



Петербургский Институт Ядерной Физики
РАН

Новые ограничения на изменение фундаментальных констант из анализа продуктов выгорания топлива в реакторе Окло.

М.С. Онегин

*Третье Всероссийское совещание
“Прецизионная физика и фундаментальные физические константы”*

ФФК 2010

$T_{1/2}$, лет	t , млрд. лет	c_{U5} , %
	0	0,720
^{235}U $7,038 \cdot 10^8$	2	3,6
^{238}U $4,468 \cdot 10^9$	3	7,8
	4	16,1

1956 год. Статья Куроды. (J. Chem. Phys., 1956, v. 25, p.781)
 Впервые опубликовано количественное теоретическое обоснование возможности самопроизвольного развития цепной реакции деления в природе.

Показано, что при отношении $\text{H}_2\text{O}/\text{U} \approx 1$ примерно 2 млрд. лет назад в месторождении большого объема с высокой концентрацией урана могла протекать цепная ядерная реакция деления с коэффициентом размножения нейтронов больше единицы.

1972 год. В лаборатории Комиссариата по атомной энергии Франции было отмечено статистически значимое расхождение изотопного состава ^{235}U в образцах.

Проверка показала, что в уране, полученном из промышленного месторождения Окло (Габон, Африка), был явный дефицит изотопа ^{235}U . В некоторых партиях руды изотопная концентрация ^{235}U была вдвое меньше нормальной.

Было также обнаружено накопление некоторых изотопов РЗЭ ($^{143,144}\text{Nd}$) и выгорание других (^{149}Sm , ^{151}Eu).

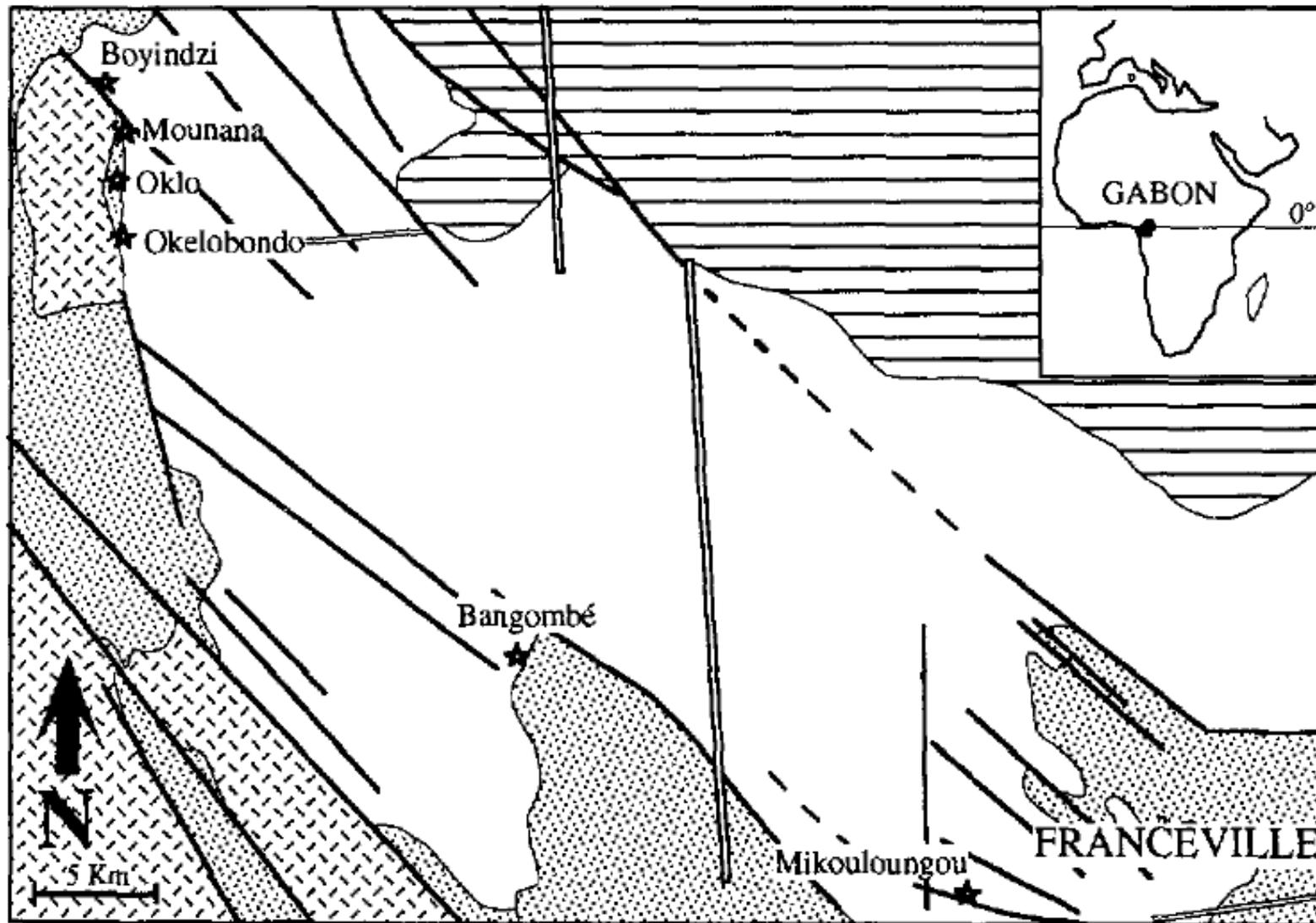
Создана совместная франко-габонская группа под руководством Р. Нодэ для изучения феномена Окло.

