

# Les réacteurs naturels d'Oklo (Gabon) : 2 milliards d'années avant Fermi

mercredi 8 février 2006 , par [Bertrand Barré](#)

**Les réacteurs nucléaires naturels d'Oklo (Gabon) :**

**2 milliards d'années avant Fermi !**

Bertrand BARRÉ

Président, European Nuclear Society

Alors que se prépare la tenue à l'automne prochain d'un débat public sur la gestion des déchets radioactifs en France, il peut être intéressant de rappeler aux lecteurs de « Sciences » une histoire fascinante et trop peu connue, celle des réacteurs nucléaires fossiles d'Oklo.

## **1. « Le navigateur italien a débarqué dans le Nouveau Monde. »**

Le 2 décembre 1942, c'est par ce message téléphonique codé que Arthur Compton annonçait à James Conant, de Harvard, que l'équipe rassemblée à Chicago autour d'Enrico Fermi venait de réussir à entretenir la première réaction en chaîne de fission au sein du premier réacteur nucléaire réalisé de main d'homme, la pile CP1. C'était l'apothéose d'une folle décennie de recherche internationale sur la structure du noyau de l'atome. Dès que Chadwick eut découvert le neutron en 1932, toute la communauté internationale des physiciens a compris l'intérêt que présentait pour la recherche cette particule dépourvue de charge électrique, qui pouvait donc interagir avec le noyau sans être affectée par la répulsion coulombienne. Enrico Fermi, notamment, s'est mis à bombarder de neutrons « modérés »[1] tous les noyaux des atomes de la Table de Mendéléiev. Ne réussissant pas à interpréter les résultats qu'il obtenait en bombardant les noyaux d'uranium, l'élément naturel le plus lourd, il informa ses collègues de sa perplexité. Fin 1938, l'équipe allemande d'Otto Hahn et Lise Meitner, de fins chimistes, découvrirent qu'en fait, après avoir absorbé un neutron, le noyau d'uranium se scindait en deux fractions inégales, pas toujours les mêmes : ils baptisèrent ce phénomène « fission ». Quelques mois plus tard, c'est l'équipe française dirigée par Frédéric Joliot qui confirmait la fission et mettait en évidence qu'elle s'accompagnait de l'émission d'environ 3 nouveaux neutrons. Ils en déduirent immédiatement la possibilité d'une réaction de fissions en chaîne, et établirent (par des brevets secrets déposés au printemps 1939) les concepts de bombe atomique, d'une part, et de réacteur nucléaire, d'autre part. La deuxième guerre mondiale dispersa les équipes européennes, et c'est aux Etats-Unis que se poursuivit l'aventure, dont nous avons décrit la conclusion.

Et pendant 30 ans, on a cru que CP1 n'était pas seulement le premier réacteur réalisé de main d'homme, mais qu'il était le premier réacteur nucléaire de fission – tout court.

## **2. Notre Terre radioactive.**

Peu de gens réalisent que le mot géothermie n'est qu'une autre façon de décrire la radioactivité de notre planète [2]. Parmi les éléments les plus lourds qui sont restés lors de la formation de la Terre (la plupart des éléments légers ont échappé à sa gravité insuffisante), il y en a qui n'existent que sous forme d'isotopes radioactifs. Le potassium [3], le thorium et l'uranium en sont les plus abondants aujourd'hui. L'énergie qu'ils continuent à émettre durant leur décroissance radioactive est le système de chauffage central qui complète – modestement – l'énergie que nous recevons du Soleil.

Il faut rappeler que tous les éléments plus légers que le fer se sont formés dans les étoiles par séries de réactions de fusion nucléaires exoénergétiques. Pour former les éléments plus lourds que le fer et, sans doute, jusqu'au curium, il a fallu des réactions de captures multiples de neutrons, suivies des désintégrations appropriées. Ces réactions absorbent de l'énergie au lieu d'en dégager : elles n'ont pu se produire que dans le déchaînement cataclysmique des explosions de supernovae... C'est pourquoi ces éléments sont relativement rares. Dans l'univers, on compte un atome d'uranium pour mille milliards d'atomes (10-12). Lors de l'accrétion de la Terre, quand elle était toute entière une boule de magma fluide à très haute température, alors que le fer et le nickel plongeaient constituer l'essentiel du noyau central de la planète, l'élément uranium, « lithophile », restait dans la croûte superficielle riche en silicates. Sa concentration moyenne y monte donc à 2 parties par million (2 ppm ou  $2 \cdot 10^{-6}$ ).

