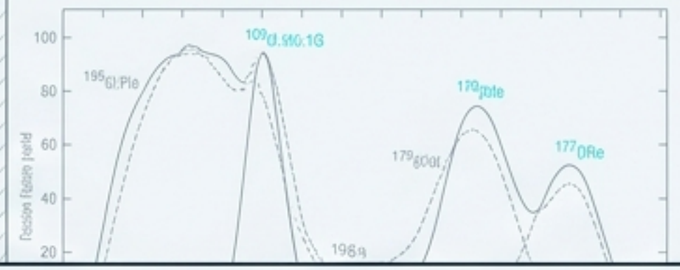
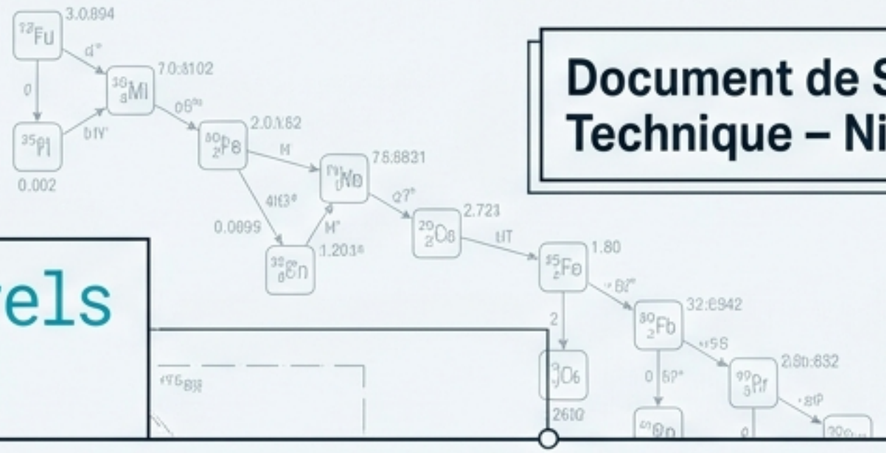
Document de Synthèse Technique – Niveau Expert

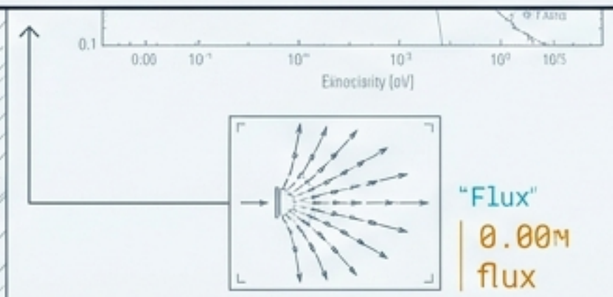
Évaluation des Analogues Naturels pour le Stockage Géologique

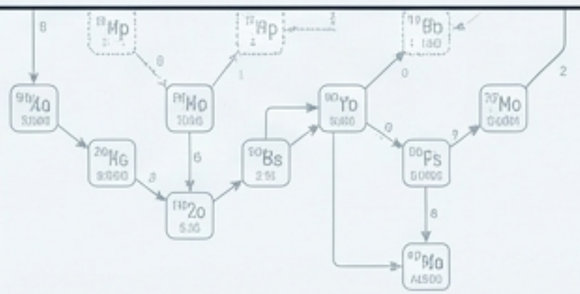
Réacteurs Nucléaires Fossiles d'Oklo et Bangombé

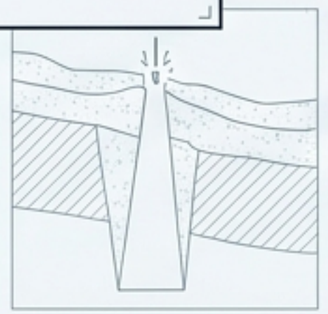
Caractéristiques Neutroniques et Géochimiques en Milieu Réducteur Profond







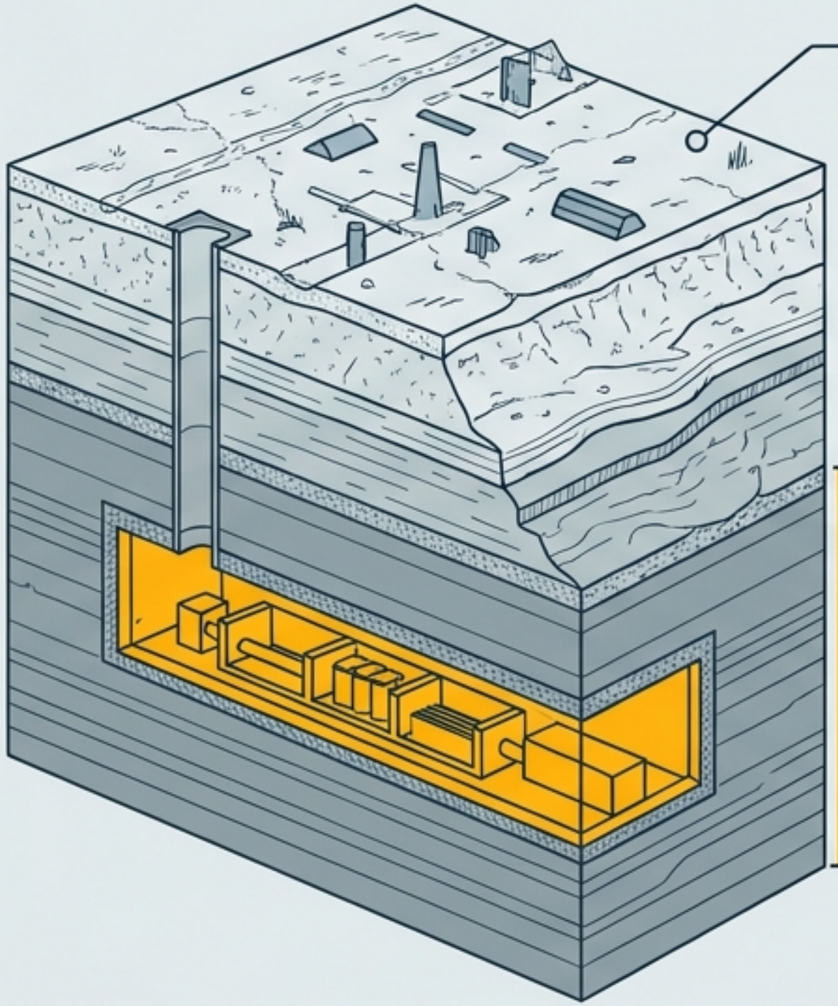




Pour neutrons critict; expert / 2024.00.35
Refs. ta cod

NotebookLM

Le Changement de Paradigme : Du Milieu Oxydé au Milieu Réducteur



Zones 1-9 (Ciel ouvert) : Altération météorique, migration des produits de fission sous conditions oxydantes.

