

原子力エネルギー工学特論 講義資料

Oklo reactor

ここに引用されている資料は著作権法の保護を受けているため、この資料の複写や配布は禁止します。

Why nuclear plant is dangerous?

- It use the reaction, which even god did not use or did not occur in the nature (space).
- Its radioactive waste can not be stored safety.

But is it true? Have you heard about Oklo?

参考文献 Reference

17億年前の原子炉―核宇宙化学の最前線
(ブルーバックス) – 1988/2

黒田 和夫 (著)
(保健物理28、343(1993))

天然原子炉 (UPアース・サイエンス)
– 1985/8

藤井 勲 (著)

Possibility of natural nuclear reactor

- Nuclear fission reaction(核分裂の発見): Otto Hahn and F.Strassmann, Naturwissenschaften 27, 11(1939)
- Natural fission chain reaction(天然核分裂連鎖反応): S.Fleugge, Naturwissenschaften 27, 401(1939)
- Nuclear Physical Stability of the Uranium Minerals(ウラン鉱石の臨界計算): P.K.Kuroda, J. Chem. Phys. 25, 781(1956)

過去のウラン鉱石

Table I shows the calculated values of p , f , η , and k_{∞} of a sample of Johanngeorgenstadt pitchblende.² Similar calculations show that most of the uranium minerals were nuclear physically “stable” during the past 2800 million years, provided the water content of the minerals had remained unchanged during the geological past. It is worthy of note, however, that a slight increase of the water to

TABLE I. p , f , η , and k_{∞} of a Johanngeorgenstadt pitchblende. Chemical composition of the mineral: 1 mole UO_2 ; $\frac{1}{2}$ mole H_2O ; 0.0 n moles PbO , CaO , MgO , As_2O_5 , SiO_2 ; 0.00 n moles Al_2O_3 , Fe_2O_3 , CuO , MnO , Bi_2O_3 , V_2O_5 , MoO_3 , WO_3 , alkalis, SO_3 and P_2O_5 .

Geological time (million years)	0 (present)	700	1000	1400	2100	2800
U^{-235} enrichment (percent)	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
k_{∞}	0.58	0.67	0.69	0.72	0.71	0.67

Natural reactor天然原子炉

TABLE II. The water-uranium ratio and the values of p , f , η , and k_{∞} (Johanngorgenstadt pitchblende, 2100 million years ago).

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
k_{∞}	0.55	0.88	1.15	1.34	1.40	1.42	1.43	1.33

Let us imagine that the crystallization of the Johanngorgenstadt pitchblende took place 2100 million years ago. The calculated values of p , f , η , and k_{∞} are shown in Table II. Table II shows that the assemblages of the Johanngorgenstadt pitchblende plus water were nuclear physically “unstable” 2100 million years ago, and the critical uranium chain reactions could have taken place, if the size of the assemblage was greater than, say, a thickness of a few feet. The effect of such an event could have been a sudden elevation of the temperature, followed by a complete destruction of the critical assemblage.

Before finding Oklo phenomena

- ^{235}U ratio is constant for all sample within 0.001% accuracy. (No fossil of natural reactor)
- USA people believe fission chain reaction possible, only with high technology of their country.
- They don't give up their Irrational assumption of unchanged composition of U and water.
- Prof. Kroda (USA citizen) fail to get budget to search his prediction.

Is Fermi a innovator, or a imitator?

C'est en 1942 que l'homme a réussi, pour la première fois, à faire fonctionner un réacteur nucléaire. Ce fut un événement qui ouvrit l'ère de l'atom. Mais Enrico Fermi et les savants américains, qui l'aidèrent à réussir cet exploit, ignoraient qu'ils ne faisaient, somme toute, que reproduire une expérience qui s'étaient, d'elle-même, déroulée au creux d'un bassin sédimentaire du Gabon, il y a un milliard sept cent millions d'années. — LE MONDE du 27 septembre 1972.

NICOLAS VICHNEY.

人類が最初に原子炉の運転に成功したのは 1942 年のことである。これは、原子力時代の幕開けを告げる大事件であった。しかし、エンリコ・フェルミと、彼を助けてこの開発を成功に導いたアメリカの学者達は、要するに、17 億年前のガボンの鉱床に展開されていた 1 つの実験を再現したに過ぎないことを、知らずにいたのである。——1972 年 9 月 27 日、ル・モンド紙。

ニコラ・ヴィシュネ

Where is Oklo?

