis, on trouve de larges portions dans lesquelles tous les échantillons ont des appauvrissements isotopiques du même ordre. Dans le SC 36, la concentration en isotope 235 reste comprise entre 0.65 et 0.68 % sur au moins 60 cm, et on a trouvé pratiquement la même valeur dans deux échantillons distants d'un centimètre (il s'agit ici de minerai pauvre : 0.1 à 0.8 %). Dans les trois autres sondages, où la concentration isotopique reste de l'ordre de 0.68 % sur des portions de l'ordre du mètre, les teneurs en uranium sont beaucoup plus élevées. En particulier dans les deux sondages voisins SC 30 et 30 bis, les teneurs sont comprises entre 5 et 25 % (il y a presque autant d'uranium dans cette éponte que dans la zone de réaction proprement dite) ; or toutes les analyses isotopiques donnent des résultats compris entre 0.6834 et 0.6879, donc extrêmement voisins [17], et l'analyse ionique montre que tous les grains d'une même plage ont pratiquement la même teneur isotopique [15]. Il ne s'agirait donc pas d'un mélange d'uranium déplacé et d'uranium local : tout se passe donc comme s'il y avait eu dans ce cas un apport massif d'uranium appauvri de composition homogène.

Dans le cas d'anomalies ponctuelles ou de fluctuations locales de teneur isotopique, on peut penser que c'est le résultat d'un phénomène d'altération, liée par exemple à la formation de coffinite, mais cela ne peut pas tout expliquer. En outre il semble bien que ce qu'on observe au toit des sondages dont on vient de parler soit de nature tout à fait différente. On a vérifié que dans le SC 30 bis une petite fraction seulement de l'uranium est sous forme de coffinite ; le reste est de l'uraninite ou de la pechblende suivant l'éloignement du coeur, comme ailleurs [18] ; il ne semble donc pas qu'on puisse attribuer à une rehomogénéisation ultérieure l'uniformité de teneur isotopique.

b) Dans les bordures latérales des zones de réaction, on observe également des anomalies. Le plus souvent, il est difficile de savoir si les

légers appauvrissements isotopiques trouvés dans les sondages de bordure sont dus à des réactions locales ou à des contaminations, car les perturbations des terres rares ne permettent pas de conclure avec certitude. Il semble que dans de nombreux cas, et contrairement à ce qu'on avait pensé au départ, il s'agisse de "queues" de réactions locales [9]. Toutefois Mme HAVETTE a trouvé dans des échantillons provenant des KN 259 et KN 242 des grains où l'uranium a la teneur naturelle voisinant avec d'autres plus appauvris que la moyenne [15]. D'autre part, dans quelques cas, des sondages n'ayant traversé que du minerai pauvre comportent des appauvrissements isotopiques qui ne sont guère explicables que par contamination (par exemple KN 236 : 0.647 %). Il convient de soùligner que les sondages présentant ces anomalies sont toujours extrêmement proches des réacteurs.

Une question importante consiste à se demander si ce phénomène existe à l'amont ou à l'aval des réacteurs (en prenant garde qu'un échantillon situé à l'amont d'une zone de réaction peut être à l'aval d'une autre, ou inversement). On ne peut rien dire en ce qui concerne l'amont de la zone 2 par exemple car il n'y a pas de sondages, et il a été exploité en même temps que la zone 1. Par contre, dans deux cas au moins, les indications semblent nettes : on a trouvé de l'uranium appauvri dans les "cuttings" des sondages percutants situés à l'amont de la zone 3 ; en particulier la passe riche de EXP 16 se trouve à la cote 363, nettement au-dessus de tous les réacteurs du voisinage (la zone 2 se trouve à plus de quarante mètres). En second lieu, de l'uranium légèrement appauvri a été extrait au-dessus de la cote 388, au début de l'exploitation de la zone 1, alors qu'il ne semble pas exister de réacteur au-dessus de cette cote [19].

On remarque d'autre part que tous les sondages situés immédiatement à l'amont des zones 6 et 4 comportent de l'uranium légèrement appauvri (KN n° 260 et 254 pour la zone 6, n° 232, 224, 233 et 229 pour la zone 4) ; on ne peut pas exclure, pour certains au moins de ces sondages, qu'il s'agisse de "queues" de réactions ; néanmoins on est frappé par le contraste avec les sondages situés en aval. On notera en particulier qu'immédiatement à l'aval de la zone 1, les sondages SC 23, 24 et 26, qui sont pourtant déjà en partie désilicifiés, ont de l'uranium normal. De même sur l'affleurement GL 8, à l'aval de la zone 5, l'uranium est normal alors qu'il y a encore une contamination importante en terres rares [9]. Donc non seulement on peut affirmer qu'il y a de l'uranium déplacé à l'amont des réacteurs, mais il semble que c'est là qu'on le trouve préférentiellement.

c) Dès qu'on s'éloigne de plus de un ou deux mètres des zones de réaction, l'uranium redevient parfaitement normal. La moyenne de concentration isotopique pour 22 sondages KN situés entre deux et douze mètres des zones de réaction est de 0.7200 %, à comparer avec la moyenne des lots d'uraninite d'Oklo-sud : 0.7201 % ; on peut donc dire que la contamination à partir des réacteurs est pratiquement nulle dès qu'on s'en éloigne.

Toutefois, dans quelques sondages, tous situés à l'aval des zones de réaction, on a trouvé de l'uranium à teneur très légèrement inférieure à la normale : 0.7189 % (± 0.0004) dans KN 270 et KN 272 à l'aval de la zone 1, 0.7193 % dans KN 275 à l'aval de la zone 5, et 0.7184 % dans KN 277 à l'aval de la zone 4. D'autre part, on a également trouvé de l'uranium très légèrement anormal dans des "cuttings" provenant de tirs à l'aval de la zone 1 (tirs n° 144, 172, 190 et 194 : concentrations isotopiques allant de 0.7183 à 0.7189). A titre indicatif, le tir 194 est vingt mètres au-dessous du bas de la zone 1. Il semble s'agir d'une contamination d'un type tout à

fait différent de celui rencontré dans l'"auréole" (qui est toujours limité à la bordure immédiate des réacteurs, et qui a un caractère systématique) ; ici il s'agit d'une contamination de type aléatoire, sporadique, à distance quelconque des réacteurs (mais toujours vers l'aval).

On a signalé dans [20] qu'à deux reprises au cours de l'exploitation, en février et mars 1976, puis en novembre et décembre de la même année, on avait extrait de l'uranium anormal ; la première fois immédiatement à l'aval de la zone 1, la seconde fois à 150 mètres environ au sud des zones de réaction (et légèrement plus bas). On a attribué l'origine de cet uranium à une contamination géochimique analogue à celle qui vient d'être mentionnée ; il s'agit cependant de phénomènes d'une toute autre ampleur, puisque le déficit s'est chiffré en kilogrammes d'uranium 235 manquant. On peut se demander s'il ne faut pas contester cette interprétation ; d'autres explications en effet sont possibles.

Dans le premier cas, l'uranium anormal semble avoir été apporté par le tir n° 129 ; il se pourrait qu'on ait laissé échapper une petite portion de réacteur, comme on l'a suggéré dans [19]. Dans le deuxième cas, l'explication serait tout à fait différente : en 1973 on a raclé par inadvertance l'affleurement n° 2, et on peut estimer à une dizaine de kilos l'uranium 235 manquant dans le volume enlevé ; le minerai correspondant, confondu avec les stériles, a été vraisemblablement poussé vers le sud, et les eaux de ruissellement ont pu l'entraîner partiellement vers l'albraque. Il se trouve que c'est précisément à proximité de cet ancien albraque que l'uranium anormal a été extrait. Ce n'est qu'une hypothèse, mais on peut s'étonner en tout état de cause de la position de ce secteur (au sud plutôt qu'à l'aval), et du caractère massif et localisé de cette "contamination", alors que tout l'uranium extrait depuis un an au sud ou à l'aval des réacteurs a été parfaitement normal.

Finalement, il semble qu'il y ait superposition de trois phénomènes distincts :

- d'une part dans l'environnement immédiat des réacteurs ("l'auréole") ; on trouve des anomalies aussi bien dans les épontes que dans les bordures latérales, mais toujours très près du coeur (moins de 1 ou 2 mètres) et semble-t-il, préférentiellement à l'amont ; on peut distinguer d'ailleurs
  . des anomalies ponctuelles, qui semblent être souvent de simples irrégularités,
  . des déplacements d'uranium appauvri, qui dans certains cas ont un caractère massif ;
- d'autre part, à l'aval des réacteurs, on trouve à distance quelconque une contamination très sporadique ; si, comme on l'a suggéré, on peut expliquer différemment les deux groupes de lots d'uranium appauvri fabriqués par l'usine en dehors des campagnes d'exploitation des zones de réaction, cette contamination ne porterait que sur des quantités extrêmement faibles d'uranium déplacé.

1.3.2 Il faut alors s'interroger sur la nature et la date de ces différentes perturbations.

Au début de l'étude, on a pensé que tout s'expliquait par des phénomènes d'altération récents ou subactuels. Rappelons brièvement ce qu'on connaît à ce sujet, d'une part par des observations à l'échelle régionale, d'autre part par l'étude du plomb [21]. On observe, dans toute la région, un rajeunissement des reliefs qui semble dater de quelques dizaines de millions

d'années seulement, et qui serait en tout cas postérieur à l'éocène. Le gisement serait remonté près de la surface, et il y aurait eu des mouvements tectoniques provoquant quelques fracturations (ou rejeux de fractures anciennes), et des circulations, d'où des altérations ; on est resté en ambiance réductrice dans la majeure partie de cette période, à laquelle on attribue l'altération des minéraux argileux en kaolinite, celle de l'oxyde d'uranium en coffinite, et un départ assez massif de plomb et sans doute la formation de galènes.

Lorsque le gisement est arrivé très près de la surface, l'altération a commencé à prendre un caractère oxydant ; on a donc pu déplacer un peu d'uranium ; on observe des déséquilibres dans sa chaîne de décroissance radioactive, et il semble qu'il y ait eu un regain dans la sortie du plomb. En fait, on trouve extrêmement peu de minéraux d'uranium en valence six dans le minerai qui vient d'être extrait (l'oxydation visible sur certains échantillons est presque toujours postérieure à la découverture). Il semble donc que l'oxydation ait été extrêmement faible, et donc les possibilités de déplacement récent très limitées.

Si l'on revient aux observations, on voit qu'on peut expliquer par la formation de coffinite dans les bordures des zones de réaction certaines perturbations ponctuelles, et par l'oxydation superficielle et récente la très légère contamination constatée de manière sporadique à l'aval des réactions (et aussi probablement une très petite partie des perturbations dans les bordures). Par contre il ne semble pas possible d'attribuer à ces phénomènes récents la formation de "l'auréole" dans son ensemble.

La contamination observée par exemple au toit des SC 30 et SC 30 bis est trop massive pour être attribuable à une oxydation récente de l'uranium. D'autre part, on ne peut expliquer aisément cette disposition en auréole, avec une contamination systématique à l'intérieur et presque totalement nulle à l'extérieur. Et surtout, s'il s'agissait d'un déplacement par les circulations superficielles, on devrait le trouver presque exclusivement à l'aval, alors que la contamination des bordures existe également et même préférentiellement à l'amont. D'ailleurs le contraste est frappant entre l'auréole et les petites perturbations que l'on trouve précisément à l'aval à distance quelconque.

On sait qu'à l'époque des réactions il y a eu, dans toute la zone broyée qui déborde les réacteurs, des courants de convection liés au dégagement de chaleur, qui ont en particulier désilicifié presque totalement les grès ; les circulations se faisaient d'ailleurs préférentiellement vers l'amont, puisque mues par des différences de densité, et cela est confirmé par l'observation de la désilicification dans les deux bordures amont et aval de la zone 6 [19]. On trouve également, dans le même espace, des terres rares de fission déplacées, et comme on le dira plus loin, il est impossible d'expliquer les faits observés, et en particulier le fractionnement, par des altérations récentes. Aussi bien pour l'uranium que pour les terres rares, il est donc naturel d'attribuer à ces circulations datant des réactions la formation de l'auréole (on sait que la solubilité de l'oxyde d'uranium augmente sensiblement avec la température) [21 bis].

On a cherché à en donner une démonstration directe en étudiant la corrélation entre l'uranium 235 manquant et le thorium ; en effet chaque fois que de l'uranium 235 est détruit, une fraction se retrouve en 236, et si le déplacement a eu lieu avant la décroissance de ce dernier isotope, on

doit retrouver le thorium formé [21]. On a trouvé effectivement une corrélation extrêmement nette dans trois échantillons voisins de la bordure inférieure du SC 44 ; toutefois la validité de l'échantillonnage a été mise en doute ; il se pourrait qu'il y ait eu un déplacement d'uranium appauvri au cours du carottage [9] ; dans trois autres échantillons de la bordure supérieure du SC 30 bis, on a trouvé une corrélation moins nette (à cause de la présence de thorium commun) mais néanmoins visible. Une corrélation a également été observée entre deux grains d'un échantillon en analyse ionique [15].

On admettra donc que c'est à l'époque des réactions que la majeure partie du déplacement a eu lieu, les altérations récentes n'ayant apporté que des perturbations secondaires.

1.3.3 Cette conclusion nous oblige à revenir sur la distinction faite précédemment entre le coeur et la bordure, et à nous interroger sur l'ampleur de ce déplacement d'uranium. En effet la différence de comportement de la bordure en matière d'altération ne peut plus être invoquée ; pourquoi l'uranium ne se serait-il déposé qu'en dehors du coeur ? Et comment faut-il interpréter les dépôts relativement massifs que l'on observe dans certains cas ? s'agit-il de circonstances particulières, ou faut-il considérer ces régions contaminées comme la "partie visible de l'iceberg", les déplacements ayant été beaucoup plus considérables qu'il n'apparaît ?

On peut remarquer que les cas de contamination massive et homogène que nous avons notés sont dans des niveaux stratigraphiques habituellement non minéralisés : dans le SC 36, il s'agit des pélites du toit ; dans la portion de zone 1 qui contient les SC 20, SC 30 et SC 30 bis, la nature des argiles minéralisées n'est pas très claire, mais on peut se demander s'il ne s'agit pas de grès du F_1B désilicifiés. Le caractère très homogène de l'appauvrissement isotopique semble montrer que ces roches n'ont pas été minéralisées au moment de la surconcentration. Doit-on l'interpréter comme un dépôt de nature différente, ou faut-il penser que la fracturation qui l'a rendu possible est intervenue postérieurement à la surconcentration ? Comme il s'agit du toit, elle aurait pu se produire à l'occasion des effondrements consécutifs à la désilicification. (Au mur on trouve en général très peu de contamination ; seuls les premiers décimètres de grès fins sont quelquefois minéralisés, et dans ce cas on trouve de l'uranium naturel avec un peu d'appauvri).

Il n'est pas inconcevable qu'au moment des réactions on ait dissous des quantités importantes d'uranium. La fugacité de l'oxygène augmente avec la température ; d'autre part la radiolyse de l'eau était susceptible de faire apparaître de l'oxygène actif. On a deux indications qui pourraient montrer qu'il y a eu des phénomènes d'oxydation au cours des réactions : d'une part, on a constaté que la quantité relative de cérium relativement aux autres terres rares diminue quand on s'approche des réacteurs (voir plus loin) ; or le cérium est susceptible de se fractionner par oxydation ; d'autre part, on a constaté que la teneur en oxygène des matières organiques résiduelles augmente également quand on s'approche des réacteurs [16]. Cette possibilité d'oxydation jointe à l'existence de courants de convection était de nature à déplacer des quantités importantes d'uranium : si par exemple l'eau contenue dans les réacteurs était renouvelée totalement en l'espace de quelques années, ce qui est une vitesse très lente, compatible avec les échanges de chaleur [22], il suffisait de quelques ppm d'uranium dissous pour enlever des quantités considérables pendant la durée des réactions.

Il est possible d'ailleurs que la migration de l'uranium ait eu lieu surtout au moment du déclenchement des réactions ; en effet à ce moment l'uranium était encore très disséminé, puisque initialement contenu dans le ciment des grès rassemblé par désilicification. On sait que la restructuration de cet uranium disséminé en uraninite massive est intervenue tout au début des réactions ; elle était de nature à rendre l'uranium moins "vulnérable" aux lessivages ; d'autre part c'est au début des réactions que les températures étaient maximales. Or, on note que dans le cas de contamination homogène, les teneurs isotopiques, de l'ordre de 0.68 %, sont modestes par rapport aux moyennes des zones de réaction ; ce pourrait être la preuve que les déplacements ont eu lieu de manière précoce.

Il faut rappeler qu'il existe dans les zones 3-4 et 5 de vastes portions avec des appauvrissements isotopiques très modestes, de l'ordre de 0.69 à 0.70 %, et qu'on n'a pu déterminer avec certitude s'il s'agit de faibles taux de réaction ou de vastes zones contaminées. Une autre remarque très troublante est que si l'on observe la zone 2 dans son ensemble, les accumulations d'uranium augmentent de manière considérable quand on va de l'aval vers l'amont (c'est vrai déjà depuis la zone 6 et la même remarque peut être faite pour la zone 1) ; tout se passe comme si l'uranium s'était reconcentré progressivement vers l'amont. Or on a émis l'hypothèse que - pour ces zones-là au moins - les réacteurs s'étaient "fabriqués" de proche en proche de l'aval vers l'amont par désilicification liée aux courants de convection [23]. Une reconcentration progressive serait donc plausible dans ce schéma.

L'hypothèse de déplacements massifs d'uranium n'est pas incompatible avec les observations du premier paragraphe - qui, précisons-le, se rapportent toutes aux zones 1 et 2, et surtout au haut de la zone 2 . En effet, selon le modèle de propagation amont dont on vient de parler, l'uranium déplacé venait se redéposer dans des terrains en cours de désilicification dans lesquels les réactions n'étaient pas encore arrivées, et lorsque les réactions avaient lieu, il n'y avait plus de réacteurs en fonctionnement à l'aval et donc l'uranium ne se déposait plus. Dans ces conditions, puisque l'uranium déplacé était faiblement appauvri, et qu' une restructuration de l'uranium se produisait au moment du déclenchement, on peut comprendre qu'il n'ait subsisté en fin de réactions que des perturbations isotopiques peu visibles, en tout cas compatibles avec les petites fluctuations observées.

Il faudrait sans doute en savoir plus sur les conditions géochimiques dans lesquelles l'uranium déplacé a pu se redéposer, et d'autres observations sont nécessaires. Mais il semble qu'on ne peut pas exclure totalement l'éventualité de migrations massives et précoces de l'uranium pendant les réactions.

2 - LES TERRES RARES

2.1 Les terres rares naturelles

Avant d'aborder le problème des remobilisations des terres rares de fission, quelques observations méritent d'être faites en ce qui concerne la distribution des terres rares naturelles, leur spectre, et le fractionnement auquel elles ont parfois donné lieu.

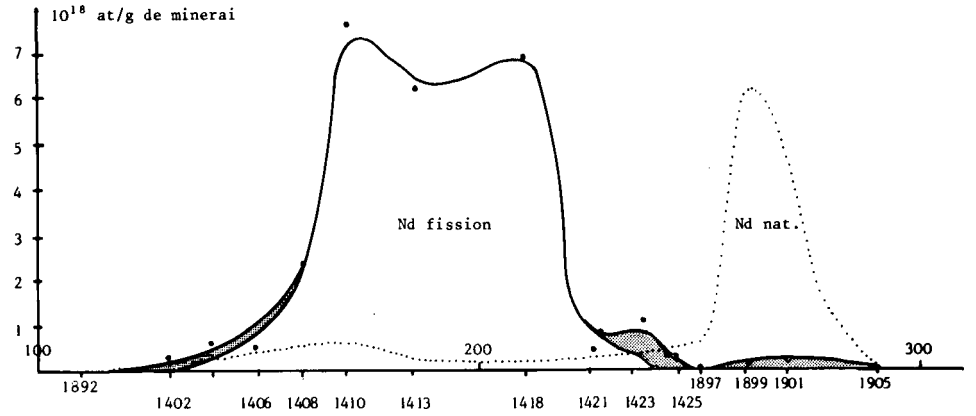


FIG.1. Répartition du néodyme naturel et du néodyme de fission dans le sondage SC 36 (en abscisse: numéros d'échantillons).

2.1.1 La figure 1, qui montre la répartition du néodyme naturel et du néodyme de fission dans le sondage SC 36 (on a regroupé les résultats de trois laboratoires [3][5][6] portant au total sur 18 échantillons), illustre le fait que la répartition des terres rares naturelles est complètement découplée de celle de l'uranium : il n'y a pas d'augmentation sensible de teneur là où l'uranium s'est concentré, et on observe au contraire un "pic" de terres rares naturelles à l'extérieur du réacteur.

On a d'ailleurs fait des dosages de néodyme naturel en différents points du gisement d'Oklo : on trouve 5 à 10 ppm dans les grès, et 30 à 100 ppm dans les argiles voisines des réacteurs ; ce sont des ordres de grandeur tout à fait classiques, qu'il y ait ou non minéralisation uranifère ; dans les grès, les quartz jouent simplement le rôle de diluant, d'où des teneurs plus faibles. Les "pics" locaux (∿ 1500 ppm dans l'échantillon 1899/4) doivent sans doute être attribués à des minéraux détritiques (monazites, zircons) incomplètement digérés par la diagénèse. On peut noter que les terres rares sont partout corrélées au thorium, les quantités exprimées en µg/g de néodyme et de thorium étant généralement du même ordre (cela est vrai également dans le conglomérat thorifère de la base du FA).

Il résulte de ces observations que la venue des terres rares dans le gisement a été indépendante de celle de l'uranium, et l'a vraisemblablement précédée ; on peut penser en effet qu'elle est en grande partie d'origine détritique. La concentration géochimique de l'uranium n'a pas été accompagnée d'une concentration correspondante des terres rares (par contre, bien entendu, la désilicification a concentré simultanément l'uranium, les terres rares et le thorium).

Cependant, si on observe de manière plus fine les répartitions à l'intérieur des zones de réaction, on note une corrélation assez visible entre l'uranium et le néodyme naturel. Compte tenu des remarques précédentes,

TABLEAU II. SPECTRES COMPARES DES TERRES RARES NATURELLES

Rapports exprimés en poids

	moyenne terrestre	granites	argiles	congl. (2639)	SCO (2252)	1901 (SC 36)	moyenne coeur	moyenne bordures	321 (KN 50)
Ce	2.1	2.2	2.2	2.90	3.5				1.76
Nd	1	1	1	1	1	1	1	1	1
Sm	0.21	0.19	0.17	0.150	0.12	0.157	0.15	0.22	0.17
Eu	0.04	-	0.03_5	0.0076	0.03_3	0.015	-	-	-
Gd	0.19	0.16	0.14	0.088	0.07	0.082	0.08	0.16	0.10
Dy	0.11	-	0.13	-	-	0.035	0.02	0.06	0.05_3
Er	0.10	0.08	0.09	-	-	-	-	-	0.02_2
Yb	0.12	0.07	0.08	-	-	-	-	-	0.01_6

cela ne peut être interprété que comme un phénomène de remobilisation, suivi d'une coprécipitation ; en effet les terres rares naturelles se trouvent toujours dans les grains d'uranium ; elles se seraient donc regroupées de préférence là où il y avait davantage d'uranium.

En particulier, la corrélation est extrêmement nette dans les cas où il existe, au centre de la passe riche, un "creux" de teneur coïncidant avec un très fort pic d'appauvrissement isotopique. Par exemple dans la coupe 2'P', entre les échantillons 1178 et 1183, tandis que la teneur en uranium passe de 55 à 15 %, celle en néodyme naturel tombe de 0.45 à 0.08 10^{18} at/g ; on observe des faits analogues dans les coupes 2 L et 2'P, dans la coupe 2'Q', dans les sondages SC 39 et SC 61. Le creux de teneur uranium pourrait s'expliquer par l'existence d'une passée de grès fins dans la couche C_1 avant désilicification, mais pour rendre compte de la teneur en terres rares, il faudrait admettre qu'il y en avait dix fois moins qu'ailleurs par rapport aux argiles. Il n'est guère possible de justifier ces situations sans faire appel à une remobilisation au cours des réactions nucléaires, comme on le verra plus loin.

2.1.2 Dans le gisement d'Oklo, le spectre des terres rares naturelles est fortement déprimé en direction des éléments lourds. On a cru au début que c'était une propriété des zones de réaction, mais il est apparu que c'était vrai également dans le minerai "normal" (par exemple sondage SC O) et même dans le conglomérat thorifère du FA. Le tableau II rassemble un certain nombre de données. On voit en particulier qu'il y a dans le coeur presque deux fois moins de gadolinium et trois ou quatre fois moins de dysprosium relativement au néodyme que dans la moyenne des sédiments terrestres, l'écart étant encore plus grand au niveau de l'ytterbium. L'origine de cette particularité n'a pas reçu d'interprétation ; il serait peut-être intéressant de faire une étude plus générale à l'échelle régionale.

On sait que les deux seuls éléments des terres rares qui peuvent changer de valence, et donc se fractionner au cours de phénomènes d'oxydoréduction, sont l'europium qui peut passer en 2+, et le cérium en 4+. L'analyse de l'échantillon 1901 montre un déficit d'europium par rapport au SC O,

TABLEAU III. FRACTIONNEMENT DES TERRES RARES NATURELLES

Rapports exprimés en nombre d'atomes

Ech.	Sm/Nd	Gd/Nd	Dy/Nd
1421/4	0.187	0.151	0.033
1421/5	0.207		
1423/5	0.256	0.170	0.041
1424/5	0.292		
1425/1	0.279	0.239	0.087
1897/5	0.299		
1899/5	0.126		
1901	0.150	0.075	0.031
1905	0.138	0.137	

Ech.	Sm/Nd	Gd/Nd
1892	0.225	0.137
1402	0.233	0.163
1326	0.127	0.084
1933/1	0.173	0.172
1933/3	0.141	0.125

qui est normal puisqu'à l'emplacement des surconcentrations il y a eu nécessairement une ambiance fortement réductrice. Ce qui est plus intéressant est qu'il semble y avoir aussi une anomalie négative de cérium. C'est ce que montre l'échantillon 321 du KN 50 analysé à l'IPG [24] ; d'autre part Mme HAVETTE a trouvé une diminution systématique du rapport $^{140}Ce/^{141}Pr$ quand on s'approche des zones de réaction [15]. Le cérium ne pouvant s'éliminer que par oxydation, cela tend à prouver qu'il y a eu aussi, à un certain moment, une ambiance plus oxydante ; c'était vraisemblablement au moment des réactions, comme on l'a déjà noté plus haut.

2.1.3 Les proportions relatives de Nd-Sm-Gd-Dy sont assez fortement variables dans les zones de réaction, et M. RUFFENACH a signalé qu'il y avait un effet systématique se traduisant par une remontée des éléments lourds dans les bordures [8]. Le tableau II montre effectivement une grande différence entre la "moyenne coeur" et la "moyenne bordures" (ces valeurs ayant été obtenues en rassemblant toutes les données disponibles) ; prenant toujours le néodyme comme référence, il y a un facteur 1.5 sur le samarium, un facteur 2 sur le gadolinium et un facteur 3 sur le dysprosium. Le spectre dans les bordures est beaucoup plus proche de la moyenne terrestre, mais il s'écarte de celui du minerai "normal".

Le tableau III illustre l'ampleur des variations ; particulièrement intéressant est l'examen des valeurs obtenues dans la bordure inférieure du SC 36. Dans cette partie du sondage 9 échantillons ont été analysés : on remarque que dans les six premiers, le rapport Sm/Nd croît régulièrement de 0.187 à 0.299, puis il passe brutalement à 0.126 dans l'échantillon 1899/5, la moyenne des trois derniers échantillons n'étant pas distincte de celle du coeur. Une évolution analogue s'observe pour les deux autres éléments : entre le 1425 et le 1901, on passe de 0.239 à 0.075 pour le rapport Gd/Nd, et de 0.087 à 0.031 pour le dysprosium (rappelons qu'il y a un grand pic de terres rares naturelles dans la région 1899-1901).

L'existence de ces fractionnements très marqués prouve qu'il y a eu d'importantes remobilisations des terres rares naturelles. On verra plus loin que ces faits peuvent être expliqués en admettant que les remobilisations sont de même nature que celles qui ont affecté les produits de fission.

2.2 Migrations dans les bordures

Au moment du colloque de Libreville, on avait déjà montré qu'il y avait des terres rares de fission déplacées dans les bordures des réacteurs. M. MAECK, qui constatait un excédent de néodyme de fission par rapport à l'uranium, se demandait s'il s'agissait d'une arrivée de terres rares ou d'un départ d'uranium ; j'avais indiqué que les analyses combinées du samarium et du gadolinium prouvaient qu'il y avait mélange d'éléments ayant reçu des fluences différentes (à cause des effets de non-linéarité), donc déplacement des terres rares [7]. La suite des études a confirmé cette interprétation ; on ne peut exclure qu'un peu d'uranium ait été enlevé préférentiellement dans les bordures, mais il est certain qu'il y a partout des terres rares déplacées ; on trouve d'ailleurs des terres rares de fission assez loin des réacteurs, dans des portions où il n'y a manifestement pas eu de réaction. Des études minutieuses [8] [9] ont permis d'analyser de manière précise ces migrations ; on résume ci-après les principaux faits.

2.2.1 Une première remarque est que la migration des terres rares est complètement indépendante de celle de l'uranium, et s'est produite dans des conditions différentes.

Dans le coeur, il y a une relation nécessaire entre la quantité de néodyme de fission produite et la quantité d'uranium 235 manquant ; au contraire dans les bordures cette corrélation disparaît totalement : on peut trouver des portions où la contamination de l'uranium est nulle ou insignifiante avec beaucoup de terres rares déplacées, et inversement il n'y a pas davantage de terres rares dans les portions où la contamination de l'uranium est "massive". Il apparaît en fait que tandis que les déplacements de l'uranium sont très variables et ont un caractère aléatoire, les déplacements de terres rares sont systématiques ; on les trouve pratiquement dans toutes les bordures, et les quantités déplacées sont à peu près partout du même ordre. C'est ainsi que les deux bordures du SC 36 ont des contaminations en terres rares analogues, alors que leurs comportements vis-à-vis de l'uranium ont été très différents.

Les terres rares déplacées ont été généralement plus loin que l'uranium. Par exemple le SC 48bis a déjà de l'uranium normal, et il y a encore des terres rares déplacées dans le SC 48 ter, un mètre plus loin. De même, le long de l'affleurement GL 1 on trouve de l'uranium normal à partir de l'échantillon GL 1012 , alors qu'il y a encore des terres rares déplacées dans le GL 1020 de 2 m plus loin. On note que la contamination en terres rares existe aussi à l'aval des zones de réaction, par exemple sur l'affleurement GL 8 (où l'uranium est normal). Bien entendu, à deux ou trois mètres du coeur, les quantités déplacées sont extrêmement petites, mais elles sont suffisantes pour être repérées par les analyses isotopiques de samarium ou de gadolinium [9].

2.2.2 Les terres rares déplacées ont une composition élémentaire et isotopique qui varie en chaque point. En effet, on constate qu'il n'est pas possible d'interpréter les compositions mesurées comme la superposition de terres rares "locales" et d'une fraction déplacée dont seule la quantité varierait significativement d'un point à l'autre. On y trouve une proportion variable d'éléments naturels déplacés par rapport aux produits de fission ; il y a des fractionnements entre les éléments, les transferts isotopiques dans la fraction déplacée ne sont pas identiques, et ils ne peuvent souvent

eux-mêmes être interprétés comme résultant de mélanges de fluences différentes. Il n'est donc pas possible en général, même en combinant les analyses isotopiques de tous les éléments, de séparer la contribution locale et donc de déterminer la fluence reçue par l'échantillon perturbé.

Qualitativement, on peut interpréter les mélanges comme résultant d'un étalement général des distributions initiales. La migration se fait de proche en proche et il y a non seulement une migration "centrifuge" qui amène les terres rares de fission dans la bordure, mais aussi une migration "centripète" qui fait pénétrer des terres rares naturelles ou très peu irradiées dans le coeur. Par exemple, une situation particulièrement intéressante existe dans la région 1421-1425 du sondage SC 36 située entre la concentration de terres rares de fission du coeur et le pic de terres rares naturelles dont on a déjà parlé ; on montre que les compositions isotopiques ne peuvent être interprétées qu'en superposant trois contributions : les terres rares locales, irradiées dans une fluence moyenne, un apport de terres rares plus irradiées venant du coeur, et une migration d'éléments naturels venant de la région du 1901.

2.2.3 La migration des terres rares a été accompagnée d'un fractionnement entre les éléments. Celui-ci est bien visible entre les produits de fission à une certaine distance de coeur, c'est-à-dire là où on ne trouve pratiquement plus que des produits migrés ; en effet, les rendements de fission sont bien déterminés, à l'incertitude près des contributions de fissions dans ^{238}U et ^{239}Pu (qui ne sont jamais très grandes) ; on s'aperçoit que les rapports entre les quantités de néodyme, samarium et gadolinium de fission s'en écartent de manière considérable, bien au-delà des variations possibles.

Le tableau IV montre quelques résultats, comparés à des rendements de fission moyens. Si on considère en particulier la série d'échantillons de la bordure inférieure du SC 36, on voit que le gadolinium de fission augmente rapidement vis-à-vis du néodyme quand on s'éloigne du coeur. Le comportement du samarium est plus complexe : vis-à-vis du néodyme, il y a d'abord augmentation, puis diminution : tout se passe comme si le samarium migrait davantage que le néodyme à courte distance, mais allait moins loin que lui (ce comportement particulier du samarium a été vérifié sur plusieurs sondages). Lorsqu'on compare le gadolinium au samarium, les deux effets se conjuguent, de sorte qu'à longue distance on peut trouver 6 ou 10 fois trop de gadolinium de fission par rapport au samarium pris comme référence.

Le fractionnement des éléments naturels est a priori plus difficile à observer puisqu'il y a toujours mélange. Les faits relatés plus haut s'expliquent en faisant appel au schéma qui vient d'être décrit (en particulier pour le groupe d'échantillons 1421-1425) ; ils tendent à montrer que la migration s'est effectuée préférentiellement dans le sens centrifuge et que le dysprosium a été encore plus loin que le gadolinium.

2.2.4 On a cherché à apprécier l'importance quantitative de la migration du néodyme de fission en comparant, le long d'un sondage, les quantités déplacées à l'extérieur du coeur à celles produites dans le coeur ; on a choisi le SC 36 à cause de l'abondance des informations.

On a opéré de la manière suivante : les quantités absolues de produits de fission sont beaucoup plus fluctuantes que les quantités rapportées à l'uranium ; on a donc utilisé les rapports Nd/U, et d'autre part une courbe de répartition de l'uranium dans le sondage obtenue par spectrométrie

TABLEAU IV. FRACTIONNEMENT DES TERRES RARES DE FISSION
Nd, Sm et Gd exprimés en atomes pour 100 atomes d'uranium

Echantillon	$(Nd)_f$	$(Sm)_f$	$(Gd)_f$	$\frac{Sm}{0.18\ Nd}$	$\frac{Gd}{0.00345\ Nd}$
1892	3.25	0.331	(0.023)	0.56	(2.0)
1402	3.91	0.511	0.014	0.73	1.05
1421/4	4.02	0.802	0.023	1.11	1.64
1421/5				0.96	
1423/5	4.91	1.048	0.021	1.19	1.24
1424/5				1.28	
1425/1	6.29	1.509	0.072	1.33	3.32
1901	0.93	0.0086	(0.009)	0.51	(2.8)
1905	1.38	0.0074	(0.018)	0.30	(3.3)
1326	1.03	0.180	0.0052	0.97	1.47
1933/1	0.66	0.057	0.0052	0.48	2.3
1933/3	4.29	0.759	0.0173	0.98	1.17

gamma et recalée sur les mesures ponctuelles. Par ailleurs, pour définir les quantités qui auraient dû être produites en l'absence de migration, on s'est basé sur la courbe d'appauvrissement isotopique de l'uranium, supposée non perturbée, en se donnant a priori des coefficients de conversion : l'indétermination qui résulte de cette dernière procédure n'est pas grave dans la mesure où par définition on ne considère que les portions de sondage où les taux de réaction sont très petits. La figure 1 montre la répartition du néodyme de fission dans l'ensemble du sondage, la figure 2 représente de manière plus détaillée la bordure supérieure.

On trouve les résultats suivants en rapportant toutes les quantités à l'unité de surface de la section droite de la carotte : la quantité totale d'uranium est de 14.4 kg/dm^2, l'uranium 235 manquant de 28.5 g/dm^2 ; le néodyme de fission est évalué à 42 g/dm^2 ; les quantités déplacées, obtenues par intégration graphique, sont évaluées à 0.63 g/dm^2 côté mur et 0.58 g/dm^2 côté toit. Les quantités déplacées représentent donc environ 3 % du néodyme de fission contenu dans le coeur.

