<u>Fenomén OKLO</u> – jak nahlížet na jadernou energii ve světle dlouhodobých vlivů na životní prostředí?

<u>Přírodní reaktor</u> – opomenutý důkaz přirozenosti transformačních procesů jaderné energie

18.11.2009

Vypracovali: Jan Krmela

Irena Špendlíková

Obsah

1 Úvod ... *3*

2 Historie objevu přírodního reaktoru v oblasti OKLO v Gabonu ... *4*

3 Vznik uranového ložiska Oklo ... *7*

4 Poznatky o existenci reaktorových zón v oblasti Oklo ... *8*

5 Charakteristika přírodních reaktorů v oblasti Oklo ... *9*

6 Důkazy existence štěpné reakce ... *11*

6.1 Neodym ... **11**

7 Přírodní radioaktivní odpady ... *12*

7.1 Migrace štěpných produktů ... **14**

7.1.1 Prvky vzácných zemin a uran ... 15

7.1.2 Xenon ... 16

7.1.3 Alkalické kovy a alkalické zeminy ... 24

7.1.4 Ruthenium a technecium ... 24

7.1.5 Ostatní štěpné produkty ... 25

7.1.6 Transuranové prvky ... 25

8 Ostatní přírodní štěpné reaktory ... *25*

9 Literatura ... *27*

Obr. 1: *Uranové naleziště Oklo*[1]

1 Úvod

V současnosti již víme, že jaderné procesy se ve vesmíru vyskytují na každém kroku a to ve hvězdách a také v centru samotných planet a jiných vesmírných těles. Lidstvu se podařilo získat energii z jaderných procesů poprvé na konci první poloviny minulého století, konkrétně v prosinci r. 1942 Enrico Fermimu a jeho spolupracovníkům v podzemí univerzitního stadionu v Chicago, kde poprvé uvedli do chodu svůj první uranový jaderný reaktor na Zemi vybudovaný lidstvem.

Příroda je stále plná tajemství a neustále překvapuje nejen laickou veřejnost, ale i vědeckou obec. Jedním z největších překvapení bylo objevení přírodních jaderných reaktorů v rovníkové západní Africe. Přitom cesta k objevu může být charakterizována číslem 0.0031% - nerozpoznání tak malé odchylky by stačilo k tomu, aby tento přírodní fenomén byl opomenut.

2 Historie objevu přírodního reaktoru v oblasti OKLO v Gabonu

V květnu 1972 ve francouzském Pierrelatte, ve zpracovatelském závodu pro výrobu jaderného paliva, si jeden z pracovníků všiml něčeho podezřelého při provádění rutinní analýzy izotopového složení uranu ve vytěžené rudě z dolu Oklo v Gabonu (bývalá francouzská kolonie v západní rovníkové Africe) (Obr. 2). Přírodní uranová ruda obsahuje tři izotopy, to znamená, tři formy s různou atomových hmotností: uran 238, nejhojnější, uran 234, nejvzácnější, a uran 235, izotop, který je podstatný z hlediska využití v jaderné energetice. V zemské kůře, na Měsíci a dokonce i v meteoritech, tvoří jádra uranu 235 0.7202 procent z celkového počtu jader přírodního uranu. Ale ve vzorku, který přišel z uranového naleziště Oklo v Gabonu, zastoupení uranu 235 bylo jen 0.7171 procent[2]. Tento malý rozdíl by mnoho lidí jen přehlédlo, avšak lidé ve Francii se tímto nepatrným rozdílem, čili tak malým číslem jako je 0.0031%, začali zabývat. Následné analýzy vzorků odebraných z uranového ložiska Oklo ukázaly, že ruda v některých oblastech obsahuje dokonce jen 0.3% uranu 235[3].

Obr. 2: *Mapa Gabonu s polohou dolu Oklo*[1]

Obr. 3: *Mapa Gabonu s polohou dolu Oklo*[4]

Dlouhou dobu nemohli specialisté z francouzské Komise pro atomovou energii (CEA) přijít na původ tohoto poklesu podílu uranu 235. Odpověď na tuto otázku byla však předpovězena již z dříve. V roce 1953 George W. Wetherill z University of California v Los Angeles a Mark G. Inghram z University of Chicago uvedli, že některá ložiska uranu mohla kdysi existovat jako přírodní jaderné štěpné reaktory a krátce poté, Paul Kuroda K.[5], chemik z University of Arkansas, na základě výpočtů formuloval předpoklad, že by uranové ložisko mohlo v přítomnosti vody udržet řetězovou reakci. Takto probíhající proces je možno popsat takto: zbloudilý tepelný neutron pronikne do jádra uranu 235, jádro se následně rozdělí na dvě asymetrická jádra a vyletí 2-3 neutrony, které mohou způsobit další štěpení jader uranu 235. Pokud neutrony nebudou nijak jinak pohlcovány nebo odváděny, bude probíhat tzv. štěpná řetězová reakce podle rovnice 1:

$$^{235}U + n \rightarrow {}^{x}X + {}^{y}Y + 2 \div 3n \qquad (1)$$

Pro rozběhnutí přírodních jaderných reaktorů, tedy pro nastartování řetězové reakce muselo být splněno podle P. Kurody několik podmínek:

- Velikost uranového ložiska by měla přesáhnout průměrnou délku definovanou jako dolet neutronu schopného způsobit další štěpnou reakci. Tato délka odpovídá asi dvěma třetinám metru. Tato podmínka pomáhá také zajistit to, aby neutrony uvolněné při jednom štěpení mateřského jádra byly absorbovány v dalším štěpitelném jádře, než uniknou z uranové žíly[5].
- Koncentrace uranu 235 musela být v minulosti vyšší než jakou nalézáme dnes v přírodě. Pokud se podíváme na přírodní složení uranu v dnešní době, uvidíme, že na každých 100 000 jader přírodní směsi uranu připadá v průměru pouze 720 jader uranu 235, zbytek je tvořen většinou jádry uranu 238. Tato koncentrace je však nízká pro vyvolání samovolné řetězové reakce, a proto v dnešní době většina reaktorů vyrobená lidmi pracuje s obohaceným uranovým palivem. Vzájemný poměr nejvýznamnějších izotopů uranu ^{238}U a ^{235}U v přírodní směsi v důsledku různých poločasů rozpadu se mění v průběhu času. Zatím co poločas rozpadu uranu 238 je přibližně 4.5 miliard let, poločas rozpadu uranu 235 je asi šestkrát menší, 0.7 miliard let. Z těchto skutečností vyplývá, že jádra uranu 235 se rozpadala rychleji než jádra uranu 238. Například před dvěma miliardami let tvořil uran 235 přibližně 3 procenta izotopů uranu, což je zhruba na úrovni stanovené pro uměle obohacený uran pro palivo, které se používá ve většině jaderných elektráren[6].
- Další podmínkou je vysoká koncentrace uranu v uranové rudě (50 až 60% v oblasti Oklo) a naopak velmi nízké koncentrace látek, které pohlcují neutrony (resp., mají vysoký totální účinný průřez pro reakci s neutrony). Mezi takové látky patří například sloučeniny prvků vzácných zemin nebo bóru, kvůli jejichž přítomnosti by mohlo dojít k rychlému zastavení řetězové reakce[6].
- Skutečnost, že se řetězová reakce udržela několik tisíc let a že tyto přírodní reaktory neexplodovaly, poukazuje na to, že reaktor musel být nějakým způsobem moderován a jeho reaktivita kontrolována. Jako moderátor mohou sloužit jakékoli látky obsahující lehká jádra, která mohou zpomalovat neutrony uvolňované při štěpení jádra uranu tak, aby tento zpomalený neutron byl schopen interagovat s dalším štěpitelným jádrem uranu a inicioval tak další akt štěpení. Nejúčinnějším moderátorem je vodík, který je obsažen ve formě všudypřítomné vody[6]. Všechny tyto parametry spolu s

geometrickými charakteristikami uranového ložiska, ovlivňující míru úniku produkovaných neutronů do okolního prostředí, určují jistou minimální (kritickou) velikost soustavy nutnou pro rozběhnutí řetězové reakce[10].