Zones 10, 13 & Bangombé (>150m) : Environnement réducteur préservé, confinement par pélites. Analogues directs pour les dépôts géologiques profonds contemporains (ex: Cigéo).

L'Objectif

Évaluer la rétention à très long terme (1.97 Ga) des radionucléides dans une matrice d'uraninite entourée de matière organique.

Le Défi Analytique

Différencier la fraction fissiogénique de la contamination naturelle post-réacteur (isotopes pré-réacteur) via des déviations isotopiques précises.

L'Implication

Validation empirique des modèles de migration pour les matrices de combustibles usés (UO2).

NotebookLM

Topologie des Zones de Réaction (RZ) Cibles



Zone 10 (SF84) - Oklo :

- Découverte en **1982**.
- Profondeur **150-250m**.
- Zone parfaitement préservée.
- Cœur de réacteur épais de **~70 cm**.
- Forage structuré en **7** échantillons stratigraphiques.

Zone 13 (SD37) - Oklo :

- Intrusion magmatique à proximité (dyke de dolérite, **750 Ma**).
- Choc thermique localisé intense (jusqu'à **400°C**).
- Épaisseur **30 cm**.
  Remobilisation significative de l'Uranium et du Plomb.

Bangombé (BA145) :

- Situé à **30 km** d'Oklo.
- Réacteur très fin (**~10 cm**) à **12m** de profondeur sous une couche de pélite.

L'étude comparative de ces trois topologies permet d'isoler l'impact des variations hydro-thermiques et des fluences neutroniques extrêmes sur la rétention géochimique.

NotebookLM

Résolution Multiscalaire : De la Roche Totale à l'Inclusion Métallique



Étape 1 : Préparation Chimique

Attaque acide ($HNO_3/HF/HClO_4$) pour dissoudre Rb, Sr, Zr, Ba, REE, U.

Fusion au peroxyde de sodium ciblée pour les PGE (Ru, Rh, Pd, Te) bloqués dans les agrégats métalliques insolubles.



Étape 2 : Spectrométrie de Masse (Roche Totale)

TIMS (Thermo-ionisation) & ICP-MS.

Objectif : Mesure des rapports isotopiques de très haute précision et dilutions isotopiques.



Étape 3 : Imagerie et Analyse In Situ

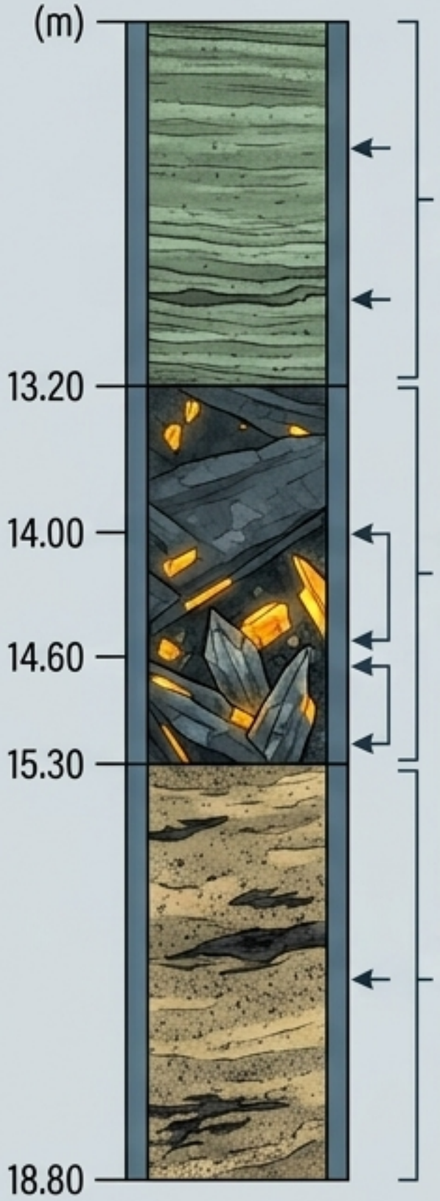
SIMS (Sonde ionique). Faisceau primaire O_2^+ focalisé à 10 µm.

Objectif : Empreinte isotopique in situ et cartographie des micro-inclusions de Ruthénium.

Détermination des paramètres nucléaires purs : Fluence (τ), Index de spectre (r), Durée de criticité (Δt), et Taux de Rétention Relatifs (Ri).

NotebookLM

Profil d'Activité et Hétérogénéité Spatiale (Carotte SF84)



Épootte Supérieure :
Pélite verte FB
(Échantillons 1640, 1700)

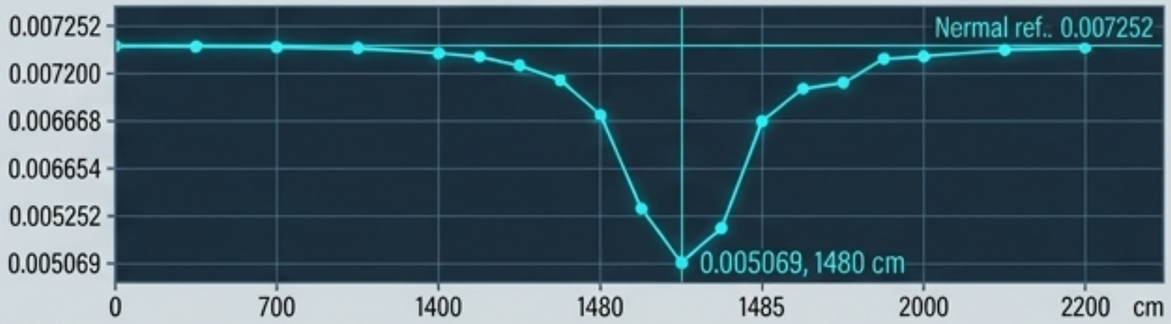
Cœur du Réacteur :
Uraninite + matière organique
(Échantillons 1469, 1480, 1485, 1492)

