

1794-1823  
11814

**MIGRATION ELEMENTAIRE AUTOUR DES REACTEURS NUCLEAIRES  
D'OKLO (GABON) - IMPLICATIONS POUR LE STOCKAGE DE DECHETS  
NUCLEAIRES DE HAUTE ACTIVITE**

**Catherine MENET-DRESSAYRE, Marie-Thérèse MENAGER**

Commissariat à l'Energie Atomique, DCC/DESD/SCS  
Section de Géochimie, Laboratoire de Géochimie des Solides et des Suspensions  
CE Fontenay-aux-Roses, BP 6 92265 Fontenay-aux-Roses Cedex FRANCE

**RESUME**

Une synthèse des données pétrographiques, minéralogiques et géochimiques acquises sur les principaux faciès caractéristiques des zones de réaction 10 et 13, du grès encaissant et du système fissural qui les recoupe est proposée. L'étude de la répartition actuelle de l'U et des terres rares dans l'environnement des réacteurs a permis la mise en évidence de transfert de radioéléments dans l'environnement proche des réacteurs. Enfin, les principales implications des résultats acquis pour la compréhension du comportement à long terme de sites de stockage de déchets de haute activité en formation géologique sont discutées.

**1. INTRODUCTION**

L'étude des transferts élémentaires dans l'environnement des nouvelles zones de réaction 10 et 13 a fait l'objet d'un travail de recherche doctoral intitulé "Etude du comportement géochimique des radioéléments et de leurs descendants autour des réacteurs nucléaires naturels 10 et 13 d'Oklo (Gabon) - Application au stockage de déchets nucléaires de haute activité" (Menet-Dressayre, 1992 ; Menet et Ménager 1993 ; Menet et coll., 1992 ; Hémond et coll., 1992). Les principales données pétrographiques, minéralogiques et géochimiques acquises dans le cadre de ce travail de recherche sont présentées. La validité de l'analogie entre les réacteurs nucléaires d'Oklo et un site de stockage de déchets de haute activité en formation géologique est discutée. Les principales implications pour l'évaluation de la sûreté à long terme de site de stockage géologique de déchets de haute activité sont proposées.

**2. SYNTHESE PETROGRAPHIQUE ET MINERALOGIQUE**

Les échantillons étudiés proviennent du réacteur 10 (parement D73) et du réacteur 13 (parement SD37). Des profils recoupant respectivement les faciès pile et argile de pile caractéristiques des zones de réactions (Gauthier Lafaye, 1986), et le grès encaissant ont été effectués.

\* Le grès minéralisé correspond à la roche initiale dans laquelle se sont déclenchées les réactions nucléaires. A l'endroit même des réactions, il a complètement disparu. Le grès résiduel est situé à la bordure des réacteurs. Il est constitué de grains de quartz, de quelques vestiges de biotite, d'une matrice argileuse (chlorite-Fe et illite) et siliceuse, de phases minérales accessoires (pechblende, zircon, apatite, rutile et probablement monazite) et de plages de matière organique.

\* Le faciès pile, caractéristique du coeur des réacteurs, correspond à l'endroit dans lequel les réactions nucléaires ont été les plus intenses. Ce faciès phylliteux

résulte des transformations pétrographiques et minéralogiques drastiques subies par le grès initial sous l'action des fluides modérateurs des réactions nucléaires. Les cristaux de quartz du grès ont été dissous dans leur totalité et les phases minérales argileuses et accessoires résiduelles ont été altérées. Le faciès pile est composé de cristaux d'uraninite (10 à 30 % d'UO<sub>2</sub>), sièges des réactions nucléaires, de minéraux argileux (illite principalement et chlorite-Mg) probablement hérités de la matrice du grès initial et de phases secondaires telles que la galène et localement la pyrite.