Vědci tedy následně začali hledat v uranovém nalezišti Oklo systémy, které by odpovídali výše zmíněným podmínkám. V rámci oblastí uranových dolů Oklo a Okelobondo bylo nalezeno 16 samostatných systémů, které téměř odpovídaly výše uvedeným podmínkám. Následkem toho se vědci pustili do hlubšího výzkumu toho přírodního fenoménu.

3 Vznik uranového ložiska Oklo

Podle Jamese Lovelocka[7] výskyt kyslíku v rané historii Země měl významný vliv na vznik prvních přírodních štěpných reaktorů. Když Země vznikla před 4.6 miliardami let, tak uran byl mnohem více obohacený štěpitelným izotopem uranu 235 a to asi na 35 procent. Avšak díky tomu, že se uran 235 rozpadá rychleji než běžnější izotop uranu 238, zastoupení uranu 235 se během milionů let snížilo na současných cca 0.72 procent.

Uran se v přírodě nejčastěji vyskytuje ve čtyřmocné formě, která je nerozpustná ve vodě. V důsledku masivní fotosyntézy v éře zelených rostlin se obsah kyslíku ve vodě rapidně zvýšil, což zapříčinilo oxidaci uranu v horninách na šestimocnou formu, která v přítomnosti atmosférického oxidu uhličitého může ve vodě vytvářet rozpustné uranyl - karbonátové sloučeniny. Na základě této skutečnosti se stal uran jedním z mnoha prvků vyskytující se ve stopovém množství ve vodě i dnes. Koncentrace údajně nepřevyšovala několik jednotek ppm, takže uran byl pouze jen jedním z mnoha iontů ve vodě. Proto pro vznik ložiska s vysokou koncentrací uranu muselo dojít k nakoncentrování uranu z vody. Předpokládá se, že v místě, kde je nyní důlní oblast Oklo, bylo moře obsahující mnoho mikroorganismů se schopností shromažďovat a zadržovat uran s následnou tvorbou jeho minerálů, které časem na jednom místě vytvořily mohutné uranové ložisko vhodné k „zažehnutí“ jaderné reakce v „přírodních“ reaktorech[8].

4 Poznatky o existenci reaktorových zón v oblasti Oklo

Určit stáří této oblasti bylo velmi důležité kvůli vypočítání koncentrace uranu 235 v době vzniku těchto přírodních reaktorů. V roce 1972, tedy v roce objevení, byla k dispozici pouze rubidium-stronciová metoda datování nánosových sedimentů. Tato metoda poskytla hodnotu 1740±40 milionů let.

Uran-olověná metoda s použitím uranu, který nezreagoval, vedla k hodnotě $1.8.10^9$ let a její výsledky poukazovaly na to, že olovo vůči uranu v průběhu let migrovalo v mateřské hornině.

Další metoda byla vypracována speciálně pro určení stáří reakce samotné na základě předpokladu, že štěpné produkty vzácných zemin zůstaly během dlouhých tisíciletí v místě svého vzniku. Hodnota $1.9.10^9$ let byla tedy určena měřením poměru neodymu a uranu[6].

Všechny zmíněné metody datování tedy zařadily dobu fungování reaktoru do epochy před dvěma miliardami let, tedy cca 2.5 miliardy let po zformování Sluneční soustavy (pro srovnání: tou dobou na Zemi už existovaly jednobuněčné formy života, ale do vzniku mnohobuněčných organismů zbývala téměř miliarda let)[10].

Základní teorie, že řetězová reakce byla odpovědná za částečné vyčerpání uranu 235 v uranovém nalezišti Oklo, byla fyziky potvrzena již velmi brzy po objevu nižšího zastoupení uranu 235 v této rudě (v současné době se jeho obsahy pohybují v některých místech až na úrovni 0.3-0.4 %). Nesporným důkazem byla identifikace štěpných produktů. Jejich množství a zastoupení bylo právě takové, že žádný jiný závěr než, že se v této oblasti skutečně vyskytl přírodní jaderný reaktor pracující na základě štěpení uranu 235, nemohl být dedukován.

Tyto přírodní reaktory byly v průběhu dalších let velmi detailně zkoumány z hlediska geologického, geochemického, mineralogického, chemického i z hlediska neutronové fyziky. Výsledky z většiny studií byly prezentovány na sympoziu v Libreville, hlavním městě Gabonu, (červen 1975) pořádaném Mezinárodní agenturou pro atomovou energii (IAEA), vládou státu Gabon a francouzskou Komisí pro atomovou energii (CEA). Následující rok George A. Cowan publikoval své výsledky[9].

Cowan ve své práci popsal například vznik dalšího štěpitelného materiálu (^{239}Pu) podle následujících rovnic (2):

$$
\begin{aligned}
&{}^{238}_{92}U + {}^{1}_{0}n \quad \rightarrow \quad {}^{239}_{92}U + \gamma \\
&{}^{239}_{92}U \rightarrow \quad {}^{239}_{93}Np + {}^{0}_{-1}e + \bar{\nu} + \gamma \\
&{}^{239}_{93}Np \rightarrow \quad {}^{239}_{94}Pu + {}^{0}_{-1}e + \bar{\nu} + \gamma
\end{aligned} \qquad (2)
$$

Více než dvě tuny tohoto izotopu plutonia byly generovány v rámci dolu Oklo. Přestože téměř všechen tento materiál (^{239}Pu), který má poločas 24000 let, do dnešní doby zmizel především díky přírodnímu radioaktivnímu rozpadu (rovnice 3), některá jádra podlehla štěpení, jak to dokládá přítomnost charakteristických štěpných produktů. Na základě výše zmíněných rovnic můžeme tedy říci, že přírodní jaderné reaktory v uranovém nalezišti Oklo nejsou jenom prvními jadernými reaktory na bázi uranu 235, ale také prvními množivými reaktory. Hojnost štěpných produktů umožnila vědcům vyvodit, že štěpné reakce musely probíhat několik stovek tisíc let.

$$
{}^{239}_{94}Pu \rightarrow \quad {}^{235}_{92}U + {}^{4}_{2}He \qquad (3)
$$

Z množství spotřebovaného uranu 235 byla vypočtena celková uvolněná energie, která odpovídala 15000 MW za rok. Z této hodnoty a dalších podkladů byli vědci schopni vypočítat průměrný výkon přírodního reaktoru, který byl pravděpodobně nižší než 100 kW.

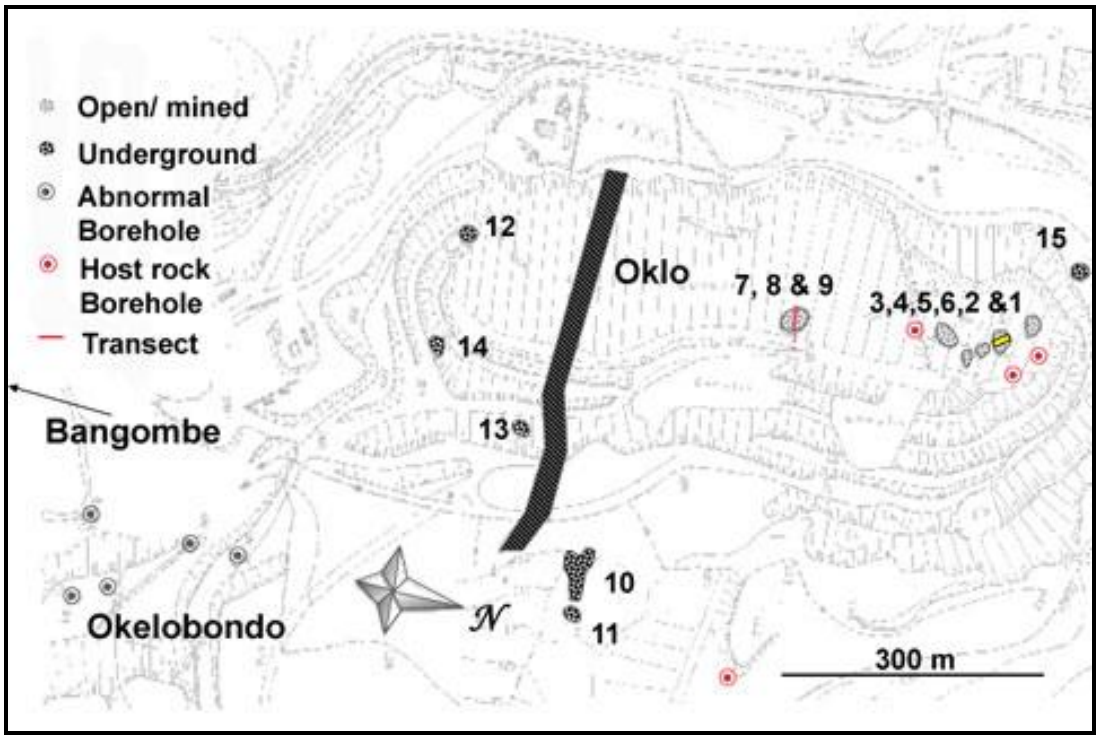
Nyní vyvstávají další otázky. Jak je možné, že takovýto přírodní reaktor neexplodoval a nedošlo tak k výbuchu ihned po zahájení štěpné řetězové reakce? Jaký byl tedy mechanizmus, který tento přírodní reaktor reguloval? Běžely rektory kontinuálně či nárazově?[2]