2.3 Remobilisations dans le coeur

Au moment du colloque de Libreville, on pensait que les migrations des terres rares, très visibles dans les bordures, n'avaient eu dans le coeur que des effets insignifiants. A M. MAECK qui faisait état de petites fluctuations des rapports Sm/Nd de fission, je disais qu'"un fractionnement

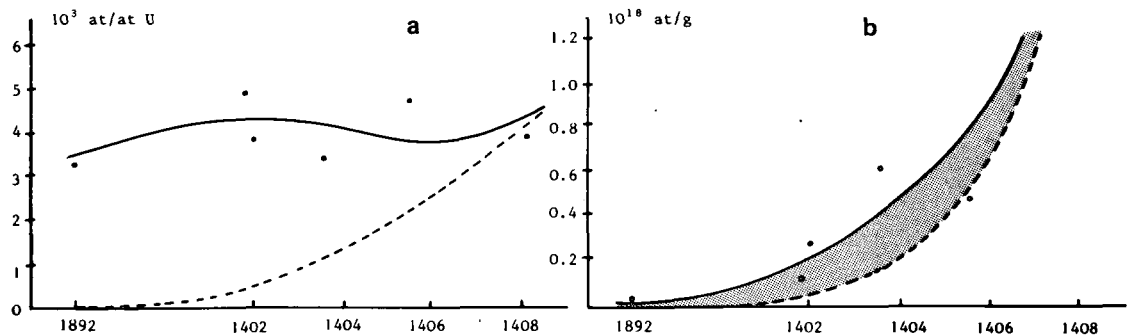


FIG. 2. Migration du néodyme de fission dans la bordure supérieure du sondage SC 36: a) quantités rapportées à l'uranium; b) quantités rapportées au minerai (courbe en trait plein: distribution observée; courbe en pointillé: distribution attendue).

significatif me semblait tout à fait incompatible avec les très faibles remobilisations observées dans le coeur" [7]. J'avais tort ; la suite des études a en effet montré que ces remobilisations ont été vraisemblablement beaucoup plus importantes qu'on ne le soupçonnait. On vient de voir que les quantités déplacées à l'extérieur du coeur sont très faibles, mais on a dit aussi qu'il s'agit apparemment d'un processus d'étalement à courte distance, donc de déplacement de proche en proche : le coeur devrait donc aussi être concerné et le chiffre cité (3 %) peut n'être pas du tout représentatif de l'ampleur des remobilisations à l'intérieur des zones de réaction. On va passer en revue un certain nombre de faits qui vont dans ce sens.

2.3.1 En premier lieu, on remarque que les courbes de fluence déduites des transferts $^{143}Nd \rightarrow {}^{144}Nd$ sont toujours peu contrastées, beaucoup plus "molles" que les courbes correspondantes d'appauvrissement isotopique de l'uranium. Au début des études, on a interprété ces différences par des transitoires du facteur de conversion C [25] ; mais un examen plus attentif montre que cette explication n'est pas suffisante, et d'ailleurs les valeurs de C auxquelles on est conduit ne sont pas toujours plausibles. On pouvait avoir un doute tant qu'on n'était pas sûr de bien connaître la section efficace de capture de ^{143}Nd ; mais après les expériences effectuées dans Triton [26], et compte tenu du perfectionnement des méthodes de calcul [27], on est obligé d'admettre qu'on observe assez souvent des anomalies qui amènent à remettre en cause les fluences mesurées.

La figure 3a, par exemple, illustre la comparaison entre fluence et appauvrissement isotopique de l'uranium au centre de la coupe 2'P'[5][6]. Au niveau de l'échantillon 1811, le coefficient C tombe à 0.16 : une valeur aussi basse n'est pas justifiable. A plus forte raison les valeurs 0.09 trouvées dans la coupe 2 L, ou 0.12 dans le sondage SC 63 sont beaucoup trop petites [9]. Dans le cas du SC 63 d'ailleurs, toute la courbe de fluence est suspecte [28]. Cette situation se produit chaque fois qu'il y a au centre du coeur un pic aigu d'appauvrissement isotopique ; la courbe de fluence par comparaison apparaît trop aplatie.

Dans le cas du sondage SC 36, les valeurs du coefficient C tirées des mesures [8] sont plausibles lorsqu'on les considère individuellement, mais les variations apparaissent trop grandes par comparaison avec les calculs. Là encore, la courbe de fluence semble trop aplatie par rapport à la courbe d'appauvrissement isotopique de l'uranium. Ce qui est intéressant est que le calcul a priori de la fluence à partir de la configuration de l'uranium conduit à une courbe effectivement plus contrastée [27] : on trouve un relèvement plus grand au centre de la passe riche, et aussi des relèvements plus grands à la sortie du coeur (on avait d'ailleurs trouvé le même résultat pour la courbe 2'P [25]).

Cette déformation s'explique si on admet que les terres rares ont eu tendance à s'étaler à courte distance ; cet étalement a donné lieu à des mélanges isotopiques qui se sont traduits par des distributions moins contrastées. Il faut souligner que des analyses effectuées centimètre par centimètre [2] ont montré qu'il y a continuité des "fluences néodyme" ; la déformation des courbes ne peut donc s'expliquer que par un processus du type indiqué et non par une contamination hétérogène.

M. RUFFENACH a obtenu une autre courbe de fluence pour le sondage SC 36 en utilisant les transferts isotopiques du dysprosium ; on est bien obligé de constater qu'il y a une différence sensible avec la courbe tirée du néodyme. La fluence "dysprosium" s'écarte encore plus de la distribution

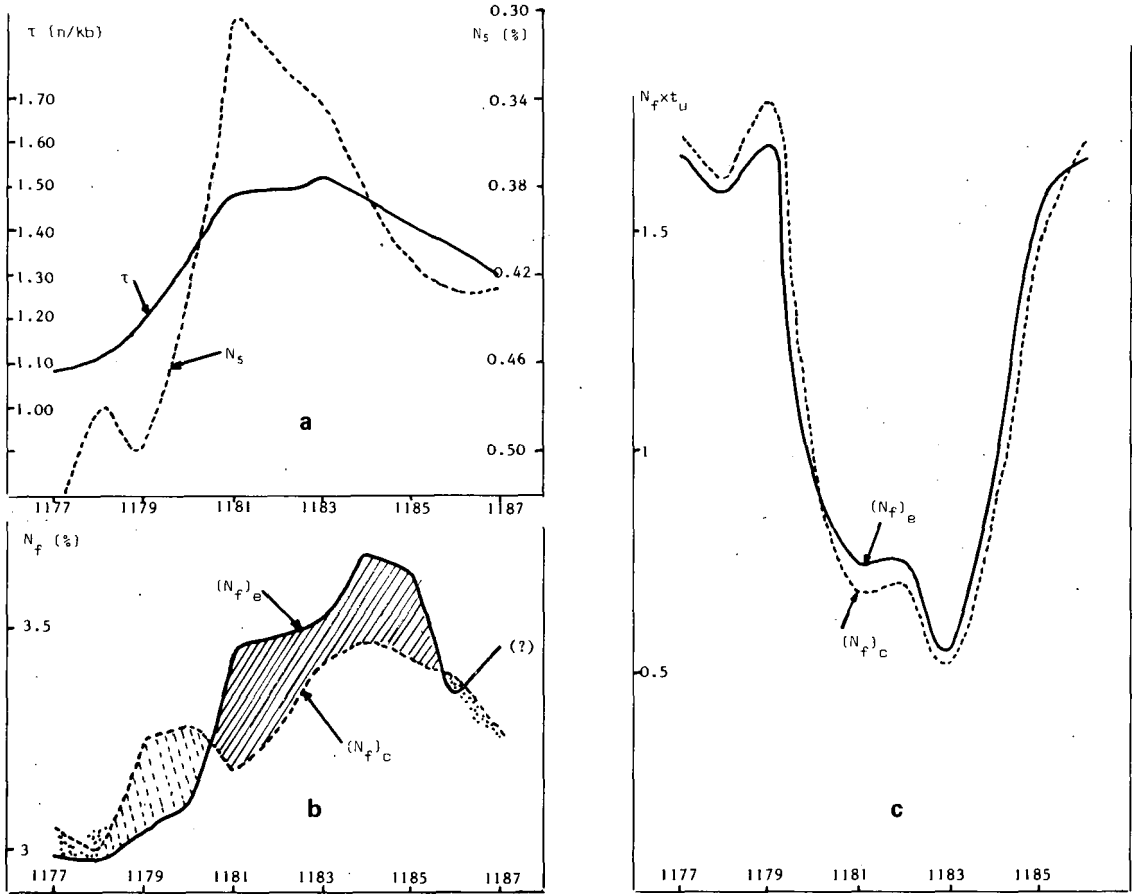


FIG.3. Corrélations entre fluence, appauvrissement isotopique et nombre de fissions dans la coupe 2'P': a) comparaison entre fluence et appauvrissement isotopique; b) comparaison entre nombre de fissions mesuré $(N_f)_e$ et nombre de fissions calculé à partir de la fluence $(N_f)_c$; c) même comparaison qu'en b), mais les quantités sont rapportées au minerai et non à l'uranium.

prévue par le calcul : cette fois la fluence chute rapidement avant même la sortie du coeur, ce qui est proprement impensable ; cela prouve bien que les fluences déduites des terres rares doivent être remises en question. Précisément les différences entre les deux courbes peuvent s'expliquer dans le modèle d'"étalement" proposé : puisque le néodyme est essentiellement de fission dans le coeur alors que le dysprosium est exclusivement naturel, le poids relatif entre les composantes centrifuge et centripète n'est pas le même, et d'autre part le dysprosium migre davantage que le néodyme à longue distance : il y a donc une pénétration importante de dysprosium très peu irradié dans le coeur qui fait décroître rapidement la fluence apparente en bordure. On peut ajouter que la "fluence lutétium" mesurée dans cette bordure (éch. 1421) est apparue encore plus sous-évaluée [29].

2.3.2 Par ailleurs les quantités de produits de fission mesurées, bien qu'assez étroitement corrélées dans le coeur aux quantités déduites des fluences "néodyme" mesurées, donnent lieu à des fluctuations qui sont quelquefois importantes.

La figure 3 montre comment se comparent, au centre de la coupe 2'P', les nombres de fissions "mesurées" (c'est-à-dire déduites des dosages relatifs Nd/U) et "calculées" (c'est-à-dire déduites des mesures de fluence, avec un coefficient de normalisation basé sur un grand nombre d'échantillons); le flux 3 c montre que les quantités absolues sont bien corrélées, mais la figure 3 b permet une comparaison plus précise : on voit apparaître un effet systématique. La sous-estimation au centre de la quantité calculée peut s'expliquer par la sous-évaluation de la fluence, mais si on admet qu'il y a eu remobilisation du néodyme, les nombres de fissions "mesurés" doivent aussi être remis en cause ; ce qu'on observe est la résultante des deux effets, et il est probable d'ailleurs que l'écart est modéré par suite d'une compensation. Des observations analogues peuvent être faites chaque fois qu'il y a un transitoire important de teneur uranium.

On observe en outre des fractionnements qui sont eux-mêmes corrélés aux écarts entre quantités mesurées et calculées ; dans le cas de la coupe 2'P' le rapport samarium sur néodyme de fission est un peu trop grand au centre dans les échantillons 1181 et 1184, et un peu trop petit dans les échantillons latéraux 1179 et 1181, et on a d'ailleurs des résultats analogues pour le zirconium et le ruthénium de fission comparés au néodyme [5]. Dans le cas du SC 36, les nombres de fission déduits des quantités de néodyme sont un peu trop petits dans les échantillons 1410 et 1418 (où les teneurs uranium sont maximales) et un peu trop grands dans le 1413 (où il y a un creux de teneur) : or les écarts sont systématiquement plus grands dans ces échantillons pour le samarium et le gadolinium de fission [8]. Qu'il y ait eu des fractionnements significatifs entre les éléments des terres rares (les écarts peuvent atteindre 10 à 20 %) prouve bien qu'il y a eu des remobilisations notables.

Dans certains cas les déséquilibres sont beaucoup plus importants. Le cas du sondage SC 63 est particulièrement spectaculaire [9] : on a obtenu sur une série de quatre échantillons voisins une absence presque totale de corrélation entre la quantité de néodyme de fission et la "fluence" néodyme : dans l'échantillon n° 1975 le rapport entre les quantités mesurée et calculée est de 1.67, dans l'échantillon voisin (n° 1976) il est de 0.75, dans ce cas il faut bien admettre que le rapport Nd/U n'est plus représentatif du taux de réaction local.

Le fait que l'on observe parfois des déséquilibres aussi grands suggère que les remobilisations ont été importantes mais qu'on ne les observe pas toujours par suite d'effets de compensation ou de moyenne. Il faut souligner que les terres rares de fission sont exclusivement dans les grains d'uranium ; c'est vrai en particulier dans les bordures où on est certain qu'elles ont été déplacées ; il faut donc admettre que les terres rares une fois sorties des grains d'uranium y sont entrées à nouveau. S'il s'agit de déplacements à courte distance, si le taux de réaction varie peu sur cette distance, et si la répartition de l'uranium est relativement homogène, les perturbations peuvent être très limitées, c'est-à-dire que les rapports Nd/U peuvent rester du même ordre dans chaque petite plage. Si au contraire, le gradient de taux de réaction est grand, si la répartition de l'uranium est très hétérogène, et si les échantillons sont petits (toutes conditions qui ont été réunies dans le cas du SC 63) on peut trouver localement des déséquilibres importants. C'est sans doute de cette manière qu'il faut interpréter la différence de comportements constatée.

Une dernière observation a été faite dans la bordure supérieure des sondages SC 30 et SC 30 bis [28][9] : on constate qu'il y a des perturbations isotopiques importantes, prouvant le mélange de terres rares déplacées, dans le minerai riche (∿ 20 %), et où l'uranium est d'ailleurs sous forme d'uraninite,qui peut donc être considéré comme appartenant encore au coeur (c'est le bas niveau de fluence qui permet de mettre en évidence l'existence du mélange). Cet exemple montre qu'il y a continuité entre les anomalies souvent masquées du coeur et les perturbations beaucoup plus apparentes de la bordure.

2.4 Problèmes posés par la remobilisation des terres rares

Ces observations nous amènent à poser trois questions : puisque les terres rares (au moins celles de fission, mais aussi semble-t-il, les éléments naturels) étaient initialement dans des grains d'uranium, pourquoi en sont-elles sorties ? dans quelles conditions se sont-elles déplacées, et quand sont-elles rentrées à nouveau dans l'uranium ? On traitera les deux dernières questions avant la première.

2.4.1 Au début des études, on a pensé que les remobilisations de terres rares,comme celles de l'uranium, étaient liées à l'altération récente du gisement. Cette idée semble devoir actuellement être totalement écartée. Les faits décrits ne s'accordent absolument pas avec ce qu'on peut connaître des remobilisations liées aux altérations [30] ; en particulier des fractionnements notables ne se rencontrent jamais dans les phénomènes d'altération (en dehors bien entendu des anomalies cérium). Ce qui est remarquable ici, en outre, est le caractère ponctuel de ces fractionnements, lié à la géométrie des réactions.

Les faits s'expliquent infiniment mieux si on les rattache à l'époque des réactions nucléaires. On est arrivé à la même conclusion en ce qui concerne l'uranium, mais les mécanismes de déplacement ont sans doute été tout à fait différents. A l'exception du cérium et de l'europium, les éléments des terres rares ne changent pas de valence ; leur déplacement ne résulte donc pas d'une mise en solution liée à l'oxydation suivie d'une reprécipitation. La solubilité des terres rares est très petite mais elle n'est pas nulle ; elle dépend en particulier de la température ; on conçoit donc que dans ce milieu où les températures et l'environnement géochimique étaient largement variables d'un point à un autre, les éléments, une fois

sortis du réseau de l'uranium, étaient susceptibles de se déplacer ; il s'agit de migrations probablement très lentes et non de lixiviation. Et comme les seuils devaient être différents suivant les éléments, ceux-ci étaient entraînés plus ou moins loin et en plus ou moins grande proportion, d'où les fractionnements.

L'absence totale du gadolinium 157 dans la partie centrale du coeur prouve également de manière très convaincante que les terres rares n'ont pas migré postérieurement à l'achèvement des réactions. Pourquoi en effet du gadolinium provenant de l'extérieur des réacteurs n'y aurait jamais pénétré, alors qu'on trouve du gadolinium de fission jusqu'à deux mètres au moins des réacteurs ? En réalité, il y a des terres rares naturelles qui sont entrées dans le coeur, mais elles y ont reçu un minimum d'irradiation.

Il semble qu'on puisse expliquer tous les faits observés en invoquant un mécanisme d'étalement, avec les deux particularités suivantes. Il y a tout d'abord un effet "proportionnel" qui tend à aplatir les distributions : si la teneur en un point A est supérieure à celle d'une point voisin B, la quantité issue de A qui va vers B est, toutes choses égales par ailleurs, plus grande que celle qui se déplace en sens inverse ; d'autre part, il y a globablement un déplacement des régions plus chaudes du coeur vers les portions plus froides de la périphérie. Il faut garder à l'esprit en tout cas l'image de l'étalement : le fait que la résultante soit centrifuge n'exclut pas l'existence d'une composante centripète ; d'autre part, même lorsque le bilan est équilibré les échanges provoquent des mélanges isotopiques.

2.4.2 Au moment des réactions, la gangue était constituée de minéraux destructurés, "cassés" par les radiations, ce qui favorisait les échanges d'ions avec les solutions. La recristallisation définitive des minéraux ne s'est faite qu'à la fin des réactions, après refroidissement. A ce moment les terres rares, au terme de leur lente dérive, se sont donc trouvées emprisonnées dans les réseaux cristallins en cours de formation. Mais étant "mal à l'aise" dans les phyllosilicates, elles ont eu tendance à diffuser, et à se "réfugier" dans le réseau de l'uranium où la compatibilité de leur rayon atomique est bien meilleur. Selon cette hypothèse, on aurait donc "figé" la situation qui existait à la fin des réactions. Il est possible que cette rentrée ait eu lieu au moment de la recristallisation, mais on ne peut pas exclure que ce phénomène ait été très lent, et se soit poursuivi au cours des âges géologiques.

On a la preuve que les terres rares ont rejoint les grains d'uranium les plus proches en observant les distributions comparées du néodyme de fission et de l'uranium dans les bordures. La répartition de l'uranium est hétérogène ; or on constate que dans les échantillons où il y a moins d'uranium que dans l'environnement il y a aussi moins de néodyme, mais qu'en revanche le rapport Nd/U est plus grand, et inversement. C'est logique : à la limite, s'il n'y a pas d'uranium du tout, il n'y a pas non plus de terres rares, mais s'il y a quelques grains d'uranium, ceux-ci sont très "demandés", et ils sont relativement chargés. Cette double observation peut s'illustrer de la manière suivante : si on cherche à "lisser" les courbes représentant les quantités de néodyme par gramme de minerai et par gramme d'uranium de manière cohérente (c'est-à-dire en tenant compte de la répartition moyenne de l'uranium mesurée par spectrométrie γ), tous les points qui sont au-dessous d'une courbe sont au-dessus de l'autre et inversement : on le voit par exemple sur les figures 2a et 2b ; on a fait les mêmes observations dans la bordure inférieure du SC 36, et c'est vrai aussi pour les terres

rares naturelles. (C'est seulement lorsqu'il y a un très grand excès de terres rares par rapport à l'uranium (échantillon 1901) que l'on trouve du néodyme à l'extérieur des grains d'uranium [15]).

2.4.3 Le problème le plus important est relatif à la sortie des terres rares hors des grains d'uranium. Il semble en effet que la capacité de rétention de l'oxyde d'uranium vis-à-vis des terres rares soit extrêmement grande ; les éléments que l'on trouve actuellement dans les grains n'ont probablement pas bougé depuis l'époque des réactions ; dès lors comment expliquer que des quantités aussi importantes se soient trouvées en dehors du réseau de l'uraninite ? On peut proposer trois raisons :

a) Une petite fraction des produits de fission s'est formée en dehors de grains d'uranium par effet de recul.

b) Lorsque l'oxyde d'uranium s'est restructuré de pechblende en uraninite, les éléments contenus ont été libérés.

c) L'uranium qui a été éliminé des zones de réaction par oxydation a libéré les éléments contenus.

L'effet de recul ne s'applique pas aux éléments naturels, et d'autre part, il ne concerne qu'une petite fraction des produits de fission : le Dr. COWAN, qui a indiqué cette possibilité, estime que cette fraction est comprise entre 5 et 10 % [31]. Ce n'est tout de même pas négligeable, et cette explication, même si elle n'est que partielle, doit être retenue.

Il y a d'ailleurs un fait, noté par Mme HAVETTE [10], qui pourrait venir à l'appui de cette idée : en faisant une traversée d'un gros grain d'uranium, elle a trouvé une diminution de la teneur en néodyme de fission sur les bords du grain : ce pourrait être l'illustration de l'effet de recul.

On pense que la transformation de la pechblende en uraninite a été précoce, d'abord parce que c'est un effet thermique et que d'après les modèles de contrôle [22] le maximum de température a été réalisé au début des réactions, d'autre part parce qu'on trouve de l'uraninite même dans des échantillons très peu irradiés. Ces arguments ne sont cependant pas entièrement décisifs ; les échantillons en question sont en général proches de portions où les taux de réaction ont été plus grands, et par conséquent des températures ont pu être appliquées assez longtemps (il serait sans doute intéressant d'examiner des échantillons des zones 3 à 5 où on trouve de vastes régions avec des taux de réaction très faibles). Il est donc possible que des quantités relativement importantes de terres rares de fission aient été déjà formées à ce moment, et soient sorties de grains d'uranium à cette occasion (bien entendu on ne peut pas exclure qu'une large fraction soit rentrée immédiatement dans l'uraninite).

Il faut noter que les transferts isotopiques à partir de ^{143}Nd et ^{147}Sm dans les terres rares déplacées qu'on trouve dans les bordures indiquent une fluence élevée, de l'ordre de grandeur de la fluence moyenne dans le coeur (en réalité on ne peut pas l'évaluer avec précision, car on ne connaît pas la fraction de terres rares naturelles provenant du coeur). Il faut donc exclure l'idée d'une migration précoce. Mais cela ne signifie pas que les terres rares ne sont pas sorties de l'uranium au début des réactions ; en effet, d'après notre idée d'une lente dérive, elles ont pu séjourner longtemps dans le coeur avant d'atteindre la bordure.

Bien qu'elles aient été vraisemblablement dans le minerai avant la mise en place de l'uranium, les terres rares naturelles se trouvent actuellement dans les grains d'uranium, même dans le minerai normal en dehors des zones de réaction. Cela ne prouve pas qu'elles y étaient au début des réactions, car cette rentrée a pu se faire progressivement et demander plus longtemps. En tout cas, la restructuration de l'uranium a pu être une occasion pour qu'elles en sortent. Puisqu'à ce moment une partie seulement des produits de fission étaient formés, les éléments naturels ont eu peut-être encore plus l'occasion de migrer que les terres rares de fission. C'est ce qui expliquerait les fractionnements très importants de terres rares naturelles que l'on constate dans les zones de réaction. C'est probablement aussi cette migration qui est à l'origine de faits tels que ceux constatés au centre de la coupe 2'P' et dont on a parlé au §2.1.1 : le "creux" de teneur en terres rares naturelles s'expliquerait par la combinaison d'une migration centrifuge et d'une redistribution en fonction de l'uranium présent (cette migration a pu contribuer à l'aplatissement de la courbe de fluence).

On peut donc rendre compte de la sortie des terres rares hors des grains d'uranium en faisant appel à la fois à l'effet de recul et à la restructuration de la pechblende, donc sans qu'il soit nécessaire de supposer que d'importantes quantités d'uranium aient été solubilisées au cours des réactions. Mais cela ne veut pas dire bien entendu que ce phénomène n'ait pas eu lieu, et dans ce cas il a pu apporter une contribution.

On rappelle que dans un cas particulier, celui de l'échantillon 882/2, on a trouvé dans la bordure argileuse immédiate d'un nodule d'uraninite un très grand excédent de terres rares, avec une composition isotopique identique à celle des terres rares contenues dans le nodule [4]. L'observation à la sonde ionique a montré que, contairement à ce qu'on voit habituellement, l'image des terres rares est distincte de celle de l'uranium [10]. On a suggéré à l'époque qu'il avait pu y avoir lessivage de l'uranium du nodule dont la taille aurait diminué, laissant les terres rares contenues à leur emplacement primitif ; en fait cette explication n'est pas la seule possible : on peut aussi supposer que les terres rares sont sorties du nodule (soit par effet de recul, soit au moment de la restructuration) ; il faut admettre de toute manière qu'exceptionnellement elles sont restées sur place sans rentrer dans l'uranium. On n'a jamais retrouvé d'autre exemple de cette situation.

Ce sont sans doute des mécanismes analogues à ceux qui ont été décrits ici pour les terres rares qui ont provoqué la remobilisation partielle d'autres produits de fission normalement stables dans le réseau de l'uraninite, tels que par exemple le zirconium [5].

3 - APPLICATION A LA GEOCHRONOLOGIE

Il subsiste actuellement une incertitude importante quant à la date des réactions nucléaires. En effet, chacune des trois méthodes d'approche qui ont été utilisées se heurte à des difficultés.

L'étude de la géochronologie régionale faisant appel à la décroissance des alcalins (rubidium - strontium et potassium-argon) [32][33] bute sur le fait que la date de 1800 MA que l'on retrouve un peu partout semble être celle d'une rehomogénéisation tardive. Les travaux récents ont apporté deux déceptions : on avait espéré obtenir une limite supérieure de l'âge de la sédimentation, et datant avec précision le dernier métamorphisme du

socle (supposé au voisinage de 1900 ou 1950 MA) ; il semble que ce verrou ait sauté. D'autre part on a mis de grands espoirs dans l'étude des illites 2 M au voisinage des réacteurs, dont la formation date incontestablement les réactions elles-mêmes : il semble bien malheureusement qu'elles ont été elles aussi remaniées. La géochronologie régionale ne nous donne donc qu'une limite inférieure de l'âge des réactions.

D'autre part les études complémentaires effectuées depuis Libreville sur le plomb n'ont pu que confirmer la complexité de l'histoire de cet élément [21]. On est certain qu'il faut faire intervenir au moins deux ensembles de perturbations : une (ou des) perturbation(s) ancienne(s) - par exemple l'évènement qui s'est traduit par l'intrusion des dolérites, ou encore l'application d'un modèle de diffusion continue [34] - et d'autre part des perturbations récentes - parmi lesquelles il semble d'ailleurs qu'il faille distinguer deux phases : une subactuelle et une très récente (sans parler de l'éventualité d'un héritage ancien). Il en résulte qu'il est illusoire d'isoler et interpréter des alignements : l'ensemble des points étudiés depuis l'origine forme un nuage qui ne permet pas de trancher de manière précise à l'intérieur de l'intervalle 1800-2100 MA.

Reste la méthode des produits de fission qui consiste à mettre à profit la décroissance de l'uranium 235, en comparant aux fluences mesurées les nombres de fissions rapportées à l'uranium [14][3]. Cette méthode originale, outre qu'elle date directement les réactions, a l'avantage théorique de permettre la mise à profit d'un grand nombre de mesures ; en fait, on s'est surtout intéressé aux terres rares, et plus particulièrement au néodyme, et c'est également du néodyme qu'on a déduit les fluences. Or, on vient de voir que les terres rares ont été largement remobilisées ; d'autre part tout repose sur le maintien en place de l'intégralité de l'uranium, alors qu'il n'est pas exclu que d'assez grandes quantités aient été solubilisées, notamment à l'époque des réactions.

Bien que les mesures dans le réacteur Triton [26] aient permis de lever l'incertitude qui existait encore au moment du colloque de Libreville sur les sections efficaces, il convient donc d'être très prudent dans l'application de cette méthode. Ci-après on fait le point à la lumière des discussions qui précèdent.

a) Supposons d'abord que l'uranium soit resté intégralement en place. La remobilisation du néodyme fausse à la fois l'évaluation de la fluence et celle du nombre de fissions. Le fait que le néodyme, en se déplaçant, emmène avec lui sa contribution au transfert : 143 → 144, entraîne automatiquement une certaine compensation. Par exemple la prédominance de la composante centrifuge fait qu'on aura tendance à sous-estimer à la fois la fluence et le nombre de fissions au centre de la passe riche, et à les surestimer tous deux en bordure. Mais, si on trouve une certaine homogénéité dans les résultats de mesure, cela ne signifie pas que la moyenne est correcte.

Par exemple, s'il y a au centre coïncidence entre un "creux" de teneur et un pic aigu de taux de réaction - ce qui est fréquent - la sous-évaluation du néodyme de fission a toutes les chances d'être sensiblement inférieure à celle de la fluence (il y a tendance au comblement du creux, alors que le mélange isotopique écrête de toute façon le pic). D'autre part, en bordure, l'existence d'une composante centripète de la migration des terres rares naturelles tend à réduire la surestimation de la fluence (on peut même la sous-évaluer comme on l'a vu) alors qu'il y a dans tous les

cas excès de produits de fission. Dans ces conditions, on a tendance à surestimer l'âge à la fois au centre et en bordure (ce n'est sans doute pas une coïncidence si dans le sondage SC 36 on a trouvé des âges apparents au centre et en bordure plus grands que dans les portions intermédiaires).

On a vu en outre qu'il existe dans certains cas des déséquilibres locaux, et qu'en particulier si l'on choisit des échantillons trop petits dans un minerai hétérogène, on peut mesurer des rapports Nd/U non représentatifs (il est clair par exemple qu'on ne peut déduire aucune valeur correcte de l'âge de la série de mesures effectuées dans le sondage SC 63). Il est donc souhaitable en tout état de cause d'éviter de faire des mesures trop ponctuelles. Puisque la migration des terres rares semble s'être faite pour l'essentiel à courte distance, on peut estimer que des mesures plus globales, à l'échelle de l'ensemble d'un sondage, apporteraient sans doute des indications beaucoup plus sûres.

b) Il faut considérer d'autre part le problème de l'uranium : même si on peut réduire les effets de la migration des terres rares, la mesure suppose que l'uranium est resté intégralement en place, alors qu'on ne peut pas exclure qu'une certaine fraction ait été solubilisée. Les discussions de la première partie nous ont amené à penser que les quantités d'uranium lessivées postérieurement aux réactions ont probablement été faibles (puisqu'on ne retrouve que des quantités insignifiantes d'uranium appauvri déplacé en dehors de l'auréole, notamment à l'aval des réacteurs - ce n'est pas une preuve, c'est seulement une présomption), mais que par contre des quantités importantes ont pu être solubilisées au cours des réactions elles-mêmes.

La surestimation de l'âge, qui est de l'ordre de 10 MA pour chaque fraction de 1 % d'uranium dissous postérieurement aux réactions, est plus faible si l'uranium est parti au cours des réactions elles-mêmes, et tend à s'annuler si le départ a eu lieu au moment du démarrage (il faut pondérer les fractions éliminées par les nombres de fissions auxquelles l'uranium a donné lieu avant son départ). On a indiqué que les déplacements d'uranium ont vraisemblablement été précoces vis-à-vis des réactions : en effet l'uranium était beaucoup plus dispersé et vulnérable avant sa restructuration en uraninite, et c'est d'autre part au début des réactions que les températures étaient localement les plus élevées et les courants de convection les plus intenses. L'hypothèse suivant laquelle il y a eu des déplacements éventuellement massifs d'uranium au moment du déclenchement des réactions n'entraîne donc pas nécessairement une erreur très grave ; néanmoins cette possibilité d'erreur ne peut être négligée.

Ce qui est intéressant est que cette surestimation peut en principe être mesurée. En effet, parmi les produits des réactions, le thorium radiogénique possède la particularité de ne se former in situ que dans la proportion dans laquelle l'uranium lui-même est resté en place, puisqu'il est issu de ^{236}U. Le rapport Th/U est donc indépendant des quantités d'uranium migrées avant la décroissance radioactive de l'isotope 236, et la mesure du rapport Th/Nd permet une appréciation de cette migration. Cette mesure se heurte à plusieurs difficultés : en premier lieu le dosage chimique du thorium n'est pas très précis (et son dosage par dilution isotopique délicat à cause de l'activité du traceur ^{230}Th) ; d'autre part une marge d'indétermination existe du fait qu'on ne peut séparer le thorium radiogénique de l'élément naturel ; celui-ci est présent en proportion non négligeable et variable (de l'ordre de 50 à 100 ppm, éventuellement davantage) de sorte que la mesure ne peut de toute façon avoir une précision acceptable que dans le

minerai riche et fortement irradié ; enfin dans la comparaison Th/Nd on retrouve les difficultés liées à la migration du néodyme (sans parler d'une éventuelle remobilisation de thorium).

Les dosages de thorium dans le sondage SC 36 révèlent un petit déficit en thorium par rapport au néodyme dans l'ensemble de la passe riche. D'autre part au centre de la coupe 2'P' on observe au contraire un excédent de thorium à l'emplacement du pic et un déficit dans le minerai riche qui l'encadre (cf. [21] : discussion). Ces derniers résultats reflètent vraisemblablement la migration du néodyme, et confirment son importance. A cause de ces remobilisations, il est difficile d'interpréter de manière sûre ces mesures trop ponctuelles.

C'est pourquoi nous pensons qu'il serait intéressant de reprendre, par exemple dans le sondage SC 36, des mesures Th/Nd/U à la fois plus détaillées et plus globales (par exemple en considérant une suite de poudres moyennes intégrant chacune 10 cm de carotte) et de tenter un bilan à l'échelle de l'ensemble du sondage. Dans la mesure où on pense que les remobilisations de l'uranium et du thorium ont été très limitées postérieurement aux réactions (plus précisément à la décroissance de ^{236}U), on devrait parvenir ainsi à une estimation certainement beaucoup plus précise et correcte de la date des réactions nucléaires.

REFERENCES

[1] NAUDET, R., RENSON, C., «Résultats des analyses systématiques de teneurs isotopiques de l'uranium», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 265.

[2] RUFFENACH, J.-C., et al., «Analyses isotopiques fines des produits de fission et détermination des principaux paramètres des réactions nucléaires», Ibid., p.371.

[3] NEUILLY, Michèle, NAUDET, R., «Etude de la distribution des fluences dans les réacteurs naturels d'Oklo, par analyse isotopique des terres rares», Ibid., p. 541.

[4] BASSIERE, H., et al., «Analyse isotopique et pondérale de terres rares dans divers échantillons d'Oklo», Ibid., p. 385.

[5] MAECK, W.J., et al., «Analytical results, recommended nuclear constants and suggested correlations for the evaluation of Oklo fission-product data», Ibid., p. 319.

[6] COWAN, G.A., et al., «Some United States studies of the Oklo phenomenon», Ibid., p. 341.

[7] Table ronde sur les aspects *Géochimie isotopique*, Ibid., p. 615.

[8] RUFFENACH, J.-C., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/16.

[9] CESARIO, J., et al., Ibid., IAEA-TC-119/17.

[10] HAVETTE, Andrée, et al., «Etude par analyse ionique de la répartition et des proportions isotopiques de certains éléments dans des échantillons d'Oklo», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 463.

[11] GEFFROY, J., «Etude microscopique des minerais uranifères d'Oklo», Ibid., p.133.

[12] DRAN, J.C., et al., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/12.

[13] DUFFY, C.J., Ibid., IAEA-TC-119/36.

[14] DEVILLERS, C., et al., «Age de la minéralisation de l'uranium et date de la réaction nucléaire», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 293.

[15] HAVETTE, Andrée, NAUDET, R., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/13.

[16] VANDENBROUCKE, Mireille, et al., Ibid., IAEA-TC-119/10.
[17] NAUDET, R., RENSON, C., Ibid., IAEA-TC-119/4.
[18] WEBER, F., GEFFROY, J., Communication personnelle.
[19] NAUDET, R., RENSON, C., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/5.
[20] NAUDET, R., Ibid., IAEA-TC-119/1.
[21] DEVILLERS, C., MENES, J., Ibid., IAEA-TC-119/18.
[21 bis] POTY, B., Communication personnelle.
[22] NAUDET, R., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/23.
[23] NAUDET, R., Ibid., IAEA-TC-119/27.
[24] LOUBET, M., ALLEGRE, C.J., Behaviour of the rare earth elements in the Oklo natural reactor, Geochim. Cosmochim. Acta **41** (1977) 1539.
[25] NAUDET, R., FILIP, A., «Interprétation neutronique des distributions de taux de réaction dans les réacteurs d'Oklo», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA,Vienne (1975) 557.
[26] LUCAS, Monique, et al., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/14.
[27] NAUDET, R., Ibid., IAEA-TC-119/21.
[28] NEUILLY, Michèle, et al., Ibid., IAEA-TC-119/15.
[29] HOLLIGER, P., et al., Ibid., IAEA-TC-119/20.
[30] STEINBERG, M., COURTOIS, C., Le comportement des terres rares au cours de l'altération et ses conséquences, Bull. Soc. Géol. Fr. **18** 1 (1976) 13–20.
[31] COWAN, G.A., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/26.
[32] WEBER, F., BONHOMME, M., «Données radiochronologiques nouvelles sur le Francevillien et son environnement», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 17.
[33] BONHOMME, M., et al., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/6.
[34] GANCARZ, A.J., Ibid., IAEA-TC-119/40.