Éponte Inférieure :
Grès FA
(Échantillon 1400)

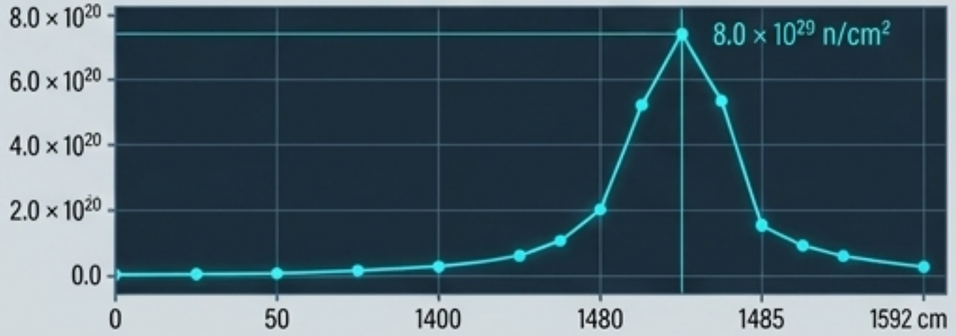
Concentration U (wt.%)



Épuisement 235U (235U/238U)



Fluence Neutronique (τ) (x10²⁰ n/cm²)



Insight Box

Hétérogénéité critique à l'échelle centimétrique. La thermalisation des neutrons a été maximale au centre (1480), tandis que les bordures présentent un flux de neutrons moins thermalisés.

NotebookLM

Empreintes Nucléaires : Matrice Comparative des Réacteurs

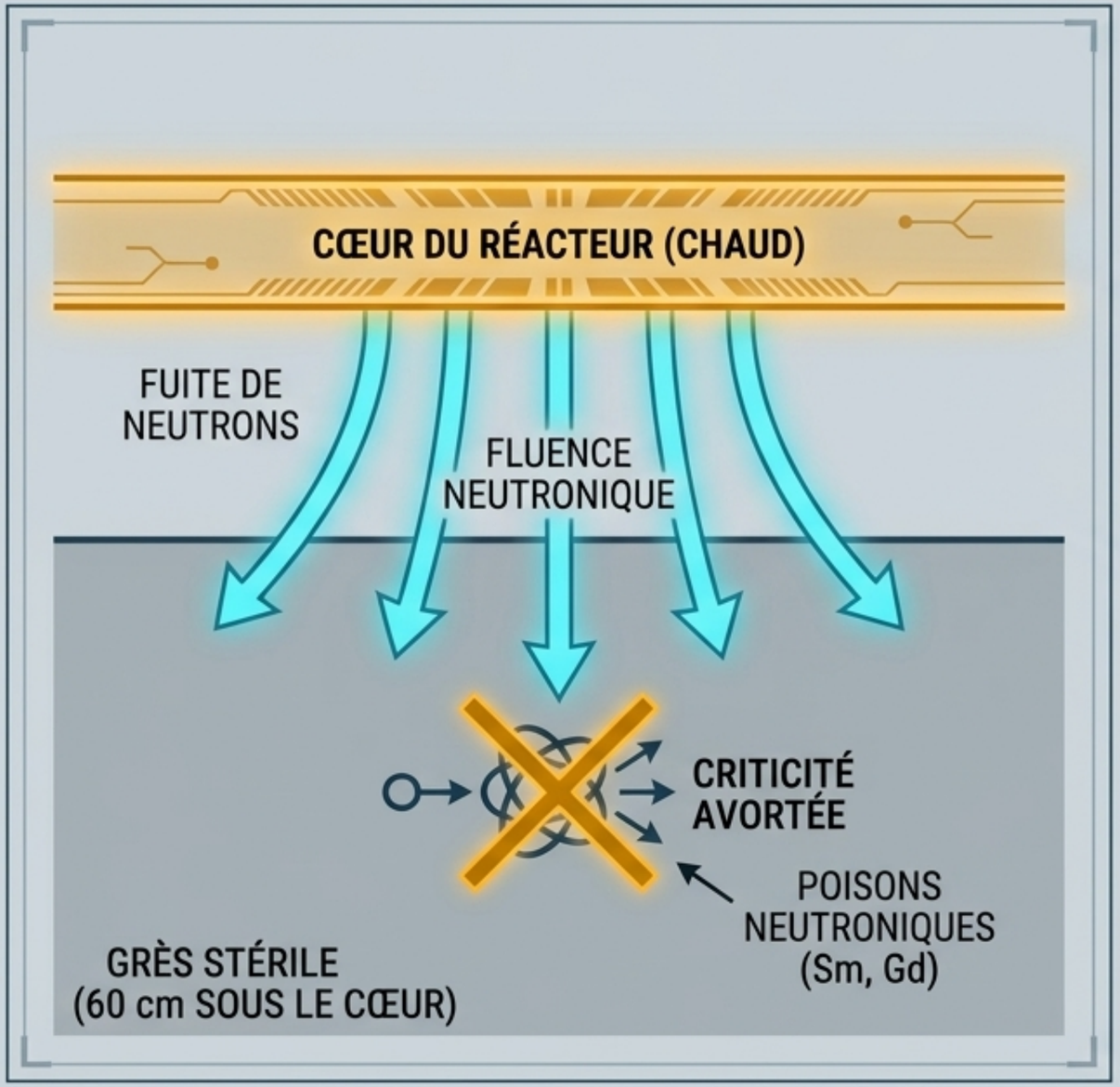
	SF84 (Zone 10)	SD37 (Zone 13)	BA145 (Bangombé)
Fluence (τ - 10^{20} n/cm^2)	~5.3-8.0	7.8	3.0
Index de Spectre (r)	0.11-0.18	0.24 (Haut)	0.20
Durée de Criticité (Δt – 10^5 ans)	1.4-1.9	0.24 (Très court)	1.1
Taux de Fission ^{238}U (α)	~3.8-7.4%	17.9% (Extrême)	4.2%

Insight Box

Le bilan isotopique du Ruthénium révèle que le réacteur SD37 est une anomalie absolue. Sa criticité fut exceptionnellement courte (~24 000 ans) avec un flux neutronique moyen au moins 10 fois supérieur aux autres zones, provoquant des fissions massives du $2^{38}U$.