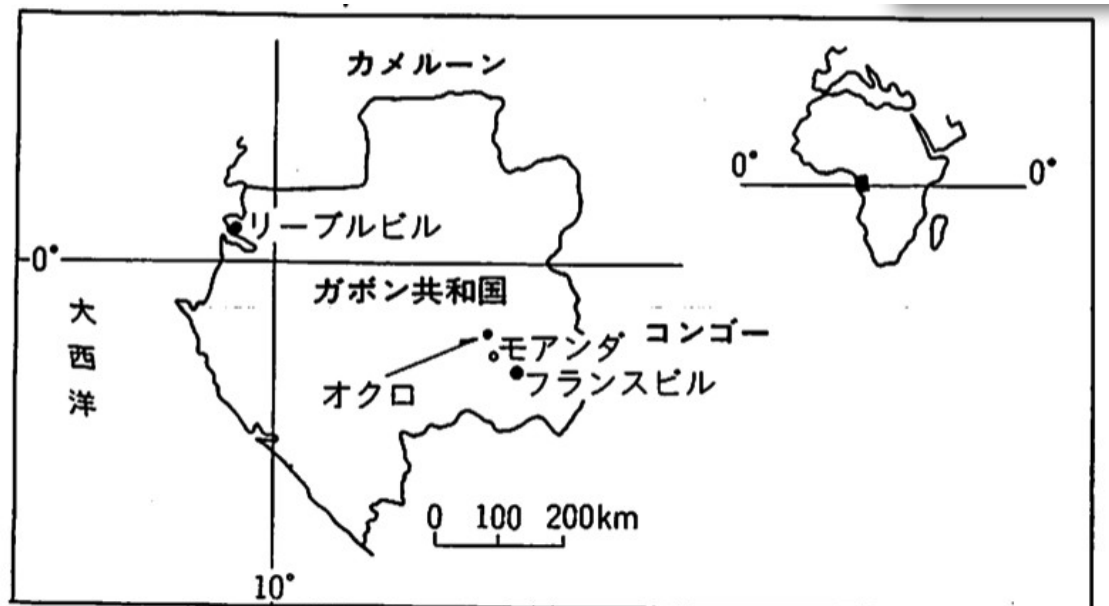


図1 オクロ鉱床の位置とガボン共和国。ガボン共和国は、アフリカ大陸の赤道直下にある、緑に恵まれた美しい国である。天然原子炉の発見されたオクロ鉱床は、この国の首都リーブルビルから直線距離にして500 kmのところにある。リーブルビルから週2回ジェット機がモアンダに飛んでいる。オクロはモアンダの北方約25 kmのところにある。