Discussion générale

W.J. MAECK: Il y a une idée que j'aimerais soumettre. Dans un échantillon de bordure nous avons trouvé une énorme concentration de néodyme naturel, avec un taux d'irradiation très faible. Les argiles ont une beaucoup plus grande capacité d'échange ionique que les grès qui sont autour. Ne pourrait-on pas penser que cette accumulation a été due à une migration, avec un processus de concentration par échange ionique à la frontière entre les argiles et les grès? Le thorium et le ruthénium ont pu s'accumuler par un processus analogue. Une investigation détaillée ne serait-elle pas intéressante?

B. POTY: Ce sont surtout les smectites qui échangent les cations; à 400 ou 500°C les montmorillonites ne sont pas stables.

W.J. MAECK: Je pensais à une accumulation qui se serait faite postérieurement aux réactions pendant un temps très long.

R. NAUDET: Je ne crois pas. Vous faites sans doute allusion à l'échantillon 1899 au mur du SC 36; il s'agit du «pic» de terres rares naturelles et de thorium dont nous avons déjà parlé, qui va du 1899 au 1901; déjà dans l'échantillon 1905 les teneurs sont redevenues normales (figure 1 de ma communication); or cette portion du sondage n'est pas en contact avec des grès: au-dessous on trouve des sédiments pélitiques stériles, d'ailleurs remaniés par les réactions, avec pratiquement les mêmes minéraux argileux. D'autre part l'étude fine effectuée par M. Ruffenach (IAEA-TC-119/16, présents comptes rendus) montre qu'au niveau de l'échantillon 1901, les terres rares naturelles ont été irradiées (la fluence est très petite, de l'ordre de 0,004 n/kb je crois, mais elle n'est pas nulle); les terres rares naturelles ne se sont donc pas accumulées postérieurement aux réactions. Comme je l'ai dit, je pense qu'à l'origine de ce «pic» se trouve un minéral détritique, sans doute une monazite.

W.J. MAECK: Avez-vous retrouvé ailleurs, et notamment dans le cœur, des concentrations locales analogues?

R. NAUDET: Oui, nous avons un exemple, qui est l'échantillon 409 de la coupe 2 L. A cet endroit il y a un pic de terres rares naturelles, et la fluence s'effondre: c'est très spectaculaire (cf. IAEA-SM-204/23)[1]. Bien entendu, dans le cœur les minéraux détritiques ont été détruits par les rayonnements; et après cette destruction les terres rares ont pu éventuellement s'étaler. C'est peut-être ce qui explique que nous n'avons pas vu souvent des anomalies aussi ponctuelles; le cas de l'échantillon 1901 est intéressant puisque le minéral a partiellement subsisté tout en ayant reçu une très faible fluence.

E. ROTH: Est-ce que quelqu'un a une idée de la concentration en uranium de la solution qui était en présence des dépôts?

B. POTY: La difficulté est qu'à Oklo on ne connaît pas la composition des solutions. On peut citer un chiffre: 30 ppm; c'est la valeur à 500°C, 1 kilobar, pour de l'eau pure, avec le tampon hématite-magnétite, mais à Oklo il y avait peut-être des sulfates, et peut-être une fugacité de l'oxygène différente, donc il est très difficile de répondre.

R. STEFANI: La composition chimique des inclusions fluides pourrait-elle nous renseigner?

B. POTY: Bien sûr, mais il faut faire l'analyse, ce qui est relativement compliqué et n'a pas encore été fait.

R. STEFANI: Je signale que nous avons fait des essais à Grenoble sur les inclusions fluides dans les quartz par spectrométrie de masse à sonde laser; on obtient des résultats intéressants à condition de ne pas polir l'échantillon (parce que le polissage perturbe la couche sur un micromètre ou plus). C'est une technique possible pour des éléments légers, c'est-à-dire jusqu'à la masse 80.

---

[1] NAUDET, R., RENSON, C., in Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 265.

C. DEVILLERS: Je voudrais évoquer un problème qui n'a peut-être pas été suffisamment pris en considération; c'est la radiochimie à l'intérieur du réacteur nucléaire. Nous ne possédons pas beaucoup de données pour cette gamme de températures et de pressions; mais en utilisant les données existantes, on s'aperçoit que la radiolyse de l'eau pouvait avoir des effets considérables. Même en prenant des hypothèses basses pour les rendements radiolytiques, j'ai trouvé qu'on aurait pu oxyder 1000 ou 10 000 fois l'uranium pendant la durée des réactions; ces calculs n'ont sûrement pas grand sens, mais cela veut dire sans doute qu'il y a des effets importants. D'autre part s'il y a des oxydations à l'intérieur du réacteur, il faut admettre qu'une partie de l'hydrogène a été évacuée. A-t-on le moyen de mettre en évidence un dégagement d'hydrogène qui se serait produit à ce moment-là?

B. POTY: Je crois qu'on ne pourra pas, parce que l'hydrogène est ce qui diffuse le plus facilement; on ne peut le retrouver en inclusions fluides.

C. DEVILLERS: Je rappelle que Mme Vandenbroucke a signalé que, dans les réacteurs, les matières organiques ont à la fois des rapports O/C et H/C plus élevés qu'à l'extérieur. Je me demande si cela ne pourrait pas être lié au phénomène radiolytique, en prouvant qu'il y a eu à la fois hydrogénation et oxygénation des produits organiques.

W.J. MAECK: Nous avons quelques résultats intéressants, obtenus très récemment et qui n'ont pas été présentés. Il s'agit d'analyses de néodyme et de ruthénium dans des échantillons provenant de sondages extérieurs aux zones de réaction, mais situés à proximité, en général entre 2 et 5 mètres des réacteurs. Nous avons trouvé des variations très importantes de concentration de ruthénium allant de 1 à 1400 ng par gramme de minerai. Les analyses isotopiques indiquent qu'il s'agit de produits de fission. D'autre part les rapports de masses 99 et 101 comportent également de grandes variations qui peuvent être attribuées à des migrations du technétium-99 avant sa décroissance radioactive. Dans certains cas, il y a deux ou trois fois plus d'isotope 99 qu'on pourrait en attendre de la fission de l'uranium-235, ce qui pourrait indiquer l'existence de mécanismes de concentration locale du technétium; dans d'autres cas la masse 99 est au contraire fortement déprimée. Il est dommage que les résultats n'aient pas été prêts pour cette réunion, mais nous pouvons les communiquer à ceux qui seraient intéressés.

D.G. BROOKINS: Je voudrais souligner que puisque nous avons à nous occuper de solutions aqueuses à basse et moyenne température, analogues à des solutions hydrothermales, il conviendrait que dans les études futures une place importante soit consacrée aux études de géochimie des isotopes stables, notamment les systèmes hydrogène, carbone, oxygène, soufre. Ces études devraient être faites aussi pour les minerais d'Okelobondo.

Rosemary J. VIDALE: A-t-on une idée du sens des circulations avant, pendant, et après les réactions?

R. NAUDET: Au moment des réactions, il y a sans doute eu renversement du sens des circulations; les différences de densité liées aux différences de température servant désormais de moteur, les circulations devaient se faire vers l'amont, c'est-à-dire de bas en haut; on peut d'ailleurs en avoir la preuve en observant les désilicifications. Avant et après, les circulations allaient sans doute «normalement» de haut en bas, encore que nous n'en n'ayons pas de preuve, sauf naturellement pour l'époque récente. En outre, pendant la phase tectonique qui a précédé les réactions, période qui a connu beaucoup de remaniements géochimiques, les circulations pouvaient éventuellement se faire dans n'importe quel sens, puisqu'elles résultaient alors de différences de pressions liées aux mouvements de terrains.

F. WEBER: Je pense que nous avons une certaine preuve que le courant, avant le déclenchement des réactions, allait bien de haut en bas, d'après les observations faites dans la carrière (voir la communication de Gauthier-Lafaye et al., IAEA-TC-119/2, présents comptes rendus). En effet, on trouve des fronts d'enrichissement en uranium qui sont précédés chaque fois d'une zone oxydée et lessivée. Je pense donc effectivement qu'il y a eu inversion du sens du courant au moment du déclenchement des réactions.

M. BONHOMME: Je voudrais faire un commentaire en ce qui concerne la radiochronologie. Je rappelle d'abord les conclusions de M. Poty: Les réactions se situent entre un épisode de diagenèse siliceuse, avec une température de 240°C, et un épisode de diagenèse dolomitique, avec une température de 180°C, correspondant à une remontée de l'ordre de 800 mètres. Dans ce schéma, il y a deux hypothèses possibles: dans la première, les réactions ont lieu aux environs de 2000 MA et la diagenèse dolomitique doit être placée à 1860 MA (je vous rappelle que c'est l'âge de l'isochrone rubidium-strontium); il y a d'autre part un phénomène inconnu à 1800 MA, qui en particulier annule complètement l'âge de tous les minéraux phylliteux du réacteur. Dans la deuxième hypothèse, l'âge de 1860 MA correspond à la diagenèse siliceuse, et la diagenèse dolomitique se situe alors à 1800 MA.

Je ne crois pas qu'on puisse trancher actuellement entre les deux hypothèses: ou bien les réactions se situent aux environs de 2000 MA, et il se passe quelque chose à 1800 MA qui reste à définir; ou bien elles se situent immédiatement après 1860 MA. Une précision tout de même: les échantillons pour lesquels j'ai daté les fractions fines par l'isochrone rubidium-strontium (1800 MA) viennent essentiellement du FB; or le FB n'a pas subi la diagenèse dolomitique (celle-ci n'est sensible que dans la partie basse et moyenne du FA); cela pourrait être un argument en faveur de la deuxième hypothèse.

RECHERCHE D'AUTRES SITES
SEARCH FOR OTHER SITES

Animateur (Discussion Leader): K.E. APT

Introduction

SEARCH FOR OTHER NATURAL FISSION REACTORS

IAEA-TC-119/37

K.E. APT, J.P. BALAGNA, E.A. BRYANT,
G.A. COWAN, W.R. DANIELS, Rosemary J. VIDALE
University of California,
Los Alamos Scientific Laboratory,
Low Alamos, New Mexico

D.G. BROOKINS
Department of Geology,
University of New Mexico,
Albuquerque, New Mexico,
United States of America

Résumé–Abstract

LA RECHERCHE D'AUTRES REACTEURS DE FISSION NATURELS.

On a examiné des minerais d'uranium précambriens pour y trouver la trace d'autres réacteurs naturels. Vu les conditions nécessaires à la formation d'un réacteur naturel, les recherches portent sur des gisements d'uranium contenant de vastes gîtes de minerais riches. Des zones massives comportant des volumes de $\geqslant 1$ m^3 et des concentrations de $\geqslant 20\%$ d'uranium sont susceptibles de receler un réacteur fossile si leur âge est de $\geqslant 0{,}6 \times 10^9$ années et si elles ont contenu suffisamment d'eau tout en étant dépourvues d'impuretés absorbant les neutrons. L'attention s'est surtout portée sur les gisements du nord du Canada et de l'Australie mais on a également extrait des échantillons des lieux suivants: régions de Shinkolobwe et du Katanga au Zaïre; Afrique du Sud-Ouest; le Rio Grande do Norte au Brésil; gisements de Jabiluka, de Nabarlek, de Koongarra, de Ranger, et d'El Sharana dans les Territoires du Nord de l'Australie; gisements de Beaverlodge, de Maurice Bay, de Key Lake, de Cluff Lake, de Rabbit Lake et région du Grand Lac de l'Ours au Canada. On a étudié les échantillons de minerai pour rechercher les variations isotopiques de l'uranium, du néodyme, du samarium et du ruthénium susceptibles d'indiquer la présence d'une fission naturelle. On n'a pas constaté d'anomalies isotopiques. Ces gisements n'ont pas atteint la criticité parce que leur teneur en ^{235}U n'était pas suffisante (elle est fonction de l'âge et de la teneur totale en uranium) ou encore parce qu'ils présentaient des impuretés importantes et étaient insuffisamment modérés. On a envisagé une technique de surveillance des usines d'uranium qui permettrait de contrôler la production de concentré uranifère provenant d'installations appropriées afin d'y découvrir des altérations isotopiques révélant l'exhumation et le traitement d'un réacteur naturel.

SEARCH FOR OTHER NATURAL FISSION REACTORS.

Precambrian uranium ores have been surveyed for evidence of other natural fission reactors. The requirements for formation of a natural reactor direct investigations to uranium deposits with large, high-grade ore zones. Massive zones with volumes $\geqslant 1$ m^3 and concentrations $\geqslant 20\%$ uranium are likely places for a fossil reactor if they are $\geqslant 0.6 \times 10^9$ years old and if they contained sufficient water but lacked neutron-absorbing impurities. While uranium deposits of northern Canada and northern Australia have received most attention, ore samples have been obtained from the following world-wide locations: the Shinkolobwe and Katanga regions of Zaire; soutwest Africa; Rio Grande do Norte, Brazil; the Jabiluka, Nabarlek, Koongarra, Ranger, and El Sharana ore bodies of the Northern Territory, Australia; the Beaverlodge, Maurice Bay, Key Lake, Cluff Lake, and Rabbit Lake ore bodies and the Great Bear Lake region, Canada. The ore samples were tested for isotopic variations in uranium, neodymium, samarium, and ruthenium which would indicate natural fission. Isotopic anomalies were not detected. Criticality was not achieved in these deposits because they did not have sufficient ^{235}U content (a function of age and total uranium content) and/or because they had significant impurities and insufficient moderation. A uranium mill monitoring technique has been considered where the "yellowcake" output from appropriate mills would be monitored for isotopic alterations indicative of the exhumation and processing of a natural reactor.

INTRODUCTION

In all likelihood, the Oklo natural fission reactor was not a singular occurrence in the earth's history. The conditions of the Precambrian earth were such that there were probably other reactors of this type. The combined probabilities of a reactor forming, of its surviving from Precambrian times, and of its discovery during mining suggest that Oklo was one of several natural fission reactors. If this is so, we should be able to find evidence for other occurrences. Subsequent study of other natural fission reactors would add to our knowledge of the history of the primordial earth and to such timely topics as the geochemistry of uranium ore deposits and the long-term behavior of buried reactor products. At Oklo, readioactive products were remarkably immobile, but their behavior in other environments could be an important consideration in the geologic disposal of contemporary nuclear wastes.

THE OCCURRENCE OF NATURAL REACTORS

The geochemical circumstances which led to the formation of Oklo were very special; a unique sequence of events assembled a critical mass of ^{235}U--the single most important ingredient of natural criticality. When the earth formed $\sim$ 4.5 b.a.[1] ago, ^{235}U constituted about 23% of terrestrial uranium. But there were no known mechanisms to assemble a critical mass, even though a relatively small mass would have sufficed. Ore-forming processes were not likely as the core, mantle, and crust had not differentiated. By the end of the Hedean period 3.4 b.a. ago, uranium, being lithophilic, had concentrated in the mantle and crust and probably occurred as disseminated UO_2 in crystalline rocks. During the Archean period (about 3.4 to 2.6 b.a. ago),

[1] Throughout this paper b.a. = 10^9 years and m.a. = 10^6 years.

procaryotic life forms evolved; but there were no significant amounts of free oxygen during this time, and uranium remained as the unoxidized UO_2. Uranium did concentrate toward the end of this period, however, by means of gravitational sorting of heavy stream sediments, which included UO_2. These unoxidized ores (known as paleoplacer or quartz-pebble conglomerate ores) rarely contained more than a few tenths percent uranium, and even though the relative ^{235}U content was about 8%, there was insufficent total ^{235}U concentration for criticality.

Then, during the Lower Proterozoic (about 2.6 to 2.0 b.a. ago) important changes occurred. This was a period of intense mountain building and subsequent weathering. Also, photosynthetic blue-green algae evolved, and gradually the earth's surface waters and atmosphere became oxidizing. Around 2 b.a. ago, then, an extensive surface "reservoir" of unoxidized uranium-bearing sediments and orogeny-related exposures were attacked by oxygen, and relatively large quantities of complexed uranyl ion were hydrochemically released. When uranyl-bearing ground waters achieved sufficient depth or intersected zones of high organic concentration, the chemical environment became reducing, and uranium precipitated as uraninite, pitchblende, or coffinite. Where this process occurred in porous rock or cavities, large, massive veins of uranium often resulted. This cavity filling (or structural control) seems to be an important characteristic of Proterozoic "vein-type" deposits. Such vein deposits are almost exclusively limited to the Proterozoic, and they represent some of the world's richest uranium reserves. The relative ^{235}U content during the Proterozoic went from about 4 to 1%. This is about the minimum concentration required for any natural assemblage to attain criticality. Hence, nature seems to have cooperated in providing a mechanism for massive uranium accumulation at a very critical time for the formation of natural reactors.

The search for other fossilized natural reactors is guided by the physical requirements [1,2] for formation of a natural critical assembly. The natural reactor requirement of high ^{235}U content restricts investigations to uranium deposits that are very old and very rich. Neutronic arguments require that the reactor zone be relatively large. Thus, any deposits having zones of uranium mineralization that are (1) $\gtrsim$ 0.6 b.a. old, (2) $\gtrsim$ 20% uranium, and $\gtrsim$ 1 m^3 in size are worthy of investigation, regardless of the present day content of neutron-absorbing "poisons" (such as boron and the rare earths) or neutron moderators (such as carbon and water).

SURVEY OF POTENTIAL SITES

Proterozoic, vein-type uranium deposits are the most appropriate locations to search for other natural reactors. These deposits are found in exposures of Precambrian continental shields, which cover large areas of central and southern Africa, northern Canada, eastern South America, and portions of Australia and Eurasia. Not surprisingly, most of the important uranium deposits of the world are in these shield areas, but this investigation is concerned mainly with northern Canada and northern Australia--the two most promising locations. The extensive exploration and mining activities in these regions have provided an excellent opportunity to search for possible reactor zones.

In Canada, massive vein-type uranium deposits have been discovered in the Northwest Territories and northern Saskatchewan. At the depleted Eldorado mine at Port Radium, Northwest Territories, mineralized uranium ore

veins have been dated at ∿ 1450 m.a. [3] and 1200-1400 m.a. [4]. Major minerals of the veins, which average ∿ 0.5 m thick, include quartz, dolomite, hematite, native silver, and chalcopyrite, with lesser amounts of pitchblende. However, massive specimens with ⩾ 40% uranium have been documented.

At the Ace-Fay-Verna mine [5,6] in the Beaverlodge district, Saskatchewan, epigenetic uranium occurs as disseminated or colloform pitchblende that fills brecciated and hematized fracture zones. These subsidiary zones are adjacent to the major St. Louis fault in the host metamorphics. High-grade mineralized veins up to ∿ 1 m thick with tens of percent uranium have been observed. Initial epigenetic mineralization occurred [7] at about 1780 ± 15 m.a. ago, but at least two major periods of pitchblende reworking [8] (or perhaps lead loss [9]) have been proposed: 1100 m.a. and 270 m.a. ago.

Likewise at the Rabbit Lake open-pit mine, Saskatchewan, massive and colloform pitchblende occur in brecciated regions of metasediments associated with a synclinal structure. Primary uranium emplacement took place about 1100 m.a. ago [10] but subsequent periods of remobilization are indicated by younger ages of sooty pitchblende [11]. Large, rich lenses of ∿ 30% uranium have been encountered at the Rabbit Lake mine.

The Key Lake, Maurice Bay, and Cluff Lake uranium deposits of the Athabascan region, Saskatchewan, are being delineated and assessed. For Key Lake, fault-controlled uranium mineralization is found at the unconformity of Proterozoic sediments and basement gneisses [12]. The initial mineralization is thought to be Middle Proterozoic (∿ 1 to 2 b.a. ago), and large, high-grade regions have been encountered. High-grade nickel mineralization is associated with the uranium, but the paragenetic sequence of these species is not clear.

Descriptive geological or mineralogical information has not been reported for the Maurice Bay deposit. However, structurally-controlled veins of high-grade uranium mineralization occur, and the age of mineralization is probably Middle Proterozoic also.

At the Cluff Lake "D" ore body [10], structural control contributed to the formation of a very concentrated occurrence of pitchblende-uraninite. The complex uranium mineralization is associated with gold, tellurium, selenium, cobalt, bismuth, lead, and nickel. The ore body has an average grade of several percent uranium, and very high-grade zones in excess of 50% have been observed. Initial mineralization has been dated at 1050 m.a. ago [13] and 1150 m.a. ago [14].

In the regions of the Alligator Rivers and the South Alligator Valley of the Australian Northern Territory, recently discovered Proterozoic uranium deposits have mineralogy and formation controls remarkably similar to the northern Saskatchewan deposits [15,16]. At the Australian Nabarlek deposit, diamond drilling has intersected very rich zones, which have vertical thicknesses up to ∿ 1 m and concentrations to ∿ 60% uranium [17]. "Original" deposition of uranium has been dated at 850-900 m.a. ago [17,18] and 710-815 m.a. ago [19]. However at least one period of uranium redistribution may have occurred: at 450-500 m.a. ago [18,19].

The Koongarra deposit occurs in Lower Proterozoic schists above a reverse fault contact with Middle Proterozoic metasediments [20]. The uranium mineralization has been dated at 850 m.a. [21] and 870 m.a. old [16], and rich regions within the ore body have been observed. Koongarra uranium was probably redistributed around 450-500 m.a. ago [18].

The Jabiluka deposit is perhaps the largest high-grade uranium accumulation ever discovered. The uranium mineralization, which has been reported as 900 m.a. old [21], is thought to have resulted from hydrothermal remobilization and concentration of pre-existing uranium. Large mineralization zones with $\gtrsim$ 50% uranium have been identified in this ore body.

At the Ranger deposit, vein-type pitchblende is found in fracture zones in a Lower Proterozoic schist. But unlike the other ore deposits in the Alligator Rivers region, the structurally-controlled uranium veins of Ranger are generally less than 1 cm thick [22] and reported as being 1600 m.a. old [21].

For these Australian deposits, information on trace element mineralization is scarce. In general, however, uranium is the only economic mineral species [23], but significant accumulations of gold were observed at Jabiluka [21].

According to one theory of uranium ore genesis [21,24], the uranium of the Alligator Rivers region is syngenetic with the Lower Proterozoic sediments; this deposition would have occurred before 1880 m.a. ago. The uranium then underwent concentration at $\sim$ 1700 m.a. (possibly by mobilization and deposition of pre-existing uranium accumulations) and experienced periods of lead loss at $\sim$ 900 m.a. and $\sim$ 500 m.a. ago. Accordingly, the relatively recent dates given for uranium mineralization at Nabarlek, Koongarra, and Jabiluka may not represent the age of the first major concentrations of uranium at these deposits. The existing structurally-controlled accumulations may have been derived from similar, parent accumulations. Or, alternatively, the existing accumulations may be nearly twice as old as their uranium-lead ages suggest. In any event, these deposits have appropriate ages for this investigation.

Ore samples from the previously described Canadian and Australian deposits, together with samples obtained from the Frondel mineral collection of Harvard, were analyzed for isotopic variations in uranium, neodymium, samarium, and ruthenium (some analyses have been previously reported [25]). The samples from the Canadian and Australian deposits were collected from large, high-grade zones in the deposits, but detailed descriptions of these ore configurations are not presented for proprietary reasons. For the Harvard samples, descriptions of the specific sample locations were unavailable; but the samples, in general, were from massive hand specimens.

If the samples were from natural reactor zones, ^{235}U would exhibit a relative depletion,[2] whereas neodymium, samarium, and ruthenium in the samples would have relative increases in their respective fission-product isotopes. Samples from Nabarlek, Key Lake, and Maurice Bay were screened for $^{235}U/^{238}U$ variations with a field measurement system described elsewhere [26].

Results of the isotopic measurements are shown in Table I. The ^{235}U concentrations were measured by thermionic mass spectrometry, with a relative precision of about 0.2%. The relative ^{235}U content for these ores is

[2] In theory, natural reactor uranium could exhibit a slight increment in ^{235}U if the conversion factor exceeded unity. However, the physical requirements for such a "breeder" reactor are very stringent, and they are not likely to have been met compared to the requirements for an Oklo-type reactor.

TABLE I

ANALYSIS OF SELECTED URANIUM ORES

Sample Number	Location	Isotopic Analysis			
		U (wt%)	^{235}U (rel wt%)	$^{143}Nd/^{142}Nd$[a]	$^{150}Sm/^{149}Sm$[b]
8.01	Jabiluka, Australia	63	0.711	1.012	
8.02	Jabiluka, Australia	56	0.710	1.012	
8.03	Jabiluka, Australia	57	0.711	1.011	
8.04	Jabiluka, Australia		0.710	1.017	
8.10	Koongarra, Australia		0.710	1.017	
8.14	Nabarlek, Australia	59	0.712	1.020	
8.15	El Sherana, Australia		0.711		
9.05	Key Lake, Canada		0.713	1.001	
9.13	Key Lake, Canada			1.022	
9.16	Key Lake, Canada	29	0.711	1.014	
9.20	Key Lake, Canada			1.016	
9.23	Key Lake, Canada			1.014	
9.27	Key Lake, Canada			1.017	
9.68	Fay Mine, Canada		0.711	1.012	
9.71	Fay Mine, Canada	12		1.007	
9.77	Port Radium, Canada	41		1.010	
9.80	Port Radium, Canada			1.019	
10.08	Rabbit Lake, Canada	7		1.003	1.002
10.11	Rabbit Lake, Canada	57		1.002	1.000
10.13	Rabbit Lake, Canada	53		1.004	1.000
10.14	Rabbit Lake, Canada	19		1.003	1.000
10.29	Rabbit Lake, Canada	32		1.003	1.000
10.30	Rabbit Lake, Canada	14		1.005	1.001
10.31	Rabbit Lake, Canada	27	0.712	1.006	0.999
10.32	Rabbit Lake, Canada			1.003	1.001
10.33	Cluff Lake, Canada	57		1.013	1.001

[a]The ratio $^{143}Nd/^{142}Nd$ measured for a sample has been normalized by dividing by the ratio measured for standard material from the National Bureau of Standards.

[b]The ratio $^{150}Sm/^{149}Sm$ measured for a sample has been normalized by dividing by the ratio measured for standard material from the National Bureau of Standards.

normal to within the precision of the technique. The $^{143}Nd/^{142}Nd$ ratio could indicate an increment of fission-produced ^{143}Nd compared to the non-fission product ^{142}Nd. The normalized values given in Table I suggest that there are systematic tendencies in the $^{143}Nd/^{142}Nd$ ratio for different ore bodies, but fission produced ^{143}Nd (in excess of $\sim$ 1% of the natural ^{143}Nd) is not indicated. The $^{150}Sm/^{149}Sm$ ratio is also a sensitive indicator of a natural reactor, but an increment in this ratio would result from the high neutron fluence associated with a chain reaction. The measured samarium ratios likewise give no indication of a natural reactor.

Ruthenium is perhaps the most sensitive element for detecting natural fission. It has a very low natural abundance of about 1 ng/g, yet it has a high fission yield, in excess of 15%. Recent measurements [27] have shown that for Precambrian uranium ores, the component of fission-product ruthenium resulting from neutron-induced ^{235}U fission can be distinguished from the component resulting from ^{238}U spontaneous fission. Ruthenium isotope ratios for 26 Precambrian uranium specimens were thus used to determine if excessive ^{235}U fission had occurred [28]. The samples were from possible natural reactor sites at Shinkolobwe and Kasolo, Zaire; Rio Grande do Norte, Brazil; Gordonia, Southwest Africa; Theano Point, Wilberforce, Rabbit Lake, Key Lake, Cluff Lake, Fay Mine, and Port Radium, Canada; and Jabiluka and Nabarlek, Australia.

For these high-grade samples, the amount of ruthenium resulting from neutron-induced ^{235}U fission was less than 75% of the ruthenium from ^{238}U spontaneous fission. (The total fission-product ruthenium ranged from 1.4 to 23 ng/g.) Precambrian uranium ores are known to have amounts of ^{235}U fission that range from about 3 to 47% of the ^{238}U spontaneous fission [29]; whereas at the Oklo reactor zones, the amount of ^{235}U fission was many orders of magnitude greater than ^{238}U spontaneous fission. Thus, the ore samples do not represent natural reactors.

There is a possibility that other natural fission reactors may have been redistributed or dispersed by geochemical or erosional processes. If this is so, there may be evidence for them in subtle ^{235}U isotopic depletions in present-day uranium ore bodies. Ore samples from various locations have been tested for slight variations in the $^{235}U/^{238}U$ ratio using precise gas (UF_6) mass spectrometry. These data are presented in Table II. The relative precision of this technique is $\sim$ 0.01%, which is lower than the natural variability in the $^{235}U/^{238}U$ ratio [30]. The analyses presented here are an extension of a previous study [30] that identified a bimodal distribution of ^{235}U concentrations in natural ores: magmatic and vein-type ores had values around 0.7108 rel wt%, whereas the values of sandstone-type ores of the Colorado Plateau clustered around 0.7106 rel wt%. It was speculated that the lowered ^{235}U content in Colorado Plateau uranium could have resulted from isotopic fractionation brought about by the repeated oxidation-reduction depositional process of sandstone-type ores, or from ^{235}U-depleted uranium that had been geochemically redistributed from a Precambrian natural reactor.

Certain samples of Table II (3.13, 3.44, 8.04, 10.14, and possibly 9.16) have anomalously high ^{235}U values, which lie well outside the accepted range of ^{235}U content. Duplicate analyses of samples 8.04, 9.16, and 10.14 were conducted by thermionic mass spectrometry, and the anomalous values were not confirmed. It is believed that the high values resulted from some systematic measurement error or sample contamination, and the samples are being re-analyzed.

TABLE II

PRECISE URANIUM ANALYSIS OF WORLDWIDE ORES

Sample Number	Location	U (wt%)	^{235}U (rel wt%)[a]	^{235}U (rel wt%)[b]
3.1	Alligator Gorge, Australia	66	0.7110	
3.13	Rio Grande do Norte, Brazil	31	0.7139	
3.42	S. Alligator Gorge, Australia	70	0.7110	
3.61	Wilberforce, Canada		0.7108	
3.14	Shinkolobwe, Zaire	74	0.7111	
3.44	Shinkolobwe, Zaire		0.7134	
3.46	Katanga, Zaire		0.7110	
3.55	Kasolo, Zaire	69	0.7107	
6.1	Weddington Pit, Texas		>0.711 [c]	
8.01	Jabiluka, Australia	63	0.7112	0.711
8.04	Jabiluka, Australia		0.7128	0.710
8.14	Nabarlek, Australia	59	0.7112	0.712
9.16	Key Lake, Canada	34	0.7115	0.711
10.14	Rabbit Lake, Canada	22	0.7144	0.711
11.02	Witwatersand, SA		[c]	
12.01	Elliot Lake, Canada		0.7110	

[a] Gas mass spectrometric analysis, 2σ precision $\sim$ 0.0001 rel wt%.

[b] Thermionic mass spectrometric analysis, 2σ precision $\sim$ 0.002 rel wt%.

[c] Insufficient uranium in sample for gas mass spectrometry analysis.

The data of Table II indicate that these samples are not from natural reactors. However, if a natural reactor had existed and had been redistributed within the ore body, a subtle ^{235}U depletion would result. This generalized depletion would be detectable only if the average ^{235}U depletion (designated as B, in %) in the reactor were sufficiently high and if the subsequent dilution were not too great. The 3σ detection threshold for detecting anomalously low ^{235}U content by gas mass spectrometry is about 0.7100 rel wt% (normal uranium has about 0.7108 rel wt% [30]); so a redistributed reactor system could possibly be detected if the product $Bf \gtrsim 0.1\%$, where f is the fraction of uranium in the deposit that is from the reactor zone. This qualitative limit assumes the reactor system is homogeneously redistributed within the deposit. In reality, a reactor could have experienced partial redistribution or major mobilization away from the deposit.

The lowest value of Table II, 0.7107 $\tilde{\pm}$ 0.0001 rel wt%, is virtually indistinguishable from the expected value of $\sim$ 0.7108 $\tilde{\pm}$ 0.0002 rel wt%. Hence, if a natural reactor had been redistributed within this deposit, we can conclude that Bf $\tilde{<}$ 10^{-2}%. For example, a redistributed reactor system with a 10% average ^{235}U depletion must have comprised less than $\sim$ 0.1% of the total uranium of the deposit. Deposits typically contain between 10^4 and 10^5 tons of uranium, and 0.1% represents a relatively small natural reactor system. Thus uranium gas mass spectrometry would appear to be effective in detecting a redistributed reactor, but it would be inadequate if there had been a low fission density, a high conversion factor (^{238}U to ^{235}U via ^{239}Pu), or a major loss of the reactor uranium.

MONITORING OF URANIUM MILLS

Isotopically analyzing rich ore specimens from drill cores or from exposures in mines is an obvious way to search for other natural reactors. But such specimens represent only a small fraction of an ore body, and a fossilized reactor zone could easily be missed and subsequently exhumed. While this sampling should be continued, a more systematic and thorough search capability could be obtained by monitoring the output of mills servicing likely Precambrian deposits. Such a plan [31] has been proposed where "yellowcake" (U_3O_8) samples from appropriate mills would be routinely collected and analyzed for subtle decreases in the $^{235}U/^{238}U$ ratio.

In this plan, the effectiveness of mill monitoring is determined for situations where reactor uranium is introduced into the mill episodically or continuously, and both continuous and "grab" sampling of yellowcake are considered. The uranium mill is assumed to act as a large dilution vessel with a comparatively small throughput of uranium (i.e., uranium is refined by continuous rather than batch processing, and mills generally contain several days of uranium output at any one time). Thus, after introduction of reactor ore into the mill, the concentration of anomalous uranium will decrease approximately exponentially[3] with some characteristic "half-time"--the time required for the anomaly concentration to be reduced by one-half. For a given amount of refined reactor ore, the sensitivity for detection is limited by the sensitivity of the isotopic analysis, the extent of ^{235}U depletion in the reactor ore, the frequency of grab or continuous sampling, and the dilution half-time of the mill.

For a natural reactor system the size of Oklo, many months would no doubt be required for processing of the affected ore. A rich ore zone such as this would be deliberately mined, stockpiled, and blended over a long time (compared to the mill half-time) in order to keep the average grade of

[3] In reality, a mill has many stages of dilution, but usually only one or two locations contain the majority of the uranium. Where there are successive dilutions, the anomaly concentration can be described by rate equations analogous to those for successive radioactive decay. However, the assumption of a single dilution stage is adequate because it yields a detection limit that is conservative for a grab-sampling scenario. And when continuous sampling is employed or when the reactor ore is introduced continuously into the mill, the assumption of single or successive dilution has little effect on the detection limit.

the mill feed at an optimum concentration. Thus, reactor ore would eventually be introduced into the mill approximately continuously, but the isotopic anomaly in the yellowcake could fluctuate considerably. Nevertheless, one would expect that initially there would be erratic "pulses" of anomalous ore being processed. Detection of these events could be crucial to the early detection and preservation of a reactor site. To detect single episodes of anomalous ore throughput, mills with short half-times would require continuous sampling, while those with longer half-times could safely use grab sampling without sacrificing sensitivity. The sample frequency, while important to reactor ore detection, would probably be determined by convenience of collection and shipment and by sample analysis limitations.

For most mill monitoring scenarios, the detection of the first amounts of processed reactor ore would require that $C_o B \gtrsim 10$ to 100 $(\%)^2$, where C_o is the initial percent of total mill uranium that is from the reactor, and B is again the percent ^{235}U depletion in the reactor uranium. For reactor ore like that of Oklo with $\sim$ 30% depletion, an amount of reactor uranium between $\sim$ 0.3% and 3% of the total mill uranium would have to be introduced in order to insure early detection; i.e., between about ten and a few hundred kilograms of reactor uranium, depending on the mill capacity. Once anomalous ore was being continuously processed, however, the requirement for detection would be $BC_{ss} \gtrsim 8$ $(\%)^2$, where C_{ss} is the steady-state percent of total mill-feed uranium that is from the natural reactor. For reactor uranium with $\sim$ 30% depletion and a typical mill operation, only $\sim$ 10 kg/d of reactor uranium would have to be processed to insure detection. It is apparent that the first throughput of reactor ore may not be easily detected, but as the anomalous uranium concentration in the mill increases as a result of continuous input, the anomaly would almost certainly be detected.