L'uranium naturel est (aujourd'hui) composé de trois isotopes, dans les proportions suivantes : 99,2744% d'isotope  $^{238}\text{U}$ , 0,7202% d'isotope  $^{235}\text{U}$  et 0,0054% d'isotope  $^{234}\text{U}$ . Cette composition très précise est la même sur (presque) toute la planète. Seul l'isotope  $^{235}\text{U}$  est facilement « fissile » sous l'action des neutrons lents. Tous ces isotopes sont radioactifs et se désintègrent avec le temps, mais pas avec la même vitesse. La période radioactive de  $^{238}\text{U}$  est de 4,51 milliards d'années, en gros l'âge même de la Terre, tandis qu'il suffit de 705 millions d'années pour que disparaisse la moitié des atomes de  $^{235}\text{U}$ . En conséquence, l'abondance relative de  $^{235}\text{U}$  augmente au fur et à mesure que l'on remonte dans le temps : elle était proche de 17% à la création du système solaire, et voisine de 3,5% il y a deux milliards d'années. 3,5%, c'est la teneur à laquelle il faut aujourd'hui « enrichir » l'uranium naturel pour en alimenter nos réacteurs à eau ordinaire...

Dans les années 50, quelques auteurs ont joué avec l'idée que des réactions en chaîne puissent s'être spontanément produites lorsque l'enrichissement était suffisant, mais il aurait fallu rassembler tellement de conditions favorables que ça semblait vraiment tiré par les cheveux. Et d'ailleurs, on n'avait aucun indice d'un tel phénomène.

### **3. Un « polar » scientifique.**

En juin 1972, à Pierrelatte où l'on enrichissait l'uranium pour les besoins de la « force nationale de dissuasion », une mesure de routine, par spectrométrie de masse, de la teneur isotopique d'un échantillon d'hexafluorure d'uranium naturel  $\text{UF}_6$  en tête d'usine a présenté une petite anomalie : il n'y avait que 0,7171% de  $^{235}\text{U}$  au lieu de la valeur magique 0,7202 ! Bien que la différence fût minime, c'était si bizarre que le CEA (Commissariat à l'Énergie Atomique) qui exploitait l'usine, lança sur le champ une enquête approfondie, mais en grand secret.

D'abord, ce n'était pas un artefact : l'anomalie se reproduisait sur plusieurs autres échantillons. Ce n'était pas non plus une erreur dans l'usine elle-même qui aurait amené un recyclage accidentel d'un reflux appauvri. On a ensuite éliminé l'hypothèse d'une

contamination accidentelle par de l'uranium provenant du retraitement de combustibles usés, puisqu'on ne trouvait pas trace d'uranium 236 dans les échantillons[4]. Les enquêteurs pistèrent alors cet uranium anormal en remontant toutes les étapes qui l'avaient mené jusqu'à l'entrée de l'usine d'enrichissement : de Pierrelatte à Malvési, où il était sous forme de tétrafluorure UF<sub>4</sub>, de Malvési à Gueugnon où l'on retrouva des concentrés d'uranate « yellowcake » affichant des teneurs anormalement faibles en 235U. Tous les concentrés incriminés provenaient de la Société COMUF qui exploitait deux mines au Gabon, à Mounana et à Oklo, près de Franceville, et une usine de concentration à Mounana. Très vite, il apparut que le minerai anormal provenait de la zone nord du très riche gisement d'Oklo. Dans certains lots, la teneur en 235U descendait en dessous de 0,5%. Entre 1970 et 1972, dans les 700 tonnes d'uranium livrés à l'usine de Mounana, le déficit cumulé en 235U dépassait les 200 kg, une paille !

L'uranium de la mine d'Oklo était vraiment différent de l'uranium naturel provenant de partout ailleurs. Pourquoi ?

Il ne pouvait s'agir de séparation isotopique « naturelle », car alors, où se trouvait la fraction enrichie ?

Dès août 1972, l'hypothèse se faisait jour de très anciennes réactions de fission en chaîne, et les enquêteurs se mirent à la recherche de produits de fission, ou plutôt des lointains descendants de produits de fission hypothétiques. Le « spectre » des produits de fission, leur répartition par masses atomiques, est tellement caractéristique qu'il constitue un indice indiscutable que des fissions ont eu lieu. En pratiquant des analyses sur place, on a retrouvé des traces sans ambiguïté : à un moment donné de l'histoire du gisement, celui-ci est devenu un réacteur nucléaire « naturel ». La découverte fut rendue publique par des comptes-rendus à l'Académie des Sciences [5]-[6], mais de nombreuses questions restaient posées. De quand dataient ces réactions ? Combien de temps a duré le « fonctionnement » du réacteur ? Quel était son mode de contrôle ? Pourquoi sa taille ? L'enquête était loin d'être terminée.