Abnormal ^{235}U ratio of Okle ore

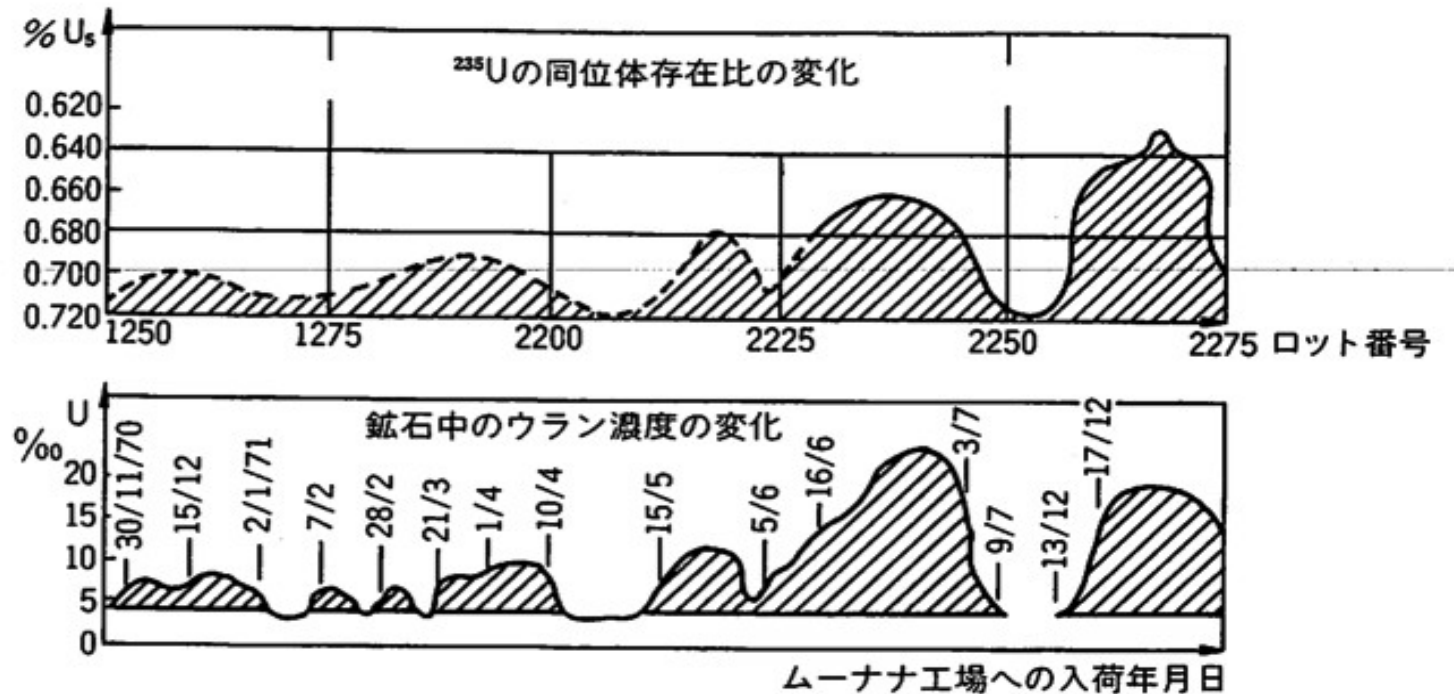


図9 鉱石中のウラン濃度とそれに対応するウラン中の ^{235}U の同位体存在比.
1970年11月下旬より翌1971年12月下旬までのムーナナ工場における
鉱石中のウラン濃度およびそのウラン中の ^{235}U の濃度の変化. この2つの量
の間には, はっきりした相関のあることが判る. (Naudet, 1974¹⁵⁾; Boyer,
1975¹⁸⁾)

Rich U ore has less ^{235}U , so this ore is not suitable for reactor fuel.