DISCUSSION

This investigation has found no evidence for other natural fission reactors. Perhaps this is because the samples analyzed were not from the right locations in the uranium deposits. For most of the Precambrian vein-type deposits studied, there are many potential reactor zones. The samples, however, represent only a fraction of such zones: only those exposed during mining or intersected by drilling. The negative findings do not rule out the possibility that critical assemblages will be found (or have been exhumed, for that matter) in these deposits. As additional potential reactor zones are encountered at Precambrian deposits, samples should be collected and analyzed for isotopic anomalies.

The data do indicate, though, that the specific zones sampled were not fossilized reactors--at least not of the type found at Oklo. It is possible that some of the zones may have experienced considerable neutron multiplication; but at least for those samples that received ruthenium or uranium gas mass spectrometric analyses, this was not indicated.

Natural criticality appears to have been prevented in the ore zones because the combined criteria of ^{235}U content, moderator content, and low neutron poison content were not met. In most cases, the samples came from regions where the size requirement was satisfied; drill-core samples, for example, often came from high-grade zones between $\sim$ 0.5 and $\sim$ 2 m thick. Neutron poisons were probably a major deterrent to criticality for the Key Lake and Cluff Lake deposits, and they may have precluded criticality at

other locations as well.[4] The ^{235}U content of the ore zones during the Proterozoic was apparently insufficient to overcome the deterrents of excess poisons and insufficient moderation, even though the total uranium concentration ranged from ∿ 10 to ∿ 60%. Many of the Canadian samples are from post-Athabascan deposits about 1100 m.a. old, and some of the Australian samples may be of a comparable age. At this time, the ^{235}U content was 1.8 rel wt%--nearly twice as depleted as the uranium during the Oklo event.

For older samples, e.g., those from the Beaverlodge and Range deposits, criticality may have been presented, in part, because of the metallogenic process involved. At Oklo, the uranium mineralization and nuclear reaction were interrelated. Organic material, which had accumulated in tectonic structural traps, provided a reducing zone where uranium precipitated. The hydrocarbons, believed to have been present at the outset of criticality, provided additional neutron moderation that may have been an essential factor in initiating the nuclear reaction. Once the reactor was operating, a period of "autometamorphism" followed where the hydrocarbons were removed and the gangue and reactor zones altered to their present state. The hydrocarbons would not have been so crucial later in the period of criticality since the neutron fluence reduced the initial concentration of neutron poisons. Thus, the environment created by the organic material was very favorable to both uranium mineralization and nuclear criticality. Metallogenic processes operating at other Precambrian, vein-type uranium deposits may not have had this added benefit of hydrocarbon moderation to initiate a chain reaction.

ACKNOWLEDGMENTS

We are grateful for the cooperation and interest of the following uranium exploration and mining companies: Eldorado Nuclear Ltd., Uranerz Exploration and Mining Ltd., Gulf Minerals Canada Ltd., Amok Ltée, Pancontinental Mining, Ltd., Poseidon Ltd., Getty Oil Development Company, Queensland Mines Ltd., Peko-Wallsend Ltd., and Noranda Australia Ltd.

This program was sponsored by the U. S. Energy Research and Development Administration.

REFERENCES

[1] BRYANT, E. A., COWAN, G. A., DANIELS, W. R., MAECK, W. J., "Oklo, an experiment in long-term geologic storage", Actinides in the Environment (FRIEDMAN, A. M., Ed.) Amer. Chem. Soc. Symp. Series, No. 35, New York (1976) 89.

[2] APT, K. E., BRYANT, E. A., "Criteria for identifying fossil nuclear reactors and their application to Saskatchewan", Uranium in Saskatchewan (DUNN, C. E., Ed.) Saskatchewan Geol. Soc. Special Pub. No. 3, Regina (1976) 193.

[4] There are no data available on amounts of neutron poisons in these samples, but it would be difficult to establish whether such impurities were present in the Proterozoic configuration. Elemental analyses of the samples were therefore not conducted.

[3] ROBINSON, B. W., OHMOTO, H., Mineralogy, fluid inclusions, and stable isotopes of the Echo Bay U-Ni-Ag-Cu deposits, N.W.T., Canada, Econ. Geology 68 (1973) 635.

[4] Geochronology of North America, NAS-NRC Publication 1276 (1965) 149.

[5] LANG, A. H., GRIFFITH, J. W., STEACY, H. R., Canadian deposits of uranium and thorium, Can. Geol. Survey Econ. Geol. Series No. 16, 2nd ed. (1962).

[6] TREMBLAY, L. P., Geology of the Beaverlodge mining area, Saskatchewan (revised), Can. Geol. Survey Mem. 367 (1972).

[7] KOEPPEL, V., Age and history of the uranium mineralization of the Beaverlodge area, Saskatchewan, Can. Geol. Survey Paper 67-31 (1968).

[8] SASSANO, G. P., FRITZ, P., MORTON, R. D., Paragenesis and isotopic composition of some gangue minerals from the uranium deposits of Eldorado, Saskatchewan, Can. J. Earth Sci. 9 (1972) 141.

[9] RICH, R. A., HOLLAND, H. D., PETERSON, U., Hydrothermal Uranium Deposits, Elsevier Scientific Publishing Co., New York (1977) 77.

[10] SIBBALD, T. I. I., MUNDAY, R. J. C., LEWRY, J. F., "The geological setting of uranium mineralization in northern Saskatchewan", Uranium in Saskatchewan (DUNN, C. E., Ed.) Saskatchewan Geol. Soc. Special Pub. No. 3, Regina (1976) 51.

[11] KNIPPING, H. D., "The concepts of supergene versus hypogene emplacement of uranium at Rabbit Lake, Saskatchewan, Canada", Formation of Uranium Ore Deposits, (Proc. Symp. Athens, 1974), IAEA, Vienna (1974) 531.

[12] TAN, B., "Geochemical case history in the Key Lake area", Uranium in Saskatchewan (DUNN, C. E., Ed.) Saskatchewan Geol. Soc. Special Pub. No. 3, Regina (1976) 323.

[13] HERRING, B. G., The metamorphism and alteration of the basement rocks in the Carswell circular structure, Saskatchewan, M. Sc. thesis (unpublished) Univ. British Columbia (1976).

[14] PAGEL, M., La diagenèse des grés et les gisements d'uranium du bassin Athabasca (Canada), Centre de Recherches Pétrographiques et Géochimiques, Rapport Annuel (1976) 50.

[15] ROBERTSON, D. S., LATTANZI, C. R., Uranium deposits of Canada, Geoscience Canada 1 (1974) 8.

[16] MORTON, R. D., "The western and northern Australian uranium deposits--exploration guides or exploration deterrents for Saskatchewan?", Uranium in Saskatchewan (DUNN, C. E., Ed.) Saskatchewan Geol. Soc. Special Pub. No. 3., Regina (1976) 211.

[17] ANTHONY, P. J., "Nabarlek uranium deposit", Economic Geology of Australia and Papau New Guinea, Vol. 1, Metals (KNIGHT, C. L., Ed.) Australian Inst. Min. Metall. Monograph No. 5 (1975) 304.

[18] HILLS, J. H., RICHARDS, J. R., The age of uranium mineralization in Northern Territory, Search 3 (1972) 382.

[19] COOPER, J. A., On the age of uranium mineralization at Nabarlek, N.T., Australia, J. Geol. Soc. Australia 19 (1973) 483.

[20] FOY, M. F., PEDERSON, C. P., "Koongarra uranium deposit", Economic Geology of Australia and Papau New Guinea, Vol. 1, Metals (KNIGHT, C. L., Ed.) Australian Inst. Min. Metall. Monograph No. 5 (1975) 317.

[21] ROWNTREE, J. C., MOSHER, D. V., "Jabiluka uranium deposits", ibid., 321.

[22] EUPENE, G. S., FEE, P. H., COLVILLE, R. G., "Ranger ore uranium deposits", ibid., 308.

[23] SMART, P. G., WILKES, P. G., NEEDHAM, R. S., WATCHMAN, A. L., "Geology of geophysics of the Alligator Rivers region", ibid., 285.

[24] DODSON, R. G., NEEDHAM, R. S., WILKES, P. G., PAGE, R. W., SMART, P. G., WATCHMAN, A. L., "Uranium mineralization in the Rum Jungle-Alligator Rivers province, Northern Territory, Australia", Formation of Uranium Ore Deposits, (Proc. Symp. Athens, 1974), IAEA, Vienna (1974) 551.

[25] APT, K. E., Ed., Investigations of the Oklo Natural Fission Reactor Program: July 1975 through June 1976, Los Alamos Scientific Laboratory Rep. LA-6575-PR (1976).

[26] BALAGNA, J. P., COWAN, G. A., "A non-destructive field measurement of the $^{235}U/^{238}U$ ratio in depleted to moderately enriched uranium", IAEA-TC-119/34, these Proceedings.

[27] MAECK, W. J., DELMORE, J. E., EGGLESTON, R. L., SPRAKTES, F. W., "The measurement of ruthenium in uranium ores and ^{238}U spontaneous fission yields, "IAEA-TC-119/35, ibid.

[28] MAECK, W. J., APT, K. E., COWAN, G. A., "A possible uranium-ruthenium method for the measurement of ore age", IAEA-TC-119/32, ibid.

[29] ATTREP, JR., M., TASA, K. S., SHERWOOD, J. D., Estimations of the ratio of induced fission to spontaneous fission in uranium ores, Abs. 167th Natl. Mtg. Amer. Chem. Soc., Los Angeles (1974); and Texas Journal of Science, in press.

[30] COWAN, G. A., ADLER, H. H., The variability of the natural abundance of ^{235}U, Geochim. Cosmochim. Acta 40 (1976) 1487.

[31] APT, K. E., Uranium Mill Monitoring for Natural Fission Reactors, Los Alamos Scientific Laboratory Rep. LA-7062-MS (1977).

Discussion générale

D.G. BROOKINS: Quel est le standard que vous avez utilisé pour $^{143}Nd/^{142}Nd$? D'autre part est-ce que les valeurs légèrement élevées de ce rapport dans des échantillons très anciens ne peuvent pas s'expliquer par la décroissance $^{147}Sm \rightarrow {}^{143}Nd$?

K.E. APT: Le standard provenait du NBS. Pour la deuxième question, je ne suis pas en mesure de répondre instantanément, mais cela me paraît une remarque très intéressante.

V.A. PCHELKIN: Pouvez-vous préciser les déviations que vous avez relevées et les marges d'erreur des mesures?

K.E. APT: La plupart des analyses isotopiques ont été faites par spectrométrie de masse en thermo-ionisation. La précision de cette technique est d'environ 0,5%, donc nous n'étions pas capables de détecter des variations de ^{235}U plus grandes que 0,002%, c'est-à-dire: 0,711 ± 0,002% en poids. Cependant, pour quelques minerais, l'analyse a été faite en spectrométrie de masse sur UF_6, et la précision est alors de 0,01%; on peut ainsi apprécier des variations de 0,0001% en poids. Mais ces variations ne sont pas plus grandes que celles observées par Cowan et Adler (Geochim. Cosmochim. Acta **40** (1976) 1487), qui ont trouvé deux groupes de teneurs en ^{235}U: une moyenne de 0,7108% en poids pour les minerais magmatiques, et 0,7106% en poids pour les gisements dans les grès du plateau du Colorado.

J. GEFFROY: M. Apt nous a parlé tout à l'heure du dépôt de Cluff, qui est en effet très riche et où l'uranium est très concentré. Ce dépôt de Cluff se caractérise par des quantités assez considérables d'or, de nickel, de cobalt, de sélénium, de molybdène et de tellure en association avec l'uranium. Mais en outre c'est presque une anomalie mondiale dans les gisements d'uranium en ce qui concerne les teneurs en bore. Dans les grès d'Athabasca de Cluff, en effet, le ciment est parfois constitué par une tourmaline magnésienne très finement cristallisée, de sorte que dans les épontes du gisement, et quelquefois dans le gisement lui-même, la teneur en bore exprimée en acide borique peut atteindre plusieurs % et même 10%. Donc le bore était en mesure d'arrêter toute réaction éventuelle.

K.E. APT: En effet, la tourmaline des grès d'Athabasca était de nature à empêcher toute criticité, mais je ne suis pas sûr que cette tourmaline ait une répartition homogène en profondeur; il peut y avoir eu moins de bore dans certaines zones du corps D de Cluff Lake.

Dans le cas de cette tourmaline, on est sûr qu'elle était syngénétique et donc présente avant la concentration de l'uranium. Pour les autres poisons, la séquence paragénétique est moins bien connue; c'est déjà vrai pour Cluff Lake, et encore plus pour d'autres gisements que nous étudions.

R. HAGEMANN: Avez-vous fait une évaluation de l'influence des fissions spontanées sur les rapports $^{143}Nd/^{142}Nd$ que vous avez mesurés? Pour les gisements que vous avez étudiés, cette contribution peut-elle expliquer les petites différences observées?

K.E. APT: Je crois que cette contribution est extrêmement petite.

B. POTY: Si je comprends bien, la grande différence qu'il y a entre Cluff et les autres gisements d'une part, et Oklo d'autre part, est une différence d'âge. On pense maintenant qu'Oklo est vieux d'au moins 2000 MA; autrement dit, les surconcentrations qui ont donné naissance au réacteur sont la trace du premier gisement filonien d'uranium du monde.

K.E. APT: Les données fournies par M. Simpson m'avaient fait penser que les fortes concentrations d'uranium observées dans les corps algaires du Witwatersrand (Val Reef) pouvaient être datées à 2000 MA, ce qui contredirait l'opinion exprimée par M. Poty.

P.R. SIMPSON: Les âges que j'ai donnés sont fournis par le plomb et concernent les minerais d'uranium. Mais d'autres âges encore doivent être pris en considération pour l'évaluation du gisement. On trouve un granite d'environ 2700 MA dans le socle du Dominian Reef, et les laves qui recouvrent le sommet de la série du Witwatersrand ont environ 2300 MA. Ainsi l'âge du dépôt doit se situer entre ces deux bornes, vers 2500 MA – il coïnciderait avec l'apport d'autres minerais uranifères détritiques plus anciens – et on peut estimer à 2000 MA l'âge du remaniement tardif et de la perte de plomb.

En ce qui concerne l'uranium chimique, nous avons montré il y a deux ans à une conférence au Colorado que l'uranium peut co-précipiter avec la pyrite authigénique. Je crois savoir qu'à l'heure actuelle on récupère 40% de l'uranium contenu dans les stériles du Witwatersrand en faisont surnager la pyrite, ce qui indique qu'une très forte proportion de l'uranium présent au Witwatersrand est dû à cette précipitation chimique et que le dépôt a eu lieu il y a environ 2500 MA.

APPLICATION AU STOCKAGE DES DECHETS RADIOACTIFS
APPLICATION TO RADIOACTIVE WASTE STORAGE

Animateur (Discussion Leader): G.A. COWAN

Introduction

MIGRATION PATHS FOR OKLO REACTOR PRODUCTS AND APPLICATIONS TO THE PROBLEM OF GEOLOGICAL STORAGE OF NUCLEAR WASTES*

IAEA-TC-119/26

G.A. COWAN
University of California,
Los Alamos Scientific Laboratory,
Los Alamos, New Mexico,
United States of America

Résumé–Abstract

LES CHAINES DE MIGRATION DES PRODUITS DU REACTEUR D'OKLO ET LE PROBLEME DU STOCKAGE GEOLOGIQUE DES DECHETS NUCLEAIRES.

Les produits du réacteur d'Oklo s'échappent premièrement en quittant les grains d'uraninite (UO_2) et deuxièmement en étant transportés hors de la gangue. La sortie du grain due au recul de fission est responsable du dépôt rapide dans la gangue de 5 à 10% des produits. La sortie par diffusion volumique est très lente. C'est pendant la période de fonctionnement du réacteur que la perte par diffusion a été la plus forte; elle peut avoir été de l'ordre de 10^{-6} fraction/a pour les éléments les plus volatils. Les éléments les moins volatils ont été retenus dans les grains. Leurs taux de diffusion sont inférieurs à 5×10^{-10} a^{-1}. Si l'on peut obtenir des taux de perte similaires dans l'uraninite (ou la thorianite) synthétique, le taux général de déplacement de la plupart des produits du réacteur sera suffisamment limité pour que pratiquement toutes les espèces radioactives décroissent in situ. Les principales conditions géochimiques à remplir pour qu'un lieu de stockage soit approprié sont celles qui garantissent la survie de la matrice de UO_2, et en particulier la similitude des valeurs de pH et Eh avec celles d'Oklo.

MIGRATION PATHS FOR OKLO REACTOR PRODUCTS AND APPLICATIONS TO THE PROBLEM OF GEOLOGICAL STORAGE OF NUCLEAR WASTES.

Escape of the products from the Oklo reactor proceeds, first, by escape from the uraninite (UO_2) grains and, second, by transport out of the gangue. Escape from the grain by fission recoil accounts for prompt deposition in the gangue of 5–10% of the products.

---

* Work performed under the auspices of the US Energy Research and Development Administration.

Escape by volume diffusion is very slow. The rate of loss by diffusion was highest during the operating period of the reactor and may have been of the order of 10^{-6} fraction/a for the most volatile elements. The least volatile elements have been retained in the grains. Their diffusion rates are less than 5×10^{-10}/a. If similar loss rates can be achieved in synthetic uraninite (or thorianite), the overall rate of transport of most reactor products would be sufficiently limited by diffusion to ensure that essentially all the radioactive species would decay in situ. The principal geochemical requirements for a suitable storage site are those that ensure the survival of the UO_2 matrix, particularly that the pH and Eh are similar to the values at Oklo.

Previous work [1,2,3] has demonstrated wide variations in the rates of transport of Oklo products out of the reactor zones. Quantitative or semi-quantitative estimates of these rates can be made for those elements which were retained in significant amounts but the estimates become qualitative for the very mobile elements. On a relative scale the losses are lowest in a group of elements including Zr, Nb, Ru, Pd, Ag, Te, the rare earths, Bi, Th, U, and Pu, and are high in a group including Sr, Mo, Ba, Kr, Xe, Rb, and Cs. Retention of the various reactor products varied from $\geq$ 90% down to $\sim$ 0.01%.

In order to evaluate the possible application of studies concerning the relative mobility of Oklo products to current and long-range planning for the management of reactor wastes, we begin with an examination of the processes which governed the escape of reactor products from the uraninite grains in which they were formed into the immediately surrounding gangue. We then examine their transport from the gangue to regions outside the reactor zones.

ESCAPE FROM URANINITE GRAINS

a) Escape by Recoil

The recoil range, R, of fission products in mg/cm^2 of UO_2 can be expressed as R = 16.40-0.0825 M where M is the mass of the fission fragment [4]. If the density of the grain is 10 and the grain radius is 50 μm [5], the loss by recoil of mass 90 fragments is 15% and of mass 137 fragments is 7.6%. In the highest grade ore at Oklo at least one-third of the fragments terminated in other grains. Thus the loss of fission products to the gangue by prompt recoil is of the order of 10% for the light masses and 5% for the heavy masses.

b) Escape by Dissolution and Recrystallization of Grains

Information presented at this meeting on uranium solubilities in the Oklo reactor zones [6] leads us to conclude that individual uraninite grains preserved their characteristic ^{235}U-depleted isotopic ratios to distances of the order of 1 μm or less from the edge of the grain. From the correspondence between uranium concentration, ^{235}U depletion, and fission product concentrations in many regions of the reactor, it is also evident that the initial uranium abundances and geometry of the reactor have, in general, been well-preserved.

We interpret these observations to mean that a large part of the ore body has retained its initial structure and that the grains have not been altered by dissolution and recrystallization. Consequently, except for the fission recoil fraction, release of fission products must have been controlled by the rates of diffusion from the uraninite grains for each of the product elements rather than by dissolution or recrystallization of the grains. The compositional stability of the uraninite contrasts with the surrounding clay gangue which appears to have been completely altered since the nuclear chain reaction.

c) Escape by Diffusion

Uraninite grains crystallize in the fluorite structure. The crystals are very stable and resist metamictization even at very high radiation levels. Boyko [7] found only a broadening of diffraction peak maxima at exposures of UO_2 up to 3.4×10^{18} fissions/cm^3. The broadening was due principally to lattice strain. Thus, for example, Wait [8] found the lattice expansion of single crystal UO_2 saturated at a value of 0.004 Å at 1.9×10^{16} fissions/cm^3 exposure and then undergoes no further change at 50 times this exposure. The effect disappeared completely on annealing at 200°C. At very high exposures, of the order of 10^{21} fissions/cm^3, structural changes and apparent onset of vitrification occurs. The fission density at Oklo was of the order of 10^{20} fission/cm^3.

Measurements of the rate of diffusion of fission products in high temperature reactor fuel elements indicate that the process is highly complex and is probably dominated by the vapor pressures of the elements at temperatures of the order of 2000°C. But at the low temperatures and moderate burnups in the Oklo reactor, volume diffusion probably prevailed. Rates of migration by volume diffusion in the stable fluorite lattice vary greatly with the element involved but are, in general, very slow. On the basis of ionic size only, elements which do not fit the lattice very well, including Nb, Mo, Tc, Ru, Rh, Ag, In, Sn, Sb, Te, Ba, and Pb, should migrate out of the uraninite in geological times. Elements which fit poorly into the lattice, such as Kr, Xe, Rb, and Cs, should diffuse much more rapidly. Elements which approximately match the lattice size and may be significantly retained are Zr, Pd, and Sr. Elements with ionic radii most compatible with the lattice size include the rare earths, the actinides (in +3 and +4 states), Bi, and the divalent cations of Ca and Cd.

Some ion probe observations of the distribution of elements between uraninite and the immediately surrounding gangue exist for Si, K, Ca, Ti, Fe, Sr, Zr, Ru, Pd, Ce, Nd, Pb, and Th [3]. In the rich irradiated ore the uraninite grains contain essentially all of the Ca, rare earths, Pd, Pb, and Th. Sr and Ru are in the gangue. Zr is disseminated between uraninite and clay.

The degree of retention is not known for all of the reactor product elements. However, based on the existing measurements, we have used an approximate solution for diffusion to estimate values or limits on D/a^2 for the diffusion of several of the product elements from the uraninite grains. The approximation used is:

$$\frac{C_f}{C_i} \sim e^{-(\pi^2 D/a^2)t}$$

where C_i is the initial concentration, C_f the final concentration, and a is the grain radius.

Among the elements which appear to have been retained quantitatively in the uraninite are Pd, the lighter rare earths, and Th. We also include Pu, Am, and Cm in this group because they form solid solutions in the uraninite, fit the ionic lattice, and should behave like Th. D/a^2 for these elements is $\leq 5 \times 10^{-12}$/a. For this group of elements diffusion from uraninite is so slow that it is clear that their losses from the reactor zone were entirely controlled by the diffusion rate and not by their subsequent geochemical behavior. This observation is important because it means that the transport rate of such elements is determined by the initial matrix. The necessary geochemical conditions are only those which insure the survival of the uraninite.

Other elements which appear to have been retained nearly quantitatively in the ore include Nb, Zr, Ru, Ag, and Te. Because they do not fit the crystalline lattice well and are observed, in some cases, to have diffused out of the uraninite, it can be assumed that they underwent secondary precipitation to a highly insoluble mineral form after diffusion and were retained in the gangue. We assume that values of D/a^2 for such elements can be as high as 1×10^{-10}/a leading to losses of the order of 90% from the uraninite into the gangue.

The extent to which Sr and Ba were retained in the reactor appears to vary within the range 0.1%-10%. Mo was retained to the extent of $\sim$ 10%. The corresponding values of D/a^2 in uraninite fall in the range 1-3.5 x 10^{-10}/a.

Elements which have been poorly retained in the reactor, from 1% down to 0.01%, include Kr, Rb, and Xe. The group may also include Cs, Cd, and I. The estimate for D/a^2 for losses $\geq$ 99% is $\geq 2.3 \times 10^{-10}$/a. An upper limit on D/a^2 for retention of 0.01% of a reactor product is 5×10^{-10}/a. For reasons discussed below, major losses of the more volatile fission products could have occurred during a high temperature ($\sim$ 400°C) operating period of the reactor and the subsequent diffusion rates at lower temperatures may have been lower.

The isotope ^{90}Sr has a 29 a half-life. Maeck [9] compared the isotopic abundance of ^{90}Zr to other fission product Zr isotopes and concluded that $\sim$ 5% of mass 90 may have been lost, presumably due to the higher geochemical mobility of ^{90}Sr before it decayed to ^{90}Y and then ^{90}Zr. However, this loss, if it is real, could be due to the recoil of mass 90 fragments into the gangue followed by their transport out of the reactor in times comparable to the ^{90}Sr half-life. Diffusion of ^{90}Sr from uraninite grains in times comparable to 29 a was probably much too low to be measurable.

Deficits of ^{99}Ru of 20-30% have been reported in some samples within the reactor zones [9,10]. There is also an excess of ^{99}Ru in some peripheral samples [11]. These effects are attributed to the diffusion and subsequent removal from the gangue of ^{99}Tc in times comparable to its half-life (2.13×10^5 a). A value of D/a^2 of $\sim 10^{-7}$/a for Tc would account for the highest observed losses. This value is considerably higher than any of the previously calculated numbers but can not be compared directly with them. The ^{99}Tc could only have diffused during the operating period of the reactor when the temperature may have been of the order of 400°C [12]. If the 25°C value of D/a^2 for Tc is assumed to be 2×10^{-10}, the activation energy for diffusion between 25°C and 400°C would have to be 6 kilocalories/mole to account for the value 10^{-7} at the higher temperature. This low energy of activation is characteristic of the diffusion process at temperatures below

the so-called Tamman temperature, i.e., the point at which it is assumed that temperature-caused defects in the crystal become greater than the population of initial defects. It would be useful to check these assumptions by irradiating some of the Oklo ore and measuring the Tc diffusion rate as a function of temperature. It may be possible to use the ^{99}Ru deficit to estimate reactor temperatures.

Lead appears to be a relatively mobile element. Approximately 75% of the lead, made chiefly by alpha decay of ^{238}U, has diffused out of uraninite. A fraction of this amount, $\sim$ 10%, has been retained as galena (PbS) in the gangue.

The problem of lead diffusion from minerals has been considered in Pb-U geochronological applications. Using the notation of Tilton [13] we may write

$$\frac{\overline{C}}{N} = \frac{6}{\pi^2} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{\lambda(e^{\lambda t - n^2\pi^2 Dt/a^2} - 1)}{n^2(\lambda - n^2\pi^2 D/a^2)}$$

where $\overline{C}$ is the average concentration of lead in a spherical grain, N is the present concentration of uranium, λ is the uranium decay constant, and a is the effective grain radius. Solutions for this equation have been tabulated by Nicolaysen [14] for various values of $\lambda a^2/D$. We have used the equation to estimate a value of D/a^2 for Pb in Oklo, if the loss is due to continuous diffusion from spherical grains, of 3.5×10^{-11}/a. This rate is characteristic of lower grade portions of the Oklo deposit as well as the very rich reactor zones.

Discordancy in the ages of a number of natural minerals appears to be due to the diffusion of ten to fifty percent of the radiogenic lead. The corresponding diffusion rate is somewhat lower than at Oklo. For example, some discrepancies in Finnish and U.S. zircons which give ^{206}Pb/^{238}U ages of $\sim$ 1800 m.a.[1] in contrast with ^{207}Pb/^{206}Pb ages of $\sim$ 2600 m.a. [14] can be explained by assuming continuous diffusion of lead with a rate corresponding to a value of D/a^2 of $\sim 10^{-11}$/a.

ESCAPE FROM THE REACTOR ZONE

Brookins discusses the geochemical stability and relative mobility of a number of fission products after they have wholly or largely diffused out of the uraninite grains [15]. As mentioned earlier in this paper, on the basis of ionic size the elements which diffused out of the uraninite include Kr, Xe, Rb, Cs, Nb, Mo, Tc, Ru, Rh, Ag, In, Sb, Te, Ba, and Pb. Some of these elements then formed insoluble compounds. According to Brookins, elements which might form stable sulfides in the gangue include Mo, Tc, Ru, Ag, Cd, In, Sb, and Pb. Elements which might have been retained as oxides include Nb, Tc, Ru, In, and Sn. Zr is most stable as the silicate but might have been retained as an oxide. Rh and Te would probably be retained as the metal.

Quantitative data for Zr, Nb, and Ru indicate that they were wholly retained. A small fraction of ^{99}Tc and a major fraction of the Mo and Pb were lost. Qualitative data indicate that Cd may have been lost. Rh, Ag,

[1] m.a. = 10^6 years throughout this paper.

and Te were significantly retained. On the whole, these observations suggest that the elements which were least mobile after leaving the uraninite formed insoluble oxides, silicates, or metals. The elements which precipitated as sulfides were relatively more mobile.

Due to the fact that large quantities of lead were formed from the decay of uranium, more detailed estimates of lead transport rates can be made for Oklo. The ore contains macroscopic crystals of galena formed from almost pure radiogenic lead. Based on the data presented by Branche [16], only 5% of the lead which diffused from the uraninite has been retained as galena although pyrites sulfur is present (∿ 1% pyrites S by weight). If we assume that an approximate equilibrium has been approached between the amount of lead which leaves the uraninite and the amount which leaves the reactor zone, we can estimate the rate for transport out of the reactor zone from the equation:

$$N_{Pb(\text{in U})}\ \lambda_{\text{diffusion}} = N_{Pb(\text{in gangue})}\ \lambda_{\text{transport out}}.$$

The ratio of lead in the uraninite to lead in the gangue is ∿ 10. Based on the previous estimate of D/a^2 for lead, we take $\lambda_{\text{diffusion}}$ equal to 3.5×10^{-10}/a. Therefore, $\lambda_{\text{transport out}}$ is ∿ 3.5×10^{-9}/a.

Although iron pyrites present in the Oklo gangue are presumably considerably less mobile than galena, based on observations of the relative mobility of these sulfides in other Precambrian deposits, the iron shows no evidence of exposure to neutrons and appears to have been largely replaced which tends to support the suggestion that the insoluble sulfides in the Oklo ore have been mobilized.

CONCLUSIONS AND REMARKS ABOUT APPLICATIONS TO REACTOR WASTE MANAGEMENT

The Oklo data demonstrate that, in general, the uraninite grains were remarkably stable. This conclusion is based not only on the absence of replacement effects on the uranium isotopic ratios at the edges of uraninite grains but also on the agreement between uranium concentrations, isotopic depletions, and retained rare earth concentrations. Indeed, small uranium and fission product migration effects are observed, particularly at the borders of reactor zones, which give rise to dispersion "haloes." But if uranium loss rates had averaged more than 10^{-10}/a over the reactors, much larger anomalies should have occurred. Similar loss rate limits should apply to Pu, Am, and Cm which form solid solutions in the uraninite lattice and which should diffuse out of the lattice at even slower rates than the limit on the dissolution rate of the uraninite.

Reactor products which diffused out of the uraninite matrix and subsequently formed insoluble oxides, silicates, or metals were largely retained in the reactor zones. Several elements which were more stable as insoluble sulfides were only partially retained. The remaining elements were largely lost in the form of soluble ions or complexes.

The overall loss rates estimated here are probably never appreciably higher than 10^{-6}/a for the most volatile elements during the operating period of the reactor. If a highly stable matrix such as synthetic uraninite were used for the storage of reactor wastes in appropriate geological and geochemical environments and if the storage temperature could be held below

400°C, the highest loss rates from the matrix to the immediately surrounding environment should remain less than 10^{-6}/a. The least volatile elements, such as Pu, should be released at rates considerably less than 10^{-10}/a. The released radioactive elements would be further retained and reduced before entering the biosphere by additional interactions with the surrounding medium.

This picture is clearly oversimplified. It contains several assumptions. The most important assumptions are 1) that synthetic uraninite will behave like the natural Oklo uranium mineral; 2) that the early intense radiation field will not lead to loss of the desirable crystalline properties of uraninite; 3) that temperatures of the stored material will not rise to values so high that they lead to a different pattern than at Oklo; and 4) that the geochemical conditions which were responsible for the stability of the Oklo uraninite can be sufficiently specified, satisfactorily reproduced, and assumed to persist for a long period. A detailed discussion of each of these problems falls outside the planned scope of this paper. However, we believe that these uncertainties will probably be favorably resolved and that synthetic uraninite (or synthetic thorianite) will eventually prove useful for the long-term storage of reactor products in geological sites.

ACKNOWLEDGMENTS

The views expressed in this paper have been greatly affected by extensive discussions with numerous colleagues, particularly with Anthony Turkevich, Kenneth Apt, Clarence Duffy, Rosemary Vidale, and William Maeck.

REFERENCES

[1] FREJACQUES, C., BLAIN, C., DEVILLERS, C., HAGEMANN, R., RUFFENACH, J.-C., in The Oklo Phenomenon (Proc. Symp. Libreville, Gabon, 1975), IAEA, Vienna (1975) 509.
[2] WALTON, R.D., COWAN, G.A., Ibid., 499.
[3] HAVETTE, A., NAUDET, R., SLODZIAN, G., Ibid., 463.
[4] EICHENBERG, J.D., FRANK, P.W., KISIEL, T.J., LUSTMAN, B., VOGEL, K.H., Fuel Elements Conference, Paris, TID-7546 (1958) 616.
[5] GEFFROY, J., in The Oklo Phenomenon (Proc. Symp. Libreville, Gabon, 1975), IAEA, Vienna (1975) 133.
[6] DUFFY, C.J., IAEA-TC-119/36, these Proceedings.
[7] BOYKO, E.R., EICHENBERG, J.D., ROOF, R.B., Jr., HALTEMAN, E.K., Bettis Technical Rev. WAPD-BT-6 (1958) 64.
[8] BELLE, J., Uranium Dioxide: Properties and Nuclear Applications, USAEC (1962) 460.
[9] MAECK, W.J., SPRAKTES, F.W., TROMP, R.L., KELLER, J.H., in The Oklo Phenomenon (Proc. Symp. Libreville, Gabon, 1975), IAEA, Vienna (1975) 319.
[10] RUFFENACH, J.-C., MENES, J., LUCAS, M., HAGEMANN, R., NIEF, G., Ibid., p.371.
[11] MAECK, W.J., DELMORE, J.E., EGGLESTON, R.L., SPRAKTES, F.W., IAEA-TC-119/35, these Proceedings.
[12] NAUDET, R., private communication (1977).
[13] TILTON, G.R., J. Geophys. Res. **65** 9 (1960) 2933.
[14] NICOLAYSEN, L.O., Geochim. Cosmochim. Acta **11** (1957) 41.
[15] BROOKINS, D.G., IAEA-TC-119/33, these Proceedings.
[16] BRANCHE, G., CHANTRET, F., GUILLEMAUT, A., POUGET, R., in The Oklo Phenomenon (Proc. Symp. Libreville, Gabon, 1975), IAEA, Vienna (1975) 119.

RELEVANCE OF NATURAL RETENTION EXPERIENCE TO NUCLEAR WASTE MANAGEMENT

IAEA-TC-119/30

R.B. LEACHMAN, W.P. BISHOP
Waste Management Program,
United States Nuclear Regulatory Commission,
Washington, D.C., United States of America

Presented by G.A. Cowan

Résumé–Abstract

L'EXPERIENCE DE LA RETENTION NATURELLE ET SON INTERET POUR LA GESTION DES DECHETS NUCLEAIRES.

Il est nécessaire à l'heure actuelle de fournir au public et à ses représentants des informations qui leur permettent de juger de l'efficacité et de la sécurité des méthodes d'élimination des déchets nucléaires. On pourrait satisfaire une grande partie de ce besoin en présentant de façon intelligente et intelligible les informations relatives à la rétention des déchets d'Oklo et d'autres matières radioactives dans des dépôts accidentels au sein de formations géologiques. Cette information serait particulièrement utile en attendant que l'on ait conçu, autorisé, construit et essayé des dépôts délibérément destinés à cette fin. L'expérience des dépôts naturels et accidentels fournit des renseignements sur une vaste gamme de questions, les plus intéressantes étant la durée des démonstrations, la nature des déchets solidifiés, l'environnement géologique des déchets et les divers éléments radioactifs en cause.

RELEVANCE OF NATURAL RETENTION EXPERIENCE TO NUCLEAR WASTE MANAGEMENT.

