

Enseignements nucléaires tirés de l'étude du phénomène d'Oklo

ETUDE DE LA DATE ET DE LA DUREE DES REACTIONS

ETUDE DE LA MIGRATION DES PRODUITS DE FISSION

par Robert HAGEMANN,

Centre d'étude nucléaire de Fontenay-aux-Roses.

Les réacteurs naturels fossiles d'Oklo, au Gabon, conservés presque intacts depuis près de deux milliards d'années, représentent un champ d'investigation extrêmement fructueux et jusqu'à maintenant unique.

Le fonctionnement de ces réacteurs a profondément transformé la composition chimique et isotopique des minéraux pré-



La carrière d'Oklo, au Gabon.

Remarque : Extrait de la Revue Générale Nucléaire - Mars-Avril, n° 2. 1976.

sents dans les zones de réaction. L'analyse chimique et isotopique détaillée des produits de fission est ainsi possible pour la première fois après décroissance complète des isotopes radioactifs.

Les méthodes appliquées ou développées spécialement pour préciser la date et la durée des réactions nucléaires sont décrites, et on montre l'intérêt de nouvelles déterminations de certaines données nucléaires. L'étude de la répartition de l'uranium et des produits de fission stockés dans des terrains sédimentaires argileux depuis 1 800 millions d'années.

L'observation, en juin 1972, à Pierrelatte, d'une anomalie de composition isotopique d'un échantillon d'uranium naturel est, on le sait, à l'origine de la découverte du phénomène dont le gisement d'uranium d'Oklo, au Gabon, a été le siège. L'hypothèse, rapidement avancée, que des réactions nucléaires de fission en chaîne avaient pu se produire au sein de ce gisement était très vite confirmée dès le mois d'août par la mise en évidence dans les laboratoires de Cadarache et de Saclay de produits de fission caractéristiques dans le minerai d'Oklo, ces produits de fission, en particulier le néodyme, ayant une composition isotopique tout à fait différente de celle des éléments naturels. Les études détaillées entreprises depuis lors ont permis de localiser les zones de réaction, qui constituent autant de réacteurs fossiles ; elles ont aussi montré que ce phénomène extraordinaire avait eu une ampleur considérable puisqu'on estime à plus de 500 kg le déficit en uranium 235 dans ce gisement, soit environ 2 t d'uranium 235 disparues par fission il y a 1,8 milliards d'années.

Partant du fait que les deux isotopes principaux de l'uranium ont une période radioactive très différente, la période de l'uranium 235 est seulement de 0,70 milliard d'années alors que celle de l'uranium 238 est de 4,47 milliards d'années, on sait que la teneur de l'uranium en isotopes fissiles diminue constamment au cours du temps.

Ainsi, alors qu'actuellement la teneur en ^{235}U est égale à 0,7202 %, on calcule qu'elle était voisine de 8 % il y a 3 milliards d'années. L'idée avait donc été émise dès 1956 par un physicien américain, P.-K. KURODA, que des réactions de fission en chaîne avaient pu se produire spontanément au sein de gisements d'uranium dans un passé très ancien. Mais il fallait qu'un certain nombre de conditions fussent réunies : fortes concentrations d'uranium, présence d'un modérateur, le plus probable étant l'eau, et absence de noyaux absorbants, en particulier absence de bore. La probabilité qu'un tel phénomène ait pu se produire augmente évidemment au fur et à mesure que ces

conditions se sont trouvées réunies dans un passé géologique plus ancien. Il était donc particulièrement important, dès la découverte du phénomène d'Oklo, de connaître l'âge de ce gisement d'uranium et surtout de préciser la date de fonctionnement de ces réacteurs fossiles, afin de connaître la teneur en noyaux fissiles de l'uranium au moment de la réaction nucléaire.

Une autre donnée importante, celle-ci pour la compréhension du déroulement du phénomène, est la durée de la réaction dont dépendent les niveaux des flux atteints et les mécanismes de régulation de la réaction nucléaire.

Enfin, la découverte de ce phénomène présente un intérêt exceptionnel par l'application qui peut être faite de l'étude détaillée de la répartition des produits de fission dans les zones de réaction. Cette étude permet en effet de tirer des conclusions sur les migrations subies par les produits de fission après un temps de refroidissement et de stockage exceptionnellement long de 1,8 milliard d'années.

I. AGE DE LA MINERALISATION DE L'URANIUM.

Rappelons tout d'abord brièvement le principe de la mesure des âges géologiques par les méthodes nucléaires.

Pour la mesure des temps géologiques, on utilise des horloges basées sur la constance des vitesses de désintégration des atomes radioactifs qui permettent, par l'analyse des produits mis en jeu, de calculer l'époque de leur mise en place. Les atomes radioactifs dont les périodes sont d'un ordre de grandeur comparable à la durée des temps géologiques étudiés sont peu nombreux. Les géochronologistes utilisent essentiellement trois horloges ; elles sont caractérisées par leur couple d'atome père-fils, ce sont les méthodes potassium-argon, rubidium-strontium et uranium-plomb.

Le potassium 40 donne naissance à l'argon 40 avec une période de $1,26 \cdot 10^9$ ans, le rubidium 87 décroît en strontium 87 avec une période de $4,8 \cdot 10^{10}$ ans, enfin l'uranium 235 et l'uranium 238 ont pour descendant respectif le plomb 207 et le plomb 206. Simples en principe, ces méthodes de datation doivent être appliquées avec beaucoup de précautions pour conduire à des âges significatifs. En effet, on le conçoit facilement, la date qu'on détermine par ces méthodes est bien celle à laquelle le système chimique qu'on utilise s'est mis en place, si, et seulement si, à partir de cette date il a évolué comme un système fermé, sans apport ni perte des éléments mis en jeu. Mais les phénomènes géologiques, en particulier les phénomènes métamorphiques, s'accompagnent de bouleversements des équilibres entre espèces chimiques, c'est-

à-dire qu'il y a séparation partielle ou totale des éléments père et fils, ainsi la remise à zéro des horloges radioactives se traduit par un rajeunissement apparent de la roche étudiée.