Oklo reactor ore deposit

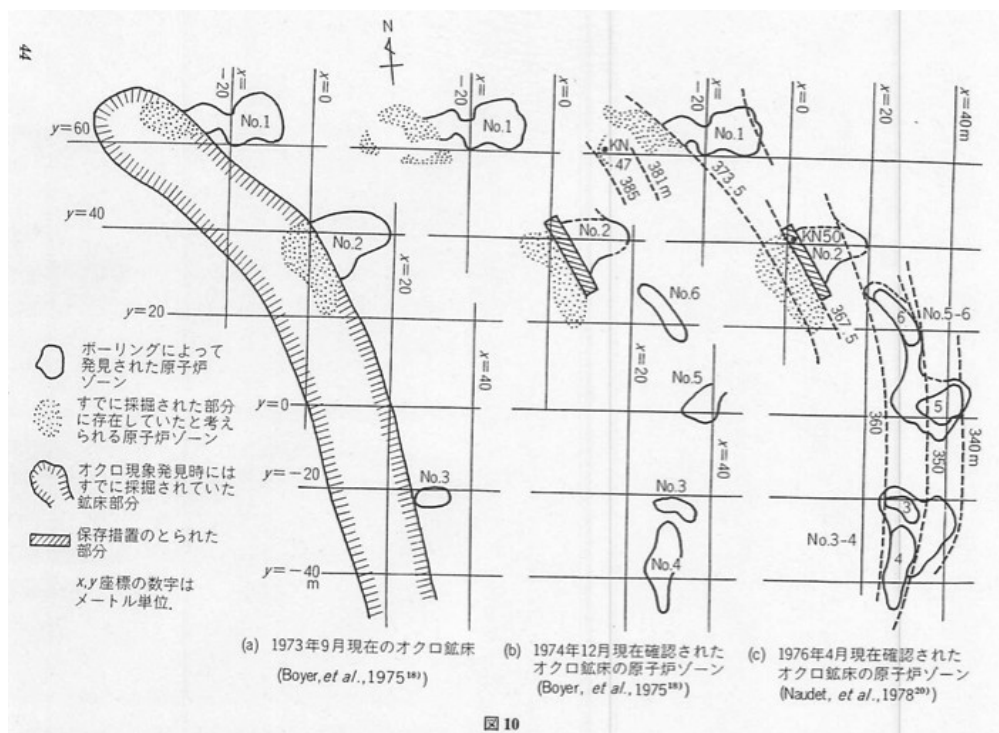


図 10

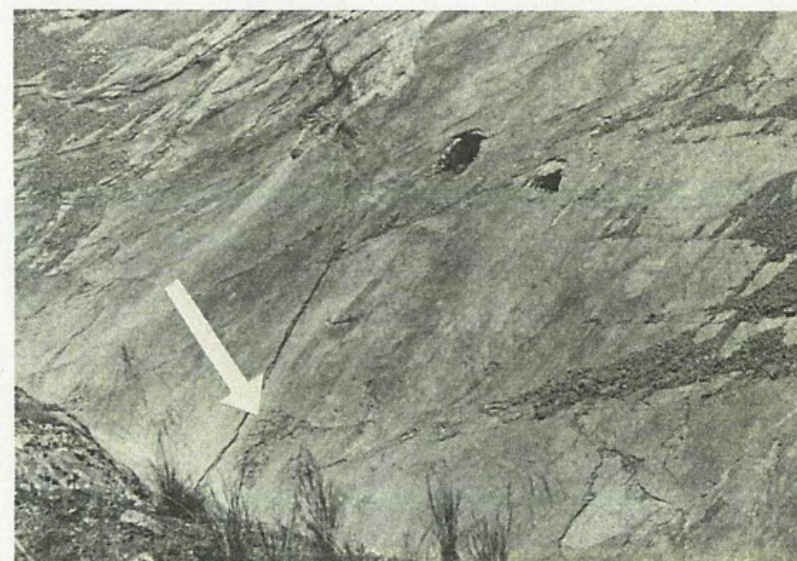


図 22 中央の下方あたりに原子炉ゾーン No. 7, No. 8 と No. 9 があった。上方にある 2 つの穴は坑道の末端である。中央下方左寄りの部分に砂岩表面が浸食された跡が見える (矢印)。この部分が原子炉ゾーンの跡である。



図 21 図 22 の原子炉ゾーン跡の部分近づいて撮影したもの。

How old Oklo reactor was?

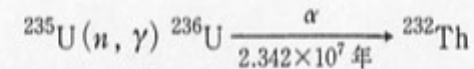
天然原子炉の機能していた年代 t は次式によって計算することができる。

$$t = \frac{1}{\lambda_5} \cdot \ln \left[\frac{N_f}{N_8} (1 - \alpha - \beta) \left(\frac{N_8}{N_5} \right)_{\text{nat}} \frac{(1-c) \sigma_5}{\sigma_{f5}} \cdot \frac{1}{1 - \exp[(1-c) \sigma_5 \cdot \tau]} \right] \dots \dots \dots (1)$$

ここに、 $\frac{N_f}{N_8}$ は、現在の ^{238}U の原子数と全核分裂数の比、 c は再生係数(附録1参照)、 λ_5 は ^{235}U の壊変定数、 α 、 β は ^{238}U 、 ^{239}Pu の全核分裂数への寄与分、 σ_5 、 σ_{f5} は ^{235}U の全吸収断面積および核分裂面積、 τ は中性子フルエンスを表わしている。この式に関する詳細は附録2を参照されたい。

(1)式によって t を求める場合、原子炉ゾーンの中に、核分裂生成物の大部分が失われることなく、現に存在していることが、前提条件となる。再生係数 c と、中性子フルエンス τ は、附録1に述べてあるように、 ^{235}U の劣化と ^{143}Nd の中性子捕獲を実測することによって求めることができる。 $\frac{N_f}{N_8}$ は、核分裂生成物中の希土類元素のネオジム、あるいはサマリウム等の同位体存在比を測定して求められる。 α および β については、附録2に述べた方法で求めることができる。

(1)式とは別に、次の核反応および壊変によって ^{232}Th が生成されるので、これを利用して原子炉の年齢を計算することができる。

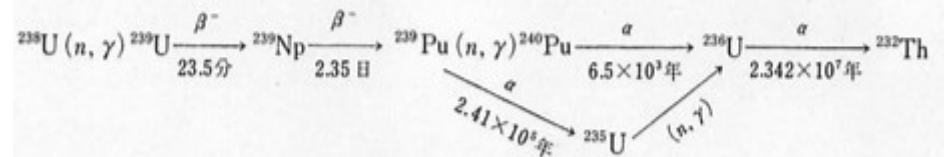


$$T = \frac{1}{\lambda_5 - \lambda_{232}} \ln \left\{ \frac{N_{232} - \Delta N_{232}}{N_{238}} \cdot \frac{1}{\frac{N_5^*}{N_8} (e^{-C} - e^{-B}) \frac{A}{B-C}} \right\} \dots (2)$$