A current need exists for providing the public and its representatives with enough information to judge the effectiveness and safety of nuclear waste disposal. This need might be largely fulfilled by careful and understandable presentations of relevant information from the experiences of retaining Oklo wastes and other radioactive materials in inadvertent repositories in geological media. This information would be particularly helpful during the interim while deliberate repositories for wastes are being designed, licensed, built and proven. Experiences with natural and inadvertent repositories give information on a broad range of factors. Factors of interest include time-spans of demonstrations, nature of the solidified waste form, geological surroundings of the wastes, and the different radioactive elements involved.

INTRODUCTION

The public, its representatives, and government officials are concerned about when and if nuclear waste management will be proven to be safe, particularly by demonstrating a repository. The first geologic repository for nuclear energy wastes will not be operational until 1985, if schedules are met. In the interim, perhaps presenting a composite of information from the Oklo phenomenon and from other experiences

in geologically retaining large amounts of radioactivity might serve as adequate alternative demonstrations from which to judge. The question is whether such experience is sufficiently relevant to nuclear power wastes and is adequate in scope to reassure the public and government officials.

PUBLIC ACTIONS

In the USA, several public actions have had the effect of officially requiring that waste management be proven. A court action in the Vermont Yankee case required that environmental impact statements used in licensing individual light-water reactors consider the full fuel cycle, particularly the disposal aspects of waste management. The U.S. Nuclear Regulatory Commission (NRC) has prepared reports [1] for this purpose. Whether these reports are acceptable is a question now undergoing higher court review. A petition to refrain from granting operating licenses has been rejected by the NRC [2] with arguments including "The Commission would not continue to license reactors if it did not have reasonable confidence that the wastes can and will in due course be disposed of safely."

Another significant public action in the USA was legislative. The State of California passed a law requiring that a demonstrated technology or means for waste management be approved before additional nuclear power reactors can be installed [3].

The 1985 schedule for the first U.S. geologic repository of nuclear power wastes is partly determined by design and construction, but also by licensing requirements. Congress has required [4] that repositories of high-level wastes be licensed by the NRC. Licensing first requires environmental impact statements, as well as promulgation of regulations governing disposal. Public hearings might additionally be needed before a repository can become operational. The construction will necessarily be for a full-size project requiring careful planning and great care. These time-consuming and deliberate actions, in themselves, might not satisfy the foregoing public concern about further licensing. However, additional nuclear reactors are expected to be needed before successful operation of the first geologic repository is demonstrated.

Past and recent changes in official policy have tended to dispel any public concept that developing a waste repository is a straightforward process. First Lyons [5] was proposed as a salt repository and then disavowed. Then a Retrievable Surface Storage Facility was proposed [6] and also disavowed. Thereafter, plans returned to geologic disposal, including disposal of spent fuel possibly in a manner enabling retrievability [7]. The public wariness about waste management seems also to be reflected by actions of some State governors and legislatures [8] in forbidding or restricting repositories in their States.

A question to be explored is whether a composite of information on wastes in natural fission reactors and other inadvertent repositories can provide the public and government officials with adequate waste management information during the interim before the deliberately constructed repositories are operational and proven.

REGULATIONS AND SAFETY ANALYSES

The NRC is preparing regulations for all aspects of waste management, including solidification, transportation, repository location, repository construction, and operation. The preliminary considerations [9] for criteria that might regulate solidification methods are largely based on two factors. One is the need for chemical and thermal stability of the packaged waste form, to limit the effects of potential hazards during storage and transportation to the repository. The other need is to minimize the risks and the occupational exposures to radiation resulting from each solidification process. After wastes have been emplaced in a repository, geologic barriers are considered to be the primary reliance for protecting the public. This hierarchy of reliances resulted from a systems analysis of the overall waste management problem [9].

The preliminary performance criteria [9] on solidification are expressed in terms of the fraction of radioactive material that can escape as a result of fire, impact, or puncture of a shipping unit containing waste, before emplacement in a repository. Another criterion is the fraction that would dissolve if immersed in water for observable times following a pre-emplacement accident.

Whether the waste solid is a calcine, a glass, or crystalline determines the range of temperatures required for solidification. The process temperature is lower for calcine than for the glass or crystalline forms. Crystalline waste might involve the most complex handling steps [10]. Increased process temperature and handling steps generally result in greater risk of accidential and routine release of radioactivity. Already, in the nuclear industry, the occupational cumulative doses of radiation are larger than the cumulative public exposures. Therefore, solidifications other than calcine are likely to somewhat increase both total exposures and the fraction that is occupational.

These considerations about the waste form emphasize effects that are short-term, being comparable to human lifetimes. In reality, short-term effects often receive more emphasis in systems analyses, because information and confidence in predicting these happenings are more complete. Notwithstanding the success and power of systems analysis, many people intuitively instead have greater concerns about the long-term performance of waste management. This concern is partly based on inadequate completeness and accuracy in long-term analyses, particularly over geologic times.

Underground structures for waste management can perhaps be engineered with confidence to last centuries or even millennia. This is sufficiently long for the fission products to have decayed to the point that the remaining hazard will be basically from the transuranic elements in the waste [1,11]. Thereafter, the adequacy of human design and construction experience is questionable for predicting the retention of these long-lived transuranic elements in repositories. In this connection, experience with natural retention of actinide elements might be particularly relevant to present for public decisions.

The geologic medium in which the repository will be placed, together with the regional geologic setting, will be important parts of regulations for licensing respository sites [12,13].

CONCENTRATIONS OF RADIOACTIVE MATERIALS

Methods for providing information about the possible danger from buried nuclear wastes include comparisons with toxic ores [14] or naturally occurring radioactive materials. Uranium ore bodies which can affect the public are near the surface of the earth, from where the daughter element radium can seep into water supplies and its daughter element radon can be exhaled into the air. After these uranium ores are mined and milled for nuclear energy, the ^{230}Th parent of radium and radon remains in the tailings, which, in general, will be located much nearer to the surface than before the uranium was mined.

It is informative to make rough comparisons between radiotoxicities of the uranium consumed in producing nuclear energy, the spent fuel stored for reprocessing or disposal, and the wastes after being in the final repository. Spent fuel is about six orders of magnitude more radiotoxic than the uranium consumed. After about a thousand years, when the fission products have essentially decayed, the radiotoxicity of wastes compared to that of the uranium consumed will be about one order of magnitude greater if plutonium has been reprocessed from the fuels and about two orders of magnitude greater if unprocessed spent fuel is stored [1,11]. In regard to positions, the waste repository depth will generally be an order of magnitude deeper than uranium ore bodies that are mined. Thus, compared to the uranium ore consumed, nuclear wastes decrease from highly more radiotoxic to about an order of magnitude more radiotoxic after a thousand years, are about an order of magnitude deeper, and might be spatially somewhat more concentrated than the uranium ore. When mill tailings are omitted from this future comparison, the overall long-term effects upon the general public are then perhaps comparable. Local exceptions could occur in the vicinity of the waste repositories from any accidental or future intentional releases of wastes.

USE OF NATURAL RETENTION EXPERIENCE

Long-term retention and migration experience has been obtained from the Oklo phenomenon for various elements and from the existence of bodies of naturally occurring radioactive ores. Other experiences have been over a decade or two. These include the hundreds of contained underground nuclear explosions 15], the Canadian experience with buried glass beads containing high-level wastes [16], and wastes that have leaked into soils in the United States [17] and Canada [18].

These experiences provide demonstrations of full or partial retention under a variety of relevant factors. One of these factors is time. Both Oklo and natural ore bodies provide experience for more than the thousand years that are of interest for retaining fission products. Even the decade or two of other experience are important for knowledge about the important nuclides having half-lives comparable to human lifetimes, particularly ^{137}Cs and ^{90}Sr. Another factor is the solidified form of the wastes. Oklo experience was basically with crystalline solids, while much of the wastes from underground nuclear explosions is of vitrified form. Another factor is migration in soils or rocks after wastes leach from the solidified form. All these experiences provide realistic information on migration for a variety of hydrological and chemical conditions.

Further interpretations and accumulations of data from these experiences could inform the public and government officials about the body of existing knowledge on waste disposal performance. The challenge for scientists is to provide information that is understandable to the public, sufficiently complete to allow decisions, and carefully selected for relevance.

STABILITY OF WASTE SOLIDIFICATIONS

Crystalline forms of waste have the intrinsic advantage of being thermodynamically the most stable. Other solids at higher thermodynamic potentials convert to crystalline forms over long periods of time, especially when subjected to elevated temperatures. In this conversion, some elements in the contained wastes might not be incorporated into the crystalline matrix and so might more readily dissolve. Crystalline forms found in Oklo ores and in other natural ore bodies are of interest by demonstrably having lasted for geologic times. The metamict process, which degrades crystals by radiation [19], might be more important for the higher specific activity wastes from nuclear power than Oklo phenomenon.

Vitrified materials in nature are known to slowly erode by exfoliating hydrated layers [21]. To apply this and the corresponding laboratory experience to waste management, it is necessary primarily to estimate the temperature increase of vitrified wastes in a repository. This will partly depend upon when, during the thermal decay of the wastes, the underground repository returns to lithostatic pressure after being closed. The much higher lithostatic pressures could increase corrosion by enabling water to be superheated.

Leaching is an important concern in the decomposition of solidified wastes. The effect increases with increased surface areas from cracking and exfoliation. Calcined wastes leach more readily than vitrified or crystalline forms [9].

ABILITY TO DUPLICATE NATURAL EXPERIENCE

Any reliance on the proven performances of natural and inadvertent experiences with wastes requires that man-formed wastes mimic those of nature, both in their composition and in their surrounding environment. For this purpose, it is important both to develop methods for confidently mimicking nature and, if successful, to convincingly present these to the public and government officials for their evaluation. The laboratory methods include the traditional ones of geologists, plus new methods of electron and ion microprobes and diagnostic uses of ion beams.

The U.S. Department of Energy is developing the incorporation of wastes in crystals, called "supercalcine" [20]. Compared to Oklo experience, this approach has the potential advantage of also crystalizing the alkali and alkali earth elements, which were not well retained in Oklo ores. An example is the possible use of pollucite to retain cesium, as it is naturally retained in nature.

The USA is currently deferring indefinitely the reprocessing of commercial nuclear wastes. Consequently, any geologic storage or disposal

of wastes from commercial nuclear power will necessarily be as spent fuel. Since spent fuel is practically all in uraninite form, the experience of uraninite ore retention in Oklo is particularly relevant.

INTERIM STORAGE

Oklo and other waste retention experiences have only limited relevance to interim surface storage of nuclear wastes. Surface storage is now used for all spent fuel while preparations are being made for geologic disposal. Surface storage would continue if geologic repositories are delayed for technical reasons or for lack of public acceptance.

The primary barriers to radioactivity release from spent fuel are the claddings, which have proven integrity for almost two decades [22]. The stability of spent fuel itself becomes important as claddings fail. In this connection, the Oklo experience provides relevant information on the stability of wastes in uraninite.

CONCLUSIONS

The public and its representatives would be well served by coherent, complete, and understandable recountings of the various natural and inadvertent waste retention experiences that are relevant to waste management. For all such issues that could cause harm, the public needs complete information, both to have knowledge and to facilitate public decisions. The following information seems relevant for waste management: 1) the quantities and locations of radioactive wastes in terms that the public can qualitatively evaluate; 2) the nature of the alternative solidification forms for wastes, expressed in terms that provide the public with a feeling for retention performances over different time spans; 3) the hazards associated with fabricating and handling the different solidified wastes, both to the public and occupationally; and 4) the extent of assurance that scientists and engineers can provide about how well various waste management practices would mimic the successes, or failures, of waste retention in natural and inadvertent repositories. Even less-than-convincing presentations can nevertheless provide openness of information for the public.

If, for various reasons, deliberate geological repositories are rejected, interim storage would need to be extended. The Oklo phenomenon would then provide limited relevant experience. Permanent disposal ultimately might be by some other means, such as seabed or extraterrestrial. However, no previous experience of any significance appears to be relevant and available.

REFERENCES

[1] BISHOP, W. P., MIRAGLIA, F. J., JR., Environmental Survey of the Reprocessing and Waste Management Portions of the LWR Fuel Cycle; Task Force Report, NRC Rep. NUREG-0116 (1976) and Public Comments and Task Force Responses, NRC Rep. NUREG-0216 (1977).

[2] Federal Register 42 34391 [5 July 1977].

[3] SIMON, G., Nuclear Fuel Reprocessing and High Level Waste Disposal; An Interim Report, California Energy Resources Conservational Development Commission (1977).

[4] Energy Reorganization Act of 1974, Public Law 93-438, U.S. Congress (1974).

[5] BOCH, A. L., BLOMEKE, J. O., McCLAIN, W. C., BOTTENFIELD, B. F., Radioactive Waste Repository Project: Technical Status Report for Period Ending September 30, 1971, Rep. ORNL-4571 (1971) 19.

[6] Management of Commercial High Level and Transuranium-Contaminated Radioactive Waste, Draft Environmental Statement, USAEC Rep. WASH-1539 (1974).

[7] President's Nuclear Waste Management Plan, Fact Sheet, The White House (October 28, 1976).

[8] Information Report on State Legislation, NRC Office of State Programs 3 (1977) 16.

[9] COHEN, J. J. Ed., Determination of Performance Criteria for High-Level Solidified Nuclear Wastes, NRC Rep. NUREG-0279 (1977).

[10] BARLETT, J. W., CARRELL, J. R., KREITER, M. R., POWELL, J. A., Alternatives for Managing Wastes from Reactors and Post-Fission Operations in the LWR Fuel Cycle, Rep. ERDA-76-43 2 (1976) 6.63.

[11] COHEN, B. L., High-Level Radioactive Waste from Light Water Reactors, Reviews of Modern Physics 49 (1977) 1.

[12] BISHOP, W. P., SCHWARTZ, S. A., Workshop for State Review of Site Suitability Criteria for High-Level Radioactive Waste Repositories: Discussion Group Reports, NRC Rep. NUREG-0353 (1977) 3.

[13] GRAY, D. A. and others, Disposal of Highly-Active, Solid Radioactive Wastes into Geological Formations--Relevant Geological Criteria for the United Kingdom, Institute of Geological Sciences Rep. 76/12 (1976).

[14] TONNESSEN, K. A., COHEN, J. J., Survey of Naturally Occurring Hazardous Materials in Deep Geologic Formations, Lawrence Livermore Laboratory Rep. UCRL-52199 (1977).

[15] BORG, I. Y., STONE, R., LEVY, H. B., RAMSPOTT, L. D., Information Pertinent to the Migration of Radionuclides in Ground Water at the Nevada Test Site, Lawrence Livermore Laboratory Rep. UCRL-52078 (1976).

[16] LEWIS, W. B., "Storing Radioactive Wastes in Cooled Pebbles", International Arrangements for Nuclear Fuel Processing (CHAYNES, A., LEWIS, W. B., Eds.) Ballinger, New York (1977) 111.

[17] LIVERMAN, J. L., Waste Management Operations, Hanford Reservation, Final Environmental Statement, ERDA-1538 (1975) III.2-3.

[18] PARSONS, P. J., Migration from a Disposal of Radioactive Liquid in Sands, Health Physics 9 (1963) 333.

[19] EWING, R. E., Metamict Mineral Alteration: An Implication for Radioactive Waste Management, Science 192 (1976) 1336.

[20] McCarthy, G. J., High Level Waste Ceramics, Nuclear Technology 32 (1977) 92.

[21] LANFORD, W. A., Glass Hydration: A Method of Dating Glass Objects, Science 196 (1977) 975.

[22] JOHNSON, A. B., Jr., Behavior of Spent Nuclear Fuel in Water Pool Storage, Battelle Pacific Northwest Laboratories Rep. BNWL-2256 (1977).

Discussion générale

La discussion s'est articulée autour de trois thèmes: capacité de rétention de l'uraninite – capacité de rétention de la gangue – migrations dans l'environnement.

1. Capacité de rétention de l'uraninite

A.T. JAKUBICK: Je voudrais poser une question à M. Cowan. Je suppose que les coefficients de diffusion que vous mentionnez sont des coefficients apparents, puisque les conditions de pH, Eh, température et pression ont beaucoup varié au cours du temps. Quelles conditions avez-vous considérées?

G.A. COWAN: Nous n'avons pas postulé de conditions particulières; nous avons simplement exprimé l'ordre de grandeur des coefficients, supposés constants au cours du temps, qui permettent de retrouver les quantités de produits restés dans l'uraninite. Je pense d'ailleurs que les coefficients de diffusion ne dépendent pas beaucoup des pH, Eh ou de la pression; par contre bien entendu ils dépendent de la température, surtout pour les éléments les plus volatils. Les ordres de grandeur sont déjà instructifs; en fait, chaque fois que des quantités significatives sont restées dans l'uranium, cela veut dire que les coefficients de perte annuels ont été extraordinairement petits, disons moins de 10^{-10}, donc beaucoup plus petits que dans les verres par exemple.

P.R. SIMPSON: A-t-on une idée de la répartition des produits de fission dans les différentes phases minéralogiques?

G.A. COWAN: Oui, les observations à la microsonde ionique, effectuées principalement en France par Mme Havette, ont permis de savoir quels sont les éléments qui sont restés dans les grains d'uraninite; je me suis appuyé sur ce travail.

Andrée HAVETTE: Je précise que si on peut en général assez bien identifier les produits de fission dans les grains d'uraninite, c'est beaucoup plus délicat pour la gangue, et d'ailleurs on ne peut pas distinguer les différentes phases minéralogiques de la gangue.

J. GEFFROY: Le réseau de l'uraninite est extrêmement stable, mais il ne l'est que s'il est préservé de l'influence des agents oxydants qui transforment U^{4+} en U^{6+}. Par contre, il existe un réseau qui résiste admirablement aux agents supergènes, c'est celui de la thorianite, puisque Th^{6+} n'existe pas dans la nature. Alors, je me permets une suggestion: si le plutonium pouvait être substitué isomorphiquement au thorium dans la thorianite, comme il l'est à l'uranium dans l'uraninite, est-ce que ce ne serait pas un matériau encore plus favorable?

G.A. COWAN: Je suis tout à fait d'accord, et j'y ai d'ailleurs pensé; je n'en ai pas parlé pour ne pas faire trop d'extrapolations par rapport à l'expérience d'Oklo. L'uranium, le thorium et le plutonium sont complètement compatibles de 0 à 100%; ils forment des solutions solides.

G. DEARNALEY: Les études à la microsonde ionique ont montré une remarquable stabilité de nombreux produits de fission et actinides dans l'uraninite, à l'échelle de quelques micromètres. C'est d'autant plus frappant que nous savons maintenant que des températures atteignant 500°C ont été maintenues peut-être pendant de longues périodes.

Je voudrais faire remarquer que quelques impuretés telles que le titane, le calcium et le manganèse, qui sont présents à Oklo et corrélés avec l'uranium, peuvent avoir joué un rôle important en maintenant de bas niveaux de transport de cations dans le réseau cristallin. Le problème est, sous bien des aspects, semblable à celui de l'inhibition de l'oxydation thermique dans les métaux par addition de très petites quantités d'éléments d'alliage.

A Harwell, nous avons utilisé la technique d'implantation d'ions comme moyen de synthétiser des couches superficielles, pour l'étude de l'oxydation thermique. Par l'analyse des mouvements des différents cations qui ont été introduits, nous en avons beaucoup appris sur les mécanismes d'oxydation, et je pense que certaines conclusions peuvent être appliquées aux problèmes d'Oklo.

La diffusion à l'état solide dans les matériaux cristallisés se fait préférentiellement le long de défauts, tels que des limites de grains ou des dislocations, et les impuretés qui ne s'ajustent pas bien au réseau ont tendance à précipiter à l'endroit de ces défauts, et à les marquer en formant des oxydes mixtes avec le matériau hôte. Certains oxydes binaires, les perowskites, et dans une moindre mesure les spinelles, possèdent un haut degré de coordination ionique et d'énergie de réseau. Les défauts sont inhibés dans de telles structures, et la migration atomique, qui passe par les lacunes, est donc réduite. De ce point de vue, la présence de titane et de manganèse dans les minerais d'Oklo est très intéressante, car ces éléments forment, en combinaison avec les terres rares et les actinides, des perowskites de grande stabilité.

C'est ainsi que nous avons montré à Harwell que l'oxydation du titane est fortement réduite par implantation ionique de terres rares telles que l'europium ou l'ytterbium, et que cette inhibition se produit préférentiellement le long des parcours de diffusion. La quantité de terres rares nécessaire est très petite (moins de 100 ppm).

Pour l'uranium, l'implantation ionique de titane réduit considérablement le taux d'oxydation, et nous pensons que l'explication la plus plausible est la formation d'une perowskite uranium-titane.

La présence de calcium dans l'uraninite d'Oklo est également significative. La substitution du calcium à d'autres cations de valence supérieure a un effet de compensation de charge avec augmentation des énergies de Madelung pour le réseau. Les conséquences peuvent être importantes, par exemple si on substitue du calcium au lanthane dans $LaCrO_3$, on augmente beaucoup la stabilité thermique et la résistance mécanique.

La perowskite mixte (U, Ca) TiO_3 existe dans la nature: c'est la brannerite; nous suggérons que ce minéral a pu se former à l'intérieur de l'uraninite d'Oklo, marquant peut-être les parcours le long desquels les transports d'ions auraient pu se produire. C'est une remarque importante, si on veut réaliser de manière satisfaisante la synthèse d'une uraninite destinée au stockage des déchets nucléaires.

Le manganèse a pu jouer un rôle analogue, puisqu'il y a des perowskites avec manganèse et terres rares dans lesquelles il a été prouvé que le calcium, une fois encore, peut accroître la stabilité. Ces matériaux ont des applications potentielles comme catalyseurs dans les procédés d'oxydo-réduction, et c'est pourquoi on a développé des techniques de fabrication. Les températures impliquées ne sont pas très élevées. Les ruthénates peuvent jouer également ce rôle.

Finalement, je pense que le rôle de catalyseur des perowskites devrait être pris en considération lorsqu'on s'intéresse aux réactions d'oxydo-réduction à la surface du corps minéralisé en contact avec les solutions d'eau chaude; les taux de réaction ont pu être modifiés dans des proportions importantes.

2. Capacité de rétention de la gangue

C. FREJACQUES: Je dirais que, pour ma part, je suis plus intéressé par la migration des produits de fission dans la gangue, à l'extérieur des grains d'uraninite, que par ce qui s'est passé à l'intérieur de ces grains. En effet vous savez qu'en France, comme dans d'autres pays, nous développons un procédé de stockage des déchets radioactifs par vitrification, qui apparaît très prometteur; c'est probablement la solution industrielle la plus satisfaisante. Le problème se pose pour le très long terme, puisque la capacité de rétention de ces verres est excellente, mais naturellement elle n'est pas infinie.

Je voudrais d'abord bien situer le problème, en rappelant qu'au bout de 500 ans, l'activité résiduelle des produits de fission est du même ordre de grandeur

que l'activité des stériles de l'uranium qui a servi à fabriquer les combustibles d'où sont issus ces produits de fission. Le problème pratique qui se pose est donc le suivant: au bout de combien de temps et dans quel milieu peut-on stocker définitivement les verres contenant les déchets? Il faut trouver des milieux dans lesquels les taux de lixiviation par les nappes phréatiques soient extrêmement faibles.

Je pense que les observations faites autour des réacteurs d'Oklo peuvent, sinon nous apporter des réponses précises, du moins nous aider à trouver des solutions, et en particulier nous donner des idées sur les expériences qu'il faudrait faire pour déterminer les conditions les plus favorables.

Un autre point important est celui des transuraniens; il semble que l'on ait eu une très bonne rétention pour le plutonium, c'est un point important; malheureusement il est beaucoup plus difficile d'obtenir des renseignements sur l'américium; je ne sais pas si M. Cowan a d'autres idées sur ce sujet.

En conclusion je suis intéressé par les conditions géologiques précises qui ont prévalu pendant les quelques centaines de milliers d'années qui ont suivi le fonctionnement des réacteurs, et je souhaite que l'on développe les études de rétention et de migration des produits de fission dans les gangues et dans les sols entourant les réacteurs.

A.T. JAKUBICK: Je suis très frappé par les différences entre les mobilités estimées à Oklo et les mobilités observées dans les expériences de migration. Je crois que si nous pouvions comprendre les raisons de la rétention à Oklo, nous en saurions beaucoup plus sur les confinements ou barrières géochimiques qu'il faut mettre en place pour stocker les déchets de manière sûre. Par exemple, on a parlé d'échanges ioniques; je ne crois pas que les échanges ioniques aient joué un rôle dans les mécanismes de rétention à Oklo.

R. NAUDET: Je me demande si parfois il n'y a pas un certain malentendu. Je voudrais rappeler une conclusion très nette qu'il faut garder clairement à l'esprit. A Oklo, l'uraninite a fait preuve d'une stabilité tout à fait étonnante, et d'autre part elle a montré une très grande capacité de rétention à l'égard d'un certain nombre d'éléments. M. Dearnaley nous a proposé tout à l'heure des explications; je crois que ses remarques sont très intéressantes; elles répondent en partie aux préoccupations de M. Jakubick. Mais en revanche, et c'est le point que je veux souligner, la gangue n'a absolument pas été un bon milieu de confinement, on peut même dire que ses capacités de rétention ont été inexistantes. Il reste peu de chose dans la gangue, et il y a coïncidence complète entre la liste des éléments que l'on a retrouvés en quantité significative dans le minerai et ceux que l'on a «vus» dans les grains d'uraninite.

En d'autres termes les éléments peuvent être classés en deux catégories: il y a ceux qui «se trouvaient bien» dans le réseau de l'uranium: M. Cowan a montré que c'étaient ceux qui à la fois étaient le moins volatils et avaient une bonne compatibilité de rayon atomique avec le réseau cristallin de l'UO_2 ; ceux-là y sont restés. Les autres ont été progressivement expulsés; ils sont sortis des

grains d'uranium au bout d'un temps plus ou moins long – que malheureusement nous ne connaissons pas – et on constate qu'à ce moment ils ont été à peu près complètement éliminés. Le cas du strontium est très significatif; l'isotope 90 a eu le temps de décroître en zirconium avant de sortir de l'uranium; or le zirconium fait partie des éléments «acceptés» par le réseau de l'UO_2; c'est pourquoi on retrouve la masse 90 dans les grains d'uraninite; par contre les autres isotopes sont sortis, et on ne les retrouve pratiquement plus.

Certes, Mme Havette a reconnu qu'elle ne peut pas identifier de manière sûre ce qui se trouve dans la gangue; il se peut donc qu'il y ait de petites quantités de produits de fission. Par exemple, on ne peut pas exclure qu'il y ait un petit peu de zirconium: on sait que la plus grande partie du zirconium produit est resté dans le minerai, et on voit beaucoup de zirconium de fission dans l'uranium, mais on ne peut pas faire un bilan quantitatif. Il y a en tout cas un peu de ruthénium, car on l'a identifié (mais on sait aussi qu'on en a perdu un peu). Il y a également du plomb radiogénique (mais il est vraisemblablement sorti à une époque relativement récente, et on sait que la plus grande partie a été éliminée). Ce qu'on peut dire en définitive, c'est qu'il y a corrélation entre le degré de confinement dans l'uranium et l'intégrité de la conservation, ce qui est bien une manière de dire que la gangue ne semble pas avoir beaucoup contribué à la rétention.

M. Fréjacques a parlé du plutonium; il ne faut pas oublier que le plutonium qui est resté n'est jamais sorti de l'uranium. On ne peut pas affirmer qu'on n'en a pas perdu une certaine fraction, mais ce qu'on peut dire, c'est que si du plutonium est sorti, il n'est pas resté dans le secteur, il a été complètement éliminé. En effet on le verrait – il donne de l'uranium-235 pur; or on n'a jamais trouvé ni dans les réacteurs, ni dans leur environnement d'anomalies isotopiques de cette nature. On ne peut donc certainement pas parler des qualités de rétention de la gangue vis-à-vis du plutonium: ou bien elles n'ont pas eu l'occasion de s'exercer, ou bien elles l'ont fait avec une totale inefficacité.

A ce sujet, on peut peut-être trouver là un argument en faveur d'une séparation des transuraniens; il est probable que le réseau de l'oxyde d'uranium – ou mieux de thorium selon la suggestion de M. Geffroy – pourrait être un meilleur confinement primaire pour le plutonium que les verres.

Donc, je crois que l'environnement argileux des réacteurs n'a eu que de médiocres capacités de rétention. Mais on peut lui trouver des «circonstances atténuantes». La durée, d'abord, sans commune mesure avec ce dont on a besoin pour le stockage. Mais aussi les conditions tout à fait inusuelles qui ont prévalu pendant les réactions, car il est probable que la majeure partie des produits qui ont été éliminés l'ont été à ce moment-là. M. Weber a parlé de «bouillie de silico-aluminates destructurés»; la température était élevée, les minéraux étaient «cassés» par les radiations, et il y avait sans doute des échanges ioniques continuels entre les minéraux et les solutions chaudes. On sait qu'on n'a retrouvé aucune trace des irradiations, ni sous forme de dégâts ni sous forme de changements isotopiques;

le fer lui-même a été, semble-t-il, totalement renouvelé. Ce milieu ne pouvait certainement pas être à ce moment-là un bon milieu de confinement. Donc il ne faudrait pas non plus adopter un point de vue exagérément pessimiste. En fait, on ne peut pas dire grand-chose qui soit transposable.

Je souhaite donc qu'on ne tire pas de l'expérience d'Oklo des conclusions abusives, en confondant rétention de l'uraninite et rétention du milieu. Si on exclut l'uraninite comme milieu de confinement primaire, selon le point de vue adopté par M. Fréjacques, je crains que les enseignements en matière de stockage ne soient finalement assez limités.

3. Migrations dans l'environnement

C. FREJACQUES: Il me semble tout de même que l'expérience d'Oklo pourrait nous apprendre beaucoup de choses intéressantes sur la manière dont les éléments qui sont sortis de l'uranium ont été dispersés dans l'environnement. Du point de vue du stockage, des migrations qui se limitent à de courtes distances sont beaucoup moins gênantes. Or dans l'expérience d'Oklo, nous avons cette chance extraordinaire de voir ce qui reste au bout d'un temps extrêmement long.

J'ai été en particulier très intéressé par l'étude des migrations des terres rares; ces éléments ont été remobilisés mais ils n'ont pas été très loin, et on a pu reconstituer avec beaucoup de précision leur cheminement. Si on pouvait obtenir des renseignements analogues sur d'autres éléments, ce serait extrêmement intéressant.

D.G. BROOKINS: On sait par exemple que le rubidium, le strontium et le baryum, pour autant qu'on peut en juger par les rapports 135/137, ont été en très grande partie éliminés des zones de réaction, mais on ne sait pas dans quelle mesure il s'agit d'un effet de dilution ou d'une redistribution. Il faudrait avoir davantage de données sur le proche environnement. De même, en ce qui concerne l'iode, qui est également un des problèmes-clés du stockage, nous savons d'après les résultats de spectrométrie de masse à étincelle que l'iode a été presque complètement éliminé, mais comme il s'agit d'un élément mono-atomique il est difficile de savoir s'il ne reste pas des traces. Il serait peut-être intéressant d'examiner le cas du brome, où on peut reconnaître une perturbation du rapport 79/81; si on trouvait des traces de brome de fission, cela pourrait donner une indication sur le comportement de l'iode; je crois que cette mesure n'a pas été faite.

R. NAUDET: Puisque la gangue semble n'avoir eu qu'un pouvoir de rétention assez médiocre, probablement en partie à cause des effets thermiques et des modifications minéralogiques liées aux réactions, on aurait pu songer à examiner ce qui se passe plus loin, où des effets de barrière géologique ont pu s'exercer dans de meilleures conditions.

Mais je crois qu'à partir du moment où les éléments sont passés en solution, ils pouvaient aller très loin, et on n'a aucune chance de les retrouver. D'une manière générale, dès que les isotopes sont dispersés, déjà à l'échelle hectométrique,

à plus forte raison kilométrique, ils ne sont plus identifiables. De ce point de vue l'échelle de temps est sans doute trop grande. Dans le cas des éléments dont il ne reste que des traces, tels que ceux dont a parlé M. Brookins, il faudrait sans doute faire des investigations plus détaillées, mais mon sentiment est que les très petites quantités restantes sont encore probablement dans l'uranium, et qu'il y a donc peu de chance d'en trouver à l'extérieur des réacteurs.

Ce qu'on peut retrouver, ce sont les éléments chimiquement stables qui n'ont pas été très loin; on a cité les terres rares; ce n'est peut-être pas un très bon exemple, car on sait que les terres rares se sont «relogées» dans l'uranium, et c'est l'uranium qui les a conservées. Un autre exemple est le ruthénium; cet élément est particulièrement intéressant parce que sa mobilité est faible sans être nulle, et il est surtout très aisément identifiable, puisqu'il y a extrêmement peu de ruthénium naturel. J'ai été très intéressé par les résultats indiqués par M. Maeck, dans la table ronde sur la stabilité géochimique des réacteurs, qui, si j'ai bien compris, a trouvé du ruthénium de fission à plusieurs mètres, peut-être jusqu'à 5 ou 10 mètres des zones de réaction. Il serait sûrement intéressant de faire une recherche systématique pour voir jusqu'où il a été. Le problème est que les éléments que l'on peut retrouver le plus facilement ne sont pas forcément les plus intéressants du point de vue du stockage, et inversement. Je reconnais cependant qu'il est souhaitable de faire davantage d'analyses dans l'environnement des réacteurs.

G.A. COWAN: Il y a un élément qui me semble présenter un intérêt particulier, c'est le plomb. On a trouvé un déficit important, qui s'exprime en centaines de tonnes; il y a donc peut-être quelque part une mine de plomb radiogénique. Si on retrouvait ce plomb, cela nous donnerait au moins des indications sur les conditions hydrogéologiques qui ont prévalu au cours du temps, et même peut-être (si on adopte l'hypothèse de diffusion continue), nous permettrait de retracer une histoire hydrologique.

W.J. MAECK: En ce qui concerne les migrations lointaines, je signale que dans l'échantillon qui nous a servi pour les expériences de datation par le ruthénium, et qui provenait d'un sondage situé, je crois, à une centaine de mètres des réacteurs, nous n'avons pas trouvé de ruthénium produit par fission du ^{235}U (ou seulement de très petites quantités provenant vraisemblablement des fissions induites). D'ailleurs la quantité de ruthénium était de l'ordre du nanogramme par gramme de minerai, à comparer aux dizaines ou centaines de nanogrammes trouvés à quelques mètres des réacteurs. Apparemment la migration n'a donc pas été jusque là.

CONCLUSIONS SUR LE DEROULEMENT DU PHENOMENE
CONCLUSIONS ON THE UNFOLDING OF THE PHENOMENON

Animateur (Discussion Leader): R. NAUDET

Introduction

IAEA-TC-119/27

PROBLEMES POSES PAR LE DEROULEMENT DU PHENOMENE D'OKLO: TENTATIVE D'INTERPRETATION GLOBALE

R. NAUDET
CEA, Centre d'études nucléaires de Saclay,
Gif-sur-Yvette, France

Résumé–Abstract

PROBLEMES POSES PAR LE DEROULEMENT DU PHENOMENE D'OKLO: TENTATIVE D'INTERPRETATION GLOBALE.

On discute les problèmes fondamentaux posés par le déroulement du phénomène nucléaire, c'est-à-dire les conditions dans lesquelles les réactions se sont déclenchées et propagées, et comment elles ont été contrôlées. Il apparaît qu'il est impossible de dissocier l'histoire physique de l'histoire géologique. Les réactions ont été entretenues par la destruction des poisons neutroniques contenus dans le minerai, et contrôlées par la température. Comme elles se déroulaient à grande profondeur, la pression était supérieure à la pression critique de l'eau, et le contrôle exigeait que la température se stabilise à des valeurs élevées, de l'ordre de 400°C. La vitesse des réactions s'adaptait pour maintenir à tout moment le niveau de température nécessaire. Le fait essentiel à Oklo est que l'on est en présence d'une multiplicité de réacteurs jointifs. Le fait d'obtenir la criticité en un point donné ne pouvait pas ipso facto faire fonctionner tout l'ensemble. Il a donc fallu un mécanisme de propagation, et comme l'origine du déclenchement est géologique, cela implique qu'au cours du déroulement du phénomène l'environnement des réacteurs se soit modifié; on sait maintenant que cela s'est produit du fait même des réactions nucléaires. Le moteur a été les courants de convection mus par le dégagement de chaleur et les températures élevées nécessaires au contrôle, dans un milieu fortement tectonisé. La désilicification intégrale des grès qui formaient le milieu primitif a concentré le gisement d'uranium, ce qui a permis à la criticité d'être obtenue de proche en proche. Le milieu dans lequel les réactions avaient lieu était donc en pleine transformation; l'élimination de la silice était suivie d'un tassement des terrains, et il y avait vraisemblablement des transports d'éléments. Néanmoins l'essentiel de ces transformations précédait l'arrivée des réactions, ce qui explique les remarquables corrélations qui subsistent dans les distributions de taux de réaction. La gangue restait cependant destructurée jusqu'à ce que la température soit revenue à son niveau normal. On a analysé des modèles de propagation qui font intervenir tout un ensemble de couplages. Il est probable que les réacteurs se fabriquaient préférentiellement dans le sens des courants de convection, c'est-à-dire en allant vers l'amont des zones de réaction. Oklo est donc un phénomène qui s'est déroulé dans l'espace et dans le temps. Les réactions ont été échelonnées et la durée totale du phénomène a été sans doute très supérieure à la durée de fonctionnement de chaque réacteur. D'autre part il semble qu'on puisse distinguer des «lignées évolutives» de réacteurs, les caractéristiques évoluant dans le sens dans lequel ils se sont propagés..

