Lukáš Závorka, KJR FJFI ČVUT, zavorluk@fjfi.cvut.cz

Fyzikální aspekt přírodního reaktoru v Oklo

Štěpná řetězová reakce představuje jedinečný zdroj energie v moderních jaderných elektrárnách řízených kvalifikovaným personálem. První jaderný reaktor na světě byl spuštěn 12. prosince 1942 v americkém Chicagu pod vedením E. Fermiho. Mohla řetězová reakce proběhnout mnohem dávno předtím bez odborného zásahu člověka? Touto otázkou se zabývali mnozí fyzikové a chemici již v 50. letech minulého století, až byla nakonec v roce 1972 při zkoumání vzorků uranu z naleziště Oklo v Gabunu definitivně zodpovězena. Popišme si však nejdříve ve zkratce, jak vůbec štěpná reakce v jaderném reaktoru probíhá.

U tepelných jaderných reaktorů se ke štěpení jaderného paliva využívá neutronů, které jsou zpomaleny na tepelnou energii $E_n \approx 0{,}025\ eV$. Pokud štěpný izotop ^{235}U zachytí tepelný neutron, vzniká vzbuzené jádro ^{236}U, které se ve většině případů rozpadá (štěpí) na dva štěpné produkty a dva až tři rychlé neutrony se střední energií $\overline{E_n} \approx 2\ MeV$.

$$^{235}_{92}U + ^{1}_{0}n \rightarrow ^{236}_{92}U^{*} \rightarrow X + Y + 3\,^{1}_{0}n \tag{1.1}$$

Celková energie uvolněná při jednom štěpení je přibližně $E \approx 200\ MeV$. Značnou část této energie můžeme využít při přeměně na energii elektrickou. Aby vzniklé neutrony mohly vyvolat další štěpnou reakci, musí se nejdříve srážkami zpomalit na tepelnou energii v prostředí, jež nazýváme moderátor. Ten tvoří nejčastěji obyčejná voda, ale také grafit nebo těžká voda.

Základní veličinou popisující průběh štěpné řetězové reakce v nekonečné soustavě je tzv. koeficient násobení (multiplikační faktor) k_∞. Je definován jako poměr počtu neutronů následující generace k počtu neutronů předchozí generace[1] v dané soustavě. Pokud je $k_\infty < 1$, počet neutronů v řetězové reakci postupně klesá, reakce se zastavuje a mluvíme o tzv. podkritické soustavě. Za předpokladu, že $k_\infty = 1$, počet neutronů v soustavě je konstantní a štěpná reakce se udržuje. V tomto případě jde o soustavu kritickou. Nakonec, pokud $k_\infty > 1$, počet neutronů lavinovitě roste a hovoříme o soustavě nadkritické. Koeficient násobení můžeme vyjádřit vztahem

$$k_\infty = \eta \varepsilon p f\,, \tag{1.2}$$

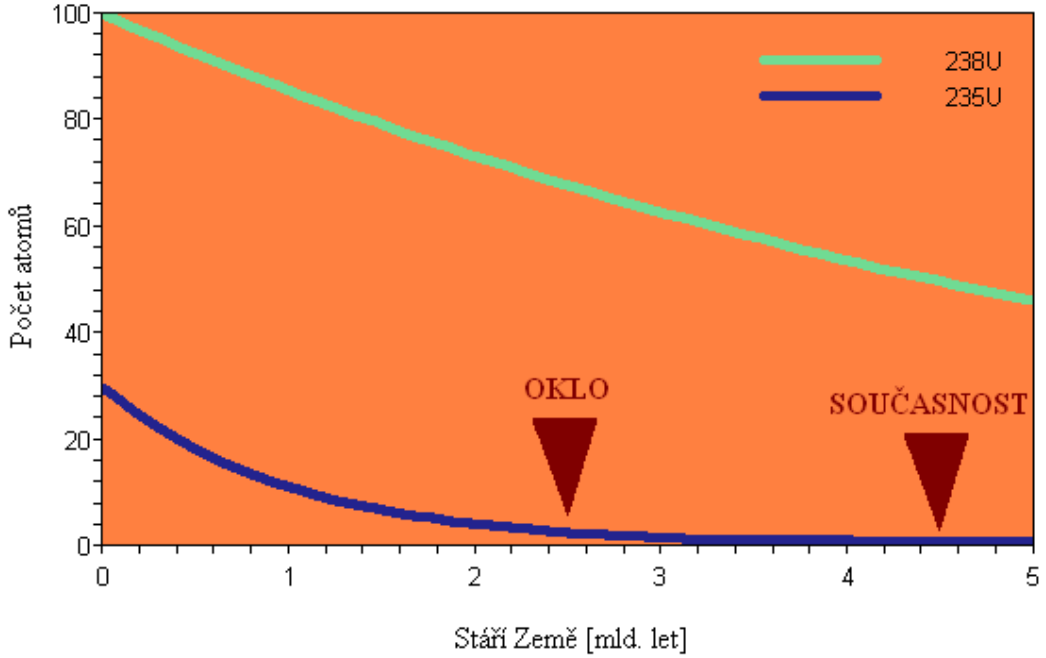
který nazýváme vzorcem čtyř součinitelů.Veličina η se nazývá regenerační faktor a udává počet rychlých neutronů uvolněných zachycením jednoho tepelného neutronu, ε je koeficient násobení rychlými neutrony, p představuje pravděpodobnost úniku rezonančnímu záchytu při zpomalování neutronů ne tepelnou energii a f označuje koeficient využití tepelných neutronů.