ここに

$$A = \sigma_{c5} \cdot \tau, \quad B = \sigma_5(1-c) \tau, \quad C = \lambda_6 \cdot t + \sigma_6 \cdot \tau, \\ \lambda_{232} = 4.99 \times 10^{-11} (\text{年})^{-1}, \quad t = 5 \times 10^5 \text{ 年},$$

ΔN_{232} は、



によって生成される ^{232}Th の追加分を補正するための項である。(2)式については引用文献^{25,57)}を参照してほしい。

Reactor physics is correct, or not?

表 11 核反応生成物の測定から計算された核反応の年代 (Devillers, *et al.*, 1975²⁵⁾)

試料** (原子炉ゾーン No.2)	測定対象元素	N_{75}/N_8 (%)	N_{232}/N_{238} (%)	年 齢 (×10 億年)
KN 50-3548	Nd	2.96	5.55	1.99
	Sm	3.03		2.02
	Ru	2.78		1.93*
	Th			2.03
KN 50-323	Nd	2.63		2.04
	Sm	2.59		2.02
	Ru	2.74		2.08
SC 36-1408-4	Nd	1.82		1.91
	Sm	1.98		1.99
SC 36-1410-3	Nd	2.43	4.29	1.97
	Sm	2.32		1.92
	Th			1.92
SC 36-1413-3	Nd	3.07	6.03	2.01
	Sm	3.20		2.06
	Ru	2.01		1.58*
	Th			2.11
SC 36-1418	Nd	2.17	4.50	2.00
	Sm	2.08		1.95
	Th			2.03
SC 36-1423	Th		4.94	2.28*
平均値				2.00

* これらの値は平均値の計算では除かれている。

** 試料のサンプリング位置については、6.2 節の図 26 および図 29 参照のこと。

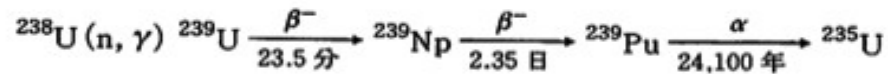
These estimate value is almost same, and also agree well with geological estimate.

表 29 オクロ鉱床の原子炉ゾーン No. 2 における超ウラン元素と核分裂生成物の移動 (Bryant, *et al.*, 1976⁴¹⁾)

元素	“ふるまい”	参考文献
クリプトン (Kr)	痕跡程度残留, 0.01%~1%	40), 49), 50)
ルビジウム (Rb)	痕跡程度残留, 1% 以下	50), 51), 52), 53)
ストロンチウム (Sr)	痕跡程度残留, 10% 以下	50), 52), 53)
⁹⁰ Sr (現在は ⁹⁰ Zr)	少量が移動, 大部分がその場で壊変	40), 52)
ジルコニウム (Zr)	大部分, その場で再配分	38), 40), 52)
ニオブ (Nb)	大部分が残留	40), 50)
モリブデン (Mo)	90% 程度散逸	40), 50), 52)
⁹⁹ Tc (現在は ⁹⁹ Ru)	Tc として移動, 再配分	40), 52)
ルテニウム (Ru)	大部分が残留, 再配分	40), 45), 50), 52)
パラジウム (Pd), 銀 (Ag)	大部分が残留	40), 50)
カドミウム (Cd)	90% 程度が散逸	50), 54)
テルル (Te)	大部分が残留	40), 50)
ヨウ素 (I)	大部分が散逸	40), 50)
キセノン (Xe)	痕跡程度残留, 0.01%~1%	40), 50), 52)
セシウム (Cs)	痕跡程度 Ba として残留, 大部分は散逸	40), 50), 53)
バリウム (Ba)	大部分が散逸	40), 50), 52)
希土類元素 (Ce, Nd, Sm, Gd)	非常にわずかの部分のみ移動	40), 45), 50), 52), 55), 56)
鉛 (Pb)	再配分, 約 2/3 が炉心から失われた	25), 38), 50), 57)
トリウム (²³⁶ U, ²⁴⁰ Pu)	大部分が残留	40), 55)
ビスマス (²³⁷ Np, ²⁴¹ Pu)	大部分が残留	40), 55)
ウラン-235 (²³⁹ Pu)	²³⁹ Pu は ²³⁸ U から分離されていない	38), 50)
ウラン	おそらく大きな移動はなかった, 一部が再配分	40), 50), 55), 56)