COMUF accepta de cesser l'extraction de l'uranium de la zone concernée et de laisser la place aux savants. Un « Projet » Oklo fut mis en place par le CEA, puis ouvert aux recherches internationales dans le cadre de l'Agence Internationale de l'Energie Atomique AIEA. On se mit à sonder, carotter, échantillonner et mesurer à qui mieux mieux.

Par la suite, ce n'est pas un réacteur que l'on a identifié, mais 16 dans la région immédiate d'Oklo, et un autre à Bangombé, à une trentaine de kilomètres au sud-est. A la date d'aujourd'hui, aucun site analogue n'a été découvert ailleurs sur Terre.

#### **4. Quelques explications actuelles du Phénomène d'Oklo.**

Pour faire fonctionner un réacteur nucléaire, il faut une forte concentration d'uranium à une teneur minimale en 235U [7], il faut de l'eau pour ralentir les neutrons et évacuer les calories et il faut éviter la présence d'éléments qui absorbent voracement les neutrons, tels que le bore, le cadmium, le hafnium, le gadolinium et autres « poisons ». Il faut aussi une taille minimum (dans le cas d'un gisement, une épaisseur minimum) pour éviter que de trop nombreux neutrons ne s'évadent hors de la zone réacteur.

Ce n'est qu'il y a environ 2,2 milliards d'années que le patient travail de photosynthèse accompli par les premiers organismes monocellulaires vivant dans les océans a relâché dans

l'atmosphère terrestre assez d'oxygène pour que les eaux de surface et souterraines deviennent oxydantes. Elles ont alors pu dissoudre l'uranium du granite en l'oxydant de la valence IV (UO<sub>2</sub>) à la valence VI, où il est beaucoup plus soluble. A l'inverse, en rencontrant des conditions réductrices (par exemple à cause de la présence de matières organiques), l'uranium a pu se précipiter en UO<sub>2</sub> sous forte concentration. Une transition analogue se constate pour le fer et le manganèse, par exemple. Ceci veut dire qu'il ne peut pas y avoir eu de minerai riche en uranium plus ancien que ces 2,2 milliards d'années. C'est la limite haute de notre fourchette. Les sédiments riches ont ensuite été ensevelis sous plusieurs milliers de mètres d'autres sédiments d'origine deltaïque puis marine, et se sont métamorphisés en grès, où la concentration d'uranium dépasse les 5%. Puis des rehaussements tectoniques ont provoqué des failles, avec entrées d'eau et concentrations encore supérieures dans les produits détritiques.

A l'inverse, depuis environ 1,5 milliard d'années, la teneur en <sup>235</sup>U a décliné en dessous du niveau qui rend possible la fission spontanée en présence d'eau. C'est notre fourchette basse. Il a fallu de nombreuses études de géologie, géochimie et neutronique pour réduire la fourchette à la valeur qu'on évalue aujourd'hui : les réactions ont dû démarrer il y a  $1\,950 \pm 30$  millions d'années.

Les zones riches se présentent comme des lentilles allongées très poreuses d'une dizaine de mètres de longueur, avec une épaisseur voisine du mètre et une largeur de quelques mètres. Le « faciès » de ces lentilles est très particulier, et elles sont entourées d'une sorte de gangue argileuse au milieu du grès. Localement, la porosité accessible à l'eau peut atteindre 40%, probablement du fait d'une lixiviation partielle de la silice (particules de quartz qui constituent originellement 80% du grès, avec 10% d'oxyde d'uranium et autant d'un ciment argileux) par les eaux souterraines. En effet, à cette époque où la radioactivité de la croûte terrestre était plus élevée qu'aujourd'hui, le gradient thermique souterrain devait aussi être plus élevé.

Pendant le fonctionnement du réacteur, la température de l'eau s'est élevée sensiblement, accélérant le processus de « dé-silicification » [8], augmentant donc, par différence, la concentration en uranium et compensant ainsi sa consommation par fission. De fait, la concentration en uranium dans les lentilles est extrêmement haute, dépassant parfois les 50%, et plus la concentration en uranium est élevée, plus sa teneur en <sup>235</sup>U est appauvrie. La dé-silicification a réduit le volume original du grès d'un facteur 7, faisant passer l'épaisseur du gisement de 5 mètres à 80 cm. En outre, en perdant sa silice, le grès immédiatement environnant s'est transformé en cette gangue argileuse, qui a limité la migration des eaux et gardé l'uranium en place. Ainsi, de proche en proche, le réacteur a créé son propre environnement, la zone de réaction se déplaçant progressivement, un peu comme la zone fondue d'une bougie [9].