NotebookLM

Phénomènes de Capture Périphérique et “Criticité Avortée”



L'Observation :
L'échantillon de grès SF84-1400 (60 cm sous le cœur) ne montre aucune anomalie d'uranium ($^{235}U/^{238}U = 0.007254$). Aucune fission in situ ne s'y est produite.

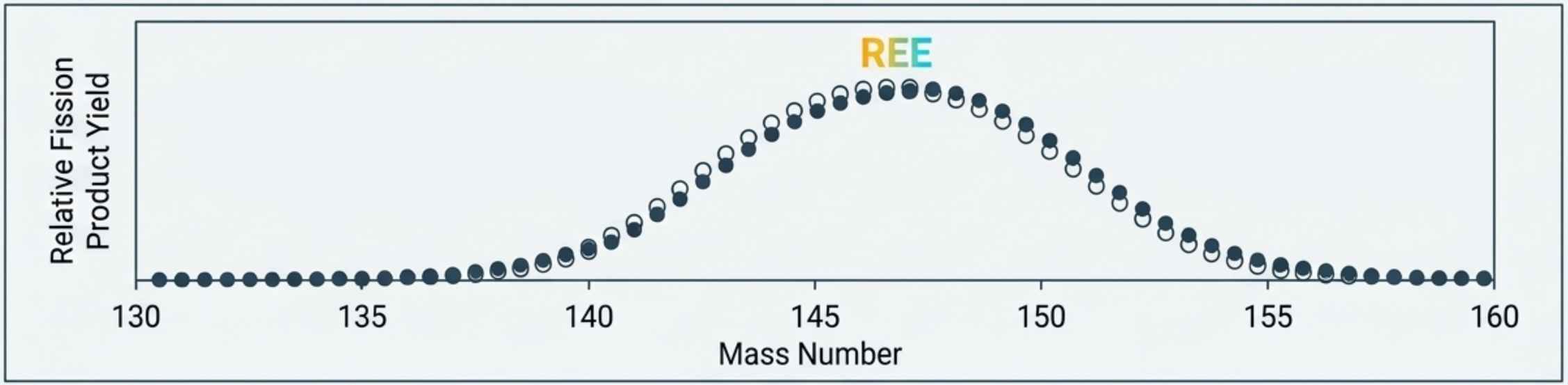
L'Anomalie :
Détection de déviations isotopiques massives pour le Samarium ($^{149}Sm \rightarrow {}^{150}Sm$) et le Gadolinium ($^{155}Gd \rightarrow {}^{156}Gd$, $^{157}Gd \rightarrow {}^{158}Gd$).

Le Mécanisme : Ces isotopes possèdent des sections efficaces de capture neutronique gigantesques. Ils ont intercepté une fluence de 6.2×10^{18} n/cm^2 due à la fuite des neutrons du cœur adjacent.

Conclusion Diagnostique : Des réactions nucléaires ont initié dans ce grès mais n'ont jamais atteint la criticité soutenue. Le milieu contenait un excès de "poisons neutroniques" (Sm, Gd) qui ont étouffé la réaction.

NotebookLM

Compatibilité Cristallochimique : La Stabilité des Lanthanides (REE)

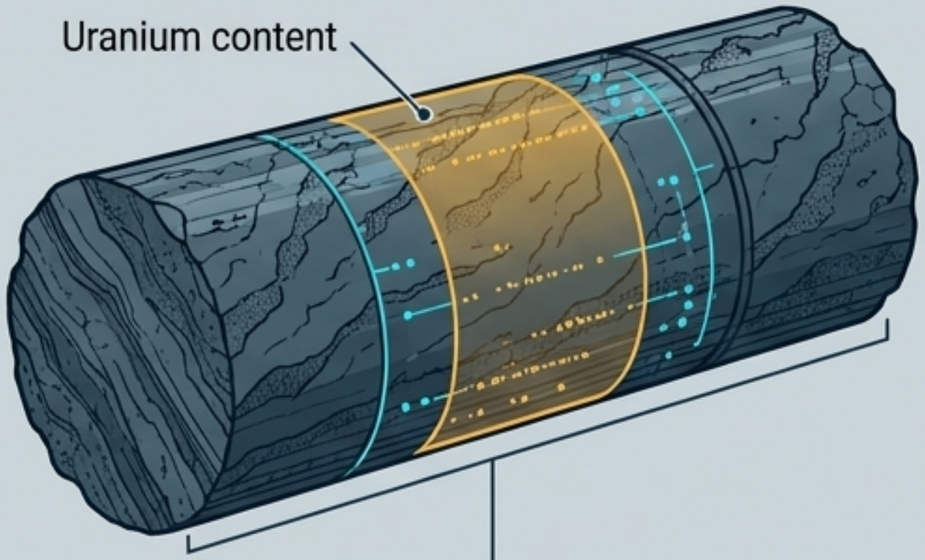


- **Rétention > 90%** : Contrairement aux zones 1-9 oxydées (où les terres rares légères comme La et Ce ont partiellement migré), les zones profondes (RZ 10 et Bangombé) montrent une rétention quasi-parfaite de toutes les REE.
- **Mécanisme :** Les propriétés cristallochimiques des lanthanides sont hautement compatibles avec la matrice structurelle de l'Uraninite (UO2).
- **Rôle de la Matière Organique :** Les bitumes environnants ont agi comme un bouclier réducteur hydrophobe, inhibant la dissolution des grains d'uraninite.
- **Perturbation SD37 :** Un léger déficit en La/Ce est observé uniquement dans la RZ 13, attribué au choc thermique extrême de l'intrusion magmatique proche.