\* Le faciès argile de pile est situé à la bordure des réacteurs. Il est intermédiaire entre le faciès pile et le grès. Il n'a pas directement subi de réactions nucléaires. Son épaisseur est variable : il est quasiment inexistant sur le parement SD37 du réacteur 13 et peut atteindre plusieurs dizaines de centimètres sur le parement D73 du réacteur 10. Comme le faciès pile, il a été formé à partir du grès initial. Toutefois, les phénomènes de dissolution et d'altération ont été moins intenses car l'argile de pile conserve quelques caractéristiques du grès, notamment des figures sédimentaires et des reliques de quartz. Ce faciès est essentiellement phylliteux, il est composé de plages de chlorite-Mg entre lesquelles persistent quelques vestiges de quartz aux bordures très corrodées, quelques phases minérales accessoires détritiques (zircon, oxyde de titane) en partie altérées, des phases secondaires (galène, pyrite) et de rares plages de matière organique. A proximité du faciès pile, l'argile de pile contient des cristaux d'apatite de taille millimétrique renfermant des reliques plus ou moins altérées de phases primaires (vestiges de quartz, minéraux argileux kaolinisés, oxyde de fer, monazite, chlorite-Mg caractéristique de l'argile de pile) qui sont probablement contemporains ou postérieurs à la formation du faciès argile de pile.

Sur les deux parements étudiés, le contact entre le réacteur et la roche encaissante est marqué par le passage d'une roche argileuse noire uranifère caractéristique du réacteur au grès clair de la formation F<sub>A</sub>. Ce contact correspond à un front de dissolution de la silice. Sur moins d'un centimètre d'épaisseur, on distingue successivement :

\* A l'extrême bordure du réacteur une frange d'argile de pile (mm) particulièrement enrichie en phases minérales accessoires comparativement aux zones plus internes de ce faciès. Cette accumulation de phases accessoires se traduit par une forte augmentation de la teneur en éléments en traces ;

\* Une zone à illite (1-3 mm) composée de lits d'illite cryptocristalline très fins entre lesquels s'intercalent parfois de fins liserés de calcite. Cette alternance d'illite et de calcite constitue l'interface entre l'argile de pile et le grès.

Les principales différences pétrographiques et minéralogiques identifiées entre les zones de réactions 10 et 13 consistent en :

\* L'absence de faciès argile de pile dans le réacteur 13 (parement SD37) où le faciès pile est en contact direct avec le grès. Sur le parement SD37, le réacteur a l'allure d'une lenticule argileuse qui se prolonge dans le grès. Cette lenticule et les premiers mètres de grès encaissant contiennent de la kaolinite. Très localisée, cette argile ne résulte probablement pas d'une altération supergène. Elle pourrait être liée aux circulations hydrothermales associées à la mise en place du filon de dolérite. Le parement SD37 contient en outre de nombreux cristaux de pyrite et de galène dans le faciès pile et dans la matrice phylliteuse du grès situé à proximité du réacteur ;

\* Dans le réacteur 10 (parement D73), des cristaux d'apatites sont observés dans le faciès argile de pile à proximité du contact avec le grès.

### **3. SYSTEME FISSURAL**

Des fissures de calcite parcourent les réacteurs et le grès encaissant. Elles ont quelques micromètres à quelques millimètres d'épaisseur et quelques centimètres à quelques mètres de long. Leurs bordures, relativement symétriques, traduisent une déformation mécanique dans un contexte extensif, sans dissolution apparente des épontes.

Dans le réacteur, les fissures sont souvent proches de la bordure et parallèles à l'interface. Sur le parement D73, elles ont un aspect chevelu et une épaisseur micrométrique. Sur le parement SD37, elles ont une épaisseur de plusieurs millimètres et une longueur pouvant atteindre une dizaine de mètres. Dans ces faciès argileux, relativement ductiles, les fissures sont colmatées par de la calcite fibreuse.

Dans le grès, les fissures sont souvent orientées radialement par rapport à la limite du réacteur. Certaines recoupent l'interface, d'autres sont localisées uniquement dans le grès. Elles ont souvent quelques dizaines de centimètres de long, certaines atteignent toutefois plusieurs mètres. Leurs bordures recoupent indifféremment la matrice argileuse du grès et les grains de quartz. Dans le grès, caractérisé par un comportement cassant, les fissures sont colmatées par de la calcite saccharoïde.