Местоположение реактора Окло





ФФК 2010

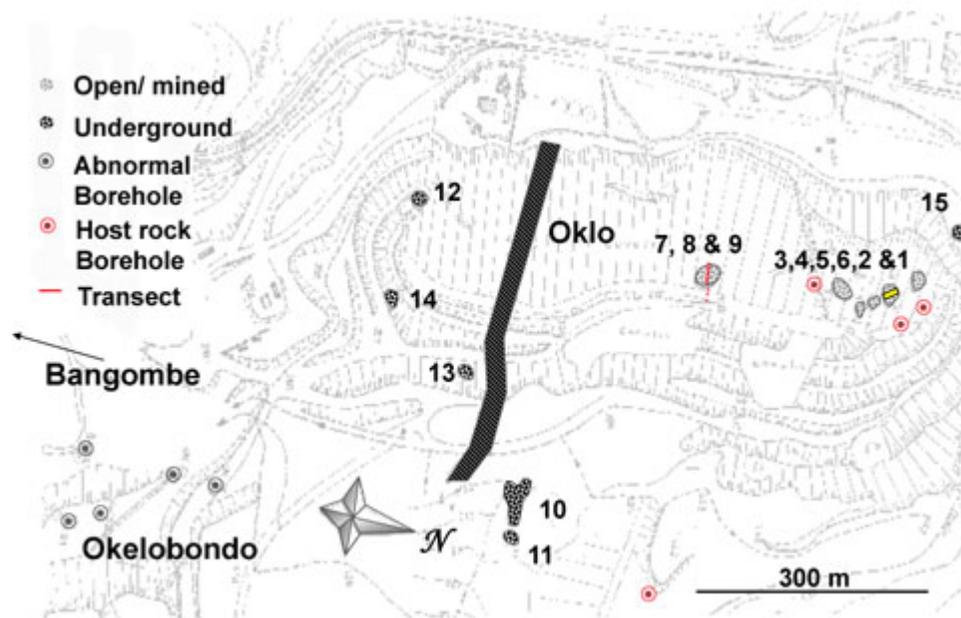


 FA Formation
 Basement

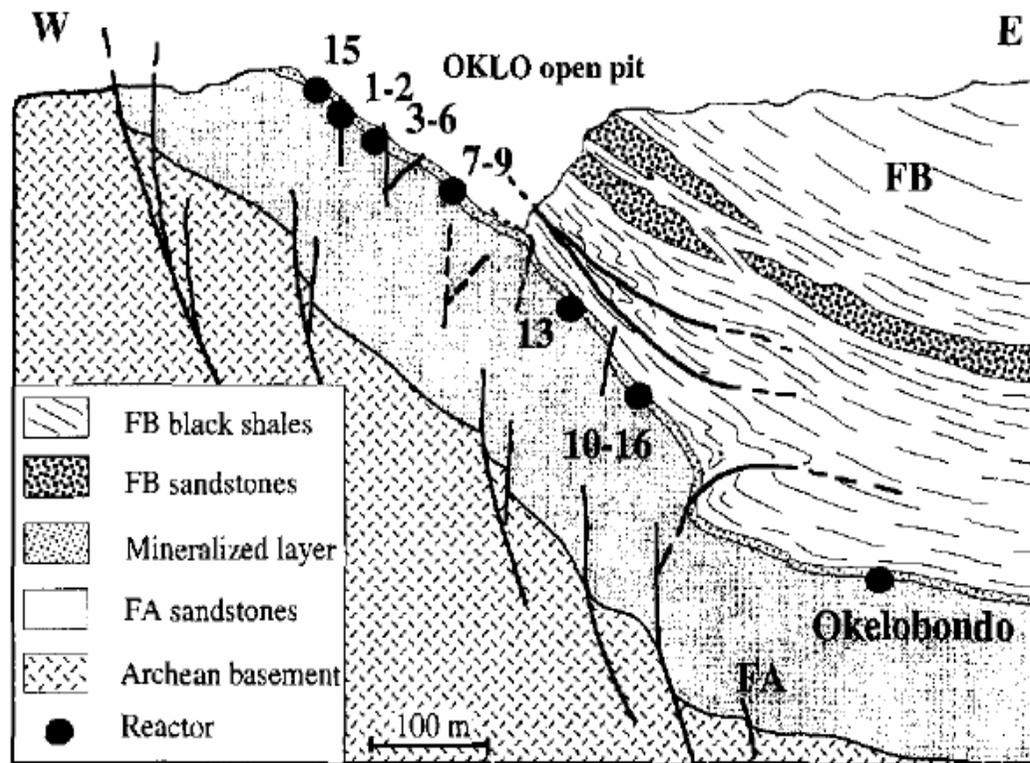
 FC-FE Formation
 FB Formation

 Fault
 Dolerite dyke
 Uranium ore

Местоположение реакторных зон в Окло



Месторождение Окло и Окелобондо Вертикальный разрез



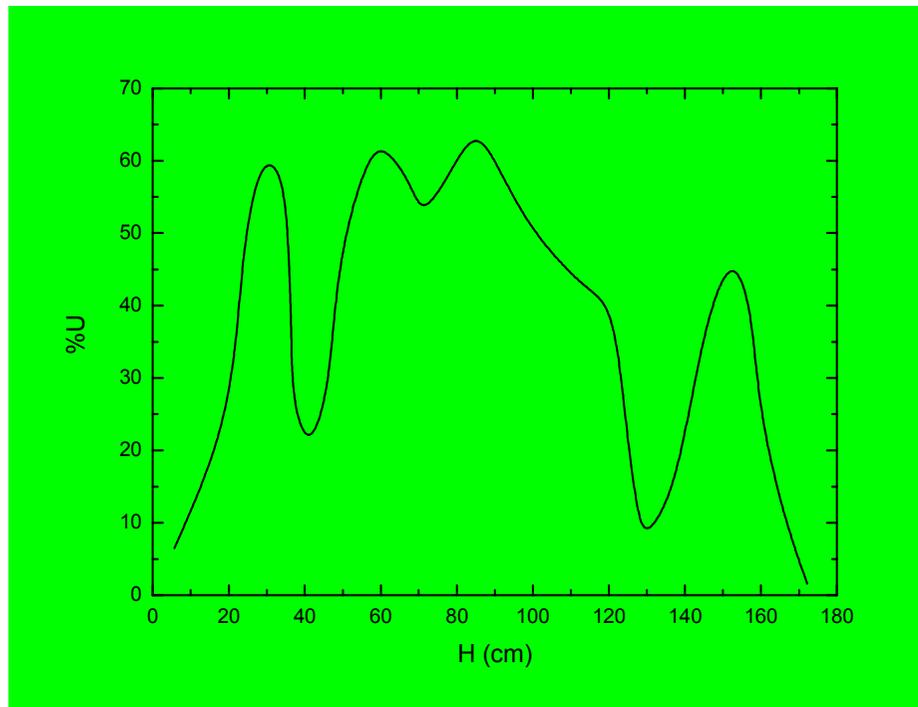




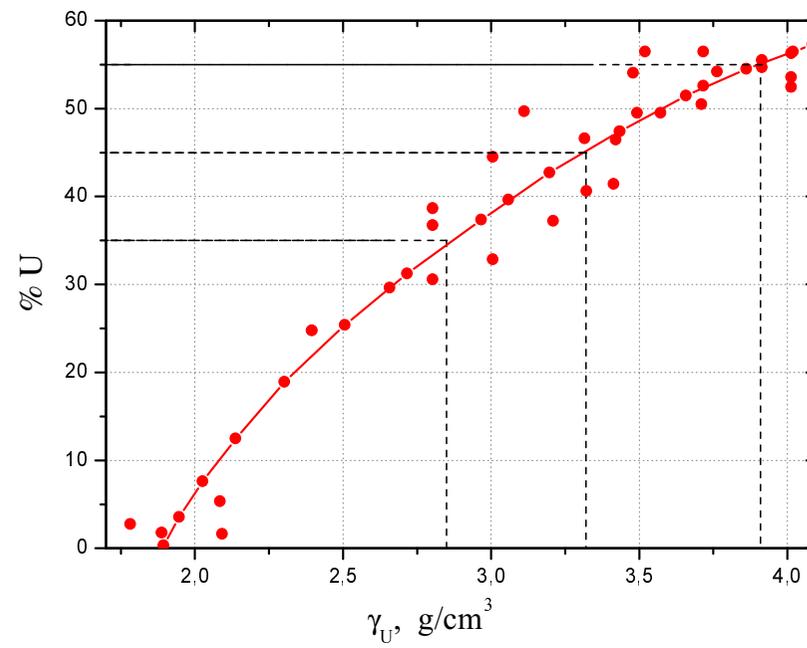
ФФК 2010