En analysant finement le spectre des produits de fission, qui n'est pas identique pour les différents isotopes fissiles, nous savons qu'il n'y a pas eu que des fissions dans <sup>235</sup>U : il y a eu aussi des fissions par neutrons rapides dans <sup>238</sup>U et des fissions par neutrons lents dans du plutonium formé in situ par capture de neutrons dans <sup>238</sup>U, et depuis longtemps transformé par décroissance radioactive  $\alpha$  en <sup>235</sup>U, puisque la période radioactive de <sup>239</sup>Pu n'est que de 24 000 ans [10]. On constate, à ce propos, que le plutonium n'est pas si « artificiel » qu'on le dit.

Ceci a permis aux neutroniciens d'évaluer que la durée de « fonctionnement » a été énorme, variant de 150 000 à 850 000 ans d'un site à l'autre ! Cela n'a évidemment rien à voir avec les 4 ou 5 ans que passe un combustible nucléaire dans un réacteur, mais il faut dire que la puissance volumique des réacteurs d'Oklo était à peine un millionième de celle d'un REP d'aujourd'hui.

Les réacteurs étaient « contrôlés » par plusieurs mécanismes, le principal étant la température. Avec le dégagement de l'énergie de fission, la température du réacteur s'élevait, ce qui provoquait à la fois l'augmentation des captures sans fission par  $^{238}\text{U}$  (effet Doppler) et la diminution de la densité de l'eau et, donc, de son pouvoir modérateur. A température donnée, les réactions se stabilisaient donc à un certain niveau, niveau qui variait dans le temps en fonction de l'usure progressive de l'uranium fissile, et de la disparition progressive de certains produits de fission « poisons ».

En combinant les données géologiques et ces calculs de neutronique, on pense désormais que les réacteurs de la zone nord d'Oklo ont fonctionné à une profondeur de plusieurs milliers de mètres sous leurs sédiments. A ces profondeurs, les conditions de température et de pression étaient proches de celles que l'on rencontre dans un Réacteur à Eau Pressurisée d'aujourd'hui (350 à 450°C, 15 à 20 Mpa), tandis que ceux du sud ont fonctionné plutôt sous 500 mètres de terrain, à des conditions (250°C, 5 Mpa) voisines de celles des Réacteurs à Eau Bouillante. Même les concepteurs d'Oklo n'ont pas tranché entre ces féroces concurrents d'aujourd'hui qui, combinés, constituent 87% du parc électronucléaire mondial.

Bien qu'il se soit produit des altérations significatives dans les périodes récentes, quand le soulèvement tectonique et l'érosion ont porté ces réacteurs près de la surface, et surtout quand la rivière Okolo Néné a creusé sa vallée, les éléments lourds thorium, uranium et plutonium n'ont pas migré du tout[11], de même que les terres rares, le zirconium, le ruthénium, le palladium, le rhodium et quelques autres éléments. En revanche, krypton, xénon, iode, baryum et strontium ont bougé... mais peut-être seulement après quelques millions d'années.

## **5. Oklo est-il un « analogue naturel » de stockage géologique ?**

Sitôt après sa découverte, et au-delà de la pure fascination scientifique, la communauté nucléaire s'est passionnée pour le phénomène d'Oklo, et les enseignements qu'on en pouvait tirer pour la gestion finale des déchets radioactifs de Haute Activité ou à Vie Longue (HA-VL).

On constate de plus en plus un consensus international pour considérer que la meilleure façon de disposer des déchets HA-VL est de les installer, avec le conditionnement et l'emballage adéquats et ce qu'il faut de barrières supplémentaire, au sein d'une couche souterraine géologique stable, où la décroissance radioactive réduira progressivement leur toxicité à une valeur négligeable. Mais cette décroissance prend très longtemps, et il est très difficile de démontrer le confinement des éléments radioactifs sur des durées qui se mesurent en dizaines de milliers d'années. On ne peut le faire qu'en passant par une modélisation physico-mathématique, avec les incertitudes inhérentes associées à la représentativité du modèle, sa précision et sa complétude, ainsi qu'à la propagation de ces incertitudes le long des calculs.

Et là-bas, à Oklo, la Nature a confiné précisément ces mêmes éléments radioactifs, non pas durant des centaines de milliers d'années, ni des millions, mais pendant deux milliards d'années, et sans barrière ouvragée ni emballage spécial. Pour comprendre ce que

représentent deux milliards d'années, rappelons-nous simplement que la séparation de la Pangée et l'ouverture de l'océan Atlantique datent d'à peine 200 millions d'années...