Ces fissures contiennent de nombreuses enclaves minérales "primaires" ou "secondaires" dont les tailles varient entre quelques micromètres et plusieurs centaines de micromètres.

\* Les enclaves primaires correspondent à des phases minérales initiales du grès, de l'argile de pile ou du faciès pile qui ont été piégées dans les fissures à l'époque des circulations de fluides carbonatés. Elles sont constituées de quartz, de phases argileuses (chlorite-Mg et illite dans le réacteur, chlorite-Fe dans le grès), de matière organique ou de phases accessoires telles que des oxydes d'uranium aux bordures coffinitisées, des zircons en partie métamictisés, des sphènes altérés. Ces enclaves sont relativement saines car les parties les plus fragiles des minéraux ont disparu, dissoutes ou arrachées par les fluides hydrothermaux.

\* Les enclaves secondaires correspondent à des phases minérales contemporaines ou postérieures au remplissage carbonaté. Ce sont principalement des sulfures (galène ou pyrite) dans l'environnement du réacteur 13 ou quelques oxyhydroxydes de fer à proximité du réacteur 10.

L'observation des remplissages fissuraux en cathodoluminescence, les mesures microthermométriques des inclusions fluides et les mesures isotopiques de  $\delta^{18}\text{O}$  de la calcite permettent de distinguer deux périodes de circulation de fluides :

\* Une première période contemporaine du fonctionnement des réacteurs. Un fluide, très salé (composé probablement de  $\text{CaCl}_2$ ) a circulé aux alentours de  $150^\circ\text{C}$  en bordure du réacteur avec un gradient thermique d'une trentaine de degrés par mètre dans le grès. Il a circulé dans l'environnement des deux réacteurs 10 et 13. Cet épisode semble associé au champ proche des zones de réaction ;

\* Une deuxième période de circulation serait contemporaine de l'intrusion du filon de dolérite. Elle concerne uniquement le parement SD37 qui est situé à une vingtaine de mètres de ce filon. Cette deuxième période est marquée par la

circulation de deux fluides moins salés aux températures plus élevées, de l'ordre de 170°C et 310°C. Nous n'avons toutefois pas d'arguments pour déterminer l'ordre chronologique de ces deux épisodes et pour pouvoir associer spécifiquement l'un ou l'autre à l'intrusion du filon de dolérite.

Par ailleurs, les valeurs relativement basses des  $\delta^{13}\text{C}$  mesurées dans la calcite (entre -10 % et -20%) traduisent l'origine organique du carbone constituant la calcite. Du carbone organique aurait pu être libéré des plages de matière organique, dans les zones de réaction, à l'époque du fonctionnement des réacteurs nucléaires et de l'intense désilicification du grès. Ce carbone, associé à du CaO, aurait précipité dans les fissures sous forme de calcite.

#### **4. CARACTERISATION DES TRANSFERTS ELEMENTAIRES**

##### **4.1. Transfert de l'uranium**

L'uranium est particulièrement concentré à l'interface entre le réacteur et le grès encaissant. Cet excès est visible sur le parement D73 qui contient 16,5 % d' $\text{UO}_2$  dans la partie argile de pile et 0,01 % d' $\text{UO}_2$  dans la partie grès du contact. Cette forte teneur en  $\text{UO}_2$  est associée à une importante concentration de phases minérales accessoires en partie altérées (zircon principalement, titanates) qui incorporent de l'uranium. Elle pourrait résulter de la superposition d'une accumulation "mécanique" résiduelle des phases minérales au contact de la "barrière gréseuse" engendrée par l'action des fluides contemporains du fonctionnement des réacteurs nucléaires et de l'effet chimique d'un front d'oxydo-réduction entre l'argile de pile plus oxydée et le grès encaissant relativement plus réduit (d'après l'hypothèse de Curtis et Gancarz, 1983).