La datation des roches sédimentaires est en particulier toujours délicate car il faut s'assurer, ce qui est souvent très difficile, voire impossible, que la mesure ne s'applique pas à un remaniement qui peut être très postérieur à la mise en place des sédiments.

Revenons maintenant au gisement d'Oklo, que savait-on au moment de la découverte du phénomène sur l'âge de ce gisement d'uranium et quelles sont les méthodes qui ont été utilisées pour préciser à la fois l'âge du gisement et l'âge de la réaction nucléaire ?

Ce gisement d'uranium se trouve dans un bassin sédimentaire, le bassin de Franceville, qui recouvre au Gabon une superficie d'environ 35 000 km².

Ce bassin repose sur un socle cristallin, le massif du Chaillu, dont un affleurement existe à environ 300 m de la zone des réacteurs. Le francevillien avait fait l'objet d'études approfondies, en particulier des mesures d'âge avaient été effectuées par les méthodes rubidium-strontium et potassium-argon sur différents types de roches prélevées en différents points du bassin. Toutes ces mesures étaient concordantes, elles permettraient d'attribuer au bassin de Franceville un âge de 1 740 à 1 780 millions d'années. On savait également que la mise en place du massif du Chaillu remontait à environ 2 600 millions d'années.

Pour préciser l'âge de la minéralisation de l'uranium du gisement d'Oklo, la méthode uranium-plomb a été appliquée sur des échantillons du minerai situés à l'extérieur des zones de réaction, contenant donc de l'uranium de composition isotopique normale.

Les mesures effectuées au Département de Recherche et Analyse à Saclay et celles effectuées à l'Institut de Physique du Globe de l'Université Paris VI ont conduit respectivement à $1\,810 \pm 30$ et $1\,780 \pm 60$ millions d'années pour l'âge de la minéralisation de l'uranium. En fait, un examen détaillé des résultats des mesures montre que tous les échantillons ne se conforment pas, à la précision des mesures près, au modèle utilisé pour l'interprétation.

En particulier, certains échantillons conduisent à un âge apparent plus élevé. Ces anomalies ont été interprétées en admettant que le plomb accompagnant actuellement l'uranium a été contaminé ou par du plomb radiogénique d'âge supérieur à 1 800 millions d'années, ou bien par du plomb provenant de la

décroissance d'uranium enrichi en ^{235}U , cet uranium enrichi pouvant traduire la migration de ^{239}Pu venant des zones de réaction, celui-ci conduisant à ^{235}U par décroissance radioactive. Cependant, aucune démonstration n'a pu être faite jusqu'à maintenant de telles contaminations.

Malgré ces restrictions, on doit constater que l'âge ainsi obtenu est en très bon accord avec celui déterminé par les méthodes K-A et Rb-Sr sur les sédiments du francevillien et on peut admettre que la minéralisation de l'uranium du gisement d'Oklo date de 1800 millions d'années, il avait donc, à cette époque-là, une teneur isotopique en ^{235}U égale à 3,07 %.

II. DATE DES REACTIONS NUCLEAIRES ET REEVALUATION DE CERTAINES SECTIONS DE CAPTURE NEUTRONIQUE.

Si nous pouvons admettre que l'âge de la minéralisation de l'uranium est de 1800 millions d'années, le problème de la date des réactions nucléaires reste à ce stade ouvert.

Pour déterminer cette date, on a tenté d'utiliser la décroissance radioactive du rubidium 87 de fission formé par les réactions nucléaires, en effet ^{87}Rb décroît en ^{87}Sr et cet isotope n'est pas formé par fission de l'uranium.

La fission de ^{235}U conduit à la formation de ^{85}Rb et ^{87}Rb avec des rendements de fission respectivement égaux à 1,33 % et 2,55 % ; le rapport $\frac{^{87}\text{Rb}}{^{85}\text{Rb}}$ passe ainsi de 0,386 à 1,917 selon qu'il s'agit de rubidium naturel ou de fission. Pour le strontium, seul l'isotope ^{88}Sr est formé par fission, avec un rendement égal à 3,15 %.

Des analyses isotopiques du rubidium et de strontium ont donc été faites sur des échantillons provenant des zones de réaction dans lesquels le rapport $\frac{^{235}\text{U}}{^{238}\text{U}}$ était aussi faible que 0,47 % ; or les compositions isotopiques mesurées ont été trouvées normales, aussi bien dans les zones de réaction qu'à l'extérieur, alors que le calcul prévoit que le rubidium et le strontium de fission devraient être très facilement détectables. Ces résultats montrent donc, qu'à l'inverse de ce qui était attendu, le rubidium et le strontium actuellement en place dans le gisement sont naturels. Ils mettent clairement en évidence la migration de ces produits de fission par rapport à l'uranium, migrations qui ont pu se produire au cours de, ou postérieurement à, la réac-

tion nucléaire. Ainsi, la tentative de déterminer l'âge de la réaction nucléaire par cette méthode n'a pu aboutir à cause des migrations observées.

La deuxième méthode utilisée pour préciser la date de la réaction nucléaire repose sur l'hypothèse que la grande majorité des produits de fission est bien restée dans les zones où l'uranium est appauvri en ^{235}U . Cette hypothèse est bien vérifiée, en particulier pour les terres rares.

