

К истории открытия и изучения феномена Окло

Рассмотрена краткая история открытия и изучения уранового месторождения Окло, представляющего собой природный ядерный реактор, что было установлено французскими специалистами в 1972 г. Открытие сделано при изучении изотопного соотношения $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ в руде. Ранее такие исследования проводились во Всесоюзном научно-исследовательском институте минерального сырья (ВИМС). К сожалению, заявка на открытие отечественных ученых была отклонена.

А.Е.Бахур, И.Г.Печенкин

(Всероссийский научно-исследовательский институт минерального сырья им. Н.М. Федоровского (ФГБУ «ВИМС»), г. Москва)

До середины 1950-х гг. постоянство изотопного состава естественного урана (^{235}U , ^{238}U) в горных породах и рудах Земли и в веществе метеоритов было общепризнанным и считалось фундаментальным научным фактом. Значение соотношения изотопов $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ оценивалось как константа, равная $0,7257 (\pm 0,1\% \text{ отн.})$. Этот факт использовался в практической деятельности – в абсолютной геохронологии геологических этапов, процессов рудообразования, при оценке запасов ^{235}U в урановых месторождениях.

Однако гипотетические возможности изменения изотопного состава естественного урана в природных объектах, в т. ч. в пределах урановых месторождений, обсуждались с 1940-х до начала 1970-х гг. в работах многих зарубежных и советских ученых (Lounsbury M., Namer A.N., Orr J.B., Kuroda P.K., Хоутерманс Ф.Г., Петржак Л.А., Горшков Г.В., Сурков Ю.А., Шуколюков Ю.А., Чердынцев В.В., Тугаринов А.И., Чалов П.И., Малышев В.И. и др.). Теоретически и практически рассматривалась возможность существования

Ключевые слова:

Окло, природный ядерный реактор, изотопы урана, В.И. Малышев, ВИМС.

в природе естественных ядерных реакторов и явления существенного изменения отношения $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ в ту или иную сторону.

В частности, Пол Кадзуо Курода [12] – выдающийся японо-американский ученый, химик-ядерщик – использовал теорию реактора Э. Ферми, чтобы в 1954–1957 гг. предположить возможность формирования естественных атомных реакторов при подходящих условиях в древних месторождениях урана, где отношение ^{235}U к ^{238}U было значительно выше его современного значения. Кроме того, он продемонстрировал присутствие ^{244}Pu в ранней Солнечной системе, проанализировав содержание ксенона, который, вероятно, был образован при делении ядер ^{244}Pu – одного из нескольких исчезнувших радионуклидов, присутствовавших в системе «на заре» ее формирования. Период полураспада в 80 млн лет обеспечил циркуляцию ^{244}Pu в Солнечной системе до его полного исчезновения [11-13].

Месторождение урана Окло на сегодняшний день является единственным известным на Земле естественным ядерным реактором, в котором цепная реакция деления ^{235}U началась около 1,8 млрд лет назад.

В настоящее время подобные природные реакции невозможны из-за низкого содержания ^{235}U (для природного урана – 0,725%) вследствие его естественного радиоактивного распада (период полураспада $T_{1/2}$ ^{235}U около 700 млн лет). Природные ядерные реакторы могли существовать один и более млрд лет назад (содержание ^{235}U в естественной смеси изотопов урана достигало 3,7%, 8,4% и 19,2% соответственно для периодов 2, 3 и 4 млрд лет назад).

Фактически урановые руды в те времена представляли собой ядерное топливо разной степени обогащения, пригодное для самоподдерживающейся цепной реакции деления ^{235}U в благоприятных условиях (наличие воды в качестве замедлителя нейтронов). Тепло, выделяющееся в результате реакции деления,

вызывало кипение и испарение воды, что замедляло или останавливало цепную реакцию. После того как порода охлаждалась и распадалась короткоживущие продукты распада (нейтронные яды), вода конденсировалась, и реакция возобновлялась. Этот циклический процесс продолжался несколько сотен тысяч лет (~150 тыс. в сумме).