5 Charakteristika přírodních reaktorů v oblasti Oklo

V tabulce 1 můžeme vidět jednotlivé charakteristiky reaktorových zón v oblasti Oklo.

Tabulka 1: Charakteristika reaktorových zón v oblasti Oklo

počet reaktorových zón v oblasti Oklo [10]	> 16
množství spotřebovaného ^{235}U [11]	> 5 tun
množství vygenerovaného ^{239}Pu [2]	> 2 tuny
uvolněná energie [11]	≈ 15 GWlet
doba udržení řetězové reakce [11]	150 000 let
stáří reaktorů [6]	1,9 miliard let
rozměry zón [12]	délka: 10-20 m tloušťka: do 1 m
teplota v reaktorech [12]	< 400°C
průměrný výkon jednoho reaktoru [10]	100 kW
efektivní neutronový tok [11]	až 10^{21} neutron/cm^2



Obr. 5: *Oblast uranového ložiska s polohou 15 přírodních reaktorů*[1]

Samotná uranová žíla je dlouhá několik kilometrů a asi polovinu z toho široká (Obr. 5). Po objevení nesrovnalostí v izotopovém složení uranu v této rudě byla pozastavena těžba a bylo provedeno několik vrtů pro geochemickou studii uranové rudy a okolních hornin. Během prvních studií bylo objeveno již 6 reaktorových zón, a když po dokončení průzkumu

byla těžba znovu obnovena, některé zóny byly zcela vytěženy. Několik dalších míst s abnormálním izotopovým složením přírodního uranu se vyskytuje v blízké oblasti Okelobondo a dále v asi 35 km vzdálené oblasti Bangombe. Horninové vzorky ze všech vrtů jsou uchovány ve francouzském Saclay[1].

6 Důkazy existence štěpné reakce

Když byly vzorky z přírodních reaktorů analyzovány z hlediska obsahu různých nuklidů, tak zastoupení různých prvků neodpovídalo normálnímu přirozenému zastoupení těchto prvků v přírodě, jako například neodymu.

6.1 Neodym

Po opravách pro záchytu neutronu a přírodního pozadí, bylo zjištěno, že rozdělení izotopů neodymu odpovídá tomu, které pochází ze štěpení uranu 235. Neodym má několik stabilních izotopů na konci krátkých izobarických řad, které mají významné zastoupení mezi štěpnými produkty.

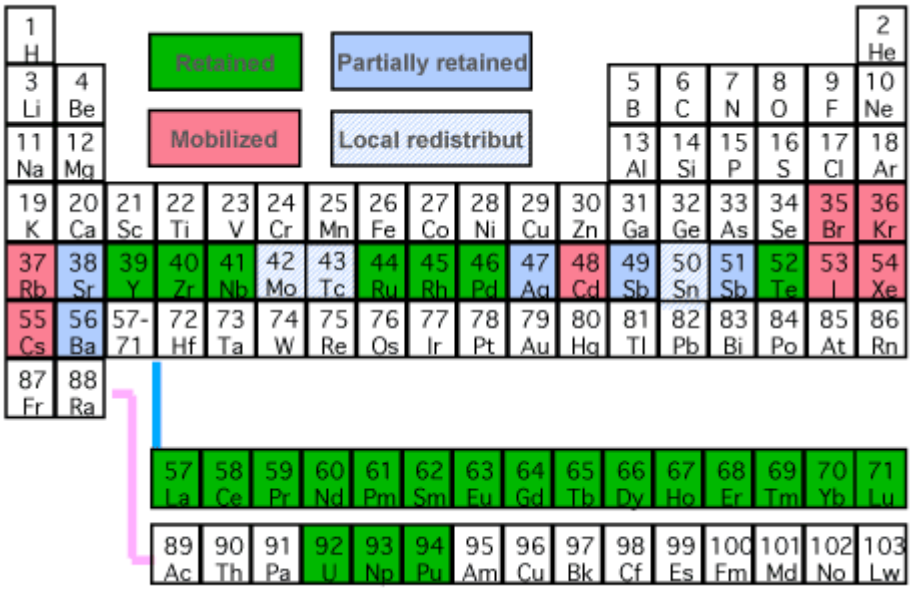
Analýza rozdělení izotopů neodymu je používána v dozorové činnosti při odhalování tajných štěpných reaktorů, přepracování, nebo testování jaderných aktivit. Neodym má sedm stabilních izotopů, ale pouze šest z nich jsou štěpnými produkty, což nám umožňuje říci, zda-li se v daném systému vyskytovala štěpná reakce. Z tabulky 1, která ukazuje množství a zastoupení izotopů neodymu v přírodě, ze štěpení, a ze vzorků z Oklo, můžeme usoudit, že v oblasti Oklo skutečně probíhala štěpná reakce[8].

Tabulka 2: Procentuální atomové zastoupení izotopů neodymu v přírodě, ze štěpení a ze vzorků z Oklo[6]

Hmotnostní číslo	Zastoupení		Zastoupení ze štěpení ^{235}U
	přírodní složení	naměřené hodnoty ze vzorků z oblasti Oklo	
142	27.19	1.68	-
143	12.19	22.25	28.88
144	23.80	31.69	26.91
145	8.29	17.49	19.07
146	17.18	15.49	13.70
148	5.73	7.99	8.20
150	5.62	3.41	3.20

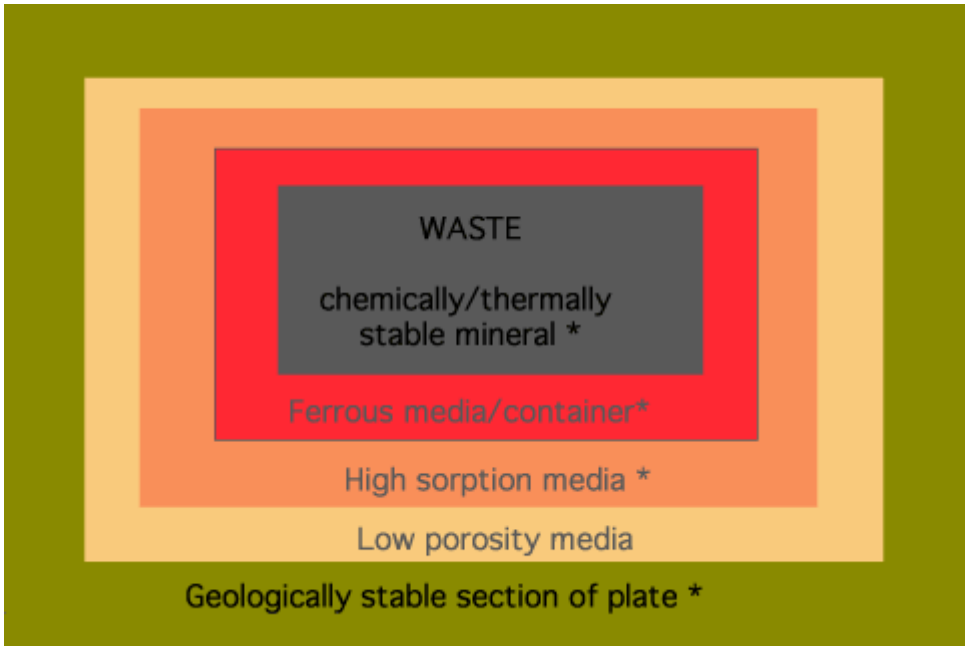
7 Přírodní radioaktivní odpady

Objev a podrobný výzkum přírodních jaderných reaktorů by také mohl odpovědět na několik aktuálních otázek týkající se skladování vysoce radioaktivního vyhořelého paliva. Jelikož řetězová reakce probíhala přibližně před 2 miliardami let, zbytky těchto zón jsou neocenitelným zdrojem informací o dlouhodobé míře migrace jednotlivých štěpných produktů a aktivačních produktů v zemské kůře. Rozdělení prvků z hlediska míry migrace můžeme vidět na obr. 6.