C'est vrai, surtout en ce qui concerne les éléments lourds qui constituent l'essentiel de la radio-toxicité potentielle des colis HA-VL. Mais on ne peut pas pousser la comparaison au bout. Pour utiliser le vocabulaire des adolescents, Oklo, c'est « trop ». Ce serait parfait si on pouvait trouver des réacteurs fossiles d'un million d'années... mais nous avons vu que la neutronique l'interdit. Comment comparer les conditions que l'on recherche pour un site de stockage géologique (bien stable, pas ou peu d'eau, température en dessous de 100°C, pendant 100 000 à 200 000 ans) avec ces zones qui ont connu un million d'années d'eau chaude, ont perdu les trois-quarts de leur matière par dé-silicification et ont été généreusement irradiées ? C'est trop. Oklo ne peut pas constituer une vraie démonstration. Mais il donne une solide confiance dans notre capacité à réaliser les conditions, tellement plus simples, d'un stockage géologique sûr !

## **6. Conclusion : Un phénomène unique ?**

J'emprunte ma conclusion à la préface qu'avait écrite Jules Horowitz au livre de Roger Naudet [12] qui a nourri l'essentiel de cet article : « Il est, somme toute, plausible que des réactions de fission en chaîne aient pu se produire spontanément il y a environ deux milliards d'années, et pendant une durée suffisante pour provoquer localement des anomalies dans la composition isotopique de quelques éléments, dont l'uranium. Ce qui constitue un miracle, c'est qu'en dépit des bouleversements que la surface de la Terre a subi depuis cette époque reculée, les preuves en ont survécu jusqu'à nos jours, à Oklo, pour être découvertes grâce à la vigilance des analystes du CEA ».

Il n'y a pas de raison de penser que ce qui s'est produit 17 fois au Gabon ne s'est pas également produit ailleurs sur Terre, notamment dans les vieux minerais riches du Canada ou d'Australie... mais, de fait, trois décennies après sa découverte Oklo reste encore unique. Et même s'il perdait son caractère d'exception géologique, il resterait unique comme polar scientifique !

## **Bibliographie**

La Découverte (Septembre 1972)

[5] R. Bodu et al. Sur l'existence d'anomalies isotopiques rencontrées dans l'uranium du Gabon. CR Académie des Sciences Paris 275 D p.1731

[6] M. Neuilly et al. Sur l'existence dans un passé reculé d'une réaction en chaîne naturelle de fissions dans le gisement d'uranium d'Oklo (Gabon) *ibid.* p.1847

## **Synthèse**

[12] R. Naudet OKLO : Des réacteurs nucléaires fossiles. Etude physique. Eyrolles, Paris, 1991

## **Quelques sites Web**

[www.wonuc.org/nucwaste/oklo.htm](http://www.wonuc.org/nucwaste/oklo.htm) (avec de nombreux liens !)

[www.science.uottawa.ca/est/eng/prof/clark/EVS%203101/nuclear/OKLO%20REACTORS.ppt](http://www.science.uottawa.ca/est/eng/prof/clark/EVS%203101/nuclear/OKLO%20REACTORS.ppt) (Présentation PowerPoint™)

[www.world-nuclear.org/info/printable\\_information\\_papers/inf78print.htm](http://www.world-nuclear.org/info/printable_information_papers/inf78print.htm)

**(Tout sur l'uranium)**

[www.ans.org/pi/np/oklo/](http://www.ans.org/pi/np/oklo/)

[www.energethique.com/notions/oklo.htm](http://www.energethique.com/notions/oklo.htm)

[www.curtin.edu.au/curtin/centre/wairsc/OKLO/index.shtml](http://www.curtin.edu.au/curtin/centre/wairsc/OKLO/index.shtml) (bonne synthèse)

[www.ocrwm.doe.gov/factsheets/doeymp0010.shtml](http://www.ocrwm.doe.gov/factsheets/doeymp0010.shtml) (Oklo analogue naturel)

[1] Il avait vite découvert que si l'on ralentissait préalablement les neutrons par chocs avec des noyaux légers, ils interagissaient ensuite beaucoup plus efficacement avec la matière.

[2] Outre le résidu d'énergie gravitationnelle relâchée lors de son accrétion initiale.

[3] Le potassium  $^{40}\text{K}$  de notre squelette est responsable de la moitié de la radioactivité de notre corps, qui se monte à environ 8000 Bq pour un adulte. Le reste est surtout dû au carbone  $^{14}\text{C}$  qui se forme dans la haute atmosphère sous l'action des rayons cosmiques.

[4] Dans un réacteur, les neutrons absorbés dans  $^{235}\text{U}$  ne provoquent pas tous la fission : une certaine proportion est simplement capturée par des noyaux qui deviennent alors  $^{236}\text{U}$ .

[7] Certains types de réacteurs peuvent utiliser des combustibles à base d'uranium naturel, mais seulement si l'on utilise de l'eau lourde  $\text{D}_2\text{O}$  ou du graphite très pur comme modérateur, et un réseau « hétérogène » uranium/modérateur, comme dans les réacteurs CANDU ou Magnox. On imagine mal une telle configuration dans la nature.