La méthode utilisée est dans son principe analogue à celle mise en œuvre couramment pour les combustibles nucléaires. On sait en effet que dans un combustible nucléaire la quantité d'un élément formé par fission est proportionnelle au rendement de fission de cet élément, à la fluence subie par le combustible et au nombre d'atomes fissiles. Pour calculer les taux de combustion des combustibles des réacteurs nucléaires, on utilise ainsi la mesure du rapport des nombres d'atomes de néodyme de fission et d'uranium. Dans le cas des réacteurs fossiles d'Oklo, il est possible de mesurer les quantités d'uranium et de néodyme de fission dans un volume donné ainsi que la fluence. Celle-ci se déduit de l'analyse isotopique du néodyme par mesure de l'excès de ^{144}Nd formé à partir de ^{143}Nd par capture neutronique. Ainsi, connaissant la fluence et les teneurs en uranium et en néodyme de fission, il est possible de calculer quelle était la teneur de l'uranium en ^{235}U , c'est-à-dire le nombre d'atomes fissiles nécessaire pour former, à l'époque de la réaction, les quantités actuellement mesurées de néodyme de fission. Comme la teneur en ^{235}U de l'uranium est fonction du temps, la date de la réaction nucléaire se déduit directement de la teneur ainsi calculée.

Le samarium et le ruthénium de fission ont été utilisés en complément du néodyme pour calculer par cette méthode la date de la réaction nucléaire. Les valeurs obtenues sont regroupées dans le tableau. Sur ce tableau figurent aussi des déterminations effectuées à partir des concentrations mesurées en ^{232}Th , formé par décroissance radioactive de ^{236}U , celui-ci résultant de la capture d'un neutron par ^{235}U au cours de la réaction nucléaire.

On remarque le groupement des âges obtenus autour de la valeur centrale de 2 milliards d'années. Ainsi, d'après ces résultats, la date de la réaction nucléaire serait antérieure de 200 millions d'années à la date de la minéralisation de l'uranium. Cette éventualité est difficilement concevable. En effet, l'analyse des gaz extraits d'échantillons des zones de réaction montre la présence de xénon et de krypton de fission et l'on imagine mal comment l'uranium aurait pu conserver les gaz de fission s'il avait été remobilisé après la réaction nucléaire. Si on accepte que la réaction nucléaire est contemporaine ou légèrement pos-

TABLEAU

Date de la réaction nucléaire calculée
à partir de la mesure des quantités de produits issus de la réaction

| Echantillon | Elément de référence | $\frac{N_{T5}}{N_8}$ (%) | $\frac{TH}{N_8}$ (%) | T (milliards d'années) |
|----------------|----------------------|--------------------------|----------------------|------------------------|
| KN50 - 3548 | Nd | 2,96 | 5,55 | 1,99 |
| | Sm | 3,03 | | 2,02 |
| | Th | | | 2,03 |
| KN50 - 323 | Nd | 2,63 | | 2,04 |
| | Sm | 2,59 | | 2,02 |
| | Ru | 2,74 | | 2,08 |
| SC36 - 1408-4 | Nd | 1,82 | | 1,91 |
| | Sm | 1,98 | | 1,99 |
| SC36 - 1410-3 | Nd | 2,43 | 4,29 | 1,97 |
| | Sm | 2,32 | | 1,92 |
| | Th | | | 1,92 |
| SC36 - 1413-3 | Nd | 3,07 | 6,03 | 2,01 |
| | Sm | 3,20 | | 2,06 |
| | Th | | | 2,11 |
| SC36 - 1418 | Nd | 2,17 | 4,50 | 2,00 |
| | Sm | 2,08 | | 1,95 |
| | Th | | | 2,03 |
| VALEUR MOYENNE | | | | 2,00 |

térieure à la date de la minéralisation de l'uranium et que celle-ci s'est produite il y a 1 800 millions d'années, il faut donc admettre ou bien que les quantités relatives de produits de fission et d'uranium que l'on mesure actuellement ne sont pas significatives, ou bien que la section de capture de ^{143}Nd utilisée pour le calcul de la fluence est fautive.

Le calcul montre que pour obtenir 1 800 millions d'années par cette méthode, il faudrait mesurer un rapport produit de fission/uranium systématiquement plus faible de 20 %, il faudrait donc conclure à un départ massif et relativement homogène de 20 % de l'uranium primitivement présent dans les échantillons analysés.

Mais ce départ n'a pas laissé de traces à l'exception d'une faible auréole de contamination autour des zones de réaction.

L'autre alternative pour expliquer cet écart de 200 millions d'années est de suspecter la valeur de la fluence qui inter-

vient dans le calcul. Or, comme on l'a déjà mentionné, le calcul de la fluence fait intervenir la section de capture de ^{143}Nd ; une mesure récente de cette section de capture effectuée à Idaho Falls, aux Etats-Unis, fait apparaître une diminution proche de 30 % par rapport à la valeur recommandée par les tables et utilisée dans ce calcul.

Il est alors remarquable de constater que si cette valeur était confirmée, on obtiendrait bien par cette méthode de datation 1 800 millions d'années pour l'âge de la réaction nucléaire.

Ainsi, pour conclure que les conditions de fonctionnement des réacteurs d'Oklo étaient probablement réunies dès la mise en place de l'uranium, il y a 1 800 millions d'années, les résultats des analyses montrent qu'il faut admettre ou bien que la section de capture du ^{143}Nd actuellement recommandée par les tables est trop élevée d'environ 30 %, ou bien que 20 % de l'uranium initialement présent a été dispersé d'une manière homogène. Une nouvelle mesure de la section de capture du ^{143}Nd actuellement en cours à Saclay permettra peut-être de choisir entre ces deux possibilités.

III. DUREE DES REACTIONS NUCLEAIRES ET TEMPERATURES ATTEINTES DANS LE REACTEUR.

Une donnée également importante parmi celles que l'on a souhaité rapidement connaître pour les réacteurs d'Oklo est la durée de la réaction. De la durée dépendent en effet directement le niveau des flux atteints et indirectement les mécanismes de régulation de la réaction nucléaire.