Obr. 6: *Periodická tabulka s migrujícími a zadrženými prvky*[1]

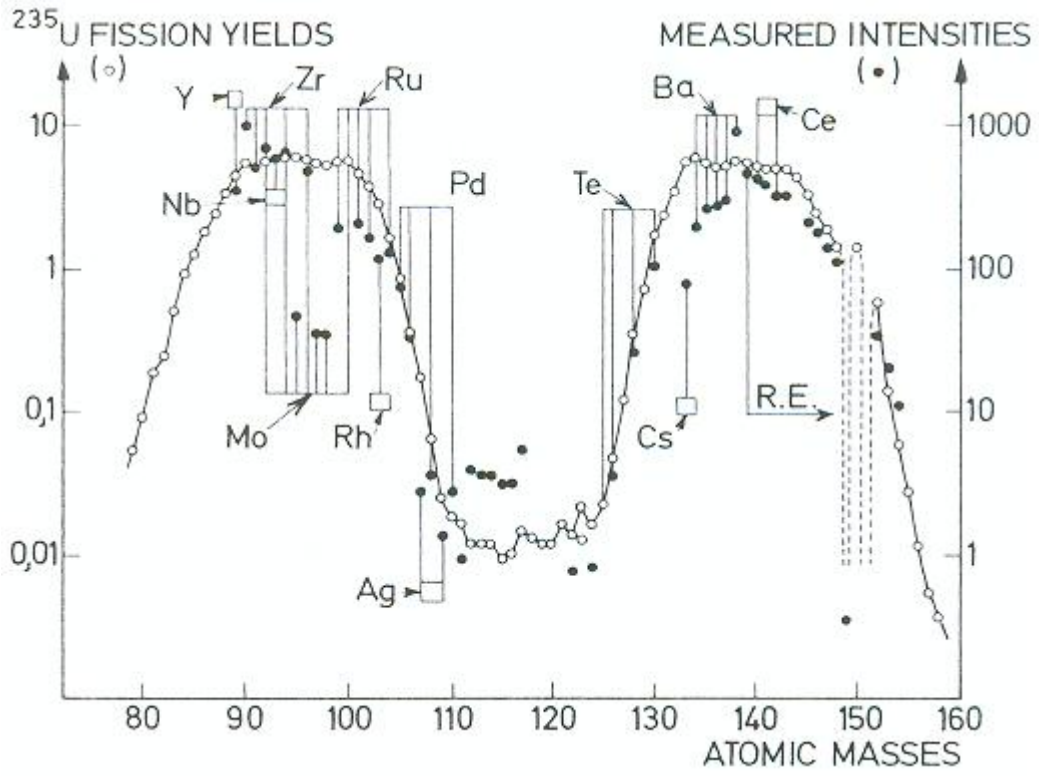
Izotopové studie provedené na vzorcích z reaktorových zón ukazují, že většina štěpných produktů byla zadržena v samotné zóně po dlouhých 2 miliard let, a bylo dokázáno, že ta menšina radionuklidů, která chybí v reaktorových zónách, byla nalezena v okolních horninách velmi blízko samotného reaktoru. Přírodní reaktory a jejich okolí v oblasti Oklo představují koncept tzv. mnohonásobné bariéry pro uložení radioaktivního odpadu (obr. 7). Což znamená, že i když by radionuklidy unikly přes prvotní bariéru, musí následovat taková posloupnost vnějších bariér, aby tyto radionuklidy byly účinně zachyceny.



Obr. 7: *Koncept mnohonásobných bariér*[1]

7.1 Migrace štěpných produktů

Celkový obrázek o relativní migraci radionuklidů byl získán pečlivou izotopovou analýzou výsledků z hmotnostních spekter. Obr. 8 ukazuje naměřené intenzity izotopů s hmotnostními čísly v rozsahu 90 až 160 a také křivku štěpných výtěžků ze štěpné reakce 235 uranu tepelnými neutrony[12].



Obr. 8: *Naměřené intensity radionuklidů o hmotnostech 80 – 160 s křivkou štěpných výtěžků uranu 235*[12]

Můžeme vidět, že naměřená data přibližně korespondují s křivkou štěpných výtěžků pro následující prvky: niob, ruthenium, rhodium, paladium, stříbro, telur, lanthan, cer, praseodym, neodym a samarium. Z toho vyplývá, že tyto prvky zůstaly v místech svého vzniku od ukončení reakce do dnešní doby. Zirkonium, jehož izotopové zastoupení leží nad křivkou štěpných výtěžků, je směs přírodního a štěpením vzniklého zirkonia. Na druhou stranu barium, které vzniklo štěpením v těchto zónách, nemohlo být vůbec detekováno kvůli přítomnosti velkého množství přírodního barya. A nakonec izotopová zastoupení molybdenu, jodu a cesia byla mnohem menší než by odpovídalo vzniku ze štěpné reakce, což ukazuje na velké ztráty těchto radionuklidů právě migrací do okolních hornin, mimo reaktorovou zónu. Podrobnější studie, tzn. izotopová a chemická analýza, vedly k dalším informacím o rozdělení a migračním chování jednotlivých štěpných produktů.

7.1.1 Prvky vzácných zemin a uran

Ze vzácných zemin byly nejvíce studovány neodym a uran, jelikož jejich vzájemné množství a izotopové zastoupení umožňují určit většinu charakteristických parametrů

reaktorových zón. Výsledky ukazují, že vzácné zeminy zůstaly dobře zachyceny v rámci uranové rudy, avšak byla pozorována i částečná migrace. Je také jasné, že k žádnému významnému přerozdělení uranu v centrech reaktorových zón nedošlo, ale menší izotopové anomálie byly nalezeny na jejich hranicích. Kontaminace rudy ochuzeným uranem je omezeno na okruh 1 metru kolem zóny.

V případě prvků vzácných zemin k přerozdělení, ačkoli limitovanému, docházelo systematicky a ovlivnilo nejenom štěpné produkty, ale také přírodní vzácné zeminy. Tohle zastoupení je však spojeno s přítomností vodních proudů v čase řetězové reakce a vzdálenost odnesených radionuklidů od reaktorových zón nepřesahuje několik decimetrů. Relativní množství migrujících štěpných produktů vzácných zemin z reaktorových zón je opravdu velice malé. Migrace štěpných produktů vzácných zemin mohla být způsobena buď odraženými atomy, nebo oxidací uranové rudy a následně jejím rozpuštěním. U těžších prvků vzácných zemin došlo k výraznější migraci než u lehčích[12].

7.1.2 Xenon

Na základě skutečnosti, že přírodní reaktor neexplodoval, bylo zřejmé, že reaktor musel být řízen nějakým autoregulačním mechanismem, který vytvářel negativní zpětnou vazbu k tvorbě řetězové reakce. Není však jasné, zda reaktor pracoval nepřetržitě nebo jaderná reakce probíhala po určitých intervalech. To je možné zjistit na základě izotopové analýzy xenonu.

7.1.2.1 Mechanizmus regulace přírodního reaktoru v oblasti Oklo

Jeden z navrhovaných mechanismů by mohl být založen na základě přítomnosti nečistot vysoce absorbujících neutrony, jako jsou např. izotopy vzácných zemin nebo bór, které byly zjištěny v oblasti Oklo. Tento mechanizmus by vypovídal o tom, že v jedné části reaktorové zóny by byly spotřebovávány silné absorbátory neutronů a v jiných částech reaktorové zóny by docházelo k vyhořívání uranu[13]. Tento mechanizmus v podstatě odpovídá konstrukci dnešních lehkovodních reaktorů (systém palivo/absorbátor).