Открытие этого уникального природного явления произошло случайно: в мае 1972 г. на урановой обогатительной фабрике в Пьерлате (Франция) во время рутинного масс-спектрометрического анализа гексафторида урана (UF_6) из Окло было обнаружено отклонение в изотопном составе урана: содержание ^{235}U составило 0,717% вместо обычных 0,725% (–1,1% от стандартного содержания). Это небольшое расхождение требовало объяснения, так как все ядерные объекты с целью недопущения незаконного использования расщепляющихся материалов в военных целях жестко контролировались.

Французским Комиссариатом атомной энергетики (СЕА) было начато расследование, и последующая серия измерений обнаружила в урановых рудах нескольких шахт Окло значительные отклонения изотопного отношения $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ – до 0,440% вместо нормальных 0,725%. Также были обнаружены аномалии в распределении пяти изотопов ксенона Xe, неодима Nd (143, 144, 145) и рутения Ru (99, 101) – продуктов распада осколков ядерного деления. Например, осколочный продукт деления ^{235}U – ^{99}Tc ($T_{1/2} = 212$ тыс. лет) при бета-распаде превращается в стабильный изотоп рутения ^{99}Ru . В результате в пробах из месторождения Окло относительное содержание ^{99}Ru в смеси изотопов рутения достигало 27–30% вместо 12,7%, характерных для естественных природных объектов.

25 сентября 1972 г. СЕА объявил об открытии естественной самоподдерживающейся реакции ядерного деления, происходившей около 1,8 млрд лет назад на 16 участках

уранового месторождения Окло в Габонской Республике [10,13].

А чуть ранее, в 1970 г. Первым Главным Управлением Министерства геологии СССР по инициативе Владимира Ильича Малышева, заведующего лабораторией изотопных методов Всесоюзного научно-исследовательского института им. Н.М. Федоровского (ВИМС), была утверждена тема НИР № 37-70 (1970–1972 гг.) «Разработка и совершенствование методов определения изотопов радиоактивных элементов и свинца и поиск новых методов определения изотопного состава других элементов (**продуктов спонтанного деления и природных нейтронных реакций**) для решения вопросов геологии урана», в рамках которой были продолжены начатые ранее (1969 г.) исследования, связанные с поиском природных изотопных сдвигов между ^{235}U и ^{238}U , а также продуктов спонтанного деления и природных нейтронных реакций применительно к созданию новых методов выявления крупных и уникальных месторождений урана на территории СССР.

Предшествующие геологические и изотопно-геохимические исследования косвенно свидетельствовали о возможности физических процессов, протекающих в естественных условиях и приводящих к изменению соотношения между ^{235}U и ^{238}U в природном уране.

Например, тесные ассоциации в богатых урановых рудах таких элементов, как иттрий, цирконий, молибден, ниобий, барий, церий, неодим, самарий, ксенон, необъяснимые только за счет изоморфизма и продуктов спонтанного деления ^{238}U , могли быть следствием активных ядерных процессов деления тяжелых радиоактивных элементов за время существования месторождений.

Не всегда находили объяснение и факты расхождения абсолютных возрастов минералов, определенных по изотопным соотношениям $^{238}\text{U}/^{206}\text{Pb}$ и $^{235}\text{U}/^{207}\text{Pb}$.

Кроме того, в 1954 г. В.В. Чердынцевым и П.И. Чаловым было обнаружено явление фракционирования изотопов урана ^{234}U и ^{238}U в определенных природных обстановках при переходе из твердой фазы (горная порода) в жидкую (природные воды) [1,6-8].

Важными объективными фактами являлись: наличие урана, в разной степени обогащенного изотопом ^{235}U в начальные этапы формирования древних месторождений (с возрастом от 1–1,5 млрд лет и более), высокий уровень нейтронных потоков в результате (α, n)-реакций, спонтанного и индуцированного деления урана, образование трансуранового ^{239}Pu по реакции $^{238}\text{U}(n, \gamma) \rightarrow ^{239}\text{U} \rightarrow ^{239}\text{Pu}$ с его последующим делением и α -распадом, локальность процессов изменения изотопного, элементного и вещественного состава в пределах рудных тел месторождений, концентрации изотопов элементов-мишеней при (α, n)-реакциях (^9Be , ^{19}F , ^{16}O , ^{23}Na , ^{27}Al , $^{25,26}\text{Mg}$), замедлителей и поглотителей нейтронов (H, B, C, Cd, редкоземельные элементы).