NotebookLM

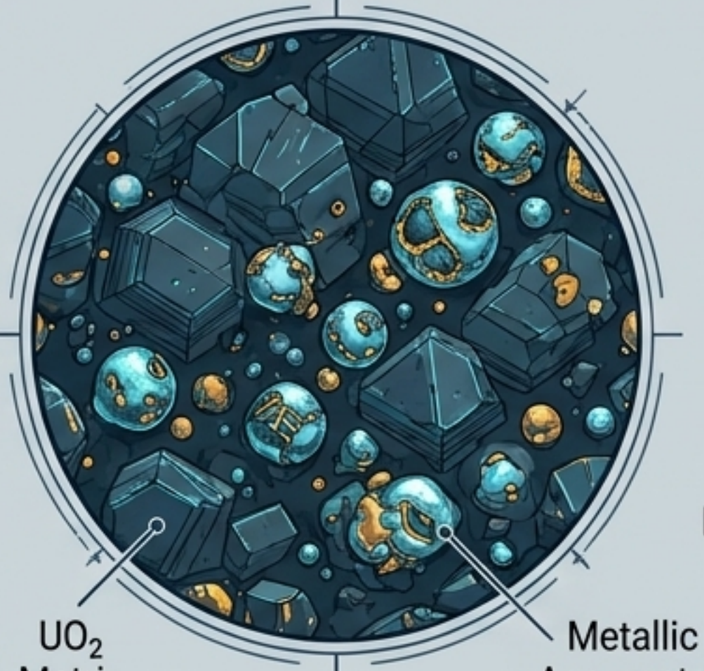
Métaux du Groupe du Platine (PGE) : De la Matrice à l'Inclusion

Bilan Macro (Roche Totale)



Les spectres isotopiques confirment une excellente rétention globale de Ru, Rh, Pd et Te dans le volume millimétrique de la roche.

Bilan Micro (Analyse SIMS)



Migration confinée à l'échelle micrométrique.

Formation d'agrégats métalliques complexes (Chalcophiles : Pb-Ru-Rh-As-S) au sein des grains d'uraninite.

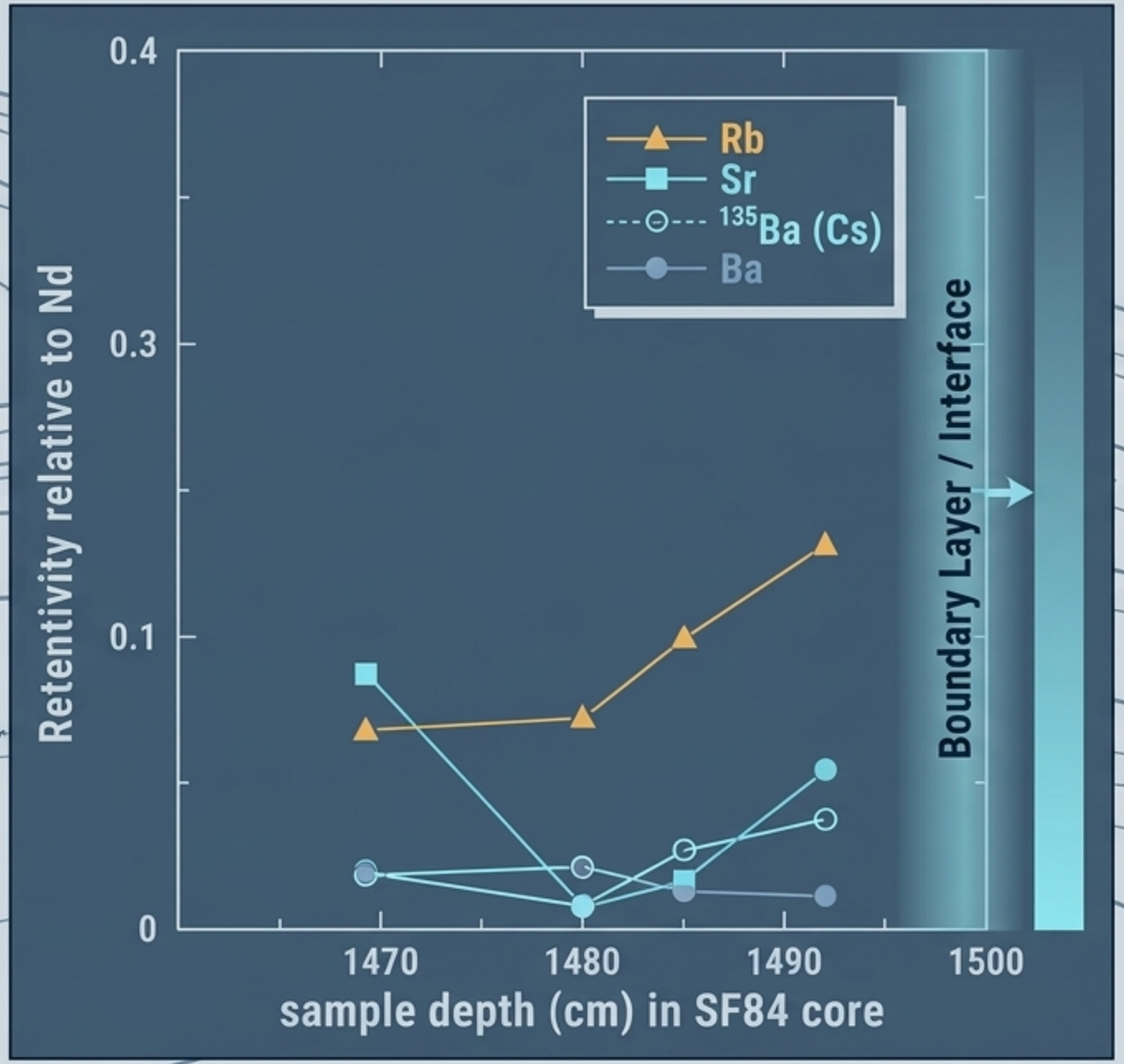
Le Plomb (PbS primordial) a agi comme 'piège' chimique.

Le Traceur Technétium (^{99}Tc)

Le fractionnement isotopique exceptionnel du ^{99}Ru (produit de désintégration du ^{99}Tc, $T_{1/2} = 2.1 \times 10^5$ ans) prouve que le Tc était hautement mobile durant la criticité. Il a été préférentiellement séquestré dans ces nano-agrégats avant sa désintégration complète en Ru.

NotebookLM

Mobilité Hydrothermale et Piégeage : Rb, Sr, Cs et Ba



L'État des Lieux :

Les alcalins et alcalino-terreux sont extrêmement solubles. Dans les zones oxydées (RZ 1-9), ils ont totalement disparu.

Le Bilan Zone 10 (SF84) :

Cœur du Réacteur : Rétention très faible (< 20%). L'essentiel a été lessivé par l'activité hydrothermale bouillante durant le fonctionnement.

Interfaces et Épontes : Présence résiduelle prouvée (1 à 10% des produits de fission originaux).