Contrairement au parement D73, les quinze premiers centimètres de grès localisés à la bordure du réacteur 13 sont très riches en  $\text{UO}_2$  (entre 10 et 20 %). A deux mètres du réacteur, les teneurs en  $\text{UO}_2$  sont comparables à celles du grès de référence. D'après les analyses de roche totale, les échantillons de grès les plus fissurés (10 % de  $\text{CaCO}_3$ ) contiennent plus d' $\text{UO}_2$  (0,62 %). Des analyses par activation neutronique effectuées sur des microprélèvements de remplissages fissuraux confirment que les fissures concentrent de l'U puisqu'elles en incorporent plusieurs centaines de ppm qui, d'après les cartes de répartition des traces de fission de l'U, seraient associés aux phases minérales secondaires telles que des zirconsilicates riches en U et Ti et à la calcite. Cette dernière contient environ 10 ppm d'U (mesurées en supposant un rapport  $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$  normal) lorsqu'elle est saccharoïde et piège l'uranium entre ses fibres lorsqu'elle est fibreuse. L'origine des petits oxydes d'uranium localisés dans la calcite fibreuse n'est pas déterminée, ils pourraient résulter d'une précipitation d' $\text{UO}_2$ , provoquée par la cristallisation de la calcite à partir du fluide carbonaté très uranifère, ou traduire la diffusion d'U des épontes vers l'intérieur de la fissure. Sur le parement SD37, les fissures de calcite fibreuse, qui ont probablement rejoint à l'époque de l'intrusion doléritique contiennent plus d'U que celles du parement D73.

Les analyses isotopiques de l'U effectuées par spectrométrie de masse à thermo-ionisation sur poudre de roche totale d'échantillons représentatifs des différents faciès ont permis de mettre en évidence que :

\* L'uranium du faciès pile est appauvri en  $^{235}\text{U}$ . Il a donc effectivement participé aux réactions nucléaires et a engendré des produits de fission tels que des terres rares légères, et des produits d'activation comme le  $^{239}\text{Pu}$ . Les réactions nucléaires ont été plus intenses dans l'environnement du parement SD37 que dans celui du parement D73 ;

\* De l'uranium, appauvri en  $^{235}\text{U}$ , a migré du coeur du réacteur vers le grès encaissant. Sur le parement D73, il s'est accumulé à l'interface entre le réacteur et le grès ; quelques centimètres de grès ont toutefois été contaminés. Dans l'environnement du réacteur 13, des transferts d'U appauvri en  $^{235}\text{U}$  ont été mis en évidence dans le grès distant de plus de 2 mètres du réacteur ;

\* Le  $^{239}\text{Pu}$ , formé à partir du  $^{238}\text{U}$  par capture neutronique a une période de décroissance radioactive (24 360 ans) très courte à l'échelle du gisement d'Oklo (les réacteurs auraient fonctionné pendant 850 000 ans). Il a donc actuellement totalement déchu en  $^{235}\text{U}$ . Dans l'environnement de la zone 10, de très légers excès de  $^{235}\text{U}$ , imputables à des transferts de  $^{239}\text{Pu}$ , sont détectables à environ 1,5 m du réacteur. Dans les premiers mètres de grès de la zone 13, les appauvrissements en  $^{235}\text{U}$  sont si forts qu'ils masquent complètement toute éventuelle trace de  $^{239}\text{Pu}$ . Un échantillonnage à plus grande échelle du parement SD37 aurait éventuellement permis de détecter de légers enrichissements en  $^{235}\text{U}$  comparables à ceux de la zone 10, dans laquelle les réactions nucléaires moins intenses et la présence du faciès argile de pile intermédiaire entre le faciès pile et le grès encaissant ont probablement limité les transferts élémentaires provenant du réacteur. Un excès de  $^{235}\text{U}$  sur la fraction argileuse inférieure à  $2\ \mu\text{m}$  d'un échantillon d'argile de pile provenant du sondage SF29 (réacteur 10) a également été mise en évidence (Bros et coll., 1991 ; Bros, 1993).

Les fissures qui recoupent le réacteur et le grès ont drainé des fluides contenant de l'U appauvri en  $^{235}\text{U}$ . Sur le parement SD37, cet U est plus appauvri dans les fissures que dans le faciès pile massif. Sur le parement D73, les fissures ont drainé des fluides chargés en  $^{239}\text{Pu}$  (à plus de 1,5 m du réacteur), puis des fluides chargés en U appauvri en  $^{235}\text{U}$  (sur une distance d'environ 1 m).