В качестве возможных способов определения отношения $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ были апробированы разработанные в ВИМС специализированные методики радиометрического анализа по α - γ -совпадениям с временной селекцией излучений, гамма-спектрометрического нейтронно-активационного и масс-спектрометрического твердофазного анализа [3]. Точность измерений составила: от 0,2 до 1,5 % (среднее 1,0%) для метода α - γ -совпадений; от 0,2 до 4 % для метода нейтронной активации; от 0,1 до 0,2 % для масс-спектрометрического твердофазного анализа. Во всех методах для снижения уровня помех проводили радиохимическую подготовку проб с получением препаратов из чистого урана. Наибольшая точность измерений изотопных соотношений $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ масс-спектрометрическим методом с радиохимической подготовкой проб обусловила его дальнейшее использование в ВИМС

для изучения вариаций этого параметра в пробах урановых руд.

Одновременно создается коллекция образцов для исследований. За основу были взяты протерозойские (1,8 млрд лет) урановые руды одного из месторождений Центральной части Украинского кристаллического щита (УКЩ) в пределах зоны глубинных разломов экзоконтакта гранитного массива и мигматизированной толщей гнейсов. Урановое оруденение крутопадающее (55–65°) хорошо прослеживается по глубине от 50 до 1500 м.

Образцы руд были отобраны в 1969–71 гг. с различных глубин месторождения (от 200 до 1300 м) в пределах двух параллельных рудоносных зон альбитизации.

В табл. 1 представлены результаты исследований изотопного состава урана в рудных пробах. На рис. 1 – геологический разрез участка месторождения, точки отбора проб и измеренные значения $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ в графическом отображении. Соотношение $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ во всех пробах близко к равновесному (~1,0 в единицах активности), что свидетельствует об отсутствии существенной миграции изотопов урана в последние 200 млн лет. При этом 11 из 15 исследованных проб также показали постоянное изотопное отношение $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$, в среднем равное $7256 \cdot 10^{-6}$.

Однако в четырех пробах (№№ 73, 88, 97 и 104) были установлены статистически достоверные разнонаправленные отклонения $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ от стандартного значения. В частности, в пробах № 88 и № 73, отобранных в надрудной части на глубине ~400 м от дневной поверхности, был зафиксирован избыток ^{235}U , соотношение $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ составляло $7279 \cdot 10^{-6}$ и $7273 \cdot 10^{-6}$ соответственно.

Объяснить этот эффект можно разными причинами, например, диффузионным разделением изотопов урана при затрудненном проникновении в процессе формирования первичного ореола, или поступлением с глу-

бин избыточных количеств ^{239}Pu , который при распаде превращается в ^{235}U . Возможно также образование ^{239}Pu в рудах самого месторождения по реакции $^{238}\text{U}(n,\gamma) \rightarrow ^{239}\text{U}(\beta) \rightarrow ^{239}\text{Np}(\beta) \rightarrow ^{239}\text{Pu}(\alpha) \rightarrow ^{235}\text{U}$.

В пробах (№№ 97 и 104) в рудном интервале (1100–1200 м) установлен обратный эффект с явно проявленным дефицитом ^{235}U , соотношение $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ составляло $7225 \cdot 10^{-6}$ при стандартном значении $7257 \cdot 10^{-6}$. Его можно было объяснить частичным «выгоранием» ^{235}U за время существования месторождения путем индуцированного деления ^{235}U в богатых ураном рудных телах.

Полученные в 1970–1972 гг. результаты были впервые доложены на Ученом совете ВИМС и опубликованы в мае 1972 г. на Всесоюзном совещании «Радиоактивные элементы в горных породах» (г. Новосибирск) в докладе В.И. Малышева, А.Л. Якубовича и др. «О некоторых методах определения отношения $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ в природных объектах» [3].

В дальнейшем материалы исследований были опубликованы в статье «Результаты проверки гипотезы возможного смещения $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ в природе» [5], в докторской диссертации В.И. Малышева и монографии «Радиоактивные и радиогенные изотопы при поисках месторождений урана» и других работах [2,4,9].