Další potenciální regulační mechanismus by mohl být založen na regulaci vodou, která působí jako neutronový moderátor. Při zvýšení teploty reaktoru nad teplotu varu by došlo

k přeměněně vody v páru, tím by se snížil tok termálních neutronů a pomalu by tak docházelo k zastavování řetězové reakce. Řetězová reakce by tak mohla být znovu spuštěna pouze v případě, že by se v reaktoru opět zvýšila koncentrace vody, tzn. zchladnutím reaktoru a následnou kondenzací vody.

Až do nedávna nebyly nalezeny žádné přesvědčivé důkazy ve prospěch některého z těchto mechanismů. Vysvětlení přinesl až objev nesmírně vysoké koncentrace xenonu nalezené v oblasti Oklo v aluminium-fosfátových krystalech, které nesly otisk zvláštního cyklického provozu reaktoru s časovým horizontem, což naznačovalo, že regulace reaktoru musela být skutečně řízena koncentrací vody[11].

7.1.2.2 Analýza xenonu

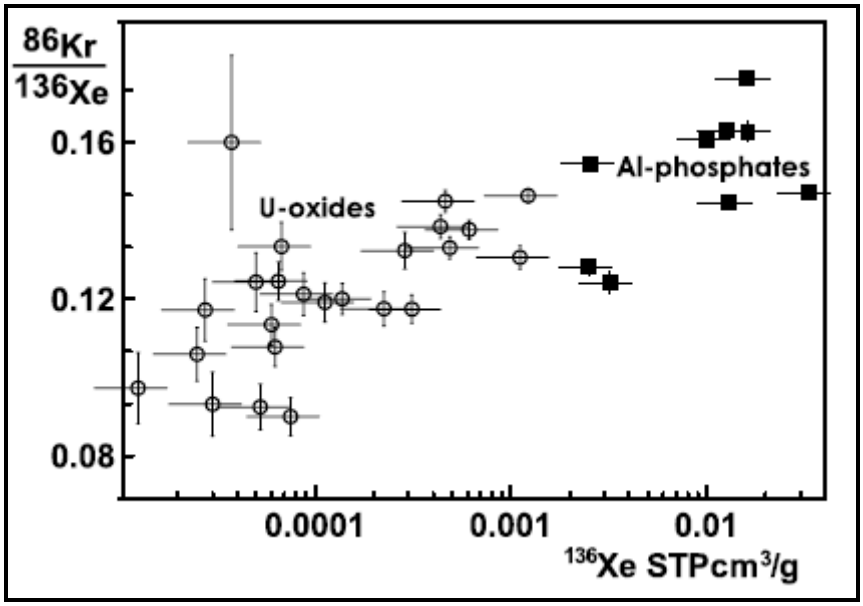
Na základě výše zmíněných poznatků byla jedna z prvních prací provedených na jednom z reaktorů v oblasti Oklo soustředěna na analýzu xenonu, těžkého inertního plynu, který může být zapouzdřen uvnitř minerálů miliardy let. Xenon je ušlechtilý plyn a má devět stabilních izotopů, které mohou vzniknout v různých poměrech z různých jaderných procesů. Na základě plynného skupenství lze xenon snadno oddělit od ostatních prvků a použít ho tak pro izotopovou analýzu. Xenon je na Zemi extrémně vzácný plyn, což umožňuje vědcům jeho použití pro detekci jaderných reakcí, a to i těch, které se vyskytly v meteoritech, než-li vůbec došlo ke vzniku sluneční soustavy.

Analyzovat izotopové složení xenonu vyžaduje hmotnostní spektrometr, zařízení, kterým lze rozdělit atomy podle jejich atomové hmotnosti[14]. Před použitím hmotnostního spektrometru, je důležité získat xenon ze vzorku dané horniny, resp. minerálu. Jedna z možností, jak získat xenon z krystalických materiálů, je vybudit xenon pomocí zvýšení teploty, často nad bod tání krystalu, takže dochází ke ztrátě krystalické struktury horniny a dojde k uvolnění xenonu. Pro zjištění dalších informací o vzniku tohoto plynu, byl zvolen méně destruktivní přístup, tzv. laserová extrakce, při které se uvolňuje xenon selektivně z jednoho minerálního zrna, přičemž sousední oblasti zůstávají neporušené.

Například v práci Meshika[2] byla vyrobena leštěná destička (3 x 4 x 1 mm) ze vzorku odebraného z přírodního reaktoru No. 13 v oblasti Oklo. Před uvolněním xenonu ze vzorku bylo nejprve nutné provést analýzu složení leštěného plátku, aby bylo možné zamířit laserový paprsek přesně do oblasti s výskytem xenonu. Vzorek byl proto studován pomocí rentgenového spektrometru a byla vytvořena „mapa“ složení leštěného plátku. V závislosti na

mapě složení vzorku byl následně vzorek umístěn do vakuované nádoby tak, aby laserový paprsek směřoval do oblasti s výskytem xenonu. Laserový paprsek byl generován z Nd-YAG laseru[15]. Po extrakci byl vyextrahovaný plyn vyčištěn od nečistot a poté byl xenon veden do hmotnostního spektrometru, který rozdělil izotopy xenonu a byla provedena analýza zastoupení jednotlivých izotopů[2].

Z výsledků bylo zjištěno, že uranová ruda neobsahovala výrazný podíl xenonových izotopů. Naopak výrazný podíl xenonových izotopů byl naměřen v aluminium-fosfátových minerálech, které neobsahovaly žádný uran. Uranové oxidy obsahovaly od 10^{-5} do 10^{-3} cm^3 STP/g ^{136}Xe (STP – standard temperature and pressure), zatímco aluminium-fosfátové minerály měly obsah ^{136}Xe až do hodnoty 0.03 cm^3 STP/g, jak je možné vidět na obr. 9. Poměr ^{136}Xe a ^{86}Kr ve vzorcích obsahujících uran má tendenci být nižší, což naznačuje migraci štěpných produktů do aluminium-fosfátů[11].



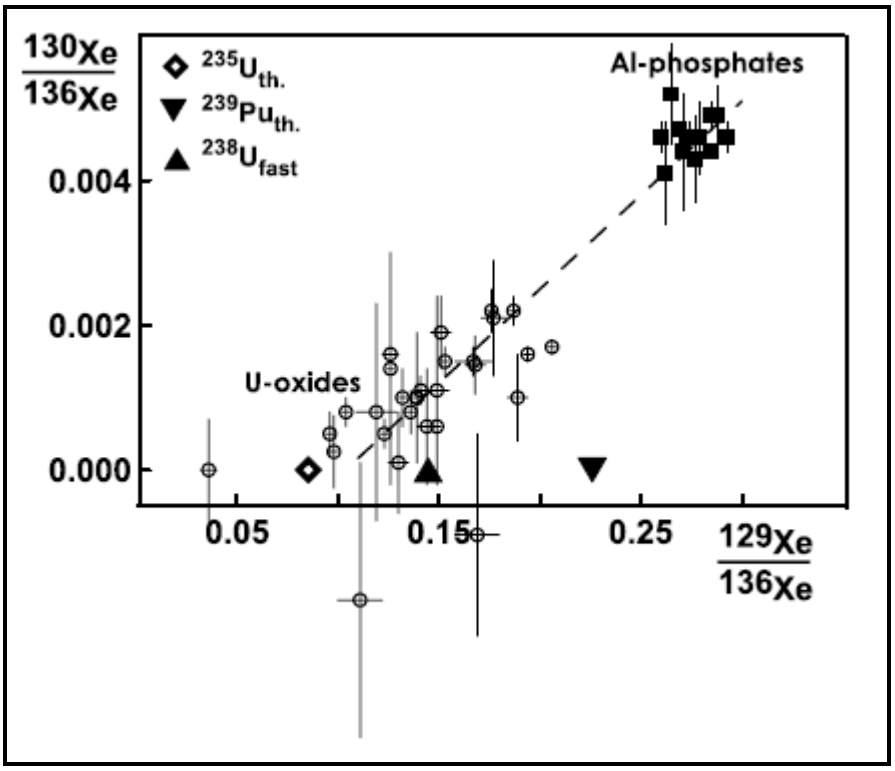
Obr. 9: *Podíl množství stabilních štěpných produktů ^{86}Kr a ^{136}Xe v oxidu uranu a v aluminium-fosfátových minerálech v závislosti na množství ^{136}Xe ve vzorcích*[11].