Les travaux de Bros (Bros et coll., 1991 ; Bros, 1993) confirment que la migration du Pu et de l'U s'est effectuée en plusieurs épisodes. Du Pu, probablement associé à de l'U aurait d'abord migré à travers les réacteurs à l'époque de leur fonctionnement et aurait été incorporé aux phases argileuses en cours de cristallisation. Après la cristallisation des argiles, et probablement après la décroissance du  $^{239}\text{Pu}$  en  $^{235}\text{U}$ , de l'uranium appauvri en  $^{235}\text{U}$  aurait ensuite migré à travers les zones de réaction en s'adsorbant à la surface des argiles.

#### 4.2. Transfert de terres rares légères

Parmi l'ensemble des lanthanides, les terres rares légères sont :

\* Formées en quantité importante au cours des réactions de fission puisqu'elles représentent au total 49 % des produits de fission ou de leurs descendants (Naudet, 1991). Les plus abondantes sont le Nd et le Ce dont les proportions sont respectivement 20,72 % et 12,28 %. Comparativement, les terres rares intermédiaires et lourdes représentent moins de 1 % des produits de fission et

de leurs descendants. Nous les considérons donc comme étant entièrement d'origine naturelle ;

\* Utilisées, dans l'approche analogique, comme des analogues naturels possibles de radioéléments artificiels. D'après Chapman et Smellie (1986), le  $\text{Nd}^{3+}$  serait un analogue potentiel de l' $\text{Am}^{3+}$  et du  $\text{Cm}^{3+}$  dans les conditions de l'environnement. Il est toutefois difficile d'étendre cette analogie à l'ensemble des terres rares légères.

Sur les parements D73 et SD37, nous avons détecté des excès de terres rares légères :

\* Dans les coeurs des zones de réaction, y compris dans les fissures de carbonates qui recoupent le faciès pile de la zone 13. Ces excès sont plus importants dans la zone 13 que dans la zone 10 ;

\* A l'interface entre les zones de réaction et le grès. Sur le parement D73, ces excès concernent uniquement les quelques centimètres d'argile de pile bordant le grès. La composition en terres rares du grès massif reste identique quelque soit la distance au réacteur. Sur le parement SD37, ils sont au contraire détectés dans le grès, à une distance d'au moins 15 cm du réacteur ;

\* Dans les fissures de carbonates qui recoupent le grès massif, sur une distance d'au moins 2 m sur le parement D73 et 1,5 m sur le parement SD37.

Pour essayer d'associer ces excès de terres rares légères à une origine fissiogénique, nous avons analysé la composition isotopique du Nd qui est le lanthanide fissiogénique le plus abondant. Il semble avoir eu un comportement relativement simple sur les deux parements puisque :

\* Du Nd fissiogénique est présent dans le faciès pile des deux parements. Il est plus abondant sur le SD37 que sur le D73 ;

\* La quantité de Nd fissiogénique diminue vers l'extrémité de la lenticule de réacteur du parement SD37. Les réactions nucléaires semblent avoir été très intenses à proximité du coeur du réacteur (nous n'avons pas d'échantillons dans le coeur précisément) et moins intenses à inexistantes à l'autre extrémité de la lenticule ;

\* Une partie du Nd fissiogénique migre du réacteur vers le grès. Sur le parement D73, il se concentre dans la partie argileuse de l'interface et contamine la bordure gréseuse sur une épaisseur inférieure à cinq centimètres. Sur le parement SD37, du Nd radiogénique migre dans le grès sur une distance d'au moins 15 cm (nous n'avons pas d'analyse au delà) ;

\* Une migration de Nd par l'intermédiaire des fissures de calcite est visible sur le parement D73. Toutes les fissures ont véhiculé du Nd radiogénique à environ 1,30 m autour du réacteur. Sur le parement SD37, l'échantillonnage disponible n'a pas permis de mettre en évidence un tel phénomène.