[8] A  $20^\circ\text{C}$ , la solubilité de la silice dans l'eau est de 0,01 g/l. A  $160^\circ\text{C}$ , température possible de départ à cette profondeur, elle monte à 0,2 g/l et elle atteint 1,6 g/l à  $400^\circ\text{C}$ .

[9] Ceci explique ces zones continues de plusieurs mètres alors que le libre parcours des neutrons n'est que de l'ordre de la dizaine de centimètres.

[10] On peut même calculer que le nombre de fissions dans  $^{235}\text{U}$  est plus élevé que le nombre d'atomes  $^{235}\text{U}$  disparus : la durée des réactions a été telle que le plutonium formé a eu le temps de décroître et de se faire fissionner en tant que  $^{235}\text{U}$  !

[11] Ils ont été retenus dans les cristallites d'uraninite  $\text{UO}_2$

# Oklo 2 Billion Years Before Fermi

Wednesday 16 February 2005, by [Bertrand Barré](#)

## **The natural Reactors at Oklo (Gabon) : 2 billion Years before Fermi!**

### *1. The Italian Navigator has landed in the New World.*

On December 2, 1942, this cryptic message announced that the team gathered around Enrico Fermi in Chicago had managed to sustain a fission chain reaction in the first ever man made nuclear reactor, CP1. This was the climax of a decade long search, starting with the discovery by Chadwick in 1932 of the neutron, a particle able to interact with the nuclei without being hampered by their electric charges, the series of experiments by Fermi sending “moderated” neutrons against every nucleus of the Mendeleev Table, the discovery of the fission of uranium by Otto Hahn and Lise Meitner in 1938. When the team led by Joliot discovered, a few months later, that 2 to 3 new neutrons were emitted during the fission, they were able to conceptually design a nuclear reactor, a facility using a sustained fission chain reaction to generate vast amounts of energy, but World War 2 shifted the research efforts to America.

And for three decades, it was believed that CP1 was not only the first man made reactor, but the first nuclear reactor ever – full stop.

### **2. Radioactive Earth.**

Not everybody realizes that geothermal energy is just another name to describe the radioactivity of our planet. Among the heavier elements retained during the formation of Earth (most of the lightest elements escaped its too small gravity), a number have only radioactive isotopes. Potassium [\[1\]](#), Thorium and Uranium are the most abundant remaining today. The energy they keep releasing during their radioactive decay is the central heating system which supplements what we receive from the Sun.

Natural uranium is (today) composed of three major isotopes,  $^{238}\text{U}$  (abundance 99.2744%),  $^{235}\text{U}$  (abundance 0.7202%) and  $^{234}\text{U}$  (abundance 0.0054%). This very precise composition is the same – almost – everywhere on Earth. All these isotopes are radioactive and decay with time, but not with the same speed. The half-life of  $^{238}\text{U}$  is 4.51 billion years while  $^{235}\text{U}$  decays by half in “only” 710 million years. Therefore, the relative abundance of  $^{235}\text{U}$  increases if we go back in time: at the creation of the solar system, it was close to 17%, and about 3.58% two billion years ago. 3.5% is the level to which we painfully enrich the uranium today to fuel our Light Water Reactors... In the 50s, some authors played with the idea that fission chain reactions could have occurred naturally when the enrichment was so high, but so many conditions would have been required that it seemed far fetched, and there was no evidence left anyway.

### **3. A Nuclear Detective Story**



In June 1972, at the Pierrelatte enrichment plant devoted to Defense Applications, a routine mass spectrometry analysis of UF<sub>6</sub> feed material exhibited a discrepancy: only 0.7171% of <sup>235</sup>U in the uranium samples, instead of the magic 0.7202! Even though the discrepancy was small, it was so unusual that the French Atomic Energy commission CEA, operator of the plant, started a thorough investigation. First, it was not an artifact: the anomaly was confirmed on several measurements on other samples. Accidental contamination by depleted uranium from the plant itself was then eliminated and so was the use of reprocessed uranium as there was no <sup>236</sup>U in the samples. The investigators then traced the anomaly back through all the stages of uranium processing, from Pierrelatte to Malvesi to Gueugnon where the concentrates exhibited the same low <sup>235</sup>U concentrations. These concentrates all came from COMUF which operated two uranium mines in Gabon, at Mounana and Oklo, the mill being located at Mounana. Very soon it appeared that all the anomalous ore came from the northern part of the – very rich – Oklo deposit. In some shipments, the level of <sup>235</sup>U was as low as 0.44%. Between 1970 and 1972, in the 700 tons of uranium delivered by the Mounana mill, the deficit of <sup>235</sup>U exceeded 200 kg, hardly a trifle!