On sait en physique des réacteurs calculer des durées d'irradiation. Par exemple, dans le cas d'éléments combustibles, une méthode possible est celle basée sur la mesure de rapports isotopiques du xénon de fission dont certains isotopes, ^{133}Xe et ^{135}Xe , sont l'objet de deux réactions simultanées en compétition : la décroissance radioactive et la capture d'un neutron. L'analyse des produits finaux, ^{134}Xe et ^{136}Xe , donne un moyen de calculer la durée d'exposition aux neutrons.

Dans le cas des réacteurs d'Oklo, les premières observations avaient montré que la réaction nucléaire n'avait pas eu un caractère explosif mais qu'au contraire elle avait duré longtemps. Une durée d'au moins 100 000 ans avait été notée comme un ordre de grandeur plausible du point de vue de l'évacuation des calories. Si on passe en revue les isotopes radioactifs dont la période est d'un ordre de grandeur convenable, c'est-à-dire autour de 10^5 ans, qui sont formés en quantités appréciables pendant la durée de la réaction et qui présentent une section de réaction

(capture ou fission) aux neutrons appréciable, on s'aperçoit que le choix est en fait très limité. Seuls le plutonium 239 et le technétium 99 ont été considérés.

A. Durée à partir de ^{239}Pu .

Le plutonium 239 est l'objet de deux réactions simultanées : la fission et la décroissance radioactive avec une période de 24 400 ans. Pour atteindre la durée de la réaction, il faut donc connaître la participation du plutonium 239 aux fissions qui se sont produites. Précisons que pour cette détermination, on admet que la réaction en chaîne a été unique et uniforme, c'est-à-dire que la durée qu'on calcule est une durée équivalente. On doit aussi admettre que le plutonium 239 formé n'a pas migré, donc que les noyaux de ^{239}Pu ont décréu en ^{235}U à l'endroit où ils ont été formés. Cette dernière hypothèse apparaît pour l'instant très vraisemblable : en effet, l'analyse détaillée des corrélations entre fluences et appauvrissements en ^{235}U le long de coupes traversant les zones de réaction ne montre pas de discontinuités ou d'irrégularités imputables à une migration du plutonium. La stabilité du plutonium est confirmée par ailleurs par le fait qu'il n'a pas été trouvé, jusqu'à maintenant, en bordure ou à l'extérieur des zones de réaction d'échantillon enrichi en ^{235}U .

Cette observation est aussi valable à l'échelle du micron, l'examen à la sonde ionique des localisations de ^{235}U et ^{238}U montre une parfaite concordance des deux images qui n'aurait pas de raison d'être si le ^{239}Pu formé avait migré avant de décroître en ^{235}U (fig. 1).

Pour calculer la durée, on exprime la quantité de ^{239}Pu formé en fonction des quantités de ^{235}U :

$$N_{239} = \frac{N_{235} \sigma_{235} C \tau}{\lambda_{239} \Delta t}$$

où Δt est la durée, τ la fluence, C le facteur de conversion.

Par ailleurs, le pourcentage des fissions dues à ^{239}Pu s'écrit :

$$\beta = \frac{N_{239} \sigma_f^{239}}{N_{235} \sigma_f^{235} + N_{239} \sigma_f^{239}}$$

α et β sont respectivement les pourcentages de fissions dues à ^{238}U et ^{239}Pu ; en combinant les deux équations précédentes, on obtient l'expression permettant de calculer la durée de la réaction nucléaire :

$$\Delta t = \frac{\sigma_f^{239} \sigma_{235}}{\sigma_f^{235}} \frac{1 - \alpha - \beta}{\beta} \frac{C \tau}{\lambda_{239}} \quad (1)$$

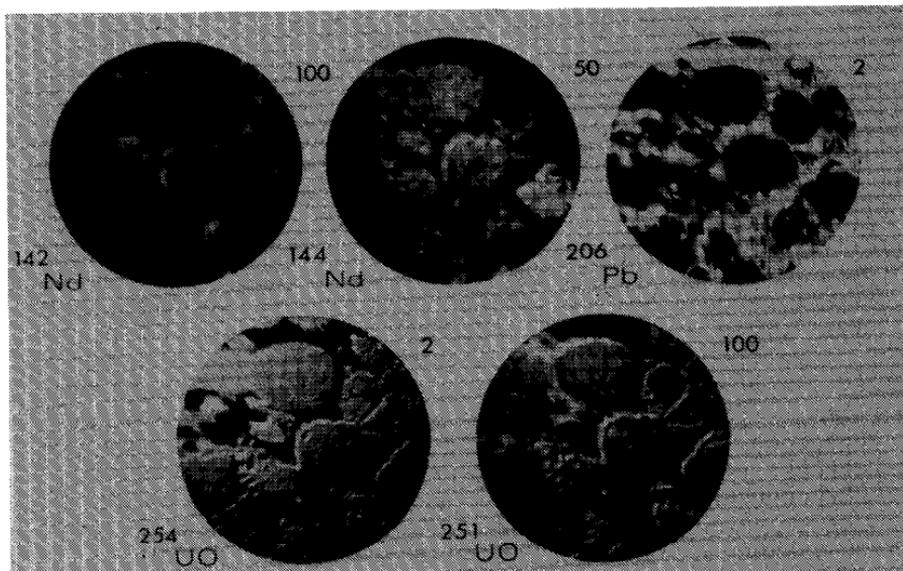


Fig. 1. — Images obtenues par analyse ionique.

τ et C se déduisent simplement des analyses isotopiques de l'uranium et des terres rares, en particulier le néodyme et le samarium, α et β sont plus difficiles à atteindre.