Les travaux de Bros (Bros et coll. 1991 ; Bros 1993) sur la fraction argileuse inférieure à  $2 \mu\text{m}$  d'échantillons d'argile de pile du réacteur 10 provenant du sondage SF29 mettent en évidence des transferts de terres rares fissiogéniques (Nd et Sm) contemporains et postérieurs à la cristallisation des argiles.

### 4.3. Conclusion

Les excès d'uranium et de néodyme détectés à partir des analyses chimiques sur roche totale sont corrélés à des compositions isotopiques anormales. Nous pouvons supposer qu'il en est de même pour l'ensemble des terres rares légères, excepté pour le Ce dont le comportement plus complexe peut avoir été affecté par des changements de conditions d'oxydo-réduction.

Ces excès sont localisés dans le coeur des zones de réaction, à l'interface entre le réacteur et le grès, dans les fissures de calcite du grès et parfois dans la proche bordure gréseuse non fissurée. Ces éléments, des actinides ou des produits de fission, formés dans le coeur des réacteurs à l'époque des réactions nucléaires, ont migré vers le grès encaissant. Dans l'environnement du réacteur 10 (parement D73), ils se sont concentrés dans la partie argileuse de l'interface entre le réacteur et le grès et dans les fissures de carbonate du grès. Les résultats des analyses isotopiques des alcalins et alcalino-terreux Rb, Sr et Ba, effectuées par spectrométrie de masse à thermoionisation par Hidaka et Holliger (1992) sur le sondage SF84 (réacteur 10), sont similaires puisque ces auteurs observent de très fortes accumulations d'isotopes fissiogéniques à l'interface entre le réacteur et les faciès F<sub>A</sub> et F<sub>B</sub>. Le grès massif, non fissuré, a toutefois enregistré quelques petits transferts de <sup>239</sup>Pu, actuellement reconnaissables par des taux de <sup>235</sup>U très légèrement supérieurs à la normale - ces taux confirmés par les résultats de Bros (Bros et coll., 1991 ; Bros, 1993) -, et d'après Hidaka et Holliger (1992) quelques transferts d'alcalins et d'alcalino-terreux de fission. Dans l'environnement du réacteur 13 (parement SD37), les transferts élémentaires ont été plus importants. Les réactions nucléaires plus intenses ont formé plus de radioéléments et l'absence d'argile de pile semble avoir favorisé le transfert des radioéléments qui ont migré à une distance d'au moins deux mètres du réacteur. Un échantillonnage complémentaire plus lointain serait nécessaire pour préciser l'épaisseur de la bordure de grès contaminé.

Au vu de la période de décroissance du Pu (23 360 ans) et de la durée de fonctionnement des réacteurs nucléaires (850 000 ans, d'après Naudet, 1991), les transferts de <sup>239</sup>Pu ont nécessairement eu lieu pendant les réactions nucléaires, avant qu'il ait totalement déchu en <sup>235</sup>U.

## 5. IMPLICATIONS POUR LE STOCKAGE ET CONCLUSIONS

### 5.1 Analogie entre les réacteurs d'Oklo et un site de stockage artificiel

Parmi l'ensemble des formations géologiques susceptibles d'être étudiées comme analogues naturels d'un site de stockage de déchets nucléaires de haute activité, les réacteurs nucléaires d'Oklo sont tout à fait particuliers puisqu'ils ont confiné pendant deux milliards d'années des actinides, des produits de fission et les descendants de ces radioéléments. De plus, à Oklo, la géométrie des faciès pétrographiques caractéristiques des zones de réaction et la présence des cristaux d'uraninite, siège des réactions nucléaires, confirment l'intérêt d'une telle approche puisque :

\* Les cristaux d'uraninite du faciès pile sont assimilables au "terme source" du stockage artificiel de combustible nucléaire non retraité : ils ont été le siège des réactions nucléaires et ont piégé les radioéléments formés à partir de l'U qu'ils contenaient à l'époque des réactions nucléaires ;