Další analýzy izotopového složení ukázaly, že aluminium-fosfáty byly výrazně obohaceny štěpnými produkty Zr, Ce a Sr, zatímco uranová ruda byla o tyto prvky ochuzena[16]. Tato unikátní schopnost aluminium-fosfátů zachytit štěpné produkty může být využita při konstrukci jaderných reaktorů, či z hlediska dlouhodobého horizontu skladování jaderného odpadu.

Druhým zajímavým nálezem v aluminium-fosfátových minerálech byla výrazná koncentrace ^{130}Xe (obr. 10). Tento izotop nevzniká izobarickou řadou, protože je chráněn stabilním ^{130}Te. ^{130}Xe je pravděpodobně produkt reakce

$$^{129}I\ (n,\gamma)\ ^{130}I \rightarrow\ ^{130}Xe. \qquad (4)$$

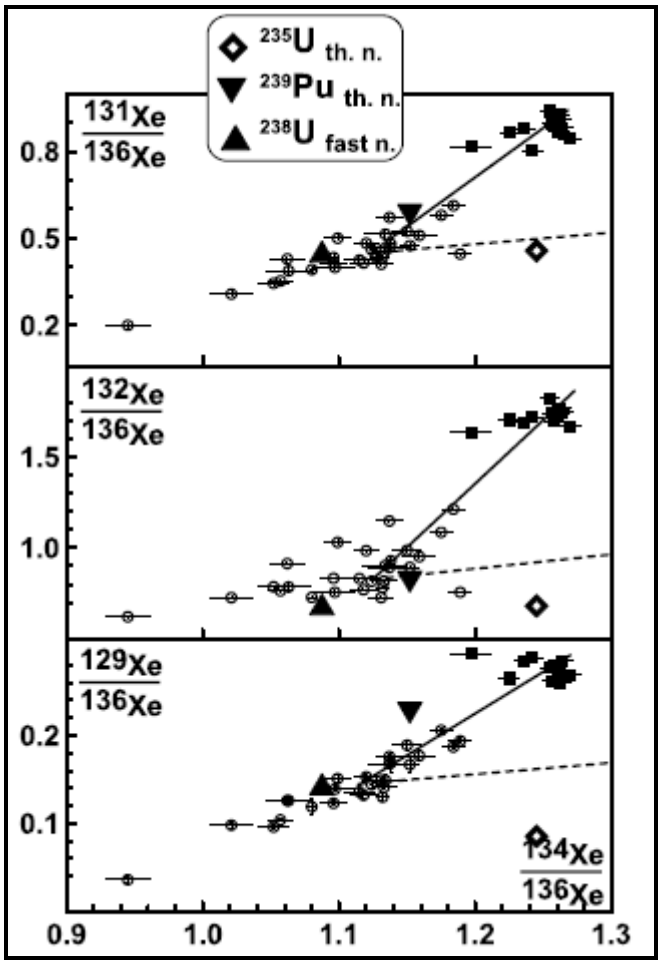
Množství ^{130}Xe v aluminium-fosfátech je mnohem vyšší než v uranové rudě (obr. 10), což naznačuje, že došlo k migraci ^{129}I z uranové rudy do přilehlých aluminium-fosfátových minerálů vystavených toku tepelných neutronů. Posun poměru $^{130}Xe/^{129}Xe$ k vyšším hodnotám nám umožňuje odhadnout efektivní neutronovou hustotu na hodnotu $1.7.10^{21}$ n/cm^2 tedy více, než bylo dříve stanoveno ve stejné zóně reaktoru ($1.0.10^{21}$ n/cm^2 a $0.78.10^{21}$ n/cm^2)[17]. Výsledky tedy naznačují, že aluminium-fosfáty mohou zachytávat ^{129}I [11].



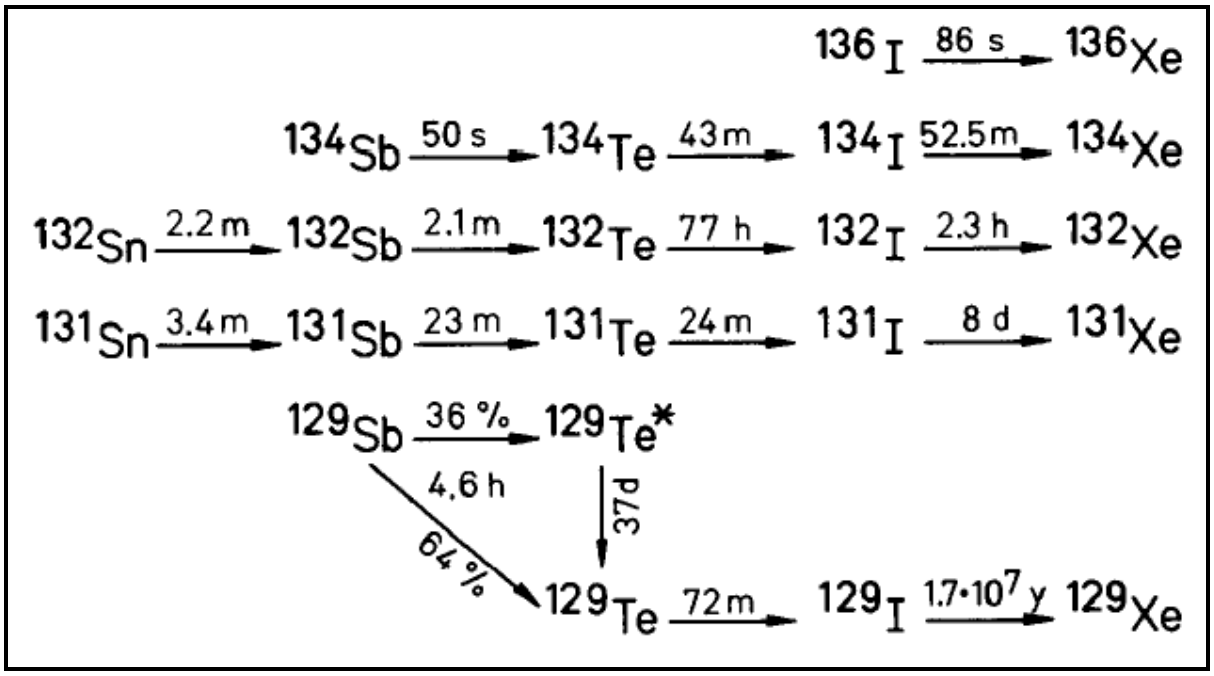
Obr. 10: *Závislost poměru ^{130}Xe a ^{136}Xe na poměru ^{129}Xe a ^{136}Xe.*[11]

Nejpozoruhodnější xenonové anomálie byly pozorovány u těžkých izotopů (obr. 11). Xenon obsažený v uranové rudě má poměrně normální složení charakterizované směsí štěpných produktů z ^{235}U, ^{239}Pu (tepelné neutrony) a ^{238}U (rychlé neutrony). Spontánní štěpení ^{238}U je možné ve vzorcích z oblasti Oklo zanedbat. Naopak aluminium-fosfáty opět nesou výrazné odlišnosti od uranové rudy.

Izotop ^{136}Xe vzniká z ^{136}I jako produktu štěpení s poločasem přeměny ^{136}I 86 *s* (obr. 12). Na základě této reakce a dalších reakcí, při kterých vznikají izotopy xenonu, můžeme říci, že vznik ^{136}Xe je rychlejší než vznik dalších izotopů xenonu (obr. 12). ^{136}Xe se tedy objeví jako první z izotopů xenonu a proto má větší naději, že dojde k jeho transportu na rozdíl od ostatních izotopů Xe. Jak teplota stoupá během startu reaktoru, dochází k hromadění těkavého Xe v aluminium-fosfátech. Během zastavení řetězové reakce se teplota vrací na normální hodnotu a dochází tak ke zpomalení šíření Xe. Nicméně není možné, aby pouze deficit ^{136}Xe vysvětlil experimentálně pozorované anomálie izotopového složení Xe v aluminium-fosfátech (čárkovaná čára, obr. 11). Je zřejmé, že za změnu normálního izotopového složení Xe v aluminium-fosfátech, mohou být zodpovědné pravděpodobně složitější procesy. Takové procesy musí vytvářet poměry izotopového složení v následujících poměrech: ^{131}Xe/^{134}Xe = 3.4, ^{132}Xe/^{134}Xe = 7.0 a ^{129}Xe/^{134}Xe = 0.95 (plná čára, obr. 11).