La méthode pour déterminer α et β repose sur la détermination précise de la composition isotopique d'éléments de fission, pour lesquels ^{239}Pu et ^{238}U présentent des rendements de fission très différents de ceux de ^{235}U et de préférence plus grands.

Ainsi, si on considère un rapport isotopique R , il est relié à α et β par une équation ne faisant intervenir que les rendements de fission q :

$$R = \frac{q'_5 (1 - \alpha - \beta) + q'_8 \alpha + q'_9 \beta}{q''_5 (1 - \alpha - \beta) + q''_8 \alpha + q''_9 \beta}$$

où les indices 5, 8 et 9 se rapportent aux noyaux ^{235}U , ^{238}U et ^{239}Pu et les ' et les '' aux isotopes présents respectivement au numérateur et au dénominateur.

L'équation précédente détermine pour chaque rapport mesuré R une droite dans les coordonnées α , β . Ces droites sont

en principe concourantes, elles déterminent α et β par leur point d'intersection. En fait, compte tenu des imprécisions subsistant sur les rendements de fission et sur les mesures des rapports isotopiques, on ne peut déterminer les pourcentages α et β à mieux que $\pm 1\%$.

Les éléments de fission *a priori* les plus favorables pour déterminer α et β sont dans le domaine des masses comprises entre 100 et 120 et au-delà de la masse 143. Les éléments utilisés sont le palladium, le ruthénium, le gadolinium, le samarium et le néodyme par ordre de sensibilité décroissante.

La fig. 2 illustre le type de diagramme obtenu ; celui-ci a permis d'attribuer à α la valeur $2,5 \pm 1\%$ et à β la valeur $4 \pm 1\%$

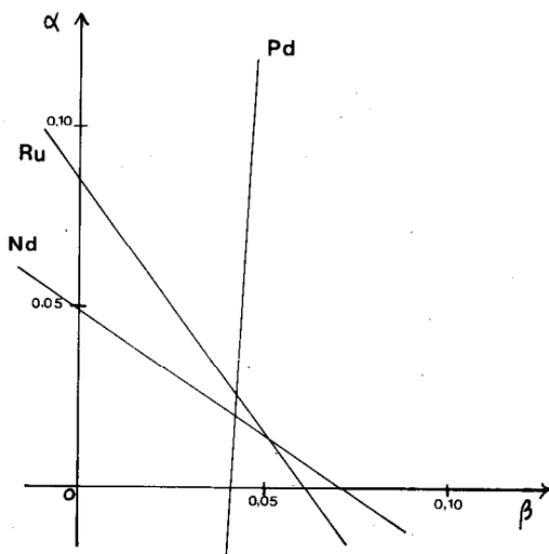


Fig. 2. — Détermination des pourcentages de fissions dues à ^{238}U : α et à ^{239}Pu : β .

pour l'échantillon KN50-3548. De tels diagrammes ont été tracés jusqu'à maintenant pour quatre échantillons ; les valeurs correspondantes des durées obtenues à partir de l'équation (1) sont comprises entre 540 000 et 640 000 ans.

On peut donc admettre une durée de l'ordre de 600 000 ans pour la réaction nucléaire. Outre les imprécisions sur β , une autre cause d'erreur provient de l'approximation que l'on doit faire de la valeur de la section de fission effective du plutonium 239 qui intervient dans (1). Cette section de fission effective dépend en effet et de l'indice de spectre et de la température,

pour un indice compris entre 0,10 et 0,20 et une température comprise entre 120 °C et 200 °C, σ_f 239 varie d'environ 20 %. La valeur moyenne de 600 000 ans a été obtenue en adoptant 150 °C pour la température du réacteur.

B. Durée à partir de ^{99}Tc .

Pendant la durée de la réaction nucléaire, le technétium 99 produit par fission conduit au ruthénium 99 par décroissance radioactive de période $2,13 \cdot 10^5$ ans et au technétium 100 par capture neutronique. ^{100}Ru est formé à la fois à partir de ^{99}Ru par capture neutronique et à partir de ^{100}Tc par décroissance radioactive de période 17 s.

^{100}Ru est donc formé à la fois à partir de ^{99}Ru et à partir de ^{99}Tc via ^{100}Tc . La mesure du rapport isotopique $\frac{^{100}\text{Ru}}{^{99}\text{Ru}}$ permet

ainsi de calculer la durée de la réaction à la condition que le technétium et le ruthénium soient restés liés à l'uranium pendant la durée de la réaction. Cette condition n'est malheureusement pas réalisée dans la plupart des cas. On a montré en effet que le ruthénium avait migré de façon appréciable, le rapport des quantités de ruthénium à celles de l'uranium est en général inférieur à la valeur calculée à partir de la fluence et du rendement de fission du ruthénium ; d'autre part, on a pu mettre en évidence une migration relative ruthénium-technétium pendant la durée de la réaction. Un seul échantillon, parmi ceux étudiés, contient du ruthénium de composition isotopique en accord avec celle calculée à partir des rendements de fission et, de plus, le dosage du ruthénium dans cet échantillon montre qu'il est resté en place aussi bien que le néodyme.

C'est donc pour l'instant le seul échantillon sur lequel il a été possible d'exploiter l'analyse isotopique du ruthénium pour calculer la durée de la réaction. Pour ce calcul, on se heurte à une difficulté qui concerne l'imprécision avec laquelle sont connues les sections de capture de ^{99}Ru et ^{99}Tc , et en particulier l'intégrale de résonance de ^{99}Pu qui n'est connue qu'à 25 % près. Ainsi, en adoptant les valeurs des tables, on calcule une durée de 1 400 000 ans, mais la durée calculée peut être seulement de 740 000 ans en adoptant des valeurs légèrement plus faibles mais comprises dans les limites des incertitudes mentionnées dans ces tables.