\* La composante argileuse des faciès pile et argile de pile, qui assure l'interface entre les cristaux d'uraninite et le grès encaissant, peut être physiquement et chimiquement comparée aux barrières argileuses artificielles. Composée d'illite et de chlorite-Mg, sa capacité de piégeage vis à vis des radioéléments est inférieure à celle de la barrière ouvragée smectitique envisagée pour le stockage artificiel (le site interfoliaire des smectites leur confère des capacités de gonflement et de rétention supérieures à celles des illites et des chlorites) ;

\* Le grès n'est comparable à aucune des barrières géologiques envisagées pour le stockage de déchets nucléaires de haute activité en France. Si ses propriétés physiques lui donnent actuellement un comportement proche de celui d'une formation cristalline, il était certainement moins silicifié, plus poreux et plus perméable à l'époque du fonctionnement des réacteurs nucléaires ;

Toutefois, l'âge et les conditions de fonctionnement des réacteurs d'Oklo leur confèrent une histoire relativement différente du devenir prévu d'un site de stockage artificiel car :

\* Les radioéléments sont restés confinés pendant une durée bien supérieure au million d'années requis pour la sûreté du stockage artificiel. Depuis deux milliards d'années, les radioéléments se sont désintégrés, exceptée une partie de l'U, du Th ou du Rb. Les éléments issus des désintégrations peuvent avoir des comportements géochimiques différents de ceux des radioéléments initiaux ;

\* De très fortes circulations de solutions modératrices des réactions nucléaires ont corrodé et dissous le grès initial. Elles sont à l'origine de la formation des faciès pile et argile de pile caractéristiques des zones de réaction et ont silicifié le grès encaissant. Vraisemblablement à la même époque, les fluides à partir desquels a précipité la calcite ont circulé dans des fissures du réacteur et du grès ;

\* L'environnement du réacteur 13 a été soumis à une perturbation hydrothermale tardive, vers 750 Ma (Holliger, 1991) liée à la mise en place d'un filon de dolérite. Cet épisode s'est accompagné d'un léger rejeu tectonique qui a réactivé certaines fissures colmatées par la première génération de calcite, d'une nouvelle circulation de solutions à partir desquelles a précipité la seconde génération de calcite, et de la kaolinitisation des argiles situées dans les zones fragilisées (lenticule de réacteur).

En conséquence, les réacteurs nucléaires d'Oklo seraient comparables à un très vieux site de stockage de combustible nucléaire non retraité qui aurait eu une histoire particulièrement pénalisante. Les transferts élémentaires induits dans de telles conditions sont probablement plus importants que ceux qui pourraient être provoqués par l'infiltration d'eaux météoritiques dans l'environnement d'un site de stockage artificiel.

## **5.2. Implications pour le stockage**

Les principales implications des résultats acquis sur les réacteurs fossiles 10 et 13 pour prédire le comportement à long terme de déchets nucléaires de haute activité stockés en formation géologique concernent :

\* La stabilité des radioéléments dans le terme source à l'échelle de deux milliards d'années puisqu'ils sont restés en grande partie confinés dans les oxydes d'uranium. Ces résultats pourraient être pris en considération dans l'hypothèse d'un



stockage direct du combustible nucléaire irradié qui nécessite un isolement beaucoup plus court, de l'ordre du million d'années ;

\* Le rôle de la barrière argileuse vis à vis de la rétention des radioéléments puisque la petite fraction de radioéléments libérée au cours de l'altération des cristaux d'uraninite, provoquée par l'action des fluides contemporains du fonctionnement des réacteurs nucléaires, a contaminé la barrière argileuse (constituée des faciès pile et argile de pile) et s'est accumulée au contact de la barrière géologique gréseuse. Les radioéléments se sont associés à des phases minérales secondaires (zirconsilicates riches en Ti et U) issues de l'altération de minéraux accessoires, et à des phases argileuses (illite et chlorite Mg) qui possèdent une capacité de gonflement très inférieure à celle des smectites envisagées pour la barrière ouvragée argileuse artificielle ;