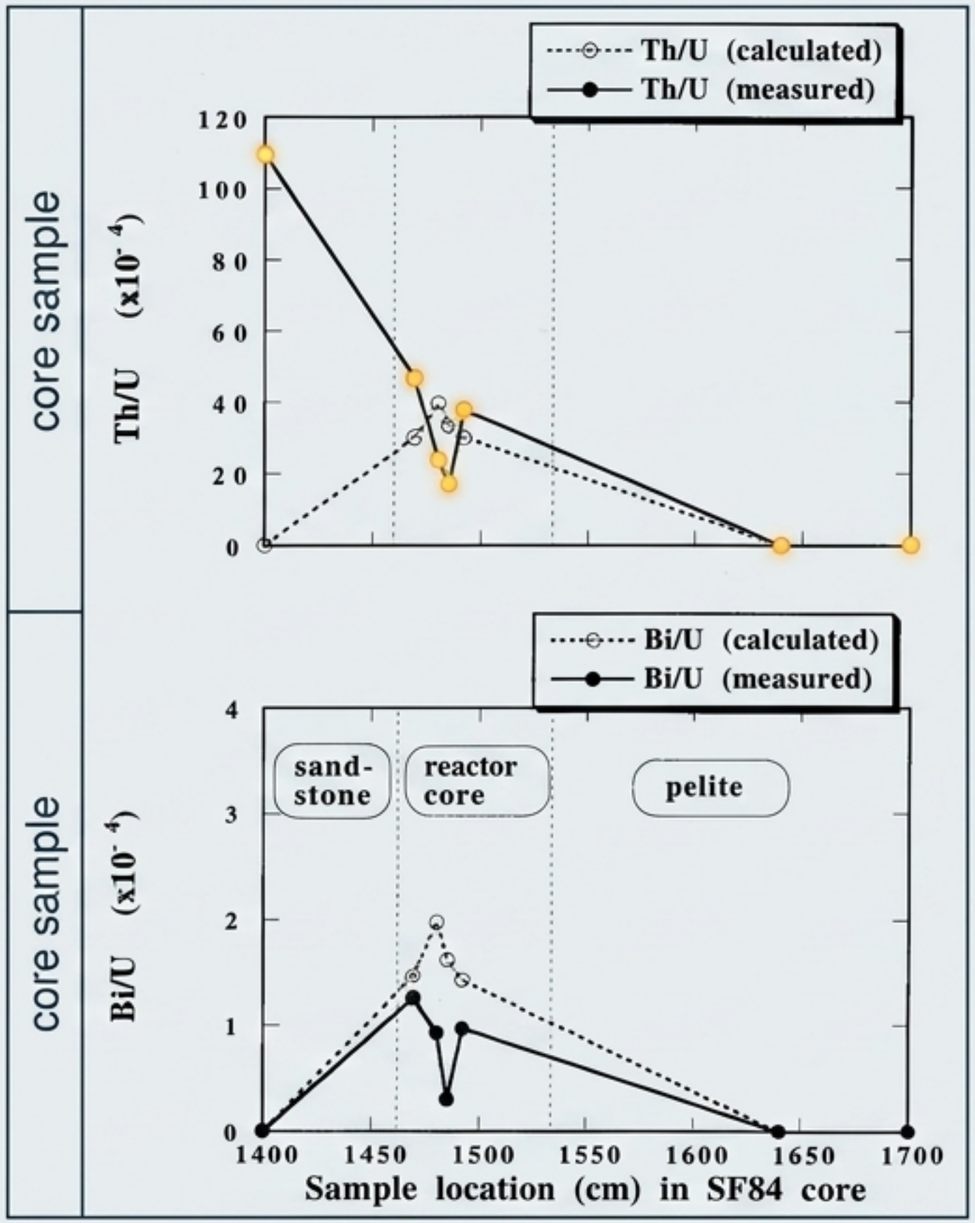
Le Rôle du Césium (^{135}Cs et ^{137}Cs) :

Sa présence fossile est prouvée via l'excès isotopique de ses isotopes 'fils' : le Baryum (^{135}Ba, ^{137}Ba).

Le fractionnement géochimique montre que le Césium fissiogénique a migré différemment du Baryum fissiogénique, s'accumulant sélectivement aux interfaces rocheuses (Cœur / Grès).

NotebookLM

Traceurs Transuraniens : Thermodynamique du Np et Pu



Le **Mécanisme Indirect** : Le Neptunium et le Plutonium originels ont disparu. On trace le **Plutonium-240** via son descendant le **Thorium-232**, et le **Neptunium-237** via le **Bismuth-209**.

Module 1

Résultats Zone 10 (SF84) :

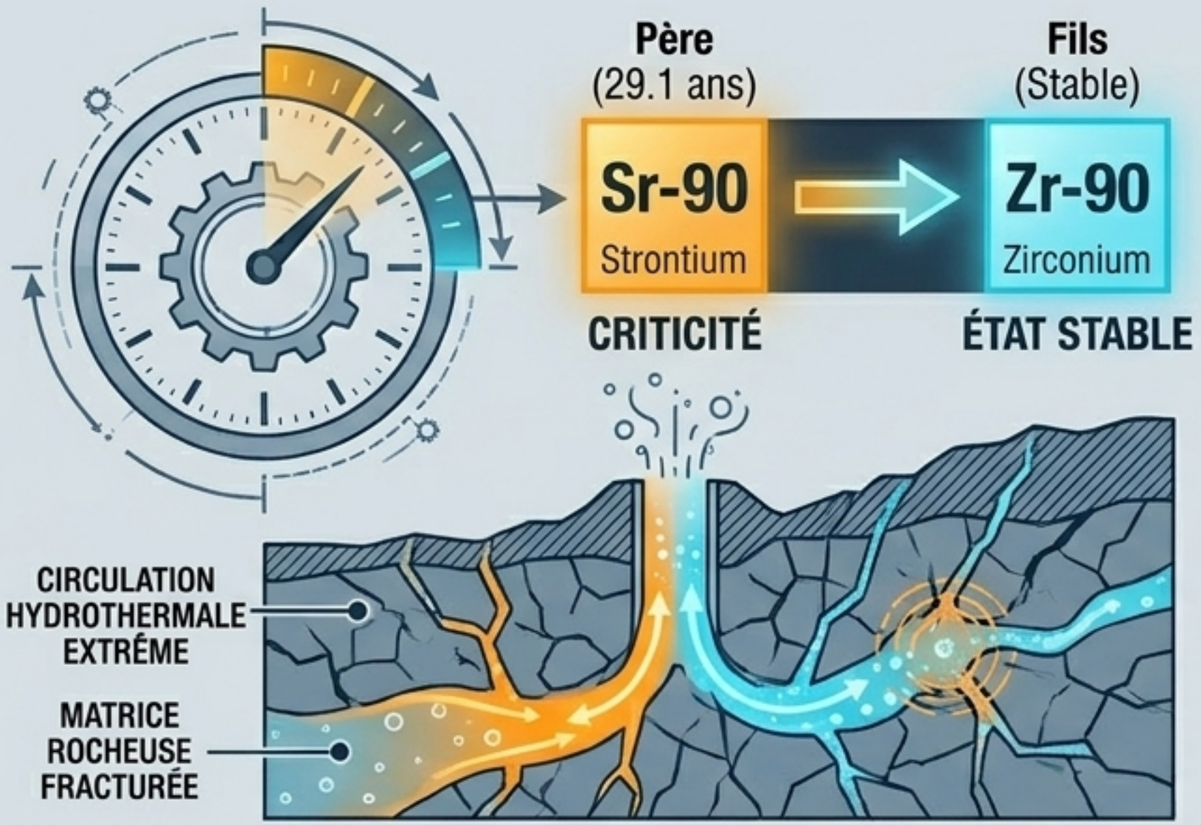
- **Thorium (240Pu)** : Profil suggérant une expulsion active depuis le centre chaud vers les bordures froides.
  Le Pu aurait été plus mobile que l'Uranium au stade initial.
- **Bismuth (237Np)** : Redistribution thermique claire au sein du cœur, très similaire à la diffusion du plomb radiogénique.