De nouvelles mesures plus précises des sections de capture et des intégrales de résonance de ^{99}Ru et ^{99}Tc apparaissent donc maintenant souhaitables avant de conclure définitivement sur la validité de cette méthode de calcul de la durée de la réaction

nucléaire, qui pour l'instant donne cependant une valeur dont l'ordre de grandeur n'est pas différent de la valeur obtenue à partir du plutonium 239.

Précisons qu'une autre réaction de compétition avait été initialement envisagée pour le calcul de la durée : il s'agit de la formation de ^{130}Xe à partir de ^{129}Xe et de ^{129}I par captures neutroniques, ^{129}I conduisant à ^{129}Xe avec une période de 16 millions d'années. Mais, outre que la période de ^{129}I est *a priori* trop importante par rapport à la durée de la réaction que l'on vient d'estimer, pour disposer là d'une méthode sensible, les analyses des gaz rares de fission ont montré que l'iode et le xénon ont partiellement migré pendant la durée de la réaction nucléaire, cette méthode n'est donc pas applicable.

En résumé, la durée de la réaction nucléaire déterminée par la mesure des participations du ^{239}Pu aux fissions est de l'ordre de 600 000 ans, le calcul effectué à partir de la mesure

du rapport $\frac{^{100}\text{Ru}}{^{99}\text{Ru}}$ conduit à un ordre de grandeur compatible

avec la valeur précédente en adoptant pour ^{99}Ru et ^{99}Tc des valeurs des sections de capture sensiblement inférieures à celles des tables, mais comprises dans les domaines d'incertitudes mentionnées.

IV. ETUDE DE LA MIGRATION DES PRODUITS DE FISSION. PROBLEME DE LEUR MAINTIEN EN PLACE.

Au cours de la discussion précédente, le problème de la stabilité des produits de fission vis-à-vis de l'uranium a été plusieurs fois abordé. Il est certain que la description que l'on peut faire du phénomène Oklo est directement liée à la stabilité des éléments sur lesquels sont effectuées les mesures qui donnent accès aux informations recherchées.

Indépendamment de cet aspect concernant la compréhension et la description du phénomène nucléaire lui-même, il est bien évident que l'importance du problème du stockage des déchets radioactifs produits dans les réacteurs nucléaires industriels confère un intérêt exceptionnel, et jusqu'à maintenant unique, à l'enseignement qui peut être tiré de l'étude de la migration des produits de fission dans les réacteurs fossiles d'Oklo. Il s'agit là d'un stockage d'une durée extraordinairement longue, voisine de 2 milliards d'années et d'un type original puisque réalisé au sein même des terrains sédimentaires constituant le réacteur.

On fera le point ici des informations obtenues jusqu'à maintenant sur certains produits de fission et sur les transuraniens qui posent des problèmes par leur période.

Pour obtenir une vue qualitative d'ensemble sur la stabilité relative des produits de fission, la spectrométrie de masse à étincelles s'est révélée une technique analytique intéressante, comme le montre la fig. 3 obtenue en portant sur une échelle logarithmique les intensités mesurées pour les isotopes de masse comprise entre 90 et 160 et la courbe des rendements de fission de l'uranium 235 pour les neutrons thermiques.

La fig. 3 correspond à l'échantillon SC36-1413 situé au cœur d'une zone de réaction et dont l'uranium est très appauvri en

$$^{235}\text{U} \left(\frac{^{235}\text{U}}{^{238}\text{U}} = 0,00410 \right).$$

On constate sur le diagramme que les points expérimentaux se groupent remarquablement bien au voisinage de la courbe des rendements de fission de ^{235}U pour les éléments suivants : niobium, ruthénium, rhodium, palladium, argent, tellure, lanthane, cérium, praséodyme, néodyme et samarium ; ces éléments sont donc sensiblement restés en place les uns par rapport aux autres depuis l'époque de la réaction.

On observe aussi que le zirconium est un mélange de Zr de fission et de Zr naturel. Enfin, le molybdène, l'iode et le césium ont subi des migrations importantes car leurs concentrations sont très inférieures aux rendements de fission.

Les analyses chimiques effectuées et les corrélations observées entre les fluences calculées à partir des captures qui se sont produites sur certains isotopes des terres rares et les appauvrissements en uranium 235 confirment bien, pour la grande majorité des échantillons analysés, la bonne stabilité des terres rares de fission par rapport à l'uranium.

La détermination des rapports Nd/U, Sm/U, Gd/U, effectuée par dilution isotopique sur plusieurs échantillons des zones de réaction, a permis de préciser qu'il en est bien ainsi. Il doit être noté cependant que dans un échantillon un excès important de gadolinium de fission a été trouvé par rapport au néodyme et au samarium de fission, cet excès approchant un facteur 2.

L'analyse quantitative des gaz rares de fission présents dans le minerai montre que le xénon et le krypton ont presque entièrement disparu, il en reste seulement moins de 1 %.

Les fluences calculées à partir des captures neutroniques observées sur l'isotope ^{131}Xe conduisent à des valeurs nettement inférieures à celles déduites de l'analyse des terres rares, de l'ordre de deux à trois fois moins.