PROBLEMS POSED BY THE EVOLUTION OF THE OKLO PHENOMENON: ATTEMPT AT A COMPREHENSIVE INTERPRETATION.

The author discusses the fundamental problems raised by the evolution of the nuclear phenomenon, i.e. the conditions under which the reactions were started and propagated, and the means by which they were controlled. It would appear that the physical history cannot be separated from the geological. The reactions were maintained by the destruction of neutron poisons contained in the ore, and were controlled by the temperature. As they took place at great depth the pressure was higher than the critical pressure of water, and for control it was necessary that the temperature should be stabilized at high values, of around 400°C. The reaction rate adapted itself in such a way that the necessary temperature level was maintained at all times. The essential feature of Oklo is that there is a multitude of linked reactors involved. The achievement of criticality at one point could not ipso facto make the whole thing work. There must thus have been a propagation mechanism, and since the process was initiated by geological means this entails that the environment of the reactors should have changed as the phenomenon evolved; it is now known that such a change was caused by the nuclear reactions themselves. The driving force was the convection currents produced by the release of heat and the high temperatures needed for control, in a medium subject to powerful tectonic forces. The total desilicification of the sandstones that formed the original medium concentrated the uranium deposit, which gradually led to the attainment of criticality. The medium in which the reactions took place was thus in full course of transformation; the removal of the silica was followed by a settling of the earth, and there was probably migration of elements. Nevertheless, most of these transformations preceded the occurrence of the reactions, which explains the remarkable correlations in the reaction rate distributions. The gangue, meanwhile, remained unstructured until the temperature had reverted to its normal level. Propagation models have been analysed which involve a whole set of couplings. Probably the reactors were produced preferentially in the direction of the convection currents, i.e. upwards with reference to the reaction zones. Thus, Oklo is a phenomenon which took place in space and in time. The reactions were staggered, and the whole phenomenon probably lasted much longer than each individual reactor worked. Moreover, it would seem that "evolutionary lineages" of reactors can be traced, the characteristics evolving in the direction of propagation.

Au-delà des innombrables problèmes de détail que posent les réacteurs naturels d'Oklo, quelques questions fondamentales concernent le déroulement-même de ce phénomène exceptionnel : comment les réactions nucléaires se sont-elles déclenchées, comment ont-elles été contrôlées et entretenues, comment se sont-elles propagées, en un mot, comment tout cela s'est-il passé ? On est encore bien loin de pouvoir répondre de manière satisfaisante et complète à ces questions, mais on peut dire qu'on a beaucoup progressé dans la compréhension des problèmes, et on les analyse maintenant de manière certainement plus correcte.

Les études ont montré que l'histoire du site était beaucoup plus complexe qu'on l'avait cru d'abord. On peut définir Oklo comme un phénomène géologique qui a fait intervenir des réactions nucléaires, ou encore comme un phénomène nucléaire qui s'est déroulé à l'échelle géologique ; mais l'une ou l'autre de ces manières de dire pourrait laisser entendre que malgré d'inévitables interférences, chaque aspect peut être traité indépendamment, selon ses méthodes propres. Les développements les plus récents des études montrent au contraire que l'histoire géologique et l'histoire physique des

réacteurs sont tellement imbriquées qu'il est pratiquement impossible de les dissocier. Et c'est certainement l'aspect le plus passionnant de cette recherche.

Plusieurs communications ont déjà traité partiellement ces questions [1][2][3] mais il a paru intéressant de reprendre l'ensemble dans un exposé ordonné et synthétique. On a choisi de présenter les problèmes dans l'ordre dans lequel ils sont apparus : il se trouve que cet ordre est assez logique, il est intéressant de montrer comment les idées ont progressé, et cela permet de mieux intégrer les réflexions les plus récentes.

Après avoir montré que les conditions avaient été réunies pour réaliser la criticité, un des premiers problèmes qu'on ait abordé a été le suivant. Puisque à Oklo il y a eu des réactions en chaîne contrôlées, et qu'elles se sont poursuivies jusqu'à des taux d'appauvrissement isotopique très élevés, il a fallu, comme dans tout réacteur nucléaire, qu'interviennent des mécanismes de stabilisation et de compensation. C'est donc sur la nature de ces mécanismes qu'on s'est d'abord interrogé.

1. Mécanismes de stabilisation

Si elle n'est pas stabilisée, une réaction en chaîne prend une allure explosive, ou bien elle s'arrête ; d'où la nécessité d'un mécanisme tel que toute augmentation de puissance tende à abaisser le coefficient de multiplication et inversement. Dans le cas d'Oklo, on a montré [1] que deux modes de contrôle pouvaient a priori être intervenus qui sont dans une certaine mesure exclusifs, et qu'il existe un critère qui permet de trancher entre ces deux possibilités. Ce critère est l'abondance des "poisons" neutroniques. Rappelons brièvement cette discussion.

Si les poisons (c'est-à-dire d'une manière précise, les noyaux qui ont une section efficace de capture plus grande que celle de l'uranium) sont peu nombreux, le déroulement des réactions, qui se traduit par une disparition de noyaux fissiles, fait baisser la réactivité à composition donnée. Les réactions ne continuent que si la réactivité est renouvelée, ce qui implique obligatoirement qu'un processus géochimique modifie la composition ou les caractéristiques du milieu : par exemple apport d'uranium, ou lessivage de noyaux absorbants, ou encore modification de la géométrie, ou de la porosité, etc. L'antagonisme entre les deux actions assure alors la stabilité, et la vitesse des réactions est assujettie à celle du processus géochimique. Si celui-ci est suffisamment lent, la chaleur peut avoir le temps de s'évacuer sans qu'il y ait une élévation importante de température ; en tout état de cause, la température peut être quelconque ; elle dépend des conditions de transfert thermique, et c'est la vitesse de réaction qui est fixée.

Au contraire, si les poisons dépassent un certain seuil, leur destruction libère plus de réactivité qu'en enlève celle des noyaux fissiles. Il y a donc dans ce cas un facteur d'instabilité intrinsèque qui fait que les réactions, une fois déclenchées, ont tendance à s'accélérer indéfiniment. Toutefois, elles dégagent de la chaleur et l'élévation de température tend à faire baisser la réactivité ; à la limite si on enlevait toute l'eau, y compris l'eau de structure des minéraux argileux, les réactions seraient dans l'impossibilité totale de continuer. Il existe donc à tout moment une température d'équilibre qui est obligatoirement atteinte. Les réactions se stabilisent à une vitesse telle que cette température soit maintenue, compte tenu des conditions d'évacuation de la chaleur ; cette fois, c'est la température qui est fixée, et la vitesse de réaction qui s'adapte.

A Oklo, on est certain, à cause de la présence des éléments des terres rares et notamment du samarium et du gadolinium (on sait qu'ils étaient là, puisqu'ils portent les traces de leur irradiation), que ce seuil d'instabilité était largement dépassé, et d'autre part, compte tenu des autres poisons et notamment du bore, qu'il y avait des marges importantes de réactivité à compenser. On peut donc affirmer a priori que la température est intervenue pour contrôler le réacteur.

La température agit à la fois directement, par action sur les sections efficaces, et surtout indirectement par élimination partielle de l'eau. De ce fait, le paramètre important est la pression qui régnait au moment des réactions. Si celles-ci s'étaient déroulées près de la surface, l'eau aurait pu se vaporiser ; mais les géologues ont apporté un élément d'information tout à fait essentiel, en montrant qu'à cette époque le recouvrement était beaucoup plus grand qu'aujourd'hui. Les réactions ont eu lieu à grande profondeur, de l'ordre de 4 000 mètres, de sorte que la pression atteignait peut-être 1 000 bars. L'eau était donc surcritique, elle ne pouvait bouillir, et il fallait atteindre des températures élevées pour abaisser suffisamment sa densité. Des exemples de calcul d'évolution de la réactivité ont été présentés dans [2] : on trouve des températures de contrôle de l'ordre de 300 à 450 °C.

A ce propos, je voudrais rappeler en quelques mots les possibilités des calculs neutroniques ; ceux-ci ont eu au départ des objectifs modestes : il s'agissait essentiellement de discuter les conditions de criticité, et le rôle des différents paramètres. Il est apparu que les méthodes classiques de la physique des réacteurs s'appliquaient étonnamment bien aux problèmes d'Oklo, puisqu'on pouvait justifier en particulier les distributions de taux de réaction encore inscrites dans les terrains. Il a donc semblé intéressant de perfectionner les outils de calcul, et de s'atteler à des tâches plus ambitieuses, telles que la simulation du déroulement des réactions dans l'espace et dans le temps. On dispose effectivement aujourd'hui de méthodes bien au point qui permettent une telle simulation. Les calculs présentés dans [2] en sont un exemple. Mais je souligne qu'avant même de faire des calculs détaillés, le simple examen des courbes représentant la densité de l'eau en fonction de la température et la pression donnait l'ordre de grandeur des températures de contrôle nécessaires pour une profondeur donnée ; en effet, à très haute pression, ce n'est qu'au voisinage de la température critique que la densité de l'eau peut s'abaisser notablement.

Au moment de Libreville, M. WEBER annonçait un enfouissement de 3 000 à 5 000 mètres, mais pensait que la température n'avait pas dépassé sensiblement 250 °C, à cause de l'absence de minéraux catathermaux, et en particulier du fait que les illites étaient sous la forme 1 m. J'avais fait observer [4] que les minéraux avaient pu être restructurés postérieurement aux réactions (et d'ailleurs la présence d'uraninite semblait être la signature de températures plus hautes), et qu'en tout cas, si on retenait l'idée de l'enfouissement, il était absolument nécessaire d'admettre des températures plus élevées pour que les réacteurs aient pu être contrôlés. Un an après, la découverte, en inclusion microscopique dans des quartz voisins des zones de réaction, d'un fluide piégé à faible densité, et dont la température était à l'époque d'au moins 400 °C, apportait une confirmation spectaculaire de cette prédiction [5].

Dans la suite des études, ce fluide à haute température a été retrouvé systématiquement dans les quartz de bordure des zones de réaction,

et on ne l'a trouvé que là. Il doit donc bien être associé au fonctionnement des réacteurs. Il confirme à la fois que la pression était très élevée (sinon les fluides n'auraient pas dépassé la température d'ébullition) et qu'il y avait de grandes marges de réactivité à compenser. D'autres études ont confirmé ce niveau de température : observation plus attentive des minéraux [6], et taux de capture neutronique du lutétium 175 [7]. On peut donc considérer comme bien confirmé que les réactions ont été contrôlées par la température.

Puisque la vitesse de réaction était déterminée par les conditions d'évacuation de la chaleur, les indications sur les durées de fonctionnement tirées des analyses isotopiques doivent être compatibles avec le maintien du niveau de température indiqué. Rappelons que la mesure de la proportion des fissions dans le plutonium (et aussi le dosage du ruthénium 100 : décroissance du technétium 99), ont montré qu'au niveau des sondages KN 50 et SC 36, c'est-à-dire en haut de la zone 2, la durée de fonctionnement a été de l'ordre de 800 000 ans. On a montré dans [2] que cet ordre de grandeur est effectivement compatible avec une évacuation de la chaleur par conduction, sans qu'on puisse exclure d'ailleurs qu'une fraction significative ait été emmenée par convection (ce dernier processus est même extrêmement probable, mais on doit admettre que les courants de convection étaient très lents). Il peut paraître étonnant qu'une densité de puissance aussi faible, de l'ordre de 10^{-4} W/cm^3, ait été suffisante pour maintenir un écart de température élevé, de 200 à 300 °C par rapport à l'ambiante ; c'est qu'en l'absence d'une convection intense et du fait de la mauvaise conductivité thermique des terrains, la chaleur s'évacuait mal..

Cette lenteur de l'évacuation des calories, et la très grande inertie thermique des terrains, permettent en même temps de comprendre que le contrôle par la température pouvait s'effectuer sans à-coup. On s'est demandé en effet si le facteur d'instabilité dû aux poisons n'était pas susceptible de provoquer un "burst" au moment du déclenchement des réactions, et d'autre part si, dans la suite de l'évolution, l'eau pouvait s'évacuer suffisamment vite pour assurer le contrôle.

Lorsque les poisons sont à leur maximum, il suffit d'à peu près 2×10^{-6} fission par noyau d'uranium pour augmenter la réactivité d'un pcm ; le chiffre est très petit par rapport au nombre total de fissions, mais il représente déjà un dégagement d'énergie 5 000 fois plus grand que celui qui est nécessaire pour élever de 1 °C la température du minerai ; or, une élévation de température de 1 °C fait baisser la réactivité d'une dizaine de pcm, même si la totalité de l'eau reste présente. Compte tenu de la lenteur de l'évacuation des calories, on voit bien, sans qu'il soit nécessaire de faire de grands calculs, que l'effet stabilisant de la température dépasse d'un facteur considérable l'effet destabilisant des poisons ; la réactivité est compensée bien avant qu'apparaisse un écart correspondant à un temps de doublement rapide.

Le même raisonnement montre que la quantité d'énergie produite pendant un temps donné est considérable vis-à-vis de la quantité d'eau qu'il faut éliminer pendant le même temps pour maintenir la criticité. Or si l'eau reste confinée dans le même volume, il suffit d'une très faible quantité de chaleur pour augmenter énormément sa pression (comme ordre de grandeur une élévation de 10 °C à volume constant correspond à une augmentation de pression de 170 bars). Rapprochant ces deux remarques, on voit que même dans le cas d'une perméabilité des terrains extrêmement faible, l'équilibrage des pressions a le temps de s'effectuer.

Il ne pouvait donc y avoir à aucun moment de déséquilibre en réactivité assez marqué pour donner lieu à des oscillations. Même si une perturbation avait été provoquée par un phénomène extérieur, tel qu'un séisme, l'énorme inertie thermique des terrains l'aurait vite amortie. A plus forte raison, on n'imagine pas comment un mécanisme d'oscillations entretenues aurait pu être réalisé. L'idée d'un régime pulsé, qui semble avoir la faveur des amateurs de science-fiction, n'a donc aucune raison d'être retenue. En réalité, les équilibres ne pouvaient se déplacer que très lentement.

Le fait que les réactions étaient contrôlées par la température *a une conséquence qu'il faut bien retenir.* Il signifie en effet que, quelles que fussent les conditions locales d'évacuation de la chaleur, la température devait, pour des raisons de contrôle, subir une forte élévation dès que la criticité était atteinte. On verra plus loin que c'est une donnée très importante.

2. Mécanismes de compensation

Un autre élément de réponse a été apporté du même coup, puisque la destruction des poisons neutroniques justifie l'entretien des réactions jusqu'à des taux de combustion élevés : c'est le procédé, bien connu en ingénierie des réacteurs nucléaires, de la compensation par "poison consommable". La destruction des poisons se traduit par un excédent de réactivité, qui croît rapidement (rapidement à l'échelle géologique, bien sûr) et qui est compensé par l'élévation de température ; cet excédent est ensuite résorbé lorsque l'uranium s'appauvrit, tandis que la température s'abaisse ; les réactions s'arrêtent lorsqu'il n'y a plus de réserve, c'est-à-dire lorsque la température a repris son niveau normal.

Il convient de rappeler qu'on ne connaît pas la teneur en bore du minerai à l'époque des réactions (car cet élément a été remanié, on ne trouve maintenant que du bore naturel, et il en est de même d'ailleurs pour d'autres poisons comme le lithium et le cadmium), mais on a montré dans [1] que les quantités nécessaires pour justifier les taux de réaction observés sont tout à fait plausibles, car elles sont de l'ordre de grandeur des quantités actuellement présentes dans le minerai. On peut d'ailleurs également justifier approximativement la capture des poisons par les distributions de flux observées dans les réflecteurs proches de la criticité [8]. L'ordre de grandeur de cette capture, qui varie bien entendu en particulier avec la teneur du minerai, est de 10 000 pcm, on peut remarquer que c'est d'une certaine manière un optimum : s'il y avait eu trop de poisons neutroniques les réactions n'auraient pas pu se déclencher ; s'il n'y en avait pas eu assez elles n'auraient pu se poursuivre aussi longtemps.

On peut donc dire que ce mécanisme est suffisant pour rendre compte de la compensation, et qu'il n'est pas nécessaire de faire appel à des processus géochimiques qui auraient modifié la composition ou les caractéristiques du milieu pendant les réactions. Rien, toutefois, ne permet d'affirmer que de tels processus ne se sont pas produits : on en discutera plus loin. Si tel était le cas, les effets en réactivité de ces modifications de composition s'ajoutaient aux effets nucléaires des réactions (l'ensemble étant compensé à tout moment par la température). En tout état de cause, on peut dire que les poisons ont joué un rôle important, et rendent compte vraisemblablement de l'essentiel de la compensation.

Je rappelle qu'au début des études, on avait considéré avec faveur l'hypothèse d'un processus géochimique particulier susceptible d'assurer la

compensation, à savoir la continuation du dépôt d'uranium pendant les réactions[9]. A ce moment, on n'avait pas encore pris conscience de l'importance des poisons, et d'autre part cette idée semblait bien naturelle : en effet puisque c'était vraisemblablement un mécanisme de concentration de l'uranium qui avait déclenché les réactions pourquoi celui-ci n'aurait pas continué une fois la criticité réalisée ? Le Dr. COWAN avait défendu avec enthousiasme cette idée à Libreville [10][11]. J'avais montré que non seulement cette hypothèse n'était pas nécessaire, mais qu'elle était apparemment contredite par les faits.

L'argument principal était que si l'uranium avait continué à se déposer dans le réacteur, cette venue d'uranium naturel au sein d'uranium déjà appauvri aurait créé des inhomogénéités de composition isotopique, alors qu'on observait une homogénéité quasi parfaite aussi bien à l'échelle microscopique qu'à l'échelle centimétrique, et qu'on était certain qu'il n'y avait pas eu de restructuration ultérieure. Comme on l'a montré dans un autre rapport [12], ces faits peuvent être considérés comme établis de manière très sûre, et on peut donc affirmer que l'uranium n'a pas continué de se déposer de manière significative pendant les réactions.

D'ailleurs, comme on le faisait remarquer dans [1], on pouvait comprendre que le déclenchement des réactions ait été de nature à stopper le dépôt : l'élévation de température qui s'ensuivait modifiait certainement le régime des circulations, et pouvait modifier également les conditions de précipitation de l'uranium : si par exemple le changement de valence était dû à la présence de matières organiques - une des hypothèses qui était alors en lice - celles-ci pouvaient avoir été éliminées ou détruites par les réactions.

Le caractère conjectural de cette dernière proposition, toutefois, montre bien qu'aussi longtemps qu'on n'en savait pas plus sur les conditions dans lesquelles l'uranium s'était mis en place, un doute pouvait subsister. On sait maintenant que la dernière phase de concentration de l'uranium a été une désilicification ; or il est bien clair que les quartz ont pu continuer d'être éliminés pendant les réactions, sans que l'homogénéité de composition isotopique ait été perturbée. L'argument cité ne permet donc plus d'affirmer que le processus de concentration de l'uranium n'a pas continué pendant les réactions. Comme quoi, il faut faire très attention à la formulation.

Mais avant même qu'on prenne conscience de cette nécessaire réserve, la proposition : "la mise en place de l'uranium a cessé lorsque les réactions se sont déclenchées" se heurtait à une difficulté d'une autre nature, comme on va le voir maintenant.

3. Déclenchement des réactions

Les réflexions qui précèdent s'appliquent à un réacteur isolé ; quand on parle du déclenchement des réactions, on fait comme si celui-ci n'était intervenu qu'une fois. Or le fait peut-être plus important dans le phénomène d'Oklo, c'est qu'on n'est pas en présence d'un seul réacteur. Peu importe qu'il y ait quatre (ou six) zones de réaction distinctes; ce qui est en cause c'est que chaque zone elle-même n'est pas assimilable à un réacteur unique. Chacun des quatre grands ensembles a un volume de l'ordre de 200 m^3, et ses dimensions principales sont de 20 à 40 mètres ; les réactions s'y sont développées apparemment sans solution de continuité ; or la longueur de migration des neutrons est de l'ordre du décimètre, et

une masse critique aurait pu être obtenue dans un volume de un ou deux mètres cubes. Autrement dit, on peut considérer chaque zone comme constituée d'une bonne centaine de réacteurs(bien entendu on ne peut les dénombrer puisqu'ils sont indiscernables, c'est seulement une image).

L'obtention de la criticité en un point donné ne pouvait donc certainement pas donner lieu ipso facto au fonctionnement de l'ensemble : le flux neutronique ne déborde que de quelques décimètres la région où le coefficient de multiplication est supérieur à l'unité. Par suite, si le point de départ était la mise en place de l'uranium, celle-ci ne pouvait pas avoir cessé dès que les réactions s'étaient déclenchées quelque part ; il fallait bien qu'elle ait continué tout autour pour que la criticité ait été atteinte également dans le reste de la zone.

Certes, il n'y avait pas contradiction : le dépôt d'uranium pouvait être perturbé localement, et donc cesser à l'emplacement des réactions, mais continuer plus loin. Toutefois, si on parlait par exemple de renversement du sens des circulations, il était difficile d'admettre que la perturbation n'affectât pas aussi l'environnement ; la difficulté venait de ce qu'on ne savait pas clairement suivant quel mécanisme l'uranium s'était mis en place. Il fallait en convenir : le point de départ de ce phénomène nucléaire était un phénomène géologique, et c'est parce que le déclenchement des réactions n'avait pas été unique que l'interférence était inévitable. La suite devait bien le montrer.

D'ailleurs, était-on certain que c'était la mise en place de l'uranium elle-même qui avait déclenché les réactions ? Tout ce qu'on pouvait dire, c'est qu'il ne pouvait pas y avoir un très grand décalage : l'âge des réactions, déduit de la comparaison entre fluence et nombre de fissions, était du même ordre que l'âge de mise en place de l'uranium, déduit des analyses de plomb radiogénique ; d'autre part la mesure du rapport $^{207}Pb/^{206}Pb$ dans les grains d'uranium très appauvri semblait prouver qu'il ne s'était pas formé une quantité significative de plomb radiogénique avant l'appauvrissement isotopique de l'uranium ; mais ces arguments étaient peu précis, et ne permettaient pas d'exclure un certain décalage entre les deux évènements. Est-ce que par exemple un phénomène tectonique augmentant la porosité, donc la quantité d'eau présente, n'aurait pas pu provoquer ce déclenchement après coup ? Là encore, il aurait fallu en savoir plus sur l'histoire géologique.

Ce qu'on pouvait en tout cas affirmer, quel que fût le point de départ, c'est que les conditions critiques n'avaient certainement pas été réunies partout. On observait des variations importantes de teneur et d'épaisseur du minerai riche ; les poisons et les quantités d'eau avaient probablement été aussi variables. Mais, si deux portions éloignées des zones de réaction devaient être considérées comme indépendantes, par contre un certain couplage pouvait s'exercer de proche en proche. On avait montré que la présence de poisons à très forte section de capture comme le gadolinium rendait possible la propagation des réactions dans des portions initialement sous-critiques. L'idée qui émergeait était donc que les réactions avaient dû se déclencher en un nombre limité de points, à partir desquels elles avaient progressé pour finalement se rejoindre. Il était donc certainement utile d'étudier a priori les conditions de cette propagation, pour mieux apprécier le nombre de foyers initiaux nécessaires.

4. Propagation des réactions

L'idée de base était donc que les poisons avaient joué un rôle important dans ce processus, en servant de relais : puisqu'ils représentaient une grande marge de réactivité potentielle, l'utilisation de cette réserve avant même que la criticité fût atteinte était en quelque sorte "un prêté pour un rendu". Il suffit d'une très faible fluence pour gagner 3 ou 4 000 pcm par destruction des noyaux capturants du gadolinium et du samarium ; le flux neutronique qui déborde les foyers de réactions permet donc d'étendre le domaine de criticité ; les neutrons vont alors un peu plus loin et la progression continue. C'est l'image du "feu de brousse" qui s'étend rapidement dès qu'un foyer est allumé.

Une étude neutronique détaillée de cette propagation a été présentée au cours de cette réunion [2]. On a confirmé le principe, mais en même temps on a montré qu'elle s'effectue moins aisément qu'on l'avait cru tout d'abord, à cause des effets thermiques. En effet, puisque le déclenchement des réactions se traduit rapidement pour des raisons de contrôle par une forte élévation de température dans le coeur, celle-ci déborde nécessairement tout autour ; il y a donc compétition entre le couplage neutronique qui, par destruction de poisons, tend à libérer de la réactivité, et le couplage thermique qui agit en sens inverse. Si l'écart en réactivité est trop grand, le domaine critique ne s'étendant pas, le flux dans les bordures reste limité, et les quantités de poisons détruites sont trop faibles pour que le relais soit assuré.

A cause des effets de température, on trouve donc des conditions plus restrictives pour la propagation ; le résultat dépend évidemment des hypothèses sur la manière dont se font les transferts thermiques, mais en tout état de cause les réactions ne peuvent s'étendre que dans des milieux faiblement sous-critiques. En outre la présence d'une petite épaisseur de minerai plus pauvre est suffisante pour arrêter la progression : dans l'image du feu de brousse, c'est l'équivalent du "coupe-feu". Il n'y a que dans une circonstance particulière que le déplacement se fait facilement : si la plus grande part de la chaleur est emmenée par convection, les réactions ont tendance à s'arrêter côté chaud, mais à s'étendre côté froid ; d'où une propagation en sens inverse du courant. D'une manière générale, les foyers de réaction tendent à se gêner mutuellement ; leur fonctionnement doit donc s'échelonner, ce qui est en général défavorable à la progression : les réactions souvent ne peuvent reprendre que lorsque les températures ont décru. Une conclusion qui se dégageait finalement de ces études est qu'à cause des échelonnements nécessaires, la durée totale du phénomène avait pu être beaucoup plus grande que la durée de fonctionnement de chaque réacteur.

Au moment où ces résultats étaient obtenus, on rassemblait les observations effectuées au cours du suivi géologique de l'exploitation des zones de réaction, et on commençait à analyser les échantillons prélevés à cette occasion. Le suivi géologique avait été extrêmement intéressant ; il avait montré en particulier que les zones 3-4 et 5-6 étaient plus étendues qu'on l'avait cru d'abord, et assez différentes des zones 1 et 2 : leur environnement était plus gréseux, la passe riche était souvent très mince, et elle était fréquemment hâchée par de petits accidents tectoniques qui provoquaient des rétrécissements ou des rejets.

Dans la zone 2, compacte, homogène et partout très riche, on pouvait comprendre que les réactions se soient étendues à l'ensemble. La zone 1 était beaucoup plus irrégulière, mais il y avait des parties riches un peu

partout, jamais très éloignées les unes des autres ; on pouvait supposer qu'il y avait eu au départ un assez grand nombre de foyers qui avaient fini par se rejoindre. Mais dans les zones 3-4 et 5-6, où la criticité était d'une manière générale beaucoup plus marginale, il y avait de nombreuses portions, d'ailleurs souvent assez vastes, où les conditions critiques n'avaient sans doute pas été réalisées, et d'autre part cette abondance de "cordons coupe-feu" avait dû gêner considérablement la propagation. Une exploration extensive de la répartition des taux de réaction dans ces nouvelles zones paraissait donc a priori extrêmement intéressante : on allait en savoir beaucoup plus sur les conditions de déclenchement et de propagation des réactions.

En réalité, cette investigation devait se révéler très décevante : il y avait pratiquement des réactions partout.

5. Le "mystère" Oklo

Ce résultat posait deux catégories de problèmes. Il fallait d'abord expliquer pourquoi les réactions s'étaient étendues à des secteurs où la criticité était plus diffcile à justifier : peut-être fallait-il modifier les hypothèses des calculs ; on y reviendra. Mais d'autre part, cette continuité des réacteurs soulevait à nouveau un problème qui, en réalité, n'avait jamais cessé de se poser depuis le début de l'exploration du site, et qu'il faut bien comprendre.

Comme on l'a dit, une zone de réaction se présente comme la réunion d'une centaine de réacteurs jointifs. On a insisté sur la disproportion entre la longueur de ces zones et la longueur de migration des neutrons. On comprend bien qu'un phénomène géologique susceptible de fabriquer un réacteur peut en fabriquer beaucoup ici ou là. Mais pourquoi sont-ils jointifs ? Car, répétons-le, les réactions ne peuvent absolument pas s'étendre dans un milieu non critique au-delà de quelques décimètres. On vient de considérer un mécanisme susceptible de rendre critique un milieu qui ne l'était pas - la destruction neutronique des poisons - mais on en a montré en même temps les limites : les réactions ne peuvent progresser que si le coefficient de multiplication est inférieur à l'unité de quelques % seulement. On comprend que l'uranium vienne se concentrer préférentiellement dans une formation géologique particulière, mais comment expliquer qu'il ne s'écarte nulle part davantage de la concentration nécessaire à la criticité ? Est-ce qu'il ne faut pas supposer qu'un mécanisme est intervenu pour réguler cette mise en place, mécanisme qui ne pouvait avoir été commandé que par les réactions elles-mêmes ?

On a beaucoup réfléchi sur ce problème. Une idée, envisagée au début mais à vrai dire difficilement défendable, était que l'uranium avait continué imperturbablement à se mettre en place jusqu'au moment précis du déclenchement, celui-ci provoquant une modification de nature à arrêter le processus. Beaucoup d'hypothèses ont également été échafaudées, tendant à montrer que les réactions pouvaient avoir favorisé le dépôt d'uranium au voisinage immédiat des réacteurs. (Par exemple on supposait que les matières organiques, sous forme d'hydrocarbures, étaient repoussées un peu plus loin par effet thermique ; ou encore que le carbone résiduel, oxydé par radiolyse de l'eau, provoquait la formation d'hydrogène, mobilisant ainsi le potentiel réducteur). Aucune de ces hypothèses n'était satisfaisante, et pourtant le problème demeurait. On a été conscient très tôt de cette difficulté, et on peut dire que la poursuite de l'exploration du site n'a fait que la rendre plus troublante.

Il y avait d'ailleurs une autre source de perplexité. On sait que l'environnement argileux des réacteurs est unique dans le gisement d'Oklo. Il y a coïncidence entre les zones de réaction et des faciès qu'on ne trouve que là, et qui sont très caractéristiques, au point que les géologues ont créé les termes - qui font d'ailleurs sourire leurs collègues - de "faciès-pile" et "argiles de piles". On pouvait penser que certaines au moins de ces particularités préexistaient aux réactions, et *donc* qu'il était possible de trouver des portions de terrain présentant à peu près les mêmes caractéristiques, mais sans réactions nucléaires. Il paraissait très important d'identifier et d'étudier de telles situations, car elles auraient permis d'apprécier les effets propres aux réactions. Or, il a bien fallu se rendre à l'évidence : il n'y avait pas de faciès-pile sans pile. Est-ce que cela ne signifiait pas que c'étaient les réacteurs qui avaient fabriqué leur propre environnement ? Mais alors, est-ce que la concentration de l'uranium n'était pas impliquée dans le processus ?

Sous une autre forme, on revenait à la même idée : tout se passait comme s'il y avait eu non seulement propagation des réactions, mais aussi propagation des réacteurs, comme si ceux-ci s'étaient fabriqués eux-mêmes de proche en proche. Cette idée semblait incroyable, et pourtant d'une certaine manière elle s'imposait, sans qu'on en comprenne le mécanisme. Comme dans les romans à suspense, il a fallu un long détour pour que la vérité apparaisse. Certes, toute la lumière n'est pas encore faite, mais on peut dire qu'on tient maintenant la clé du mystère. Je voudrais montrer comment on en est venu là.

6. Retour à la géologie

Je ne vais évidemment pas refaire l'exposé de M. WEBER, mais je voudrais souligner quelques points pour les intégrer à notre discussion.

Les deux principaux problèmes auxquels ont été confrontés les géologues ont été, d'abord bien sûr, les mécanismes de concentration de l'uranium qui ont abouti à la formation de masses critiques, mais aussi l'origine de ces fameuses "argiles de piles" dont la présence était insolite au sein du gisement. L'origine purement sédimentaire, d'abord envisagée, a été rapidement contestée. L'observation du front de la "minipile" [13] a mis en évidence le rôle très important de la tectonique : dans certains cas au moins, le conglomérat central de la couche uranifère semblait avoir été arraché, et il y avait intrusion de sédiments pélitiques. Mais c'est surtout le suivi géologique au cours de l'exploitation qui a permis d'avoir une meilleure idée de la morphologie des zones de piles ; il se confirmait que la tectonique avait joué un rôle essentiel dans leur formation ; les réacteurs se trouvaient toujours dans des zones d'ouverture et d'extension, fortement broyées ; le faciès-pile était le plus souvent flexuré et découpé en compartiments ; les zones se "fermaient" sur des accidents majeurs, contre lesquels le faciès-pile venait buter en s'interrompant brutalement [14].

Bien que la généralisation du modèle de la "minipile" appelât quelques réserves, on acceptait l'idée que l'environnement immédiat des réacteurs était constitué pour l'essentiel par un matériel de remplissage, broyé et destructuré. (Les actions tectoniques se traduisent non seulement par des effets mécaniques, mais aussi par des circulations mises en mouvement par les différences de pression, et *provoquent* des transformations chimiques et minéralogiques). L'uranium ne s'était donc pas mis en place

dans des sédiments préexistants et restés tels quels, mais dans un matériau en pleine évolution, et sa venue avait été probalement accompagnée d'une géochimie complexe ; beaucoup d'éléments avaient donc été remaniés et de nouveaux minéraux s'étaient formés. En particulier, on observait dans les zones 3 à 5 tout un ensemble de faciès de transition entre les grès et les argiles et on pouvait mettre en évidence de très importants mouvements de silice.

Ces observations laissaient subsister plusieurs questions. L'origine des argiles n'était pas encore parfaitement claire : quelle était la part respective des sédiments primitifs et de la désilicification ? D'autre part on pouvait s'interroger sur la chronologie des évènements : si l'environnement était en pleine évolution au moment de la mise en place de l'uranium, et si les réactions s'étaient déclenchées immédiatement, est-ce que l'évolution n'avait pas continué pendant les réactions elles-mêmes ? Bien plus, est-ce que les réactions n'avaient pas contribué à modifier l'environnement ? Les réflexions du paragraphe précédent, concernant la coïncidence étroite entre les zones de piles et des caractéristiques qu'on ne rencontrait nulle part ailleurs, et l'impossibilité de découvrir du "faciès-pile sans pile" commençaient à se poser avec acuité. Une autre remarque troublante était que l'environnement des zones 3 à 5, où les taux de réaction étaient peu élevés, était resté assez fortement gréseux, alors que la zone 2 où les réactions avaient été les plus intenses était aussi la plus argilisée.

La confirmation, par l'étude des inclusions fluides dans les quartz, d'un niveau de température élevé, est venue à ce moment comme un puissant moteur de réflexion. On a insisté au premier paragraphe sur le fait que le déclenchement des réactions provoquait ipso facto, pour des raisons impératives de contrôle, une forte élévation locale de température, de l'ordre de 200 °C ; il est évident que celle-ci, au sein de terrains broyés, était de nature à mettre en mouvement des courants de convection. A cause des variations de solubilité de la plupart des éléments en fonction de la température, ces courants devaient donc s'accompagner d'un déplacement de matières : en particulier la solubilité de la silice s'accroît énormément quand la température s'élève : l'élimination radicale des quartz au sein des réacteurs, qui était une question embarrassante -on en avait discuté à Libreville [4] - s'expliquait sûrement de cette manière.