Module 2

- **L'Anomalie SD37** : Enrichissement massif mesuré en Thorium (3588 ppm) et Bismuth (463 ppm), corroborant la production intense et rapide de Pu et Np sous le flux neutronique extrême de ce réacteur atypique.

NotebookLM

Démonstration de Rétention à Court Terme : Le Couple Sr/Zr



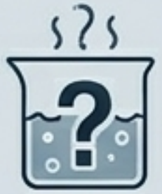
Le Principe :

Le ^{90}Zr fissiogénique est le produit direct de la désintégration du ^{90}Sr, un élément hautement soluble avec une demi-vie très courte (29.1 ans).



La Problématique :

Les fluides hydrothermaux étaient extrêmes durant et immédiatement après la criticité. Le Strontium s'est-il échappé instantanément ?



Le Strontium s'est-il échappé instantanément ?

Les Données (SF84) :

Le **Zirconium fissiogénique** observé est supérieur de **24 %** à **55 %** au Zirconium calculé par fission directe. Cet **excès absolu** provient uniquement de la désintégration in situ du ^{90}Sr avant qu'il ne puisse fuir.

Conclusion Diagnostique :

Le Strontium-90 a été thermiquement perturbé dans le cœur, mais n'a pas quitté l'enceinte géologique du réacteur pendant ses premières décennies de demi-vie, malgré la circulation d'eau bouillante.

NotebookLM

Synthèse du Comportement des Radionucléides (1.97 Ga)