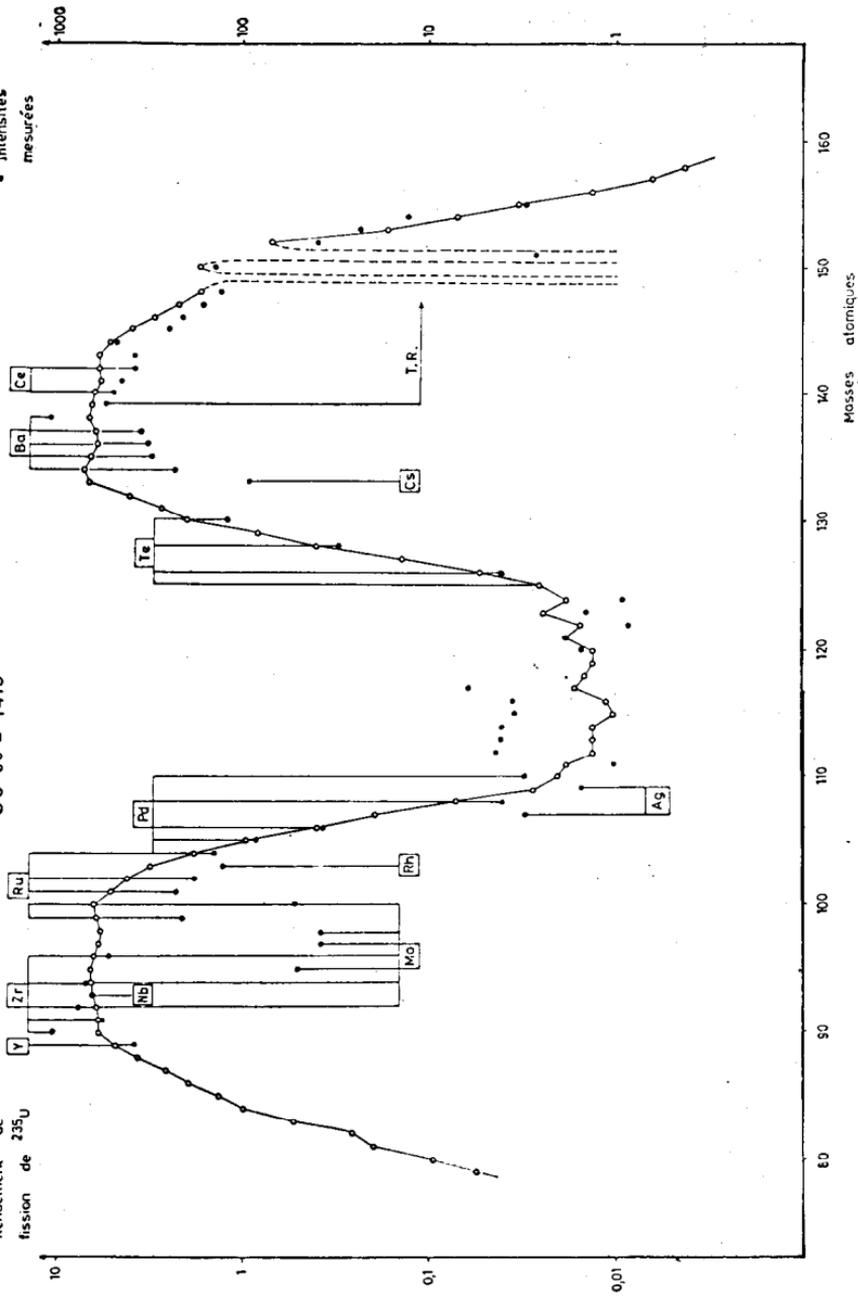


Fig. 3. — Analyse par spectrométrie de masse à étincelles (masse 90 à 160) de l'échantillon SC36 - 1413.

Ces différences montrent que le départ des gaz rares de fission s'est produit durant la réaction nucléaire. A partir des analyses isotopiques du xénon, il est aussi possible de déduire que l'iode s'est comporté dans le minerai sensiblement comme le xénon ; en effet, la teneur mesurée en ^{129}Xe , descendant de ^{129}I avec une période de $1,6 \cdot 10^7$ ans, correspond à la teneur calculée à partir des rendements de fission des isotopes du xénon et de ^{129}I .

Il a été déjà mentionné que le ruthénium et le technétium de fission ont partiellement migré. Il est intéressant de noter qu'il y a eu une migration relative de ces deux éléments pendant la durée de la réaction nucléaire ; en effet, alors que les isotopes ^{101}Ru , ^{102}Ru et ^{104}Ru sont en proportion constante dans cinq échantillons analysés, on observe un déficit en ^{99}Ru dans tous les échantillons sauf un, ce déficit pouvant atteindre 30 %. Ce déficit est attribué à une migration relative du ^{99}Tc et du ruthénium pendant le fonctionnement du réacteur puisque ^{99}Tc conduit à ^{99}Ru par décroissance β^- avec une période de 200 000 ans.

De même, le rubidium et le strontium de fission ont subi des migrations très importantes, par contre il n'a pas été possible de mettre en évidence une migration appréciable du ^{90}Sr dont la période est seulement de 29 ans ; ceci a été démontré à partir de l'analyse isotopique du zirconium de fission, on n'observe pas en effet d'anomalie appréciable sur l'abondance de ^{90}Zr formé à partir du ^{90}Sr .

En ce qui concerne le plutonium 239, les arguments permettant de conclure à sa stabilité ont été énoncés précédemment.

Une quantité importante de ^{236}U a été formée au cours de la réaction nucléaire, de l'ordre de 20 % des fissions subies par l'uranium. L'uranium 236, dont la période est égale à $2,3 \cdot 10^7$ ans, a décru entièrement en thorium 232. Un autre parent du thorium est ^{240}Pu de période 6 540 ans, mais ce dernier n'intervient que pour une part faible, inférieure à 10 %, sur la quantité totale de thorium formé. La comparaison des quantités calculées et mesurées de ^{232}Th dans sept échantillons d'une carotte de sondage traversant une zone de réaction montre un excellent accord. Cet accord indique non seulement que le thorium n'a pas subi de migration mais aussi que ^{236}U , dont la période est égale à $2,3 \cdot 10^7$ ans, est resté particulièrement bien fixé. On peut donc conclure raisonnablement qu'il en a été de même pour tout l'uranium pendant la réaction nucléaire et dans les premières dizaines de millions d'années qui l'ont suivie.