Koeficient násobení výrazně závisí na chemickém složení a fyzikálním uspořádání daného prostředí (nerost, palivo atd.). Přírodní uran je tvořen třemi izotopy s rozdílnými poločasy rozpadu. Nejhojněji (přes 99 %) je v současné době zastoupen izotop ^{238}U s poločasem rozpadu srovnatelným se stářím Země (přibližně $4{,}5\cdot10^9$ let), dále izotop ^{235}U s poločasem rozpadu $T_{1/2} \approx 7\cdot10^8$ let, se zastoupením 0,72 %, a nakonec nejvzácněji (méně než 0,01 %) je s nejkratším $T_{1/2} \approx 2{,}5\cdot10^5$ let zastoupen izotop ^{234}U. Průběh poměru počtu atomů ^{238}U a ^{235}U od vzniku Země do současnosti je znázorněn na *Obr. 1*.

Jak již bylo naznačeno výše, pro udržení štěpné řetězové reakce má největší význam štěpný izotop ^{235}U, jehož koncentrace je stejná na různých místech v zemské kůře a dokonce i na Měsíci. Výjimku tvoří lokalita Oklo, kde v odebraném geologickém vzorku koncentrace

[1] Jedním neutronem (1.generace) se štěpením uranu produkují neutrony 2.generace, které mohou vyvolat štěpení s produkcí dalších neutronů (3.generace) atd.

^{235}U vykazovala o tři tisíciny procenta nižší hodnotu [1]. Při podrobném zkoumání lokality bylo zjištěno, že zde v dávných dobách probíhala štěpná reakce, při které se v přírodním reaktoru spotřebovalo značné množství zmíněného izotopu. Myšlenka o možnosti provozu přírodního reaktoru však vznikla ještě před jeho objevením.



Obr. 1 Poměr počtu atomů ^{238}U a ^{235}U v závislosti na stáří Země

Již v roce 1953 uvedli G. W. Wetherill a M. G. Inghram, že za určitých podmínek mohlo v některých uranových ložiskách dojít ke spuštění štěpné řetězové reakce. O tři roky později publikoval P. K. Kuroda článek zabývající se podmínkami, za kterých by přírodní jaderný reaktor mohl fungovat. Uveďme některé závěry jeho práce [2].

Hodnotu koeficientu násobení k_∞ lze pro určitý geologický materiál se známým složením vypočítat podle (1.2) pro jakýkoliv časový okamžik v minulosti. Hodnota koeficientu ε se pohybuje v blízkosti jedné, hodnoty koeficientů p a f mohou být vypočítány v závislosti na chemickém složení minerálu a hodnota koeficientu η závisí na obohacení přírodního uranu izotopem ^{235}U. Pro vzorek smolince z uranového dolu v Johanngeorgenstadt, nacházejícího se poblíž česko-saské hranice, jsou vypočítané hodnoty koeficientů p, f, η a k_∞ uvedeny v *Tab. 1*. Hodnoty v tabulce jsou prezentovány pro smolinec skládající se ze dvou molekul UO_2 a jedné molekuly H_2O.