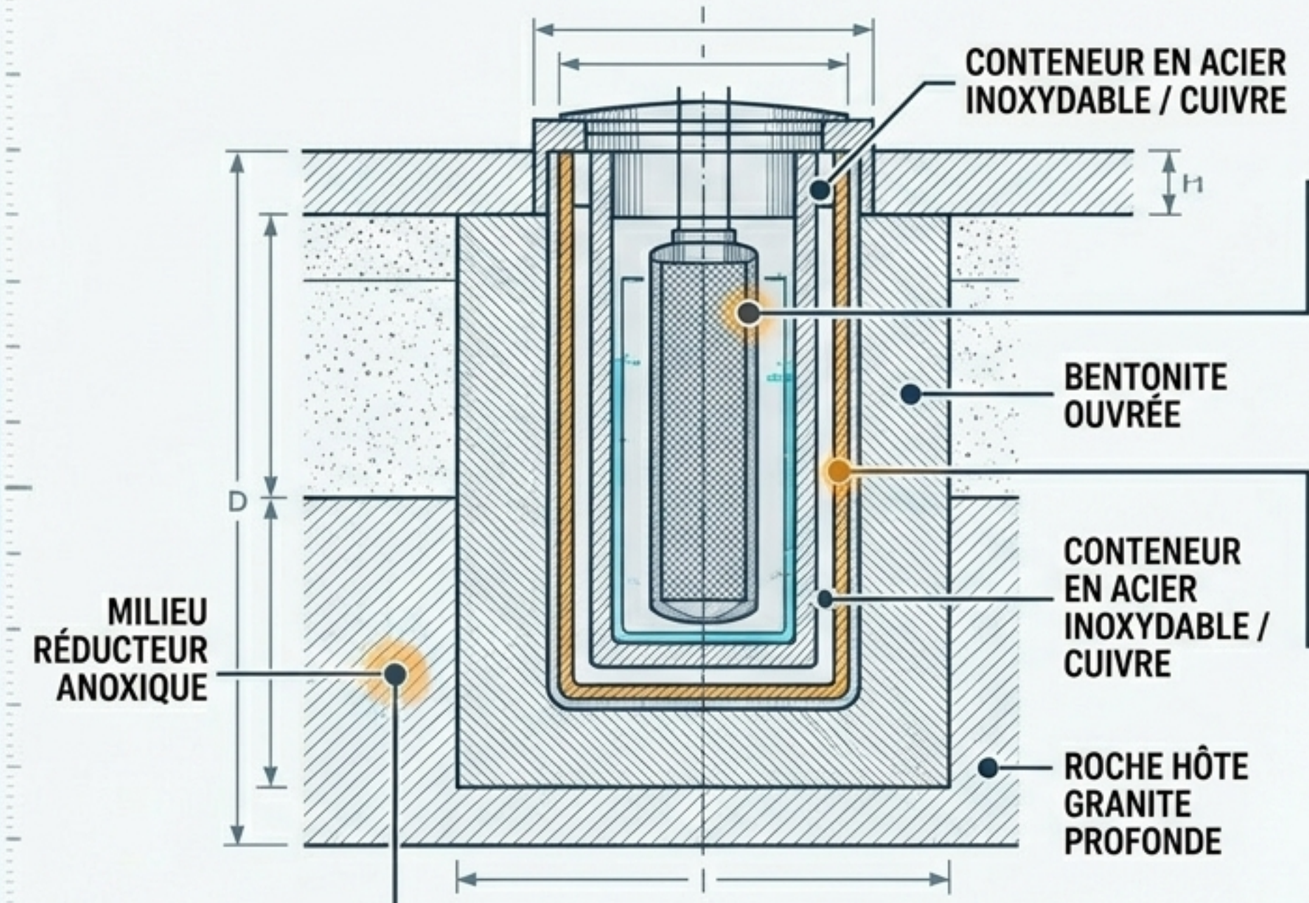


	Classe d'Élément	Oklo Surface (Oxydé)	Oklo Profond SF84 (Réducteur)
GREEN	**REE** (Terres Rares) 20	Pertes partielles (La, Ce) 16	**Rétention Parfaite.** Distribution homogène et stable dans la matrice UO2. 3
AMBER/ GREEN	**Ru, Tc, Rh, Pd, Te** 1	Rétention globale 720	**Ségrégation Interne.** Rétention macroscopique parfaite, formation de nano-agrégats métalliques. 425
AMBER	**Ba, Sr, Rb, Cs** (Alcalins) 0.5	Totalement disparus 0.5	**Forte Mobilité.** Lessivés du cœur chaud, mais piégeage géochimique (1-10%) dans les argiles d'interface. 11.5
RED	**Kr, Xe** (Gaz Rares)	Perdus	Perdus (Formation de bulles et diffusion historique).

Constat Fondamental : Le milieu réducteur agit comme un filtre thermodynamique limitant drastiquement la dispersion, même pour les éléments chimiquement incompatibles avec l'uraninite.

NotebookLM

D’Oklo à l’Ingénierie Contemporaine des Déchets (DGR)



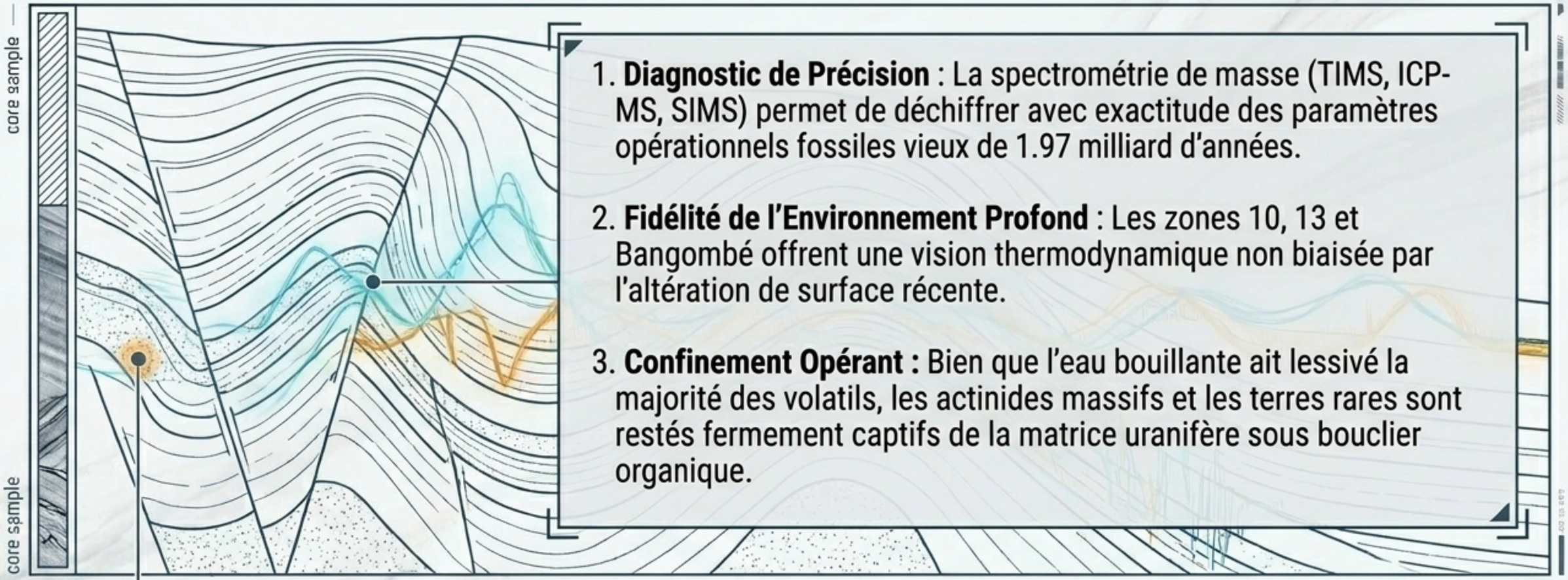
Validation des Matériaux Analogues :
La survie de l’uraninite (UO_2) d’Oklo sur 2 milliards d’années valide le comportement à long terme des matrices de combustibles nucléaires usés standard actuelles (également en UO_2).

Ingénierie des Barrières Ouvrées :
L'observation de l’alliage naturel du Plomb avec les Platinoïdes (Ru, Rh, Pd) inspire de nouvelles conceptions de confinement matriciel par alliages insolubles.
Le piégeage isotopique des solubles dans les épontes valide l’argile bentonite.

Le Rôle du Milieu Réducteur : Les données profondes (SF84) prouvent irréfutablement qu’un milieu anoxique protégé de l’altération stoppe la migration des actinides massifs (U, Np, Pu).

NotebookLM

Le Bilan de l'Analogue d'Oklo



1. **Diagnostic de Précision** : La spectrométrie de masse (TIMS, ICP-MS, SIMS) permet de déchiffrer avec exactitude des paramètres opérationnels fossiles vieux de 1.97 milliard d'années.

2. **Fidélité de l'Environnement Profond** : Les zones 10, 13 et Bangombé offrent une vision thermodynamique non biaisée par l'altération de surface récente.

3. **Confinement Opérant :** Bien que l'eau bouillante ait lessivé la majorité des volatils, les actinides massifs et les terres rares sont restés fermement captifs de la matrice uranifère sous bouclier organique.

Message Final : La nature démontre de manière empirique qu'un système géologique réducteur correctement stratifié peut confiner de manière fiable des produits de fission primaires sur des échelles temporelles astronomiques, offrant une assise inattaquable pour la conception des dépôts géologiques profonds contemporains.

NotebookLM