\* Le rôle des interfaces, et en particulier de l'interface entre la barrière ouvragée et la roche encaissante. Cette interface, correspondant à un front de dissolution de la silice et probablement à un front d'oxydo-réduction (zone oxydée crée par la radiolyse, côté réacteur), a joué un rôle de barrière chimique ou physique pour la migration des radioéléments puisque la plupart des radioéléments s'accumule dans la partie argileuse de cette interface ;

\* Le rôle de la barrière argileuse dans la rétention des radioéléments puisque les transferts élémentaires les plus importants (échelle métrique) sont corrélés à l'absence du faciès argile de pile intermédiaire entre le faciès pile et le grès encaissant ;

\* Le rôle des fissures puisque, dans la barrière géologique, les transferts élémentaires s'effectuent principalement par l'intermédiaire des fissures, voies de circulation privilégiées. La sûreté de la barrière géologique paraît donc, en partie, dépendre de son degré de fissuration.

## REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- BROS R., GAUTHIER-LAFAYE F., STILLE P. (1991) - Pétrographie et géochimie isotopique des argiles associées au réacteur 10 d'Oklo et à la diagenèse du Francevillien. Rapport "Analogues naturels" CEA/Univ. Strasbourg, contrat BC-5432/JB, 32 p.
- BROS R., (1993) - Géochimie isotopique (Sm-Nd, Rb-Sr, K-Ar, U) des argiles du bassin protérozoïque de Franceville et des réacteurs d'Oklo (Gabon). Thèse Doct. Univ. Louis Pasteur, Strasbourg, 154p.
- CHAPMAN N.A. et SMELLIE J.A. (1986) - Introduction and summary of the workshop. In N.A. Chapman and J.A.T. Smellie (Guest Editors), Natural analogues to the conditions around a final repository for high-level radioactive waste. Chem. Geol., 55, p. 167-173 (special issue).
- CURTIS D.B., GANCARZ A.J. (1983) - Radiolysis in nature. Evidence from the Oklo natural reactors. SKBF/KBS 83-10, Stockholm, Suède, 55 p.
- GAUTHIER-LAFAYE F. (1986) - Les gisements d'uranium du Gabon et les réacteurs naturels d'Oklo. Modèle métallogénique de gîtes à fortes teneurs du protérozoïque inférieur. Thèse de Doct. Etat Univ. Louis Pasteur, Strasbourg, 250p.
- HEMOND C., MENET C., MENAGER M.T. (1992) - Migration of U and Nd isotopes in the near field of the new nuclear Oklo reactor 10 (Gabon). Mater. Res. Soc. Symp. Proc., 15.
- HIDAKA H., HOLLIGER P. (1992) - Geochemical behavior of fissionogenic Rb, Sr, Cs et Ba in SF84 (zone 10). Rapport Uni. Tokyo - CEA / CCE, 2 p.
- HOLLIGER P. (1991) - Les nouvelles zones de réaction d'Oklo : datation U-Pb et caractérisation in situ des produits de fission à l'analyseur ionique. Rapport d'avancement 1991, contrat CCE/CEA: "Oklo-Analogues naturels", Note technique DEM n°01/92, 42 p.
- MENET-DRESSAYRE C. (1992) - Etude du comportement géochimique des radioéléments et de leurs descendants autour des réacteurs nucléaires naturels 10 et 13 d'Oklo (Gabon) - Application au stockage de déchets nucléaires de haute activité. Thèse Doct. Univ. Paris XI, n° d'ordre 2218, 191 p.
- MENET C., MENAGER M.T. (1993) - Migration of radioelements around the new nuclear reactors at Oklo: petrological and geochemical results. In: Oklo Working Group Meeting, Proceedings of the second joint CEC-CEA progress meeting held in Brussels on 6 and 7 April 1992, Report EUR 14877 EN.
- MENET C., MENAGER M.T., PETIT J.C. (1992) - Migration of radioelements around the new nuclear reactors at Oklo: Analogies with a high-level waste repository. Radiochim. Acta 58/59, 395-400.
- NAUDET R. (1991) - Oklo : des réacteurs nucléaires fossiles - Etude physique. Ed Eyrolles (collection CEA), 685 p.