Obr. 11: *Závislost poměru ^{XXX}Xe a ^{136}Xe na poměru ^{134}Xe a ^{136}Xe.*[11]



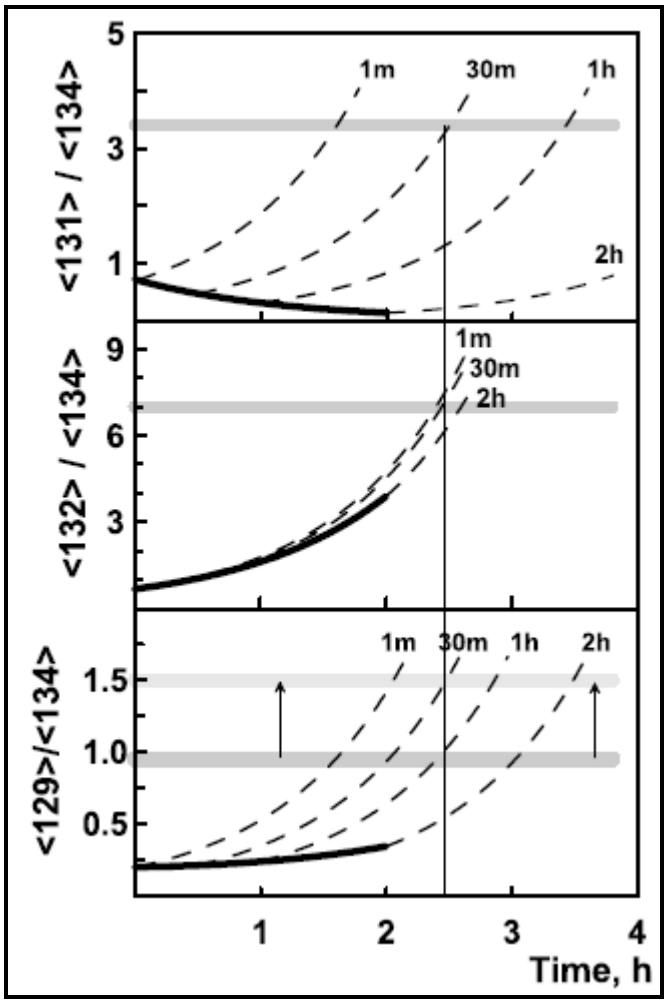
Obr. 12: *Vznik izotopů xenonu z produktů štěpení*[18]

Je známo, že nejvíce zadržujícím se štěpeným produktem v reaktorech Oklo je telur. Telur vzniká dle Obr. 6 z ^{134}Sb (50 s), ^{132}Sb (2.1 m), ^{131}Sb (23 m), ^{129}Sb (4.6 h), a také z ^{129}Sn (2.4 m) a ^{129m}Sn (6.9 m), které se také zadržují v materiálu reaktoru. Dále víme, že také izotopy jódu vzniklé štěpením, včetně dlouhodobého ^{129}I (obr. 12) byly zadrženy v materiálu reaktoru, jinak by nemohl být nalezen přebytek ^{130}Xe vzniklého z ^{129}I záchytem neutronu. Kromě toho, další analýzy ^{129}I a ^{129}Xe v meteoritech jasně ukazují, že jód je daleko víc zadržován než xenon. Proto v průběhu reaktorového pulsu, radioaktivní tellur a jód migrovaly z uranové rudy do aluminium-fosfátů, kde následně došlo k rozpadu a vzniku izotopů Xe. Izotopy xenonu jsou však těkavé a jsou zachycovány v aluminium-fosfátech pouze tehdy, když dojde k ochlazení reaktoru na normální teplotu.

Hydrotermální experimenty ukazují, že krystaly aluminium-fosfátů rostou rychle při relativně nízkých teplotách (270 až 300 ^{o}C)[15]. Poté co dojde k růstu teploty v reaktoru, dojde k migraci radioaktivních produktů štěpení do struktury krystalu, kde následně dojde k radioaktivní přeměně produktů štěpení na Xe, který zůstává uvězněn v rámci krystalické struktury[19]. Xe pak může být uvolněn z aluminium-fosfátů až po zničení krystalické struktury, což vyžaduje vyšší teploty, než byla maximální teplota reaktoru Oklo během provozu (teplota tání krystalu).

7.1.2.3 Zjištění doby fungování přírodního jaderného reaktoru a doby nečinnosti

Pro zjištění doby funkce jaderného reaktoru a doby kdy reaktor nepracoval, je nutné vyjít z několika přiblížení. Pro výpočet vývoje zastoupení meziproduktů pro vznik izotopů xenonu budou uvažovány pouze takové meziprodukty štěpení, které mají štěpný výtěžek větší než 0.1%. Další podmínka je, že třemi hlavními štěpnými jádry v Oklo reaktoru jsou $^{235}U_{th}$, $^{239}Pu_{th}$ (štěpení tepelnými neutrony) a $^{238}U_{fn}$ (štěpení rychlými neutrony), které mají relativní příspěvky 75%, 7% a 18%. Tato čísla byla určena pomocí izotopového složení Ru, Pd, Nd, Sm, Gd[18]. Na základě výše zmíněných předpokladů, byly vypočítány a vyneseny v podobě poměrů izotopů xenonu kumulativní výtěžky Sb, Te, a I v každém izobarickém řetězci (Obr. 13)[11].



Obr. 13: *Vypočtený vývoj izotopového složení stabilních izotopů Xe. Silné černé čáry odpovídají aktivnímu období reaktoru, s uvedením doby trvání tohoto období. Přerušované čáry znázorňují samovolný rozpad štěpných produktů jednotlivých izobarických rozpadových řad na stabilní izotopy Xe. Šedé vodorovné čáry ukazují požadované poměry izotopů dle naměřených výsledků z obr. 9 (sklon plných čar na obr. 11). Světle šedá vodorovná čára představuje upravený poměr* $^{129}I/^{134}I$ *za předpokladu, že dojde k úniku 37%* ^{129}I.[11]

Je zřejmé, že vypočtené izotopové poměry se mění s časem a konečné složení Xe bude záviset na době existence posledního reaktorového pulsu (d) a na době, kdy se aluminium-fosfáty ochladí natolik, až dojde k zadržení Xe ve struktuře aluminium-fosfátů (p). Pro všechny tři grafy (Obr. 13) však nebylo nalezeno řešení pro výpočet (d) a (p)[11]. Nicméně, byly uvažovány pouze dva poměry 131/134 a 132/134, pro něž bylo nalezeno jediné řešení: d = 30 m a p = 2.5 h (Obr. 13). To však není řešením pro poměr 129/134. Je tedy nutné hodnotu poměru $^{129}Xe/^{134}Xe$ upravit z hodnoty 0.95 až na 1.5 (světle šedá linka na Obr. 13). Tuto úpravu lze provést za předpokladu, že 37% ^{129}I uniklo z aluminium-fosfátů po

úplném ukončení řetězové reakce v přírodním reaktoru před 2 miliardami let, což je rozumné z hlediska toho, že ^{129}I má dlouhý poločas rozpadu $1.7.10^7$ let, je chemicky aktivní, tvoří s vodou rozpustné sloučeniny, a proto má šanci částečně uniknout z aluminium-fosfátů ve vodném prostředí reaktoru. Je zajímavé, že – dle těchto úvah - 30 min byl přírodní jaderný reaktor v činnosti a 2.5 h byl neaktivní, což připomíná typický gejzírový provoz. Takže, přibližně 0.5 h po začátku řetězové reakce, byla voda přeměněna v páru a snížil se tak tok tepelných neutronů a došlo k tvorbě podkritického systému. Následně trvalo nejméně 2.5 h, než se reaktor ochladil, kdy zároveň došlo k zadržení izotopů xenonu v aluminium-fosfátech. Poté se voda vrátila do zóny reaktoru, zvýšil se tok tepelných neutronů, což umožnilo vznik opětovné štěpné řetězcové reakce[11].