В июне 1974 г. сотрудниками ВИМС В.И. Малышевым, А.Л. Якубовичем, В.Г. Мелковым и др. была подана заявка в Государственный Комитет Совета Министров СССР по делам изобретений и открытий на регистрацию открытия «Явление изотопного разделения урана-235 и урана-238 в естественных условиях». Формула предполагаемого открытия: «Экспериментально установлено ранее неизвестное явление изотопного разделения урана-235 и урана-238 в естественных условиях, заключающееся в том, что в урансодержащих природных образованиях (руды, горные породы) отмечается как относительный

Табл.1. Результаты определения изотопного состава урана в рудах древнего месторождения уран-альбититового типа Центральной части УКЩ.

№ п/п	№ пробы, скважины	Глубина отбора, м	Содержание U, %	Изотопное отношение	
				$^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$, (ед. активности, альфа-спектрометрический метод)	$^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$, (атомное, $\cdot 10^{-6}$, масс-спектрометрический метод)
1	№ 87, скв. 569	214	0,035	0,93±0,05	7258±8 Стандартное
2	№ 77, скв. 556	299	0,003	0,98±0,05	7255±10 Стандартное
3	№ 73, скв. 855	362	0,094	1,03±0,02	7273±3 Аномальное: избыток ^{235}U
4	№ 88, скв. 569	422	0,002	1,04±0,02	7279±5 Аномальное: избыток ^{235}U
5	№ 107, скв. 676	442	0,204	1,07±0,04	7241±25 Стандартное
6	№ 90, скв. 589	543	0,114	1,02±0,02	7252±8 Стандартное
7	№ 70, скв. 834	576	0,380	0,96±0,03	7252±8 Стандартное
8	№ 71, скв. 690	604	0,066	0,98±0,02	7262±10 Стандартное
9	№ 59, скв. 690	807	0,200	0,99±0,02	7252±8 Стандартное
10	№ 63, скв. 737	974	0,048	0,99±0,02	7252±10 Стандартное
11	№ 119, скв. 731	988	4,75	0,90±0,02	7267±35 Стандартное
12	№ 112, скв. 780	1103	8,39	0,99±0,03	7236±25 Стандартное
13	№ 97, скв. 806	1172	0,163	0,98±0,04	7225±5 Аномальное: дефицит ^{235}U
14	№ 104, скв. 772	1204	0,814	0,96±0,03	7225 ± 5 Аномальное: дефицит ^{235}U
15	№ 98, скв. 806	1333	0,397	0,92±0,02	7262±5 Стандартное

недостаток урана-235, так и относительный избыток его».

На заявку были получены экспертные заключения академика АН СССР Г.Н.Флерова (ОИЯИ, Дубна), А.П.Бабичева и Ю.И.Щербака (ИАЭ им. И.В.Курчатова, Москва). Эксперты отмечали большое практическое и теоретическое значение выполненных исследований, однако указывали на недостаточную точность (0, n %) полученных результатов, что не позволяет сделать однозначные выводы об открытии явления изотопного разделения урана в природных условиях. По мнению экспертов, для получения статистической обеспечен-

ности результатов точность измерений должна быть не хуже 0,0n %, достижение которой возможно при измерениях соотношения $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ не в твердой, а в газовой фазе (UF_6).

На тот момент технико-технологическая база ВИМС (в частности, масс-спектрометр МИ1306) не позволила реализовать этот вариант анализа изотопного состава урана. Аргументы авторов о достаточности полученной точности измерений (0, n %) для доказательства существования природных эффектов изотопных сдвигов урана не смогли убедить экспертов, и заявка была отклонена.