### ***Oklo mine uranium was indeed different from natural uranium everywhere else. Why?***

“Natural” isotopic separation was excluded : if it had produced depleted uranium, where was the enriched fraction? As soon as August, the hypothesis of very ancient fission chain reactions was formulated, and investigators started to search for fission products (or, rather, the granddaughters of hypothetical fission products). The spectrum of fission products is so distinctive that it constitutes an unmistakable marker that fission reactions have taken place. The presence of such fission products was clearly identified : at some point in the uranium deposit history, it had become a “natural” nuclear reactor. The discovery was duly heralded [1, 2] but many questions remained. When did the reactor “start”? How long did it “operate”? How was it “controlled”? The detective story was not finished.

Later on, it was found that there were actually 15 reactor sites in Oklo, and another one in Bangombé, 30 kilometers away from the main deposit.

### **4. Current answers to some questions about Oklo.**

To run a nuclear reactor, you need a high concentration of uranium with a minimum percentage of <sup>235</sup>U [2] It would be very unlikely to find such a pattern in nature., you need water to slow down the neutrons [3] and evacuate the calories and you must avoid those elements which absorb neutrons greedily like boron, cadmium, hafnium, gadolinium and other “poisons”. You need also a minimum size (in the case of a deposit, a minimum thickness of the seam) to prevent too many neutrons from escaping from the reaction zone.

It is only around 2.2 billion years ago that the patient work of photosynthesis accomplished by the first algae released enough oxygen in our atmosphere for the surface waters and ground water to become oxidizing. Only then could the uranium diluted in granite be leached out and concentrated before mineralization in places where oxido-reduction would occur. Rich deposits cannot be older. On the other hand, since 1.5 billion years, <sup>235</sup>U abundance has decayed below a level which makes spontaneous fission workable. It took a lot of studies, in geology, chemistry and reactor physics to narrow the bracket of time to the present estimated value : the reactions must have started  $1\,950 \pm 30$  million years ago.

The deposits were located in very porous sandstone where the ground water concentration may have been as high as 40%, probably due to the partial leaching of the silica (quartz particles) by the hot groundwater, at a time where, the radioactivity of Earth being higher than today, the thermal gradient underground was probably higher too. During the reactor's operation, the water temperature rose significantly, accelerating this "de-silicication" process and, by difference, increasing the concentration in uranium, therefore compensating for its depletion by fission. As a matter of fact, the concentration of uranium in the reaction zones is extremely high, sometimes above 50%, and the higher the uranium concentration, the lower its  $^{235}\text{U}$  content. Furthermore, losing its silica, the surrounding sandstone became clay and thus prevented an excessive migration of groundwater and keeping the uranium in place.

From the fine analysis of the spectrum of fission products, we know that a number of the fissions occurred in plutonium, bred by neutron capture in  $^{238}\text{U}$  and now fully decayed to  $^{235}\text{U}$  since its half-life is only 24 000 years (By the way, so much for the notion that plutonium is "artificial"). This allowed the physicists to calculate that, varying from one zone to another, reactions did take place during an enormous period of time ranging from 150 000 to 850 000 years!

The reactors were "controlled" by several mechanisms, the main one being temperature : as the fission power was released, the temperature rose. Higher temperature means both an increase in absorption of neutrons (without fission) by  $^{238}\text{U}$  and a decrease in the efficiency of water as a moderator: at a given temperature level, a level varying with time and the progressive depletion of fissile uranium, the reactions stabilize, as they do in our reactors [4].

By combining geology and temperature considerations, it is now believed that the reactors in the northern part of the deposit operated at a depth of several thousand meters, under deltaic then marine sediments. At such a depth, the conditions of pressure and temperature were close to those of the Pressurized Water Reactors of today (350 to 400°C, 15 to 25 Mpa), while the southern zones operated at roughly 500 meters deep, with conditions resembling more those of a Boiling Water Reactor (250°C, 5 Mpa) [5]: even the Oklo designers did not choose between the present fierce competitors!

Even though significant alteration occurred in recent times when the tectonic uprising and erosion brought the reactors close to the surface, and especially when the Okolo Néné River gouged the valley, the heavy elements thorium, uranium and plutonium did not move at all, nor did the rare earths fission products, as well as zirconium, ruthenium, palladium, rhodium and a few others. On the other hand, krypton, xenon, iodine, barium and strontium have moved, but maybe only after a few million years.

## **5. Oklo as a "natural analogue" of a radioactive Waste Disposal Site?**

Soon after the discovery, and beyond the pure scientific thrill, the nuclear community was very excited by its implications, notably as a "natural analogue" for the geologic disposal of High Level radioactive Waste (HLW).