En même temps, les études très minutieuses de chimie isotopique aboutissaient à la conclusion qu'il y avait eu de petites remobilisations même pour les éléments les plus stables, et qu'en particulier dans le cas des terres rares ces remobilisations avaient été accompagnées de fractionnement entre les éléments dont les propriétés sont pourtant très semblables. Initialement, on avait attribué les perturbations observées dans les distributions de l'uranium appauvri et des terres rares de fission à des altérations récentes (ou subactuelles) ; mais, comme on l'a montré dans [12], les faits observés, notamment le fractionnement, ne pouvaient pas être expliqués de cette manière ; de même la disposition en "auréole" des petites quantités d'uranium appauvri déplacé, avec direction préférentielle vers l'amont, n'était certainement pas attribuable à des circulations météoriques récentes (et d'ailleurs il y avait une corrélation avec le thorium qui semblait prouver que l'isotope 236 n'avait pas encore décru au moment du déplacement). Bref, il apparaissait que ces remobilisations avaient eu lieu très vraisemblablement à l'époque des réactions elles-mêmes, et devaient être attribuées aux courants de convection.

Un autre problème embarrassant était l'absence totale de dégâts d'irradiation dans les minéraux constitutifs de la gangue. On avait attribué

ce fait à quelque "guérison", mais il fallait bien adopter une explication plus radicale, puisqu'on ne trouvait que des illites 1 m dans le coeur, alors que la varitété 2 m apparaît à partir de 250°. De même, le fait que le bore - qui entre dans le réseau cristallin de certains minéraux - ainsi que l'hydrogène de l'eau de structure (sans parler des alcalins et des alcalino-terreux) ne portaient pas de trace d'irradiation, avait d'abord été attribué à des remobilisations ou échanges isotopiques ultérieurs ; une disparition aussi totale paraissait néanmoins quelque peu surprenante. Sur ces entrefaites, un résultat d'analyse apporta une surprise de taille ; l'irradiation du fer - qui constitue environ 15 % de la gangue et qui ne se remobilise pas aussi facilement - aurait dû être visible sur l'isotope 57 ; or il s'avérait que le fer, lui non plus, n'avait pas vu les neutrons ! il n'était guère imaginable que le fer ait été remanié par la suite ; il fallait donc admettre qu'il avait été constamment renouvelé au cours des réactions.

Il est intéressant rétrospectivement de relire un rapport rédigé au cours du deuxième semestre 1976, et qui illuste bien cette étape de notre recherche [15]. A ce moment, on était encore très prudent sur le rôle joué par les réactions dans la transformation de leur environnement, mais on commençait à se douter de son importance. "Il est amusant - écrivait-on - de penser, que tandis qu'on cherchait en vain les effets attendus des réactions nucléaires - des dégâts d'irradiation dans les minéraux - l'effet le plus important, selon cette hypothèse, crevait les yeux : il s'agit essentiellement d'un effet thermique". Mais déjà perçait une forte inquiétude quant aux conséquences sur l'étude physique du phénomène : si on a continué de désilicifier pendant les réactions, est-ce qu'on n'a pas du même coup modifié la porosité des terrains, donc les quantités d'eau présentes ? et si on a remanié beaucoup d'éléments, est-ce qu'on n'a pas aussi renouvelé constamment le bore, dont le rôle est essentiel dans le bilan ? que restait-il alors des modèles de contrôle neutronique ?

Et pourtant à ce moment, les géologues n'avaient pas encore dit leur dernier mot.

7. La désilicification

En réalité rien n'était résolu. Comme on l'a dit, l'origine des argiles n'était toujours pas claire : d'ailleurs le modèle proposé (matériaux de remplissage dans des ouvertures tectoniques) n'était pas satisfaisant : beaucoup d'observations ne rentraient pas dans ce cadre. Mais surtout le problème de la mise en place de l'uranium restait entier ; on connaissait dans les grès "normaux" d'Oklo des passées d'enrichissement local (teneurs jusqu'à 10 ou même 20 %) susceptibles d'être interprétées de manière relativement classique, mais la concentration de l'uranium dans une bande étroite de faciès-pile, au niveau 50-60 %, paraissait inexplicable dans ce contexte sédimentaire.

J'ouvre ici une parenthèse. Une difficulté des études géologiques sur les réacteurs d'Oklo est qu'on ne peut évidemment pas les limiter trop étroitement aux aspects qui sont en relation évidente avec le phénomène nucléaire ; mais jusqu'où faut-il remonter ? Ne risque-t-on pas de s'enliser dans des observations banales sans rapport avec le sujet ? Notre chance, il faut bien le dire, a été que les recherches ont pu s'insérer dans une étude géologique plus générale, effectuée à la demande de la COMUF, et qu'il n'a donc pas été nécessaire d'imposer des frontières trop strictes. Personnellement j'avoue que lorsque François GAUTHIER-LAFAYE entreprit

d'étudier de manière très fine la stratigraphie de la couche C_1 dans le minerai normal d'Oklo, ce travail me parut fort éloigné de nos préoccupations. Et pourtant c'est en grande partie en s'appuyant sur cette recherche minutieuse, et sur d'autres observations apparemment aussi loin du sujet, que les géologues purent étayer leur conclusion fondamentale, selon laquelle le faciès-pile et les argiles associées provenaient d'une désilicification intégrale de tout ou partie des grès de C_1 [16].

Ainsi donc, la concentration de l'uranium se serait effectuée en deux temps. Dans un premier temps, en relation avec les mouvements tectoniques, des fronts d'oxydo-réduction ont remobilisé l'uranium et l'ont concentré dans des portions broyées et cisaillées. On avait alors des "grès riches", dans la gamme 2-20 %, analogues à ceux rencontrés ailleurs à Oklo. Le deuxième temps a consisté en l'élimination totale de la silice libre, c'est-à-dire sous forme de quartz (qui constituait environ 90 % de la gangue), ne laissant plus que le ciment argileux et l'uranium. On passait ainsi de quelques mètres de grès riches à quelques décimètres d'argiles, les teneurs en uranium se trouvant reportées dans la gamme 20-60 %.

Cette thèse, qui a paru d'abord très audacieuse et qui n'a été pendant un certain temps qu'une hypothèse de travail, peut être considérée maintenant comme bien établie ; car non seulement elle est étayée par des arguments solides, mais surtout elle permet de rendre compte d'une foule d'observations. En particulier, parmi les effets tectoniques, une partie doit être considérée comme résultant non des actions primaires, mais de réajustements consécutifs aux "vides" créés par la désilicification (cette remarque est importante, comme on le verra plus loin). La plupart des problèmes qui paraissaient insolubles s'éclairent maintenant d'un jour nouveau. Des questions se posent encore à propos de la première phase de concentration de l'uranium, mais elles ont peu de conséquences sur le déroulement du phénomène, puisqu'il résulte de cette thèse que ce n'est pas la mise en place de l'uranium qui a déclenché les réactions, mais l'élimination de la silice. C'est donc sur le mécanisme de désilicification qu'il faut maintenant porter l'attention.

Les actions tectoniques sont susceptibles de provoquer une désilicification partielle des grès ; on a déjà indiqué qu'elles donnent lieu à des circulations de fluides ; la température ambiante était élevée (près de 200 °C) et donc la solubilité de la silice non négligeable ; il est classique d'observer des phénomènes de "mylonitisation", dans les grès broyés ; et d'ailleurs on a observé une désilicification partielle dans les grès riches voisins des zones de réaction. En particulier les effets de cisaillement dans certains niveaux de grès plus chargés en ciment argileux ont créé des "brèches tectoniques" qui représentent manifestement une étape dans l'évolution. Il semble bien cependant que ces actions auraient été tout à fait insuffisantes pour provoquer une désilicification intégrale, et que celle-ci n'a pu se produire que par l'effet des circulations d'eau très chaude engendrées par les réactions nucléaires.

Mais alors un nouveau problème se pose. Car enfin, si les réactions nucléaires ont été nécessaires pour concentrer l'uranium, il a bien fallu de l'uranium déjà concentré pour que les réactions aient lieu. C'est le problème de l'oeuf et de la poule : qui a commencé ?

Le problème a deux aspects : dans ce processus, la tectonique a fait une partie du chemin et les réactions nucléaires ont pris le relais : on peut discuter sur la part respective de ces deux actions et sur ce qui était nécessaire. Mais l'essentiel de la réponse, comme dans le cas de

l'oeuf et la poule, tient dans une autre considération, à savoir qu'il y a une multiplicité de réacteurs et qu'il y a eu propagation. Lorsqu'un réacteur fonctionnait, il provoquait une désilicification des grès voisins et permettait donc à d'autres réacteurs de devenir critiques à leur tour. Autrement dit, il a suffi que des circonstances favorables permettent l'obtention de la criticité en un point pour que les réactions se soient étendues partout de proche en proche.

Et c'est précisément la solution de ce fameux "mystère d'Oklo" que nous avons longuement évoqué : l'idée qui paraissait si audacieuse était une réalité ; ce sont bien les réacteurs qui non seulement ont façonné leur environnement ; mais qui se sont fabriqués eux-mêmes en concentrant l'uranium autour d'eux jusqu'à ce que la criticité soit atteinte ; et c'est ce qui explique la continuité des zones de réaction sur des distances considérables.

Examinons les choses de plus près. Le premier déclenchement a nécessairement eu lieu dans des grès (sans doute déjà partiellement désilicifiés). Mais ensuite, doit-on admettre que la progression se faisait dans du minerai encore essentiellement gréseux, la plus grande partie de la désilicification ayant lieu pendant les réactions elles-mêmes ? ou au contraire peut-on penser que celle-ci se faisait préalablement dans l'environnement des réacteurs, la progression s'effectuant dans du minerai déjà presque totalement argilisé, c'est-à-dire dans une configuration voisine de celle que nous connaissons ? C'est évidemment une question fondamentale du point de vue de la physique des réacteurs.

Il est probable que l'élimination des tout derniers quartz ne s'est produite qu'au sein des zones de réaction elles-mêmes : elle était favorisée par l'action conjuguée d'une température maximale et des dégâts d'irradiation qui brisaient les réseaux cristallins (d'ailleurs on sait que pratiquement tous les minéraux détritiques ont été détruits). Il semble cependant que ce dernier facteur n'était pas indispensable pour éliminer beaucoup de silice, puisqu'on trouve, par exemple à l'amont de la zone 6, des sondages avec du minerai pauvre presque totalement argilisé, dans lesquels il n'y a pas eu de réactions. Cette remarque montre que la désilicification préalable était possible ; d'autre part deux arguments militent en faveur de la deuxième branche de l'alternative.

Il y a tout d'abord un argument de criticité. Bien que le caractère très récent de ces nouvelles hypothèses n'ait pas permis d'entreprendre une étude systématique de bilans neutroniques dans les grès, il semble bien que si on reconstitue à partir des distributions actuelles les caractéristiques des grès primitifs, ou même de grès déjà partiellement désilicifiés, on trouve que la criticité n'était pas obtenue en général : il fallait des circonstances relativement exceptionnelles. Dans le cas des réacteurs "primaires", ces circonstances ont pu être réalisées par effet combiné de distributions initiales favorables (uranium déjà concentré) et d'actions tectoniques intenses, notamment des effets de cisaillement ; dans le cas général il fallait éliminer de grandes quantités de silice pour être critique.

D'autre part, il ne faut pas oublier qu'on a obtenu, par analyse fine des distributions de taux de réaction, des corrélations extrêmement remarquables, et que les calculs neutroniques peuvent justifier les résultats observés dans l'hypothèse où la configuration de l'uranium est restée identique à celle que nous connaissons. Si l'essentiel de la désilicification s'était produit pendant les réactions elles-mêmes, provoquant donc en particulier des changements de géométrie considérables, on voit mal comment ces résultats pourraient être maintenus. En outre on a observé, entre les

indices de spectre et la configuration de l'uranium, des corrélations qui semblent montrer que la porosité du minerai était du même ordre partout ; la désilicification créant des vides qui sont ensuite résorbés par tassement, ces corrélations ne peuvent se justifier que si l'essentiel du tassement était déjà réalisé.

Certes, il faut souligner que ces études fines, et les interprétations physiques correspondantes, n'ont été menées que dans certaines portions des zones 1 et 2, et que la situation pourrait être différente ailleurs, notamment dans les zones 3 à 5 : c'est une observation très importante sur laquelle on reviendra plus loin. Mais les faits suggèrent très fortement que, dans ces zones au moins, les réactions ont progressé dans du minerai qui était déjà proche de sa configuration actuelle, et donc que la désilicification a eu lieu préalablement. Autrement dit la propagation des réacteurs a précédé celle des réactions.

8. Propagation des réacteurs

Les études de propagation qui ont été faites jusqu'à maintenant mettaient en jeu d'une part un couplage neutronique, se traduisant par une destruction progressive des poisons, et d'autre part un couplage thermique, avec des effets de température en particulier sur la densité de l'eau. Il apparaît maintenant qu'il faut prendre en compte un couplage géochimique dont les effets ont été de loin les plus importants, puisque c'est l'élimination de la silice qui permettait en définitive l'obtention de la criticité.

Les courants de convection, mus par les différences de densité de l'eau, allaient vraisemblablement de bas en haut donc, puisque les couches sont inclinées, de l'aval vers l'amont des zones de réaction. Par suite la désilicification devait se faire préférentiellement à l'amont des réacteurs. On en a d'ailleurs une preuve en observant la dissymétrie entre les bordures amont et aval de la zone 6, qui a la forme d'un "tuyau de pipe" s'élevant obliquement de la zone 5 vers la zone 2. On constate que les sondages situés à l'aval sont restés entièrement gréseux, et ont de l'uranium normal, alors que ceux situés en amont sont presque totalement argilisés, et sont contaminés [17].

Or, on a vu qu'à cause du couplage thermique, la propagation des réactions a tendance à se faire préférentiellement en sens inverse de la convection, donc vers l'aval. Mais si le minerai doit être préalablement désilicifié, la propagation vers l'aval peut être rendue très difficile, sinon impossible ; il y a là apparemment une difficulté. En réalité cet antagonisme est de nature à expliquer l'intensité de l'argilisation dans les zones riches : la propagation des réactions se faisait vers l'amont, mais elle était considérablement retardée par les effets de température, de sorte que les courants chauds avaient le temps d'agir très longtemps jusqu'à une désilicification très complète de tout l'environnement.

On peut même combiner les deux idées en imaginant une progression "en saut de puce" : un réacteur A envoie de l'eau chaude à l'amont et désilicifie le minerai, mais les réactions ne peuvent progresser. Lorsque la température commence à baisser la réactivité s'améliore, et "le feu s'accroche" quelque part en amont au point B le plus favorable ; les réactions reviennent alors en arrière, c'est-à-dire vers l'aval, pour rejoindre A, tandis que la désilicification continue à l'amont de B, et ainsi de suite. Il y a donc, dans ce modèle, une progression générale des réacteurs vers

l'amont, les réactions ayant tendance au contraire à glisser constamment vers l'aval. Au total il en résulte un grand échelonnement entre les fonctionnements successifs des réacteurs élémentaires.

Par ailleurs, on a vu que les éléments de la gangue semblent avoir été constamment renouvelés au cours des réactions ; il y avait vraisemblablement des échanges continuels entre les minéraux fortement destructurés, "cassés" par les dégâts d'irradiation, et les circulations de fluides. C'est seulement une fois les réactions terminées, et après refroidissement - car la température baissait très lentement dans la phase finale des réactions et celles-ci continuaient aussi longtemps que la température n'était pas revenue à sa valeur d'équilibre - que les réseaux cristallins pouvaient se reconstituer. Il est donc probable qu'on a déplacé constamment des éléments de l'aval vers l'amont. Evidemment, cela est de nature à compliquer beaucoup l'étude des bilans neutroniques ; il faut remarquer cependant que les conséquences ne sont pas forcément très graves, dans la mesure où les réacteurs se "fabriquaient" progressivement, et où les réactions suivaient dans le même sens avec un certain décalage.

Considérons par exemple le cas du bore : il a pu être solubilisé en tout ou partie par effet combiné des dégâts d'irradiation et de l'élévation de température au moment du déroulement des réactions ; son élimination chimique s'ajoutait alors à la destruction neutronique de l'isotope 10, et il en résultait seulement une augmentation transitoire de la marge de réactivité à compenser. D'autre part le dépôt éventuel de ce bore à l'amont avait lieu avant que les réactions s'y installent. Les effets de ce déplacement s'ajoutaient donc à ceux de l'élimination de la silice, du tassement, et du couplage thermique pour compliquer les modalités de la progression, mais sans en changer fondamentalement le principe.

De même, on a envisagé dans [12] qu'il ait pu y avoir des déplacements d'uranium relativement importants, particulièrement dans la phase initiale où l'uranium était encore disséminé sous forme de pechblende dans l'ex-ciment argileux des grès, c'est-à-dire avant sa restructuration en uraninite massive (on est maintenant certain que cette restructuration a eu lieu et a été précoce). Il n'y a pas contradiction entre cette affirmation et le fait qu'on n'observe aucun dépôt d'uranium au cours des réactions qui se serait traduit par des perturbations isotopiques : en effet ce dépôt éventuel avait lieu à l'amont avant que les réactions n'y arrivent (et donc a fortiori avant la restructuration).

Il est extrêmement instructif d'observer la configuration des zones 5-6 et 2 ; la zone 6 apparaît comme un raccord oblique entre 5 et 2 ; l'ensemble s'étage sur près de quarante mètres de dénivelée. Le bas de la zone 5 comporte des épaisseurs très minces de faciès-pile dans un environnement fortement gréseux ; les argiles s'accroissent quand on va vers la zone 6, et les grès de C_1 disparaissent totalement au milieu de la zone 6. On a indiqué dans [17] qu'il y avait vraisemblablement un raccordement argilisé entre 6 et 2, avec cependant interruption des réactions ; or on peut très bien imaginer un "allumage en saut de puce" du bas de la zone 2, à travers le "cordon coupe-feu" qui sépare les deux zones. On sait enfin que la zone 2 est la plus argilisée ; et on observe en même temps un accroissement des accumulations d'uranium qui deviennent énormes en haut de cette zone ; d'ailleurs les taux de réaction extrêmement élevés de cette dernière portion peuvent s'expliquer à la fois par la richesse du minerai et des quantités importantes de bore jouant le rôle de réserve de réactivité. Toutes ces remarques ne viennent-elles pas illustrer le schéma précédent d'une longue progression vers l'amont ?

Selon cette manière de voir, il y aurait eu non seulement un échelonnement important des réactions dans le temps, mais aussi des "lignées évolutives" de réacteurs dans l'espace. Cette lente progression a pu durer des millions d'années. Tout en haut, les réacteurs ont donc eu le temps d'être longuement façonnés, et lorsque les réactions s'y sont installées, ils étaient déjà presque parfaitement stabilisés, et c'est pourquoi on y a trouvé des corrélations extrêmement remarquables. Il semble bien que ces corrélations soient beaucoup moins nettes dans la zone 5 ; n'est-ce pas parce qu'on y trouve des réacteurs plus "primitifs", moins "évolués" ?

On mesure le chemin parcouru depuis l'étude statique du réacteur isolé. Oklo, c'est beaucoup plus qu'un réacteur nucléaire, c'est un phénomène très complexe qui s'est déroulé dans l'espace et dans le temps. Désormais un aspect important des recherches doit être ce que j'appellerai une étude "géographique" des réacteurs : il faut décrire et analyser chaque secteur dans sa spécificité, et essayer de l'intégrer dans un schéma d'ensemble, afin de comprendre comment tout cela s'est enchaîné.

9. Beaucoup de problèmes

Il faut souligner que toutes ces idées sont extrêmement récentes ; il y a deux ou trois mois nous hésitions encore à accepter l'hypothèse de base avec toutes ses implications, et il a fallu un sérieux "brain storming" pour en arriver là. C'est dire que tout cela a besoin d'être approfondi et affiné.

Beaucoup de questions sont encore loin d'être claires ; je voudrais simplement mentionner quelques points. Il y a d'abord ce que j'appellerai le problème des "réacteurs primaires". Dans le modèle de la propagation amont, la désilicification et donc les réactions sont supposées ne pas progresser à l'aval du premier déclenchement. Celui-ci devrait donc se trouver à la frontière entre du faciès-pile et des grès riches, et il me semble qu'il devrait être aisément reconnaissable. Or, il y a bien des grès riches immédiatement à l'aval des zones 3-4 et 5, et d'autre part la situation observée sur le front 185 pourrait à la rigueur correspondre à ce qu'on peut attendre d'un réacteur primaire, mais ce n'est tout de même pas très convaincant. Je me demande s'il ne faut pas réfléchir à d'autres modèles de propagation. On pourrait ajouter que "l'allumage" de la zone 1 reste pour le moment mal compris.

D'autre part les réacteurs des zones 3-4 et 5 posent des problèmes, dont quelques-uns ont déjà été évoqués. En premier lieu, la criticité semble souvent très marginale et difficile à justifier ; en particulier les épaisseurs de faciès-pile sont parfois extrêmement minces. D'autre part, il existe de vastes portions où les appauvrissements isotopiques de l'uranium stagnent au voisinage de 0.69-0.70 %, cela pose un problème : en effet, si la criticité n'a pas été atteinte, les réactions auraient dû s'arrêter à plus courte distance des réacteurs proprement dits, et si elle l'a été, les réactions auraient dû continuer jusqu'à des appauvrissements plus grands à cause de la réactivité libérée par la destruction des poisons. On s'est même demandé s'il ne s'agissait pas de vastes zones de contamination.

Peut-être que toutes ces questions pourraient se résoudre simultanément, en faisant intervenir un autre phénomène dont on n'a pas parlé jusqu'à maintenant : il s'agit du tassement des terrains consécutifs à la désilicification ; n'oublions pas en effet qu'on fait disparaître 90 % du volume primitif. Le tassement s'effectue a priori différemment suivant qu'au

toit du minerai désilicifié on trouve des pélites (zones 1, 2 et 6) ou des grès sains (zones 3, 4 et 5). Dans le premier cas les pélites pèsent immédiatement sur le minerai désilicifié ; elles s'infléchissent plastiquement, et peuvent même fluer et s'entasser à l'aval ; dans le second cas, les grès sont rigides et cassants ; ils peuvent ne compenser qu'avec un certain retard la perte de volume, puis casser brutalement par compartiments. C'est effectivement ce qu'on observe : il y a toute une "tectonique de réajustement", qui mériterait d'ailleurs d'être analysée de plus près, et qui se présente différemment dans les deux cas de figure : en particulier, les décrochements successifs observés sur les affleurements des zones 3-4 et 5 s'expliquent presque sûrement de cette manière.

Il s'ensuit qu'aux trois modes de couplage entre les réacteurs dont on a déjà parlé s'en ajoute un quatrième, qui est un couplage tectonique, et qui est peut-être à l'origine de différences entre les deux types de zones. En effet si le tassement suit avec un certain retard la désilicification, cela signifie qu'il y a transitoirement de l'eau supplémentaire et cela se traduit dans le minerai riche par un gain très important de réactivité. On peut donc imaginer que lorsqu'il y avait des grès au toit des réacteurs, la réactivité était susceptible de passer, au cours de l'évolution des terrains, par un stade plus favorable que la situation finale. Cela pourrait expliquer la propagation des réactions dans des secteurs où le faciès-pile est très mince, et également l'arrêt prématuré des réactions par tassement des terrains, lorsque celui-ci se faisait avec un peu de retard.

On voit qu'il y a encore énormément de problèmes sur lesquels il faudrait réfléchir davantage, et tout cela devrait naturellement être mieux étayé par des observations , et par des calculs de simulation. Il y a encore beaucoup de travail à faire. Ce qui est très intéressant est que, pour la première fois peut-être, nous avons l'impression que nous posons mieux les problèmes, et l'impression que nous tenons un très bon fil directeur, riche de promesses. Bien sûr, on ne peut pas exclure qu'on ne se retrouvera pas prochainement dans la même situation qu'il y a quelques mois, où nous avons eu brusquement le sentiment que nous n'avions rien compris, et que tout était à reprendre sur de nouvelles bases.

J'ai parlé tout à l'heure de "roman à suspense". Le phénomène d'Oklo ne nous aura pas ménagé les surprises : qui aurait pensé, il y a seulement six mois, que des réactions nucléaires avaient pu remodeler un gisement d'uranium ? Au moment de sa découverte, l'existence même d'un réacteur naturel paraissait quelque chose de tout à fait extraordinaire, presque magique ; pourtant nous nous y sommes habitués, et maintenant, au fond, cela nous paraît très banal. Mais au fur et à mesure que nous avons progressé dans cette étude, les problèmes se sont constamment renouvelés, et je crois pouvoir dire qu'en cinq ans notre curiosité n'a pas eu le temps de s'émousser.

REFERENCES

[1] NAUDET, R., «Mécanismes de régulation des réactions nucléaires», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 589.
[2] NAUDET, R., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/23.
[3] WEBER, F., Ibid., IAEA-TC-119/24.
[4] Table ronde sur les aspects *Sciences de la Terre,* Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 605.

[5] OPENSHAW, R., et al., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/9.
[6] VIDALE, Rosemary J., Ibid., IAEA-TC-119/39.
[7] HOLLIGER, P., et al., Ibid., IAEA-TC-119/20.
[8] NAUDET, R., Ibid., IAEA-TC-119/21.
[[9] REUSS, P., «Modèles d'évolution de l'uranium et des produits de fission», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 565.
[10] COWAN, G.A., et al., «Some United States studies of the Oklo phenomenon», Ibid., p. 341.
[11] Table ronde sur les aspects *Physique des réacteurs,* Ibid., p. 625.
[12] NAUDET, R., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/25.
[13] GAUTHIER-LAFAYE, F., et al., «Analyse tectonique du gisement d'Oklo», Le phénomène d'Oklo (C.R. Coll. Libreville, 1975), AIEA, Vienne (1975) 103.
[14] GAUTHIER-LAFAYE, F., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/3.
[15] NAUDET, R., La géologie autour du phénomène d'oklo: essai de synthèse, Rapport interne (novembre 1976).
[16] GAUTHIER-LAFAYE, F., WEBER, F., Présents comptes rendus, IAEA-TC-119/8.
[17] NAUDET, R., RENSON, C., Ibid., IAEA-TC-119/5.

Discussion générale

S.A. DURRANI: Je voudrais que M. Naudet en dise un peu plus sur la durée des réactions; quels sont ses arguments pour parler de plusieurs millions d'années?

R. NAUDET: Il faut bien distinguer durée de fonctionnement d'un réacteur et durée du phénomène. On a mesuré avec une certaine précision la durée de fonctionnement au niveau du sondage SC 36 (et du KN 50 qui se trouve tout près), c'est-à-dire en haut de la zone 2; on a trouvé une durée de l'ordre de 600 000 à 800 000 ans. A cet endroit l'accumulation d'uranium est très grande et les taux de réaction très élevés; mais j'ai indiqué qu'il y a d'autres portions des zones de réaction (bas de la zone 5), où le temps de fonctionnement a été beaucoup plus court. Donc l'ordre de grandeur, pour un réacteur individuel, est d'un demi-million d'années, avec une marge de variation probablement assez grande. Pour ce qui est du phénomène dans son ensemble, si on admet une propagation assez lente, sur des distances qui sont tout de même considérables, donc un échelonnement peut-être important, on peut dire qu'au total le phénomène a duré beaucoup plus longtemps que le fonctionnement de chaque réacteur. Ainsi cette durée totale a été probablement de plusieurs millions d'années, mais bien entendu on n'a aucun élément permettant de donner un chiffre précis.

B. POTY: Je crois que le fait qu'il y ait eu une surrection entre la diagenèse siliceuse et la diagenèse dolomitique, que l'on peut estimer à environ 800 mètres, peut nous donner un ordre de grandeur de l'intervalle de temps séparant ces deux événements (et je rappelle que les réactions se situent à l'intérieur de l'intervalle). Les Alpes à l'heure actuelle s'érodent à la vitesse de 1 mm par an; à la même vitesse cela ferait 800 000 ans; et même si on admet que la vitesse est deux ou trois fois plus lente, cela ne fait que quelques millions d'années.

R. NAUDET: Je mets un peu en doute cette manière de calculer. On part d'un maximum d'enfouissement, et avant qu'il y ait érosion il faut qu'il y ait une remontée du socle, c'est-à-dire une nouvelle phase orogénique; ce n'est peut-être pas obligatoire, mais les choses peuvent se passer de cette manière, et dans ce cas la remontée n'est pas forcément inmédiate.

B. POTY: Oui, c'est vrai.

R. NAUDET: Je serais très heureux si M. Cowan et M. Horowitz voulaient bien commenter les interprétations que j'ai données du phénomène, et éventuellement qu'ils fassent d'autres suggestions.

G.A. COWAN: A Libreville, j'ai défendu l'hypothèse suivant laquelle l'uranium avait pu continuer à se mettre en place pendant les réactions; je ne suis pas enclin à défendre cette thèse avec la même ardeur maintenant. Mais j'avoue que je ne comprends pas bien votre présente position en ce qui concerne la stabilité de l'uranium. Vous continuez d'affirmer que la géométrie a été préservée, et que toutes les informations que l'on peut tirer de la neutronique ou des distributions d'appauvrissement isotopique plaident en faveur d'un haut degré de stabilité; et en même temps vous semblez admettre la possibilité de changements de géométrie ou de remobilisations pendant le fonctionnement des réacteurs.

R. NAUDET: En premier lieu, je rappelle que l'idée suivant laquelle l'uranium a continué à se concentrer pendant les réactions se pose maintenant en termes tout à fait différents, puisqu'on pense que la mise en place de l'uranium était terminée, mais qu'elle a été suivie par un autre mode de concentration: l'élimination de la silice. On ne peut donc plus affirmer que la concentration de l'uranium ne s'est pas poursuivie pendant les réactions; il est même vraisemblable qu'elle a continué au moins dans certains cas, c'est-à-dire que la dissolution de la silice ne s'est terminée que pendant les réactions.

Il s'agit d'un changement de géométrie, mais il faut remarquer que celui-ci n'est pas incompatible avec une préservation de la distribution des taux de réaction, puisque c'est essentiellement un changement d'échelle de longueur (l'uranium pouvait conserver sa configuration); en outre comme je l'ai dit, je pense que la situation n'a pas été identique partout: dans certains cas les modifications de géométrie ou de composition au cours des réactions ont peut-être été importantes; par contre dans le haut de la zone 2, qui a été le plus étudié, il est probable que la désilicification était presque complètement achevée au moment où les réactions se sont déclenchées, et c'est à mon avis la raison pour laquelle on observe d'aussi bonnes corrélations.

Maintenant, une deuxième question se pose: y a-t-il eu une certaine remobilisation de l'uranium au cours des réactions? J'ai discuté ce point dans mon autre rapport de synthèse (IAEA-TC-119/25, présents comptes rendus). Là encore il n'y a pas contradiction entre l'idée de déplacements assez importants et ce qui a été dit auparavant. Les faits demeurent: pendant les réactions, il est possible que de l'uranium ait été éliminé, mais apparemment il n'en a pas été apporté. Il faut se souvenir que les réactions ont été échelonnées: au cours du phénomène, de l'uranium remobilisé pouvait se mettre en place quelque part avant que les réactions se déclenchent à cet endroit. C'est ainsi que j'ai suggéré qu'au cours d'une progression amont des réactions, on a très bien pu déplacer des masses importantes d'uranium vers l'amont, sans créer de perturbations notables dans les distributions isotopiques.

J. HOROWITZ: La théorie qu'a exposée M. Naudet me paraît extrêmement séduisante. La première question qui m'est venue à l'esprit rejoint celle qui vient d'être posée par M. Cowan; on était tellement content de trouver des structures fines explicables par la neutronique, et maintenant on ne comprend plus très bien ce qui reste de cette satisfaction. Le deuxième point, c'est le problème du réacteur primaire, ce qui s'est passé tout au début; cela reste un peu un mystère dans le cadre de votre théorie. Et enfin, puisque vous avez fait allusion aux études qu'il faudrait entreprendre, est-ce que vous pouvez esquisser le programme d'études neutroniques que vous proposeriez pour l'année qui vient?

R. NAUDET: Pour ce qui est de la première question, je pense avoir déjà répondu partiellement. Je reconnais qu'on s'est peut-être placé au début dans une optique trop optimiste, en prétendant que la physique des réacteurs s'appliquait parfaitement, et pouvait tout retrouver. On sait maintenant que les corrélations ne sont jamais parfaites, qu'il y a beaucoup plus de degrés de liberté qu'on ne le pensait au début, que les interprétations doivent être prudentes. Néanmoins, je ne renie rien: je continue à dire qu'on peut faire de la très belle physique des réacteurs à Oklo, et qu'en particulier on peut interpréter très finement les distributions. Le fait nouveau, c'est que ce n'est peut-être pas vrai partout. C'est sans doute une chance qu'on ait commencé par étudier les réacteurs les plus «évolués» parce qu'on ne se serait probablement pas intéressé autant à des réacteurs dans lesquels les corrélations auraient été moins bien respectées.

En ce qui concerne les «réacteurs primaires» le problème se décompose en deux. Il y a d'abord la possibilité d'obtention de la criticité dans des grès de teneur moyenne; il faut faire des calculs, mais je pense que ce n'est pas du tout improbable: si on avait du minerai à 20% sur une épaisseur suffisante, et si les cisaillements ont provoqué une fracturation et une dissolution de silice suffisantes pour qu'il y ait assez d'eau, le minerai pouvait être critique; j'ai dit qu'il fallait des circonstances favorables, qui n'ont pas été réalisées partout, mais il n'y a pas d'impossibilité.

L'autre problème que j'ai soulevé, et qui me préoccupe davantage, est celui de l'identification d'un tel réacteur; il m'a semblé qu'on devrait le «voir» à l'aval

des zones de réaction, et je me suis même demandé s'il n'était pas ailleurs, c'est-à-dire s'il n'y avait pas un réacteur encore plus à l'aval qui aurait échappé aux investigations, et qui aurait été à l'origine de tout l'ensemble; c'est d'ailleurs pour cela que je regrette tellement qu'on ait manqué la «fermeture» aval des zones 3–4 et 5. Mais, à vrai dire, je reconnais que je n'ai pas beaucoup d'arguments pour affirmer cela, car on peut sûrement imaginer d'autres modèles de propagation. Les réactions ont pu commencer n'importe où, et il y a peut-être eu un assez grand nombre de réacteurs primaires qui sont maintenant impossibles à identifier.

En ce qui concerne le programme d'études neutroniques, je vois en effet tout un ensemble de volets où il me semble qu'il y a du travail très intéressant à faire.

En premier lieu, il y a justement l'étude de la criticité dans les grès, en jouant sur les deux paramètres: degré de désilicification, et degré de tassement consécutif à l'élimination de la silice. Il faut partir des distributions que nous observons actuellement (avec une gangue argileuse), et reconstituer les distributions antérieures à différents stades d'évolution; il y a d'ailleurs de nombreux cas de figure. En outre, il faut s'appuyer sur ce qu'on observe dans certains sondages de bordure, qui montrent des étapes intermédiaires de désilicification; il est d'ailleurs souhaitable de faire sur ces sondages des analyses chimiques pour obtenir des bilans corrects, et mieux connaître par quelles étapes on est passé, et ensuite recouper tout cela par des calculs.

Un deuxième volet consisterait à reprendre les études d'évolution de bilan neutronique et de contrôle par la température, en jouant davantage sur le paramètre porosité. Jusqu'à maintenant, on a été très timide dans ce domaine, car on pensait que les valeurs élevées de la porosité auxquelles on était conduit s'expliquaient uniquement par la fracturation des terrains, mais la dissolution de la silice est évidemment de nature à donner lieu, au moins transitoirement, à des valeurs probablement beaucoup plus grandes. En outre, c'est un paramètre susceptible de varier au cours du temps; comme je l'ai dit cela explique peut-être beaucoup de choses.

L'essentiel des calculs doit porter évidemment sur la propagation des réactions, c'est-à-dire les études de simulation. Il faut les reprendre maintenant sur des bases tout à fait nouvelles, en tenant compte des résultats des deux autres études que je viens de mentionner.

Il n'y a pas que les calculs neutroniques. Il faut examiner beaucoup plus sérieusement les problèmes de transfert thermique. Par ailleurs, il est nécessaire d'apporter beaucoup d'attention à ce que j'ai appelé l'étude «géographique» des zones de réaction; je pense notamment qu'il y a certaines situations particulièrement intéressantes qu'il faudrait «décortiquer» davantage. Mais il est certain que les études neutroniques, à ce stade de notre recherche, sont très intéressantes, et peuvent apporter une contribution importante à la compréhension de l'ensemble. Il est peut-être dommage d'ailleurs qu'il n'y ait pas davantage de laboratoires à s'intéresser à ce genre d'études.

A.J. POLLIART: Oui. On constate que dans les différents pays représentés ici, on a travaillé à peu près dans tous les secteurs, sauf peut-être en physique des réacteurs. Peut-être certains d'entre vous peuvent-ils nous indiquer leur intérêt dans ce domaine; c'est avec le plus grand plaisir que l'Agence soutiendra les efforts dans les études qui seront entreprises. Je pense principalement, en plus de l'équipe du Dr. Cowan bien entendu, à M. Pchelkin, et aussi à nos amis du Royaume-Uni et d'Italie.