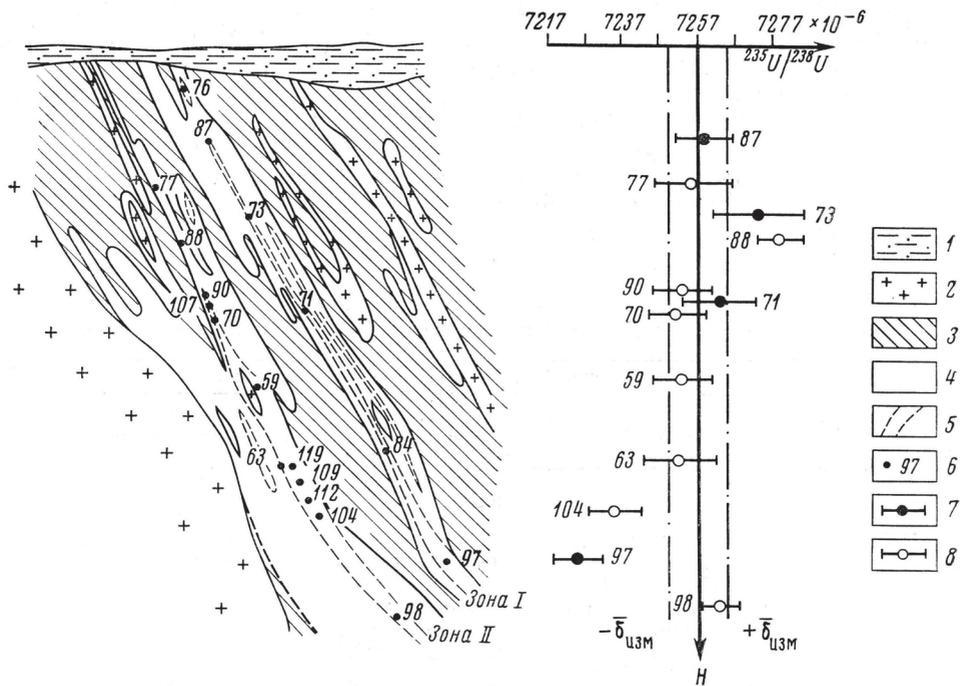


Рис.1. Схематический геологический разрез и результаты определения изотопного отношения $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$. 1 – песчано-глинистые породы осадочного чехла; 2 – граниты; 3 – метаморфические породы (гнейсы); 4 – гидротермально измененные породы (альбититы); 5 – тектонические зоны с повышенной радиоактивностью; 6 – точки отбора проб и их номера; 7–8 – изотопное отношение $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$, измеренное в пробах из тектонических зон I и II соответственно. Размер горизонтального интервала соответствует погрешности определения ($\pm\delta$). Стандартное природное отношение $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ принято равным $7257 \pm 7 \cdot 10^{-6}$.

Заключение

Открытию феномена Окло предшествовали теоретические и экспериментальные исследования многих зарубежных и советских ученых, в том числе сотрудников ВИМС В.И. Малышева, А.Л. Якубовича, В.Г. Мелкова и др., которые рассматривали проблему намного шире, с точки зрения не только возможности эффекта «выгорания» ^{235}U в благоприятных условиях за счет происходящей в природе ядерной цепной реакции на участках высоких концентраций урана, но и образования его избытка в результате иных ядерных реакций. Например, возможный захват нейтронов ядрами ^{238}U с последующим образованием ^{239}Pu , при распаде которого и образуется ^{235}U . Интенсивность этих процессов зависит от концентрации урана, возраста

руды, размеров и морфологии рудных тел, присутствия замедлителя нейтронов (воды), а также таких элементов как бор, литий, бериллий, углерод. Эффект разделения изотопов урана может быть также обусловлен и процессами термодиффузии при проникновении газо-водных флюидов, обогащенных ураном, через мощные толщи пористых пород.

Понимая, что решение этих задач в первую очередь связано с использованием очень точных методов определения $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$, специалисты ВИМС уделили большое внимание развитию и совершенствованию методов изотопного анализа: альфа-спектрометрического, радиометрического (по α - γ -совпадениям с временной селекцией излучений), гамма-спектрометрического с нейтронной активацией и масс-спектрометрического.

Исследуемые образцы подвергались тщательной радиохимической очистке от всех мешающих элементов и радионуклидов. Эти принципиально различные методы при существенно более высокой точности масс-спектрометрии показали вполне сопоставимые результаты.

В результате на примере исследований одного из древних месторождений урана на территории СССР сотрудникам ВИМС в 1970–1972 гг. удалось экспериментально подтвердить возможность смещения отношения $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ в урановых рудах, причем как в сторону «выгорания» ^{235}U , так и его накопления, в зависимости от условий локализации оруденения и происходящих в рудах ядерных преобразований.

Так что информация Французского Комиссариата атомной энергетики от 25 сентября

1972 г. об открытии естественной самоподдерживающейся реакции ядерного деления лишь подтвердила экспериментальные результаты и выводы ученых ВИМС, полученные ранее.