Tab. 1 Koeficienty p, f, η a k_∞ pro vzorek smolince z naleziště Johanngeorgenstadt v závislosti na průběhu obohacení ^{235}U v minulosti [2].

Čas zpět od současnosti [mld. let]	0	0,7	1,0	1,4	2,1	2,8
Obohacení ^{235}U [%]	0,7	1,3	1,6	2,3	4,0	7,0
p	0,47	0,45	0,43	0,42	0,38	0,34
f	0,93	0,95	0,96	0,97	0,98	0,99
η	1,32	1,57	1,66	1,77	1,91	1,98
$\boldsymbol{k_\infty}$	**0,58**	**0,67**	**0,69**	**0,72**	**0,71**	**0,67**

Uvedené hodnoty ukazují, že zkoumaný nerost byl za poslední téměř 3 miliardy let vždy v podkritickém uspořádání, a že v něm při daném složení nemohla štěpná řetězová reakce proběhnout. Pokud by však při krystalizaci minerálu proniklo dovnitř jeho struktury větší množství vody, tedy dobře moderující látky, mohl by koeficient násobení překročit hodnotu jedné, zejména díky nárůstu koeficientu *p*. Celá soustava by se náhle mohla stát nadkritickou, pokud by měla dostatečně velké rozměry (větší než je průměrná vzdálenost, kterou musí neutron urazit, aby se jeho energie snížila na energii tepelnou a mohlo dojít k dalšímu štěpení; v tomto případě přibližně 2/3 metru). Pro vzorek smolince z naleziště Johanngeorgenstadt jsou v *Tab. 2* dále vypočítány hodnoty koeficientů p, f, η a k_∞ v závislosti na poměru počtu molekul vody (jedna molekula UO_2 + n molekul H_2O). Tabulkové hodnoty jsou uvedeny pro geologické stáří nerostu v době před 2,1 mld. let.

Tab. 2 Koeficienty p, f, η a k_∞ pro vzorek smolince z naleziště Johanngeorgenstadt v závislosti na poměru voda-uran v době před 2,1 mld. let [2].

n	1/4	1/2	1	2	3	4	5	10
p	0,29	0,47	0,62	0,74	0,79	0,82	0,84	0,86
f	0,99	0,98	0,97	0,95	0,93	0,91	0,89	0,81
η	1,91	1,91	1,91	1,91	1,91	1,91	1,91	1,91
$\boldsymbol{k_\infty}$	0,55	0,88	1,15	1,34	1,40	1,42	1,43	1,33

Z tabulky je patrné, že při poměru jedné molekuly UO_2 a jedné molekuly H_2O v daném uspořádání mohlo před více než dvěma miliardami let dojít k rozvoji štěpné řetězové reakce. Tato domněnka byla potvrzena o necelých 20 let později, v roce 1972, ve vzorcích nerostů z naleziště Oklo.

Bylo již řečeno, že přírodní reaktor v Oklo byl odhalen díky nižší koncentraci izotopu ^{235}U v přírodním uranu. Dalším důkazem potvrzujícím existenci gabunského reaktoru byla přítomnost produktů štěpení izotopu ^{235}U a přítomnost izotopů, které vznikly záchytem štěpných neutronů. Zkoumáním štěpných produktů bylo odhaleno celkem šestnáct lokalit, kde v nalezišti Oklo ke štěpným řetězovým reakcím v minulosti docházelo. *Tab. 3* názorně ukazuje odlišnost izotopického složení neodymu přírodního a ve vzorku z naleziště a dále poměr některých dalších štěpných produktů.

V některých částech přírodního reaktoru byl zaznamenán výskyt izotopu ^{232}Th, který vzniká v asi 16% případů z izotopu ^{236}U (v ostatních případech se jádro rozštěpí) následovně:

$$^{235}_{92}U + ^{1}_{0}n \longrightarrow ^{236}_{92}U \xrightarrow{\alpha} ^{232}_{90}Th + ^{4}_{2}He \qquad (1.3)$$

Dále byly v lokalitě Oklo nalezeny produkty štěpení izotopu ^{239}Pu, který se však v přírodě běžně nevyskytuje. Tento izotop vznikl záchytem neutronu jádrem ^{238}U podle schématu:

$$^{238}_{92}U + ^{1}_{0}n \longrightarrow ^{239}_{92}U \xrightarrow{\beta^-} ^{239}_{93}Np \xrightarrow{\beta^-} ^{239}_{94}Pu\,. \qquad (1.4)$$