G.A. COWAN: Je suis sûr qu'aux Etats-Unis nous allons continuer à nous intéresser à ces questions de physique neutronique. A ce propos, M. Naudet, utilisez-vous pour vos calculs un modèle sphérique ou à deux dimensions; comment traitez-vous cette géométrie très particulière des réacteurs?

R. NAUDET: Effectivement, il faudrait dans certains cas pouvoir traiter les problèmes à deux ou même trois dimensions. Ce que j'utilise est une approximation très classique, c'est-à-dire que lorsque par exemple j'étudie la propagation dans le sens d'une dimension principale, j'introduis un laplacien transversal variable suivant le milieu. Autrement dit, on tient compte des autres dimensions par un effet de fuite neutronique; c'est la schématisation qu'on fait pour les réacteurs industriels, qui est assez satisfaisante quand la géométrie n'est pas trop irrégulière mais est certainement plus contestable dans le cas de situations très compliquées.

U. FARINELLI: Je voudrais dire qu'en principe, en Italie, nous sommes intéressés à poursuivre des études de physique des réacteurs sur le phénomène d'Oklo. Nous avions d'ailleurs fait un travail avant le colloque de Libreville sur l'effet des hétérogénéités, qui nous semblait assez important; j'ai appris que M. Naudet a fait ces calculs lui aussi. Nous allons examiner ce qui pourrait être fait.

J'avais une question pour M. Naudet, mais il y a déjà répondu en partie. Dans le contrôle des réactions peut-on supposer une vaporisation partielle de l'eau, ou seulement un changement de densité avec la température? En d'autres termes, est-ce que le réacteur était un Westinghouse ou un General Electric?

R. NAUDET: Ni l'un, ni l'autre, c'était un supercritique; je crois que personne n'en a encore construit.

V.A. PCHELKIN: En ce qui concerne la proposition de M. Polliart, qui demande si l'Union soviétique pourrait intervenir dans les travaux neutroniques, c'est avec gratitude que j'accueille cette proposition, et dès mon retour, je verrai s'il est possible de participer à des études portant sur ce problème qui est du plus haut intérêt.

D'autre part, je relève que M. Naudet, à juste titre, a insisté sur la nécessité de recherches portant à la fois sur les aspects physiques du problème et sur la géologie. A ce propos, je voudrais indiquer qu'il me semble y avoir aussi des problèmes importants de chimie physique. Je crois que la recherche sur les problèmes posés par Oklo souffre quelque peu de n'être pas suffisamment fondée sur l'étude des aspects physico-chimiques. Dans ce contexte en particulier, il

faudrait étudier de façon plus détaillée les processus associés à la réduction et l'oxydation – étant donné qu'il y a là des mécanismes extraordinairement compliqués – en tenant compte des composés organiques, des différentes valences du fer, etc. Il faudrait approfondir les aspects thermodynamiques de ces processus.

R. NAUDET: Je partage entièrement l'avis de M. Pchelkin sur l'intérêt des études physico-chimiques. Il y a effectivement beaucoup de problèmes, qui jusqu'à maintenant n'ont pas été sérieusement abordés. En ce qui concerne les questions d'oxydo-réduction par exemple, je rappelle qu'on a trouvé dans les zones de réaction, et seulement là, une double anomalie en europium et cérium qui semble montrer qu'on a eu successivement une atmosphère réductrice et une atmosphère oxydante; il faudrait avoir une meilleure idée des possibilités d'oxydation pendant le fonctionnement des réacteurs. En ce qui concerne le fer, on a supposé qu'il y avait de l'hématite préexistante, mais celle-ci aurait dû rester stable, et on n'a pas trouvé trace de l'irradiation du fer correspondant; en fait on est très ignorant sur le rôle du fer et il y a encore beaucoup de choses qu'on n'a pas comprises.

Il y a d'autre part deux problèmes qui me paraissent importants par leurs conséquences sur la physique des réacteurs. L'un est celui de l'eau, dont on a déjà parlé; on a utilisé pour les calculs un modèle certainement trop simpliste; il faudrait savoir de quelle manière l'eau pouvait être liée aux minéraux, dans l'état de destructuration où ils se trouvaient. L'autre est le problème du bore, qui est fondamental pour le bilan neutronique; dans quelle mesure et dans quelles conditions a-t-il pu se déplacer? Pour comprendre comment les choses se sont passées il serait certainement très important de procéder à des études plus approfondies sur la chimie du bore dans différentes situations, c'est-à-dire en tenant compte de son état chimique (borate, incorporation dans les phyllosilicates, etc.), et à différentes températures.

Rosemary J. VIDALE: Je voudrais appuyer ce point de vue. Il y a, à Oklo, énormément de problèmes de chimie physique concernant les solutions aqueuses, et aussi les solutions solides, avec des compositions tout à fait inusuelles.
M. Naudet, comment pensez-vous reconnaître un réacteur primaire?

R. NAUDET: Je pensais qu'un tel réacteur devrait être reconnaissable, d'une part à son environnement (la désilicification devrait être incomplète à l'aval), et d'autre part à sa composition: en effet, puisque la désilicification a dans ce cas suivi les réactions, il devrait y avoir des perturbations isotopiques importantes; mais je reconnais que ce n'est pas très clair dans mon esprit; il n'est peut-être pas si facile d'identifier une telle situation, et comme je l'ai dit tout à l'heure, on peut sans doute imaginer des modèles dans lesquels les points de départ seraient pratiquement impossibles à retrouver.

J.A. GOEDKOOP: L'inclinaison des couches était-elle à cette époque la même qu'aujourd'hui? D'autre part, quelle est en définitive la position de M. Naudet sur le sens de la propagation des réactions, puisqu'il y a des arguments aussi bien pour l'amont que pour l'aval?

R. NAUDET: Je crois que les géologues ont de bons arguments pour penser que l'inclinaison des couches était déjà analogue à celle que nous observons aujourd'hui. En ce qui concerne le sens de la propagation, j'ai exprimé une préférence pour l'amont, à cause de la porosité attribuée à la désilicification, qui devait se faire préférentiellement dans le sens des courants de convection. Mais je reconnais que la question n'est pas définitivement résolue. D'une part la chaleur se transmettait aussi par conduction, et il devait y avoir une certaine désilicification vers l'amont. D'autre part il faut peut-être revoir les effets de la température; dans le cas d'une porosité très grande, c'est-à-dire dans des réseaux en partie surmodérés, la densité de l'eau a des effets beaucoup moins grands. Donc je crois qu'il faut reprendre complètement les calculs de propagation. Par ailleurs la question se présente sans doute différemment suivant que l'encaissant est gréseux ou pélitique.

J. HOROWITZ: Avec votre permission, M. le Président, je voudrais dire encore quelques mots. Je suis frappé par la tournure qu'ont prise ces études. Il y a un an, beaucoup pensaient qu'on était venu à bout de ce problème d'Oklo, qu'il subsisterait des points d'interrogation, mais que l'on avait vraiment épuisé la plupart des joies. Et puis de nouvelles idées, la conjonction des efforts faits dans le domaine de la géologie et de la neutronique, ont fait que le problème a rebondi, et je pense que l'année qui vient sera rendue extrêmement attrayante aussi bien par des considérations théoriques que par la reprise de certaines études expérimentales. Je crois que nous devons remercier tous l'Agence pour l'intérêt qu'elle porte à ce problème qui, comme l'a dit M. Naudet, se présente un peu comme un roman à suspense.

A.J. POLLIART: Je remercie M. Horowitz des paroles très aimables qu'il vient de prononcer. Il est certain que l'Agence va coordonner la suite des efforts entrepris et les faciliter dans toute la mesure de ses moyens. C'est une des conclusions de nos trois jours de travaux.

PRESIDENTS

Séance I	G.A. COWAN	Etats-Unis d'Amérique
Séance II	R.E. JACKSON	Canada
Séance III	A.T. JAKUBICK	République fédérale d'Allemagne
Séance IV	V.A. PCHELKIN	Union des Républiques socialistes soviétiques

ANIMATEURS

Séances V et VI	F. WEBER	France
	W.J. MAECK	Etats-Unis d'Amérique
	K.E. APT	Etats-Unis d'Amérique
	G.A. COWAN	Etats-Unis d'Amérique
	R. NAUDET	France

SECRETARIAT SCIENTIFIQUE

R. NAUDET	Commissariat à l'énergie atomique, Centre d'études nucléaires de Saclay, Gif-sur-Yvette, France
A.J. POLLIART	Division de l'énergie nucléaire et des réacteurs, AIEA, Vienne

REDACTION

Coordination et correction	Arlette GUILLON	Division des publications, AIEA, Vienne
Synthèse des discussions	L. LIEBERMAN	Division des services linguistiques, AIEA, Vienne

LISTE DES PARTICIPANTS

LIST OF PARTICIPANTS

ALLEMAGNE, REPUBLIQUE FEDERALE D'
GERMANY, FEDERAL REPUBLIC OF

Jakubick, A.T.	Kernforschungszentrum, Postfach 3640, D-7500 Karlsruhe

BELGIQUE
BELGIUM

Bonne, A.A.	Centre d'étude de l'énergie nucléaire (CEN/SCK), Boeretang 200, B-2400 Mol
Gillon, L.P.	Université de Louvain, Chemin du Cyclotron 2, B-1348 Louvain-la-Neuve

CANADA

Jackson, R.E.	562 Booth Street, Inland Waters, Directorate, Environment Canada, Ottawa, Ontario, KIA OE7

ETATS-UNIS D'AMERIQUE
UNITED STATES OF AMERICA

Apt, K.E.	University of California, Los Alamos Scientific Laboratory, P.O. Box 1663, Los Alamos, NM 87545
Brookins, D.G.	Department of Geology, University of New Mexico, Albuquerque, NM 87131

ETATS-UNIS D'AMERIQUE (suite)
UNITED STATES OF AMERICA (cont.)

Cowan, G.A.	University of California, Los Alamos Scientific Laboratory, P.O. Box 1663, Los Alamos, NM 87545
Maeck, W.J.	Idaho National Engineering Laboratory, Allied Chemical Corporation – Idaho Chemical Programs, 550 Second Street, Idaho Falls, ID 83401
Vidale, Rosemary J.	CNC-11, MS-514, Los Alamos Scientific Laboratory, Los Alamos, NM 87545
Volborth, A.	North Dakota State University, Chemistry Department, Fargo, ND 58102

FRANCE

Alpern, B.	CERCHAR Industrie, B.P. 27, F-60103 Creil
Bonhomme, M.	Centre de sédimentologie et géochimie de la surface, 1 rue Blessig, F-67084 Strasbourg Cedex
Branche, G.	COGEMA/DRM, B.P. 99, F-92320 Chatillon-sous-Bagneux
Brousse, R.	Laboratoire de pétrographie-volcanologie, Université Paris-Sud, F-91405 Orsay
Carrie, R.	COGEMA/GAM, 92 avenue de Montredon, F-13266 Marseille Cedex 02
Cesario, J.	DAM, Service de radiochimie, BIII, CEA, Centre d'études de Bruyères-le-Chatel, B.P. 561, F-92542 Montrouge Cedex
Chantret, F.	COGEMA, Service de minéralogie, B.P. 99, F-92320 Chatillon-sous-Bagneux
Connan, J.	Société nationale Elf-Aquitaine (P), Dpt Laboratoire géologie, Centre Micoulau, F-64000 Pau

FRANCE (suite)
FRANCE (cont.)

Devillers, C.	Laboratoire de spectrométrie de masse,DRA/SAECNI, CEA, Centre d'études nucléaires de Saclay, B.P.2, F-91190 Gif-sur-Yvette
Dran, J.C.	Laboratoire René Bernas, Université Paris-Sud, B.P. 1, F-91406 Orsay
Fréjacques, C.	Division de chimie, CEA, Centre d'études nucléaires de Fontenay-aux-Roses, B.P. 6, F-92260 Fontenay-aux-Roses
Fritz, B.	Université Louis Pasteur, Institut de géologie, 1 rue Blessig, F-67084 Strasbourg Cedex
Gauthier-Lafaye, F.	Université Louis Pasteur, Institut de géologie, 1 rue Blessig, F-67084 Strasbourg Cedex
Geffroy, J.	COGEMA/DRM, B.P. 99, F-92320 Chatillon-sous-Bagneux
Hagemann, R.	DRA/SAECNI, CEA, Centre d'études nucléaires de Saclay, B.P. 2, F-91190 Gif-sur-Yvette
Havette, Andrée	Laboratoire de pétrographie-volcanologie, Université Paris-Sud, Bât. 504, F-91405 Orsay
Holliger, P.	Laboratoire de spectrométrie de masse, DRA/SAECNI, CEA, Centre d'études nucléaires de Saclay, B.P. 2, F-91190 Gif-sur-Yvette
Horowitz, J.	Dg – IRF, CEA, Centre d'études nucléaires de Saclay, B.P. 2, F-91190 Gif-sur-Yvette
Lévêque, P.	Département de chimie appliquée, CEA, Centre d'études nucléaires de Fontenay-aux-Roses, B.P. 6, F-92260 Fontenay-aux-Roses
Lucas, Monique	Laboratoire de spectrométrie de masse, DRA/SAECNI, CEA, Centre d'études nucléaires de Saclay, B.P. 2, F-91190 Gif-sur-Yvette
Maurette, M.	Laboratoire René Bernas, Université Paris-Sud, B.P. 1, F-91406 Orsay

FRANCE (suite)
FRANCE (cont.)

Moreau, M.	COGEMA/DRM, B.P. 99, F-92320 Chatillon-sous-Bagneux
Naudet, R.	DEDR – Projet Franceville, CEA, Centre d'études nucléaires de Saclay, B.P. 2, F-91190 Gif-sur-Yvette
Neuilly, Michèle	SACI, CEA, Centre d'études nucléaires de Cadarache, B.P. 1, F-13115 Saint-Paul-lez-Durance
Oberlin, Agnès	Laboratoire Marcel Mathieu, Université d'Orléans, F-45045 Orléans-la-Source
Openshaw, R.	Centre de recherches pétrographiques et géochimiques, Case officielle n°1, F-54500 Vandoeuvre-lès-Nancy
Pagel, M.	Centre de recherches pétrographiques et géochimiques, Case officielle n°1, F-54500 Vandoeuvre-lès-Nancy
Petit, J.C.	Laboratoire René Bernas, Bât. 108, Université Paris-Sud, B.P. 1, F-91406 Orsay
Pfiffelmann, J.P.	Compagnie de Mokta, Tour Maine-Montparnasse, 33 avenue du Maine, F-75755 Paris Cedex 15
Poty, B.	Centre de recherches pétrographiques et géochimiques, Case officielle n° 1, F-54500 Vandoeuvre-lès-Nancy
Poupard, D.	DAM, Service de radiochimie BIII, Centre d'études de Bruyères-le-Chatel, B.P. 561, 92542 Montrouge Cedex 02
Renson, C.	DEDR/DEMT, CEA, Centre d'études nucléaires de Saclay, B.P. 2, F-91190 Gif-sur-Yvette
Reuss, P.	DEDR/SERMA, CEA, Centre d'études nucléaires de Saclay, B.P. 2, F-91190 Gif-sur-Yvette
Roth, E.	DRA, CEA, Centre d'études nucléaires de Saclay, B.P. 2, F-91190 Gif-sur-Yvette

FRANCE (suite)
FRANCE (cont.)

Ruffenach, J.C.	Laboratoire de spectrométrie de masse, DRA/SAECNI, CEA, Centre d'études nucléaires de Saclay, B.P. 2, F-91190 Gif-sur-Yvette
Ruhland, M.	Université Louis Pasteur, Institut de Géologie, 1 rue Blessig, F-67084 Strasbourg Cedex
Samson, P.	MINATOME, 69 rue Dutot, F-75005 Paris
Stefani, R.	DCA, CEA, Centre d'études nucléaires de Grenoble, B.P. 85, Centre de tri, F-38041 Grenoble Cedex
Vandenbroucke, Mireille	Institut français du pétrole, B.P. 311, F-92506 Rueil-Malmaison Cedex
Weber, F.	Université Louis Pasteur, Institut de géologie, 1 rue Blessig, F-67084 Strasbourg Cedex
Yvon, J.	Commissariat à l'énergie atomique, 29-33 rue de la Fédération, B.P. 510, F-75752 Paris Cedex 15

ITALIE
ITALY

Farinelli, U.	CNEN, CSN Casaccia, I-00060 Santa Maria di Galeria, Rome

JAPON
JAPAN

Kamada, H.	National Institute of Radiological Sciences, Nakaminato Branch, 3609 Nyudo Isozaki, Nakaminato City, Ibaragi Prefecture, 311–12
Morisawa, S.	Department of Sanitary Engineering, Faculty of Engineering, Kyoto University, Kyoto City 606
Okuda, H.	Radwaste Management Center, Toranomon 2-8-10, Minato-ku – 2-Chome, Tokyo 105

PAYS-BAS
NETHERLANDS

Goedkoop, J.A.	Netherlands Energy Research Foundation ECN, Postbox 1, Petten Nh

ROYAUME-UNI
UNITED KINGDOM

Bowles, J.F.W.	Institute of Geological Sciences, Geochemical Division, 64-78 Gray's Inn Road, London WC1X 8NG
Dearnaley, G.	A.E.R.E., Harwell, Didcot, Oxon
Durrani, S.A.	Department of Physics, University of Birmingham, P.O. Box 363, Birmingham B15 2TT
Simpson, P.R.	Institute of Geological Sciences, Geochemical Division, 64-78 Gray's Inn Road, London WC1X 8NG
Sowerby, M.G.	A.E.R.E., Harwell, Didcot, Oxon

SUISSE
SWITZERLAND

Genoud, J.P.	Laboratoire de génie atomique, Ecole polytechnique fédérale de Lausanne, 33 av. Cour, CH-1000 Lausanne

TCHECOSLOVAQUIE
CZECHOSLOVAKIA

Kašpar, J.	Institute of Experimental Mineralogy and Geochemistry, Jilská 16, 110 00 Prague 1

UNION DES REPUBLIQUES SOCIALISTES SOVIETIQUES
UNION OF SOVIET SOCIALIST REPUBLICS

Pchelkin, V.A.	V.I. Vernadskovo Institute of Geochemistry and Analytical Chemistry, USSR Academy of Sciences, Moscow

ORGANISATION
ORGANIZATION

ORGANISATION DE COOPERATION ET DE DEVELOPPEMENT ECONOMIQUES (AGENCE POUR L'ENERGIE NUCLEAIRE) – OCDE (AEN)

ORGANISATION FOR ECONOMIC CO-OPERATION AND DEVELOPMENT (NUCLEAR ENERGY AGENCY) – OECD (NEA)

Gera, F.	OCDE (AEN), 38 Bd Suchet, F-75016 Paris
Taylor, D.M.	OCDE (AEN), 38 Bd Suchet, F-75016 Paris

INDEX DES AUTEURS
AUTHOR INDEX

Les chiffres arabes en italiques indiquent la première page du mémoire de l'auteur, les autres chiffres arabes les interventions dans les discussions.

Italic Arabic numerals refer to the first page of a paper by the author concerned. Other Arabic numerals denote questions and comments in discussions.

Alpern, B.: *333,* 630, 632, 633, 637, 638
Apt, K.E.: 306, *535, 677,* 690, 691
Arafa, S.: *353*
Balagna, J.P.: *391, 677*
Besnus, Y.: *35*
Bishop, W.P.: *700*
Bonhomme, M.: *19,* 23, 24, 676
Bowles, J.F.W.: *297,* 520
Brookins, D.G.: 225, *243,* 264, 265, 638, 640, 675, *677,* 690, 712
Brousse, R.: 24, 227, 241
Bryant, E.A.: *677*
Cesario, J.: *473*
Chantret, F.: 72, 494, 631
Chevalier, C.: *407*
Connan, J.: 296, 351
Cowan, G.A.: 18, 304, *391,* 396, 405, 520, *535, 677, 693,* 707, 708, 713, 735, 738
Daniels, W.R.: *677*
Dearnaley, G.: 708
Delmore, J.E.: *521*
Devillers, C.: 405, *495,* 511, *543, 553,* 675
Dozol, J.F.: *433*
Dran, J.C.: *375*
Duffy, C.J.: *229*
Duraud, J.P.: *375*
Durrani, S.A.: *353,* 373, 734
Eggleston, R.L.: *521*
Farinelli, U.: 541, 738
Fréjacques, C.: 709, 712
Fritz, B.: 640
Gancarz, A.J.: *513*
Gauthier-Lafaye, F.: *25, 35,* 72, 73, *75, 199*
Geffroy, J.: 24, 511, 620, 690, 708
Goedkoop, J.A.: 739
Hagemann, R.: 227, *407, 543,* 552, 691
Havette, Andrée: *397,* 405, 708
Hendry, G.L.: *353*
Holliger, P.: *553*
Horowitz, J.: 736, 740
Jakubick, A.T.: 264, 265, 396, 707, 710
Khazal, K.A.R.: *353*
Langevin, Y.: *375*
Leachman, R.B.: *700*
Leclerc, J.: *19*
Lecomte, T.: *543*
Lucas, Monique: *407,* 432
Maeck, W.J.: 432, 493, *521, 535,* 541, 673–675, 713
Maurette, M.: *375,* 388
Ménès, J.: *495*

Naudet, R.: *3,* 18, *131, 151,* 186, 373, 396, *397, 407, 433, 473,* 493, 494, 509, 511, *569, 589, 601,* 619, 620, 633, 641, *643,* 674, 676, 710, 712, *715,* 734–740
Neuilly, Michèle: *433*
Oberlin, Agnès: *307*
Openshaw, R.: *267,* 296
Pagel, M.: 73, *267*
Pchelkin, V.A.: 73, 186, 305, 552, 619, 690, 738
Petit, J.C.: *375,* 388
Polliart, A.J.: 738, 740
Poty, B.: 23, 72, 225, 226, 233, 240, 264, *267,* 305, 306, 510, 619, 634, 636, 638, 640, 673–675, 691, 735
Poupard, D.: *473*
Renson, C.: *131, 151, 407*
Retali, G.: *553*
Roth, E.: 24, 305, 619, 638, 674
Rouzaud, J.N.: *307*
Ruffenach, J.C.: *441*
Ruhland, M.: *25*
Simpson, P.R.: 227, 234, *297,* 304–306, 493, 620, 638, 691, 707
Spraktes, F.W.: *521*
Stefani, R.: 674
Vandenbroucke, Mireille: *307,* 351, 630–632, 635
Vidale, Rosemary J.: 24, 226, 234, *235,* 241, 388, 639, 640, 675, *677,* 739
Weber, F.: *19, 35, 189, 199,* 225, 226, 227, 241, 296, 351, *623,* 630–632, 635, 637–641, 676

INDEX DES NUMEROS DES MEMOIRES
INDEX OF PAPER NUMBERS

Numéro du mémoire IAEA-TC-119/–	Auteurs	Page
1	Naudet	3
2	Gauthier-Lafaye et al.	35
3	Gauthier-Lafaye	75
4	Naudet, Renson	131
5	Naudet, Renson	151
6	Bonhomme et al.	19
7	Weber	189
8	Gauthier-Lafaye, Weber	199
9	Openshaw et al.	267
10	Vandenbroucke et al.	307
11	Alpern	333
12	Dran et al.	375
13	Havette, Naudet	397
14	Lucas et al.	407
15	Neuilly et al.	433
16	Ruffenach	441
17	Cesario et al.	473
18	Devillers, Ménès	495
19	Hagemann et al.	543
20	Holliger et al.	553
21	Naudet	569
22	Naudet	589
23	Naudet	601
24	Weber	623
25	Naudet	643
26	Cowan	693
27	Naudet	715
28	Simpson, Bowles	297
29	Durrani et al.	353
30	Leachman, Bishop	700
32	Maeck et al.	535

33	Brookins	243
34	Balagna, Cowan	391
35	Maeck et al.	521
36	Duffy	229
37	Apt et al.	677
38	Ruhland, Gauthier-Lafaye	25
39	Vidale	235
40	Gancarz	513

The following conversion table is provided for the convenience of readers and to encourage the use of SI units.

FACTORS FOR CONVERTING SOME OT THE MORE COMMON UNITS TO INTERNATIONAL SYSTEM OF UNITS (SI) EQUIVALENTS

NOTES:

(1) *SI base units are the metre (m), kilogram (kg), second (s), ampere (A), kelvin (K), candela (cd) and mole (mol).*

(2) ▶ indicates SI derived units and those accepted for use with SI;
▷ indicates additional units accepted for use with SI for a limited time.
[*For further information see The International System of Units (SI), 1977 ed., published in English by HMSO, London, and National Bureau of Standards, Washington, DC, and International Standards ISO-1000 and the several parts of ISO-31 published by ISO, Geneva.*]

(3) The correct abbreviation for the unit in column 1 is given in column 2.

(4) ✳ indicates conversion factors given exactly; *other factors are given rounded, mostly to 4 significant figures.*
≡ indicates a definition of an SI derived unit: [ ] in column 3+4 enclose factors given for the sake of completeness.

Column 1 *Multiply data given in:*	Column 2	Column 3 *by:*	Column 4 *to obtain data in:*	
Radiation units				
▶ becquerel	1 Bq	(has dimensions of s^{-1})		
disintegrations per second (= dis/s)	1 s^{-1}	≡ 1.00×10^{0}	Bq	✳
▷ curie	1 Ci	= 3.70×10^{10}	Bq	✳
▷ roentgen	1 R	[= 2.58×10^{-4}	C/kg]	✳
▶ gray	1 Gy	[≡ 1.00×10^{0}	J/kg]	✳
▷ rad	1 rad	= 1.00×10^{-2}	Gy	✳
sievert *(radiation protection only)*	1 Sv	[= 1.00×10^{0}	J/kg]	✳
rem *(radiation protection only)*	1 rem	[= 1.00×10^{-2}	J/kg]	✳
Mass				
▶ unified atomic mass unit ($\frac{1}{12}$ of the mass of ^{12}C)	1 u	[= $1.660\,57 \times 10^{-27}$	kg, approx.]	
▶ tonne (= metric ton)	1 t	[= 1.00×10^{3}	kg]	✳
pound mass (avoirdupois)	1 lbm	= 4.536×10^{-1}	kg	
ounce mass (avoirdupois)	1 ozm	= 2.835×10^{1}	g	
ton (long) (= 2240 lbm)	1 ton	= 1.016×10^{3}	kg	
ton (short) (= 2000 lbm)	1 short ton	= 9.072×10^{2}	kg	
Length				
statute mile	1 mile	= 1.609×10^{0}	km	
nautical mile (international)	1 n mile	= 1.852×10^{0}	km	✳
yard	1 yd	= 9.144×10^{-1}	m	✳
foot	1 ft	= 3.048×10^{-1}	m	✳
inch	1 in	= 2.54×10^{1}	mm	✳
mil (= 10^{-3} in)	1 mil	= 2.54×10^{-2}	mm	✳
Area				
▷ hectare	1 ha	[= 1.00×10^{4}	m^2]	✳
▷ barn *(effective cross-section, nuclear physics)*	1 b	[= 1.00×10^{-28}	m^2]	✳
square mile, (statute mile)^2	1 $mile^2$	= 2.590×10^{0}	km^2	
acre	1 acre	= 4.047×10^{3}	m^2	
square yard	1 yd^2	= 8.361×10^{-1}	m^2	
square foot	1 ft^2	= 9.290×10^{-2}	m^2	
square inch	1 in^2	= 6.452×10^{2}	mm^2	
Volume				
▶ litre	1 l *or* 1 ltr	[= 1.00×10^{-3}	m^3]	✳
cubic yard	1 yd^3	= 7.646×10^{-1}	m^3	
cubic foot	1 ft^3	= 2.832×10^{-2}	m^3	
cubic inch	1 in^3	= 1.639×10^{4}	mm^3	
gallon (imperial)	1 gal (UK)	= 4.546×10^{-3}	m^3	
gallon (US liquid)	1 gal (US)	= 3.785×10^{-3}	m^3	
Velocity, acceleration				
foot per second (= fps)	1 ft/s	= 3.048×10^{-1}	m/s	✳
foot per minute	1 ft/min	= 5.08×10^{-3}	m/s	✳
mile per hour (= mph)	1 mile/h	= 4.470×10^{-1} 1.609×10^{0}	m/s km/h	
▷ knot (international)	1 knot	= 1.852×10^{0}	km/h	✳
free fall, standard, g		= 9.807×10^{0}	m/s^2	
foot per second squared	1 ft/s^2	= 3.048×10^{-1}	m/s^2	✳

This table has been prepared by E.R.A. Beck for use by the Division of Publications of the IAEA. While every effort has been made to ensure accuracy, the Agency cannot be held responsible for errors arising from the use of this table.

Column 1 *Multiply data given in:*	Column 2	Column 3 *by:*	Column 4 *to obtain data in:*
Density, volumetric rate			
pound mass per cubic inch	1 lbm/in^3	= 2.768×10^4	kg/m^3
pound mass per cubic foot	1 lbm/ft^3	= 1.602×10^1	kg/m^3
cubic feet per second	1 ft^3/s	= 2.832×10^{-2}	m^3/s
cubic feet per minute	1 ft^3/min	= 4.719×10^{-4}	m^3/s
Force			
▶ newton	1 N	[≡ 1.00×10^0	m·kg·s^{-2}] *
dyne	1 dyn	= 1.00×10^{-5}	N *
kilogram force (= kilopond (kp))	1 kgf	= 9.807×10^0	N
poundal	1 pdl	= 1.383×10^{-1}	N
pound force (avoirdupois)	1 lbf	= 4.448×10^0	N
ounce force (avoirdupois)	1 ozf	= 2.780×10^{-1}	N
Pressure, stress			
▶ pascal	1 Pa	[≡ 1.00×10^0	N/m^2] *
▷ atmosphere[a], standard	1 atm	= $1.013\,25 \times 10^5$	Pa *
▷ bar	1 bar	= 1.00×10^5	Pa *
centimetres of mercury (0°C)	1 cmHg	= 1.333×10^3	Pa
dyne per square centimetre	1 dyn/cm^2	= 1.00×10^{-1}	Pa *
feet of water (4°C)	1 ftH$_2$O	= 2.989×10^3	Pa
inches of mercury (0°C)	1 inHg	= 3.386×10^3	Pa
inches of water (4°C)	1 inH$_2$O	= 2.491×10^2	Pa
kilogram force per square centimetre	1 kgf/cm^2	= 9.807×10^4	Pa
pound force per square foot	1 lbf/ft^2	= 4.788×10^1	Pa
pound force per square inch (= psi)[b]	1 lbf/in^2	= 6.895×10^3	Pa
torr (0°C) (= mmHg)	1 torr	= 1.333×10^2	Pa
Energy, work, quantity of heat			
▶ joule (≡ W·s)	1 J	[≡ 1.00×10^0	N·m] *
▶ electronvolt	1 eV	[= $1.602\,19 \times 10^{-19}$	J, approx.]
British thermal unit (International Table)	1 Btu	= 1.055×10^3	J
calorie (thermochemical)	1 cal	= 4.184×10^0	J *
calorie (International Table)	1 cal$_{IT}$	= 4.187×10^0	J
erg	1 erg	= 1.00×10^{-7}	J *
foot-pound force	1 ft·lbf	= 1.356×10^0	J
kilowatt-hour	1 kW·h	= 3.60×10^6	J *
kiloton explosive yield (PNE) (≡ 10^{12} g-cal)	1 kt yield	≃ 4.2×10^{12}	J
Power, radiant flux			
▶ watt	1 W	[≡ 1.00×10^0	J/s] *
British thermal unit (International Table) per second	1 Btu/s	= 1.055×10^3	W
calorie (International Table) per second	1 cal$_{IT}$/s	= 4.187×10^0	W
foot-pound force/second	1 ft·lbf/s	= 1.356×10^0	W
horsepower (electric)	1 hp	= 7.46×10^2	W *
horsepower (metric) (= ps)	1 ps	= 7.355×10^2	W
horsepower (550 ft·lbf/s)	1 hp	= 7.457×10^2	W
Temperature			
▶ temperature in degrees Celsius, t where T is the thermodynamic temperature in kelvin and T_0 is defined as 273.15 K	$t = T - T_0$		
degree Fahrenheit	$t_{°F} - 32$	X (5/9) gives	t *(in degrees Celsius)* *
degree Rankine	$T_{°R}$		T *(in kelvin)* *
degrees of temperature difference[c]	$\Delta T_{°R}$ (= $\Delta t_{°F}$)		ΔT (= Δt) *
Thermal conductivity[c]			
1 Btu·in/(ft^2·s·°F) *(International Table Btu)*		= 5.192×10^2	W·m^{-1}·K^{-1}
1 Btu/(ft·s·°F) *(International Table Btu)*		= 6.231×10^3	W·m^{-1}·K^{-1}
1 cal$_{IT}$/(cm·s·°C)		= 4.187×10^2	W·m^{-1}·K^{-1}

[a] atm abs, ata: atmospheres absolute; atm (g), atü: atmospheres gauge.

[b] lbf/in^2 (g) (= psig): gauge pressure; lbf/in^2 abs (= psia): absolute pressure.

[c] The abbreviation for temperature difference, deg (= degK = degC), is no longer acceptable as an SI unit.

HOW TO ORDER IAEA PUBLICATIONS

An exclusive sales agent for IAEA publications, to whom all orders and inquiries should be addressed, has been appointed in the following country:

UNITED STATES OF AMERICA — UNIPUB, P.O. Box 433, Murray Hill Station, New York, N.Y. 10016

In the following countries IAEA publications may be purchased from the sales agents or booksellers listed or through your major local booksellers. Payment can be made in local currency or with UNESCO coupons.

ARGENTINA	Comisión Nacional de Energía Atómica, Avenida del Libertador 8250, Buenos Aires
AUSTRALIA	Hunter Publications, 58 A Gipps Street, Collingwood, Victoria 3066
BELGIUM	Service du Courrier de l'UNESCO, 112, Rue du Trône, B-1050 Brussels
C.S.S.R.	S.N.T.L., Spálená 51, CS-113 02 Prague 1
	Alfa, Publishers, Hurbanovo námestie 6, CS-893 31 Bratislava
FRANCE	Office International de Documentation et Librairie, 48, rue Gay-Lussac, F-75240 Paris Cedex 05
HUNGARY	Kultura, Bookimport, P.O. Box 149, H-1389 Budapest
INDIA	Oxford Book and Stationery Co., 17, Park Street, Calcutta, 700016
	Oxford Book and Stationery Co., Scindia House, New Delhi-110001
ISRAEL	Heiliger and Co., 3, Nathan Strauss Str., Jerusalem
ITALY	Libreria Scientifica, Dott. Lucio de Biasio "aeiou". Via Meravigli 16, I-20123 Milan
JAPAN	Maruzen Company, Ltd., P.O. Box 5050, 100-31 Tokyo International
NETHERLANDS	Martinus Nijhoff B.V., Lange Voorhout 9-11, P.O. Box 269, The Hague
PAKISTAN	Mirza Book Agency, 65, Shahrah Quaid-e-Azam, P.O. Box 729, Lahore-3
POLAND	Ars Polona-Ruch, Centrala Handlu Zagranicznego, Krakowskie Przedmiescie 7, PL-00-068 Warsaw
ROMANIA	Ilexim, P.O. Box 136-137, Bucarest
SOUTH AFRICA	Van Schaik's Bookstore (Pty) Ltd., P.O. Box 724, Pretoria 0001
	Universitas Books (Pty) Ltd., P.O. Box 1557, Pretoria 0001
SPAIN	Diaz de Santos, Lagasca 95, Madrid-6
	Diaz de Santos, Balmes 417, Barcelona-6
SWEDEN	AB C.E. Fritzes Kungl. Hovbokhandel, Fredsgatan 2, P.O. Box 16358 S-103 27 Stockholm
UNITED KINGDOM	Her Majesty's Stationery Office, P.O. Box 569, London SE1 9NH
U.S.S.R.	Mezhdunarodnaya Kniga, Smolenskaya-Sennaya 32-34, Moscow G-200
YUGOSLAVIA	Jugoslovenska Knjiga, Terazije 27, POB 36, YU-11001 Belgrade

---

Orders from countries where sales agents have not yet been appointed and requests for information should be addressed directly to:

Division of Publications
International Atomic Energy Agency
Kärntner Ring 11, P.O.Box 590, A-1011 Vienna, Austria

78- 06869

AGENCE INTERNATIONALE
DE L'ENERGIE ATOMIQUE
VIENNE, 1978

INTERNATIONAL
ATOMIC ENERGY AGENCY
VIENNA, 1978

GROUPE DE SUJETS: IV
Chimie, géologie et matières premières/géologie
PRIX: US $60,00

SUBJECT GROUP: IV
Chemistry, Geology and Raw Materials/Geology
PRICE: US $60.00