Power of Oklo reactors

20 億年前の天然原子炉の中では、核分裂によって ^{235}U が消費されると同時に



の反応によって ^{239}Pu が生成された。この ^{239}Pu は 24,100 年の半減期で、 α 壊変して ^{235}U になるが、現在、この時に生成された ^{239}Pu は大部分が ^{235}U になっている。すなわち、 ^{235}U は当時、核分裂連鎖反応によって消費されると共に、その半減期 (24,100 年) よりもずっと長い眼で眺めれば、生産されてもいたのである。上式において、1 個の ^{235}U 原子が核分裂によって失われたときに生成される ^{235}U の平均個数を再生係数 c というが、炉物理的考察によれば、この天然原子炉においては $c \cong 0.45$ とされている (附録 1 参照)。そこで、当時核分裂で失われた ^{235}U として先に計算された値は、 $1/(1-c)$ 倍されなければならない。このようにして、20 億年前に核分裂連鎖反応によって失われた ^{235}U の量は、現在の ^{235}U の不足量の約 10~13 倍と考えられるのである。つまり、その量は少なく見積っても約 6 トンということになる。

一方、

1 g の ^{235}U の核分裂によって解放されるエネルギー $\cong 1 \text{ MW} \cdot \text{day}$

であるから、6 トンの ^{235}U に対応するエネルギーは

6,000,000 $\text{MW} \cdot \text{day}$ あるいは 16,500 $\text{MW} \cdot \text{year}$

となる。つまり、この天然原子炉群 (原子炉ゾーン No. 1 から No. 6 まで) の放出したエネルギーは、現在の電気出力 100 万 kW 級の原

Δt は、天然原子炉の観察の結果、 ^{239}Pu の半減期 (24,100 年) に比べて長いと考えられるので、当然核分裂に ^{239}Pu も寄与していると思われる。これについて考慮すると、その寄与分は、

$$\beta = \frac{N_g \cdot \sigma_g}{N_s \cdot \sigma_{fs}} (1 - \alpha - \beta) \quad \dots\dots\dots (3)$$

であるから、(2)式と(3)式から

$$\Delta t = \frac{\sigma_g \cdot \sigma_s}{\sigma_{fs}} \cdot \frac{1 - \alpha - \beta}{\beta} \cdot \frac{c \cdot \tau}{\lambda_g} \quad \dots\dots\dots (4)$$

表 13 原子炉ゾーン No. 2 の核反応の期間 (Hagemann, et al., 1975²⁸⁾)

試 料	$r(\text{n} \cdot \text{cm}^{-2})$	c	γ	θ	β	Δt (年)
	中性子フルエンス	再生係数	スペクトル指数			
KN 50-3548	1.23×10^{21}	0.47	0.15	1.5	0.04	640,000
KN 50-323	1.02×10^{21}	0.42	0.15	1.5	0.03	630,000
SC 36-1413-3	1.32×10^{21}	0.37	0.15	1.5	0.04	540,000
SC 36-1418	0.81×10^{21}	0.58	0.25	1.65	0.04	580,000

What we learn from Oklo reactors?

オクロの天然原子炉の研究がすすむにつれて、この原子炉の炉心（ウラン、超ウラン元素、および核分裂生成物から成る）は、約 20 億年間にわたって自然環境下に放置されていたにもかかわらず、予想に反して、一部の例外をのぞき、ほとんどそれらは散逸していないことが判ったのである。この事実は、廃棄物の安全な処理・処分の可能性について、われわれに希望を与えるとともに、この事実の中から処理・処分のための具体的条件を読みとることをも可能にするかもしれない。自然は、われわれのために実に得がたい実験例を残してくれたと言えるだろう。オクロの天然原子炉は、われわれの知識欲を大いに満足させるものであり、はるかなる過去をわれわれの頭の中で再現してみることは、まことに興味の尽きぬものがある。

Is nuclear plant really dangerous?

- It use the reaction, which even god did not use or did not occur in the nature (space).
 - Natural nuclear fission reaction at Okle was kept for millions years on our planet.
- Its radioactive waste can not be stored safety.
 - Its fission products did not move for billions years.

There is some smart way to operate nuclear plant safety.