There is more and more an international consensus that the best way to dispose of HLW issued from the production of electricity by nuclear reactors is to install them, with proper conditioning and packaging and additional engineered barriers, in a stable underground geologic stratum where the radioactive decay will progressively reduce their toxicity to a harmless level. But this decay takes a long time, and it is quite a challenge to demonstrate the

containment of the radioactive products over such a long period of time, ranging from tens to hundreds of thousands of years. It can only be done through physico-mathematical modeling, with the inherent uncertainties associated with the completeness and accuracy of the models and their propagation along the calculations.

There, in Oklo, Mother Nature had contained precisely the same radioactive elements not for hundreds of thousands, not for millions, but for a couple of billion years, and without engineered barriers or special packaging.

So much is true, especially for the heavier elements which constitute most of the radiotoxicity of the HLW packages [6]. But the comparison cannot be pushed too far. To use a teenager's expression, the Oklo reactors are "too much"... If we could find a similar phenomenon one million years old, that would be perfect, but we have seen this is physically hopeless. For instance, most of the migration occurred during the reactions themselves, over close to a million years, when the conditions were far more troubled than what we expect in a steady and cozy disposal facility: the site has been deeply modified, losing by de-silicication three quarters of its substance, minerals have been altered by irradiation, temperatures have run high and significant water convection did occur! Let us say Oklo provides a good presumption, but not a demonstration.

## **6. Conclusion: A unique Phenomenon?**

Let me borrow my conclusion from the foreword by the late Jules Horowitz to the book by Roger Naudet [3] which I have used extensively for this paper: "*It is after all plausible that fission chain reactions might have spontaneously occurred about two billion years ago, during a period of time long enough to provoke locally significant anomalies in the isotopic composition of some elements, notably uranium. What constitutes a miracle is that, despite the upheavals that the Earth surface has undergone since this ancient era, the evidence did survive to our time, in Oklo, to be discovered owing to the watchfulness of the CEA analysts*".

There is no reason to believe that what occurred at least 16 times near Oklo did not happen anywhere else on the Earth, especially in old and rich deposits like those in Australia or Canada... but more than three decades after its discovery Oklo remains unique. It remains unique as a geologic curiosity, and it remains unique as a nuclear detective story.

## **A few References**

*The Discovery (September 1972)*

[1] R. Bodu et al. Sur l'existence d'anomalies isotopiques rencontrées dans l'uranium du Gabon. CR Académie des Sciences Paris 275 D p.1731 [2] M. Neuilly et al. Sur l'existence dans un passé reculé d'une réaction en chaîne naturelle de fissions dans le gisement d'uranium d'Oklo (Gabon) ibid. p.1847

*Synthesis*

[3] R. Naudet OKLO : Des réacteurs nucléaires fossiles. Etude physique. Eyrolles, Paris, 1991

*Selected Websites*

[www.wonuc.org/nucwaste/oklo.htm](http://www.wonuc.org/nucwaste/oklo.htm) (with many interesting links !)

[www.science.uottawa.ca/est/eng/prof/clark/EVS%203101/nuclear/OKLO%20REACTORS.ppt](http://www.science.uottawa.ca/est/eng/prof/clark/EVS%203101/nuclear/OKLO%20REACTORS.ppt) (PowerPoint™ presentation – I have used part of it)

[www.world-nuclear.org/info/printable\\_information\\_papers/inf78print.htm](http://www.world-nuclear.org/info/printable_information_papers/inf78print.htm) (all about uranium)

[www.ans.org/pi/np/oklo/](http://www.ans.org/pi/np/oklo/)

[www.energethique.com/notions/oklo.htm](http://www.energethique.com/notions/oklo.htm) (in French)

[www.curtin.edu.au/curtin/centre/wairsc/OKLO/index.shtml](http://www.curtin.edu.au/curtin/centre/wairsc/OKLO/index.shtml) (good synthesis)

[www.ocrwm.doe.gov/factsheets/doeymp0010.shtml](http://www.ocrwm.doe.gov/factsheets/doeymp0010.shtml) (Oklo and HLW disposal)

## Footnotes

[1] 40K in our bones is responsible for half of the radioactivity of our own body, which amounts to about 8000 Bq for an adult.

[2] You can operate reactors with natural uranium but only if you use heavy water D<sub>2</sub>O or very pure graphite as moderator and a specific “heterogeneous” fuel/moderator pattern, like in CANDU and Magnox types.

[3] Neutrons emitted during fission move too fast to split other nuclei easily, but if the neutrons can “bounce” off the nuclei of a moderator, this will slow them down and make further fission more likely.

[4] Radioactive decay of some absorbing fission products also played a role over such long periods.

[5] If the operating time was immense, the power density in the « core » was only one millionth of its value in a commercial reactor today.

[6] They have been retained within the UO<sub>2</sub> crystallites themselves.