7.1.3 Alkalické kovy a alkalické zeminy

Všechna získaná data poukazují na to, že takřka veškeré rubidium, cesium, stroncium a barium bylo vylouženo ven z reaktorových zón[20]. Podle Brookinse [21] ne více než 5% z těchto prvků zůstalo v reaktorech. Také poznamenal, že poměr $^{135}Ba/^{137}Ba$ je v analyzovaných vzorcích vyšší než v přírodním bariu. Tyto izotopy vznikají podle následujících rovnic:

$$^{135}Cs \xrightarrow{2\cdot 10^6\, let} {}^{135}Ba$$

$$^{137}Cs \xrightarrow{30{,}17 let} {}^{137}Ba$$

Tato fakta tedy mohou vést k závěrům, že přírodní reaktory v oblasti Oklo byly schopné zadržovat cesium přibližně po 25 – 30 milionů let.

7.1.4 Ruthenium a technecium

Rozdíly nalezené v izotopovém složení štěpných produktů ruthenia jsou způsobeny různým zastoupením ^{99}Ru, jež vzniká radioaktivním rozpadem z ^{99}Tc s poločasem rozpadu $2.13.10^6$ let. Ochuzení až o 30% nebo obohacení až o 15% bylo nalezeno v různých vzorcích. Tyto rozdíly mohly být způsobeny jednak preferenční separací technecia od ruthenia nebo selektivním přírůstkem ruthenia v jednom místě během života 99 technecia. Navzdory těmto izotopovým anomáliím bylo zjištěno, že ruthenium je dokonce více odolné vůči transportu v uranové rudě než neodym[12].

7.1.5 Ostatní štěpné produkty

Na rozdíl od paladia, stříbra či teluru, radionuklidy kadmia téměř zcela vymizely z reaktorových zón (pouhých 10% kadmia přítomného v analyzovaných vzorcích pochází ze štěpných produktů[22]). Chemická analýza radionuklidů zirkonia ukázala, že se zirkonium zkoncentrovává v okolních jílovitých horninách. Také štěpné produkty molybdenu nebyly nalezeny ve vzorcích z reaktorů v očekávaných množstvích. Naštěstí molybden nemá žádné štěpné produkty s dlouhým poločasem rozpadu. (Na druhou stranu Maeck[23] uvedl, že aktivací přírodního molybdenu přítomného v povlakových materiálech paliva vzniká ^{93}Mo s poločasem rozpadu 3000 let).

7.1.6 Transuranové prvky

V přírodních reaktorech bylo vytvořeno několik tun ^{239}Pu a ze získaných dat mohlo být vypočítáno, že na každých 100 vzniklých jader 239 plutonia se 93 mechanizmem alfa rozpadu přeměnilo na 235 uran, 5 jader podlehlo štěpení a 3 z nich bylo pohlcením neutronu přeměněno na 240 plutonium. Plutonium bylo obecně velmi stabilní v reaktorových zónách a nebyly nalezeny žádné důkazy o jeho migraci[12].

8 Ostatní přírodní štěpné reaktory

Podmínky pro existenci dalších přírodních štěpných reaktorů, které byly objeveny v oblasti Oklo, nejsou zřejmě ojedinělé. Další reaktory byly objeveny několik kilometrů od této oblasti. Rozdíly v izotopovém složení uranu byly také objeveny v uranovém dolu ve státě Colorado v USA, kde množství uranu 235 vykazuje mírně nižší úroveň, než je přirozené izotopové složení tohoto izotopu[8]. Tyto další možné přírodní reaktory jsou uvedeny v tabulce 3, a naznačují tak, že do budoucna by mohlo dojít k objevu dalších podobných míst.

Tabulka 3: Izotopické složení přírodního uranu v různých částech Země [8]

Ore source and location	U^{238}/U^{235} ratio
Uraninite, Joachimsthal	137.8+/-0.28
Uraninite, Great Bear Lake, Canada	137.8+/-0.25
Mineral Joe mine, Colorado	137.1+/-0.35

9 Literatura

1) Kurtin University of Technology, Oklo Fossil reactors - http://oklo.curtin.edu.au/
2) A. P. Meshik: *The Workings of an Ancient Nuclear Reactor*, Scientific American, 83-91, 2005.
3) M. Dufková: *Surovina nebo odpad*, Energie pro každého, REPRO-MEDIA Praha spol. s r.o., 4, 1995.
4) Nuclear Generation of Planetary Magnetic Fields and More - http://nuclearplanet.com/index.html, 4.11.2009
5) P. K. Kuroda: *On the nuclear physical stability ofthe uranium minerals*, J. Chem. Phys. 25, 781, 1956.
6) E. Roth: *The discovery and study of the nuclear reactor in Oklo*, Journal of Radioanalytical Chemistry, 37, 65-78,1977.
7) J. Lovelock: *The Ages of Gaia*, W. W. Norton, 1995.
8) M. Ragheb: *Nuclear, Plasma and Radiation Science - Inventing the Future*, 2009 https://netfiles.uiuc.edu/mragheb/www, 4.11.2009
9) G. A. Cowan: *A Natural Fission Reactor*, Scientific American, 36 – 47, 1976.
10) P. Cejnar: *Oklo – jaderné reaktory z pravěku*, 2005, http://www-ucjf.troja.mff.cuni.cz/cejnar/, 4.11.2009
11) A.P. Meshik, C.M. Hohenberg, O.V. Pravdivtseva: *Record of Cycling Operation of the Natural Nuclear Reator in the Oklo/Okelobondo Area in Gabon*, Physical review letters, 18, 93, 2004.
12) R. Hagemann, E. Roth: *Relevance of the Studies of the OKLO Natural Nuclear Reactors to the Storage of Radioactive Wastes*, Radiochimica Acta, 25, 241-247, 1978.
13) R. Naudet: *The Oklo Phenomenon* IAEA-SM-204/41 589, 1975.
14) P. Klouda: *Moderní analytické metody*, nakladatelství Pavel Klouda, Ostrava, 2003.
15) I.Němcová, P.Engst, I.Jelínek, J.Sejbal, P.Rychlovský: *Spektrometrické analytické metody II*, Karolinum, Praha, 1998.
16) Yu. Dymkov, Ph. Hollinger, M. Pagel, A. Gorshkov, and A. Artykhina: *Characterization of a La-Ce-Sr-Ca aluminous hydroxy phosphate in nuclear zone 13 in the Oklo uranium deposit (Gabon)* Miner. Depos. 32, 6, 617-620, 1997.

17) Hidaka and Ph. Hollinger: *Geochemical and neutronic characteristics of the natural fossil fission reactors at Oklo and Bangombe, Gabon,* Geochim. Cosmochim. Acta , 62, 1, 89-108, 1998.
18) YURI A. SHUKOLYUKOV, ELMAR K. JESSBERGER, ALEXANDER P. MESHIK, DANC Vu MINH, JIMMY L. JORDAN: *Chemically fractionated fission-xenon in meteorites and on the Earth,* Geochimica et Cosmochimica Acta., 58, 14, 3075-3092, 1994.
19) V. Yakubovich and O. K. Mel'nikov, Crystallography, 14, 663, 1996.
20) J.R. Lancelot, A. Vitrac, C.J. Allegre: Earth Planet. Sc. Letters, 25, 189, 1975
21) D.J. Brookins, M.J. Lee, B. Mukhopadhyay, S.L. Bolivar: Proc. IAEA Symp. On the OKLO phenomenon (Libreville, June 1975), Vienna 1975, p.401
22) J.R. De Laeter, K.J.R. Rosman: Proc. IAEA Symp. On the OKLO phenomenon (Libreville, June 1975), Vienna 1975, p.425
23) W.J. Maeck, F.W. Spraktes, R.L. Tromp, J.H. Keller: Proc. IAEA Symp. On the OKLO phenomenon (Libreville, June 1975), Vienna 1975, p.319