^{239}Pu je nestabilní jádro a rozpadá se přeměnou α na ^{235}U. Pokud není rozštěpeno samotné plutonium, produkt jeho rozpadu je opět štěpný a přispívá tak k tvorbě dalšího jaderného paliva využitelného v reaktoru.

$$^{239}_{94}Pu \xrightarrow{\alpha} ^{235}_{92}U + ^{4}_{2}He \qquad (1.5)$$

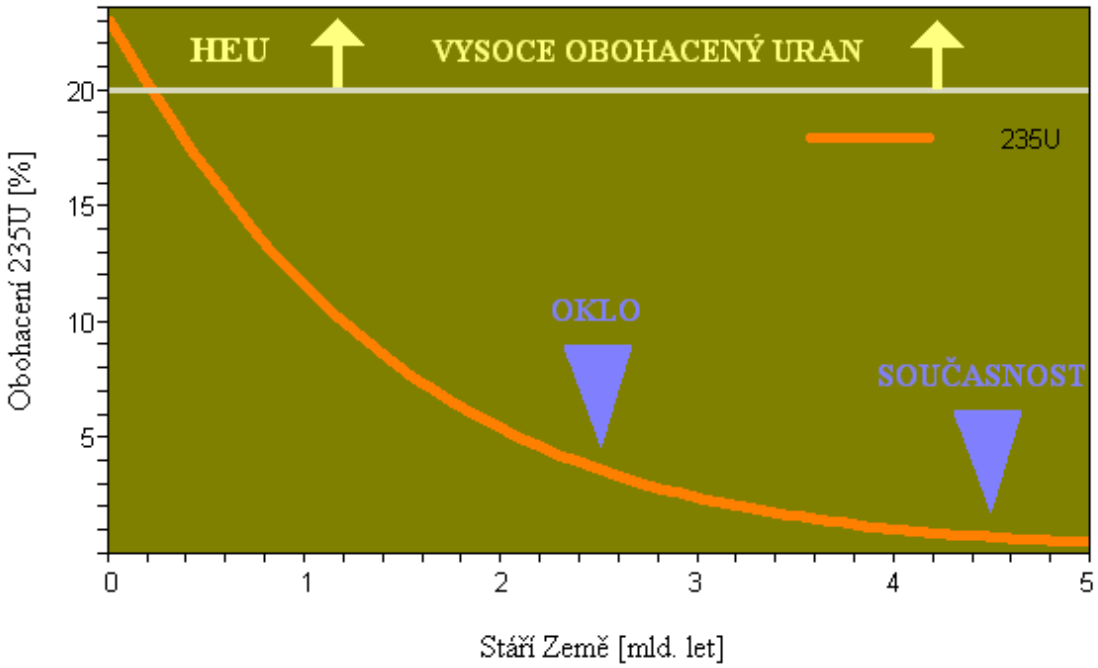
Objevením přírodního reaktoru v Oklo tedy vlastně přestává platit známá poučka, že uran je nejtěžší přírodní prvek.

Tab. 3 Porovnání složení přírodního neodymu se zastoupením izotopů v nalezišti Oklo [3].

Izotop	Přírodní zastoupení	Zastoupení ve vzorku
^{235}U	0,72	0,44
^{142}Nd	27,11	1,38
^{143}Nd	12,17	22,10
^{144}Nd	23,85	32,0
^{145}Nd	8,30	17,50
^{146}Nd	17,22	15,60
^{148}Nd	5,73	8,01
^{150}Nd	5,62	3,40
^{151}Eu / ^{153}Eu	0,916	0,145
^{140}Ce / ^{142}Ce	7,990	1,570
^{149}Sm / ^{147}Sm	0,924	0,003

Z analýzy vzorků odebraných v lokalitě Oklo bylo dokázáno, že k průběhu štěpné řetězové reakce došlo přibližně před dvěma miliardami let. Za jakých podmínek se vlastně mohla reakce spustit?

K rozběhnutí štěpné řetězové reakce je zapotřebí, aby koeficient násobení k_∞ byl větší než jedna. To ovlivňuje mnoho faktorů, zejména složení (obohacení) paliva, přítomnost nečistot, okolní teplota, druh a koncentrace moderátoru. Průběh obohacení přírodního uranu v historii zeměkoule je patrný z *Obr. 2*. Z grafu je patrné, že před dvěma miliardami let dosahovalo obohacení uranu přibližně čtyř procent. To je hodnota, při které současně s vhodným poměrem palivo/moderátor (srov. *Tab. 2*) mohlo dojít ke spuštění reakce.