L'analyse chimique du bismuth formé par décroissance radioactive de ^{241}Pu et ^{237}Np n'a pas pour l'instant permis d'apporter une conclusion sûre sur la stabilité du ^{237}Np .

En résumé, on peut dire qu'on observe une excellente fixation de la majorité des produits de fission dans les terrains sédimentaires argileux qui constituent le réacteur. Les éléments qui se sont disséminés sont les alcalins : Rb, Cs ; les alcalino-terreux : Ba et Sr ; les gaz rares ; l'iode et le molybdène. Le ruthénium est en majorité resté sur place mais on observe dans certains échantillons un déficit voisin de 30 % dont une partie peut être attribuée à une migration de ^{99}Tc de période 200 000 ans, pendant la durée de la réaction. Malgré la mobilité des alcalino-terreux, on ne détecte pas de départ de ^{90}Sr pendant sa durée de vie.

Enfin, l'examen des transuraniens montre qu'on peut raisonnablement conclure à la stabilité de la plus grande partie du plutonium 239 formé ; il doit en être de même des isotopes ^{240}Pu et ^{241}Pu formés en faibles quantités dans le réacteur.

Ces observations sont donc du point de vue du stockage des produits de fission, dans l'ensemble encourageantes. Elles invitent certainement à développer les études de fixation des produits de fission et des transuraniens dans les sols argileux ; par contre, la dissémination des gaz de fission, mais surtout de l'iode et du césium, montre que des procédés doivent être étudiés spécialement pour la fixation des isotopes radioactifs de l'iode et du césium.

V. CONCLUSION.

L'étude des réacteurs fossiles d'Oklo peut être considérée comme exemplaire dans le sens où elle a permis au chimiste nucléaire de mettre en œuvre des méthodes classiques, utilisées aussi bien en géochronologie qu'en physique de réacteurs, mais aussi de développer des méthodes spécifiques originales. Bien sûr, comme on l'a montré, parmi celles-ci certaines n'ont pas permis d'obtenir tous les renseignements espérés du fait des phénomènes géochimiques qui n'ont pas épargné complètement les réacteurs arrêtés depuis près de deux milliards d'années. Des migrations, quelquefois très importantes (Ba, Sr), d'autres plus restreintes (Ru, Tc), imposent des limites à l'application de ces méthodes.

C'est l'analyse détaillée des produits de fission, analyse chimique et isotopique, qui a fourni un ensemble de renseignements particulièrement variés. Ces analyses ont permis de préciser, outre la date et la durée des réactions nucléaires, plusieurs paramètres fondamentaux des réacteurs : fluence, indice de spectre, taux de conversion, nombre de fissions, importance des fissions provenant de ^{239}Pu et ^{238}U , etc.

L'utilisation de plusieurs éléments de fission présents dans un même échantillon pour calculer ces paramètres a conduit quelquefois à des divergences supérieures aux incertitudes expérimentales des mesures. L'origine de ces divergences réside en particulier dans le fait que les données sur les rendements de fission et sur les sections de capture neutronique, souvent dues à des expérimentateurs différents, ne sont pas parfaitement cohérentes et, de plus, leur précision est insuffisante dans certains cas, en particulier en ce qui concerne le domaine non thermique de l'énergie des neutrons.

Un intérêt de l'étude du phénomène Oklo est donc de rechercher l'amélioration de la précision de mesure de ces grandeurs fondamentales.

Un autre intérêt, et non le moindre, est de tirer un enseignement des mesures de répartition des produits de fission dans les zones de réaction, pour préciser les migrations qui affectent certains éléments. Il est de ce point de vue remarquable que la majorité des produits de fission et des transuraniens sont bien restés en place avec l'uranium dans les terrains sédimentaires qui constituent le gisement, après une durée de refroidissement et de stockage aussi longue.

Une question importante se pose maintenant : le phénomène d'Oklo est-il unique ? Quelle probabilité y a-t-il de découvrir d'autres gisements d'uranium contenant en leur sein des réacteurs fossiles aussi bien conservés, ou même seulement montrant des indices que de telles réactions nucléaires se sont produites ? *A priori*, compte tenu de toutes les conditions qui doivent être réunies simultanément, on est tenté de dire que cette probabilité est très faible. Cependant, pour répondre à cette question, une voie d'approche a été proposée ; elle est basée sur la détection d'anomalies isotopiques affectant des ruthénium d'origines diverses. Cet élément, produit en abondance lors de la fission de l'uranium, est en effet un des éléments les plus rares sur terre ; d'autre part, la composition isotopique du produit de fission est très différente de celle de l'élément naturel.

Les recherches entreprises, en particulier la comparaison des compositions isotopiques de ruthénium terrestre et de ruthénium « primordial » extrait d'une météorite ferreuse, n'ont pas permis pour l'instant de mettre en évidence d'anomalies systématique des compositions isotopiques de l'uranium d'origines les plus diverses avec l'espoir de détecter des appauvrissements significatifs en ^{235}U . La probabilité de découvrir un indice positif reste évidemment faible, car il faut se rappeler que l'existence de phénomènes de type Oklo ne peut concerner que des gisements très anciens, certainement plus vieux que 1 500 millions d'an-

nées, et les remobilisations ultérieures très probables de l'uranium au cours des temps géologiques ont pour effet de diluer l'uranium « anormal » et donc de rendre la détection d'anomalies isotopiques plus difficile.

BIBLIOGRAPHIE

- [1] *Le phénomène d'Oklo*. Bulletin d'Informations Scientifiques et Techniques, n° 193, juin 1974.
 - [2] *Le phénomène d'Oklo* par Roger NAUDET. Revue Générale Nucléaire, n° 1, tome 1, février-mars 1975.
 - [3] *Le phénomène d'Oklo*. Compte rendu du colloque de Libreville, 23-27 juin 1975, Agence Internationale de l'Énergie Atomique, Vienne 1975.
-