Безусловно, выявляемые данные при продолжении исследований позволяют сформулировать новые радиоизотопные признаки и критерии при выявлении и оценке масштаба древних богатых месторождений урана по аномальным соотношениям $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ и $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$, по наличию многих других изотопов – продуктов ядерного деления (Xe, Kr, Nd, Sm, Ru, Pd и др.).

Авторы выражают свою признательность ведущему научному сотруднику ВИМС, кандидату технических наук Овсянниковой Т.М. за ценные замечания и предложения при написании статьи.

Литература

1. Чердынцев В.В. и др. Избыток урана-235 в магнетите с повышенным содержанием актиния // *Геохимия*. 1960. Т. 4. С. 373-374.
2. Малышев В.И. Радиоактивные и радиогенные изотопы при поисках месторождений урана. М.: Энергоиздат, 1981. 157 с.
3. Малышев В.И., Якубович А.Л., Коцен М.Е. и др. О некоторых методах определения отношения урана-235 к урану-238 в природных объектах. Тезисы докладов Всесоюзного совещания «Радиоактивные элементы в горных породах», 15–19 мая 1972 г. Часть II, АН СССР, Сибирское отделение, Институт Геологии и Геофизики, Новосибирск, 1972. С. 147-153.
4. Шуколюков Ю.А., Малышев В.И., Данг Ву Минь и др. Поиски проявлений цепной ядерной реакции деления в природе // *Геохимия*. 1980. № 1. С. 15-26.
5. Мелков В.Г., Якубович А.Л., В.И. Малышев. Результаты проверки гипотезы возможного смещения отношения $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ в природе. Доклады АН СССР. 1975. Том 223. № 2. С. 458-461.
6. Чалов П.И. Аномалии изотопного состава природного урана. Автореферат дис. на соискание ученой степени доктора технических наук. ВНИИЯГ. М., 1970. 55 с.
7. Чердынцев В.В. Уран-234. М.: Атомиздат. 1969. 308 с.
8. Чердынцев В.В., Михайлов В.Ф. Первозданный заурановый изотоп в природе // *Геохимия*. 1963. Т. 1. С. 3-14.
9. Шуколюков Ю.А. Деление ядер урана в природе. М.: Атомиздат, 1970. 270 с.
10. URL: https://ru.wikipedia.org/wiki/Природный_ядерный_реактор_в_Окло (дата обращения: 11.03.2024).
11. URL: https://translated.turbopages.org/proxy_u/en-ru.ru.41f8cdd0-65e6c020-71ac6336-74722d776562/https/en.wikipedia.org/wiki/Paul_Kuroda (дата обращения: 11.03.2024).

12. P.K. Kuroda, «On the Nuclear Physical Stability of the Uranium Minerals». *Journal of Chemical Physics*, vol. 25, no. 4, pp. 781-782, 1956.
13. The Oklo Phenomenon: Proceedings of a Symposium, Libreville, 23–27 June 1975 organized by the IAEA in cooperation with the French Atomic Energy Commission and the Government of the Republic of Gabon. International Atomic Energy Agency Vienna: IAEA, 1975. 646 p.

On the History of the Discovery and Studies of the Oklo Phenomenon

Bakhur Aleksandr, Pechenkin Igor (All-Russian Scientific-Research Institute of Mineral Resources named after N.M. Fedorovsky, Moscow, Russia)

Abstract. The paper dwells on the brief history of the discovery and studies of the Oklo uranium deposit, a natural nuclear reactor, is considered. It was shown by French specialists in 1972. The discovery was made by studying the isotope ratio $^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$ in ore. Several years earlier, such research was carried out at the All-Union Scientific Research Institute of Mineral Raw Materials (VIMS). Unfortunately, the application for the discovery of domestic scientists was rejected.

Keywords: Oklo, Natural Nuclear Reactor, uranium isotopes, V.I. Malyshev, VIMS.

А.Е.Бахур (д.г.-м.н., гл.н.с.), И.Г.Печенкин (д.г.-м.н., сов.ген.дир.)

Всероссийский научно-исследовательский институт минерального сырья им. Н.М. Федоровского (ФГБУ «ВИМС»), г. Москва

Контакты: тел. +7 (495) 959-34-33, e-mail: bae@u238.ru