Obr. 2 Obohacení přírodního uranu izotopem ^{235}U v závislosti na stáří Země

Podle [4] byla hodnota koeficientu násobení pro systém tvořený z 2,4 molekuly vody a jednoho atomu uranu před dvěma miliardami let přibližně $k_\infty \approx 1{,}3$.

Koeficient násobení k_∞ jsme dosud pro zjednodušení uvažovali pro nekonečnou soustavu. Pokud je soustava konečná, musíme brát v úvahu také únik neutronů ze soustavy, a zavádíme proto tzv. efektivní koeficient násobení k_{ef}:

$$k_{ef} = k_\infty P_1 P_2 \ , \tag{1.6}$$

kde P_1 označuje pravděpodobnost, že neutrony neuniknou ze soustavy během zpomalování a P_2 nese význam pravděpodobnosti, že neutrony neuniknou ze soustavy během difuse. Obě zmíněné pravděpodobnosti závisí mimo jiné na geometrii soustavy. K dosažení kritického stavu reaktoru potřebujeme nejmenší množství paliva za použití kulové geometrie[2] aktivní zóny a zavádíme pro ni geometrický parametr B_G^2:

$$B_G^2 = \left(\frac{\pi}{R}\right)^2 , \tag{1.7}$$

kde R je poloměr soustavy. Již z jednoduché úvahy odvodíme, že čím je poloměr soustavy větší, tím se zvyšuje celková pravděpodobnost, že neutrony ze soustavy neuniknou a zúčastní se štěpení uranu.

Pokud součin všech tří koeficientů na pravé straně rovnice (1.6) dává hodnu rovnou jedné, tedy $k_{ef} = 1$, mluvíme o tzv. kritické rovnici, která tvoří základní podmínku pro vznik samočinně se udržující štěpné řetězové reakce [5].

Rozměr všech šestnácti lokalit, ve kterých štěpná reakce v nalezišti Oklo probíhala, uvedenou kritickou podmínku splňoval. Aktivní zóny přírodních reaktorů tvořily oválné uranové sloje vždy alespoň půl metru silné.

Jak vlastně štěpná řetězová reakce v aktivních zóně přírodního reaktoru probíhala a jak je možné, že nedošlo k jaderné explozi?

V aktivní zóně reaktoru musel existovat regulační mechanismus dovolující rozběhnutí štěpné řetězové reakce, avšak také její včasné utlumení. Reaktor dokonce mohl být v provozu v jakémsi cyklickém režimu.

V úvahu připadá možnost regulace přírodního jaderného reaktoru pomocí částic pohlcujících neutrony, tzv. absorbátorů. Jejich koncentrace mohla být taková, že sice dovolovala průběh řetězové reakce, na druhou stranu však bránila jejímu lavinovitému šíření. V nalezišti Oklo se skutečně našlo zastoupení izotopů boru, který se jako absorbátor využívá i v současných jaderných elektrárnách.

Druhým mechanismem, kterého se rovněž využívá i dnes, mohla být regulace výkonu aktivní zóny pomocí zpětnovazebního teplotního koeficientu vody a vodní páry. Pokud do ložiska uranu pronikla ať už podzemní či povrchová voda, fungovala zde jako moderátor, tj. zpomalovala neutrony na energii potřebnou ke štěpení. Štěpná řetězová reakce probíhala do té doby, než začalo docházet k přehřívání aktivní zóny, vypařování vody a tím ke snižování moderačního účinku. V soustavě tedy začalo ubývat tepelných neutronů a štěpná řetězová reakce se utlumila do té doby, než aktivní zóna dostatečně vychladla a bylo k dispozici opět dostatečné množství vody pro další rozběh štěpné reakce. Některé anomálie v koncentraci xenonu, který vzniká při štěpení ^{235}U, potvrzují předpoklady pro přítomnost tohoto řídícího mechanismu v dávných dobách. Uvádí se [6], že reaktor tímto způsobem mohl pracovat ve tříhodinových cyklech.

Podrobným zkoumáním izotopického složení oblasti se došlo k závěru, že byl přírodní jaderný reaktor v provozu po dobu přibližně 150 000 tisíc let s průměrným výkonem 100 kW,

[2] Koule má při daném objemu nejmenší povrch ze všech známých geometrických těles.

který se svou velikostí může srovnávat s výkonem některých dnešních výzkumných reaktorů. Celkem tedy reaktor v Oklo uvolnil energii odpovídající hodnotě 15 GWlet, přičemž k tomu spotřeboval asi 5 – 6 tun ^{235}U. Při průměrné hustotě toku neutronů $\phi = 10^9$ $cm^{-2}s^{-1}$ dosáhl neutronový tok za celou dobu provozu reaktoru hodnoty 10^{21} cm^{-2}. Pro srovnání, hustota toku neutronů v současných reaktorech se pohybuje v řádech $10^{13} \div 10^{14}$ $cm^{-2}s^{-1}$ [7]. O několik řádů nižší hodnota hustoty toku neutronů v gabunském reaktoru tak odpovídá jeho nízkému výkonu a rozlehlosti aktivní zóny.

Provoz přírodního reaktoru v Oklo byl ukončen v důsledku snížení koncentrace štěpných izotopů pod potřebnou hodnotu, nebo jak bychom řekli dnes, odstavení bylo způsobeno vyhořením jaderného paliva. Na trvalé podkritičnosti a nerozběhnutí další štěpné řetězové reakce se také mohly podílet různé hydrogeologické změny v oblasti.

S ohledem na izotopické složení přírodního uranu je v současné době maximální dosažitelná hodnota koeficientu násobení pro homogenní směs vody u uranu (2,43 molekuly H_2O na jeden atom uranu) $k_\infty = 0.838$ [4]. Průběh štěpné reakce v přírodním homogenním vodou moderovaném reaktoru je tedy v naší éře vyloučen. Použití kombinace přírodního uranu a obyčejné vody brání především vysoký účinný průřez pro absorpci neutronů molekulami vody. Provoz současných lehkovodních jaderných reaktorů je založen na heterogenní směsi obohaceného paliva (3 až 5% ^{235}U) a moderátoru.

Přírodní uran však nachází uplatnění v jaderné energetice i dnes. Aktivní zónu jaderných reaktorů typu Magnox, které jsou v provozu ve Velké Británii, tvoří přírodní kovový uran a grafit jako moderátor. Použitím této kombinace je možné dosáhnout $k_\infty = 1{,}08$ [8]. S palivem ve formě přírodního uranu je možné provozovat také kanadské těžkou vodou moderované reaktory CANDU. Grafit a těžká voda mají dobré moderační účinky a oproti obyčejné vodě výrazně nižší účinný průřez pro absorpci neutronů.

Jedním z mnoha důležitých poznatků ze zkoumání naleziště v Oklo je jistě také fakt, že většina produktů štěpné řetězové reakce se i po 2 miliardách let nachází v těsné blízkosti přírodních reaktorů, a to navzdory okolnímu povrchu tvořeného pórovitým, vodou nasyceným pískem [7].

[1] Meshnik, A.P.: *The Workings of an Ancient Nuclear Reactor,* Scientific American, New York, January 2009

[2] Kuroda, P.K.: *On the Nuclear Physical Stability of the Uranium Minerals,* The Journal of Chemical Physics, Vol. 25, No. 4, USA, 1956

[3] Ragheb, M.: *Natural Nuclear Reactors, The Oklo Phenomenon,* http://netfiles.uiuc.edu/mragbeb, 10/2009

[4] Lamoreaux, S.K.; Torgerson, J.R.: *Neutron Moderation in the Oklo Natural Reactor and the Time Variation of α LA-UR 03-6686,* Physical Review D, Vol. 69, 2004

[5] Zeman, J.:*Reaktorová fyzika I*, ČVUT, Praha, 2003

[6] Meshnik, A.P.; Hohenberg, C.M.; Pravditseva, O.V.: *Record of Cycling Operation of the Natural Nuclear Reactor in the Oklo/Okelobondo Area in Gabon,* Physical Review Letters, Vol. 93, Nr.18, 2004

[7] Karam, A.: *The Natural Nuclear Reactor at Oklo: A Comparision with Modern Nuclear Reactors,* 2005 http://www.physics.isu.edu/radinf/Files/Okloreactor.pdf

[8] Zeman, J.:*Reaktorová fyzika II*, ČVUT, Praha, 2001