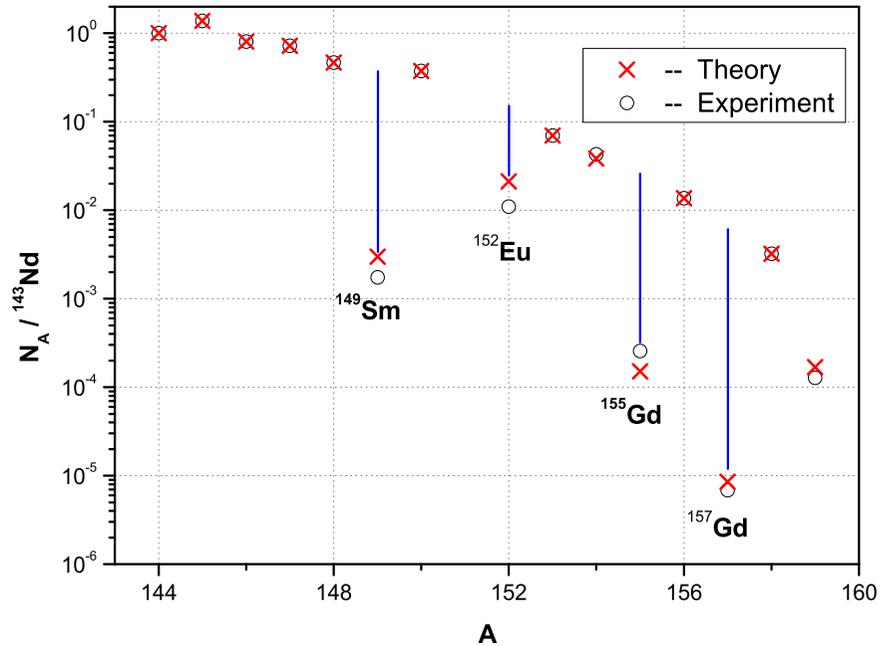
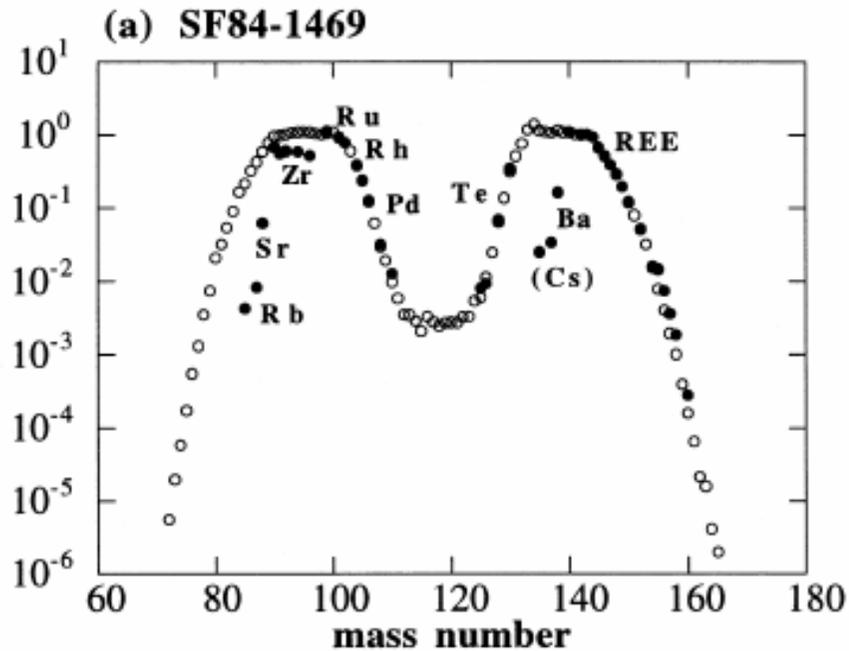
Скважина SC-36 (Зона 2). Распределение содержание урана в породе по длине пробы породы



Зависимость содержания урана в породе от плотности породы



Содержание различных изотопов в породе реактора Окло



Выход сильнопоглощающих стабильных изотопов при делении ^{235}U тепловыми нейтронами

	Y, %
^{149}Sm	1,08
^{155}Gd	$3,212 \cdot 10^{-2}$
^{157}Gd	$6,233 \cdot 10^{-3}$

Возраст реактора

U-Pb метод

Продуктом распада изотопа ^{235}U является стабильный изотоп ^{207}Pb , а продуктом распада ^{238}U – ^{206}Pb .

$$\begin{aligned} {}^{206}\text{Pb}/{}^{238}\text{U} &= \text{Exp}(-\lambda({}^{238}\text{U})t) - 1 \\ {}^{207}\text{Pb}/{}^{235}\text{U} &= \text{Exp}(-\lambda({}^{235}\text{U})t) - 1 \end{aligned} \quad \text{- конкордия}$$

Экспериментальные точки – изохрона (часть свинца была выведена)

Этим методом было получено значение возраста урановой породы в окрестности реакторных зон – $2,05 \pm 0,03$ млрд. лет.

Другой метод определения возраста реактора Окло основан на измерении концентраций продуктов деления и ^{232}Th в породе. В качестве продуктов деления рассматривают элементы Nd, Sm, Ru.

Накопление же ^{232}Th в активной зоне идет в основном в реакции:

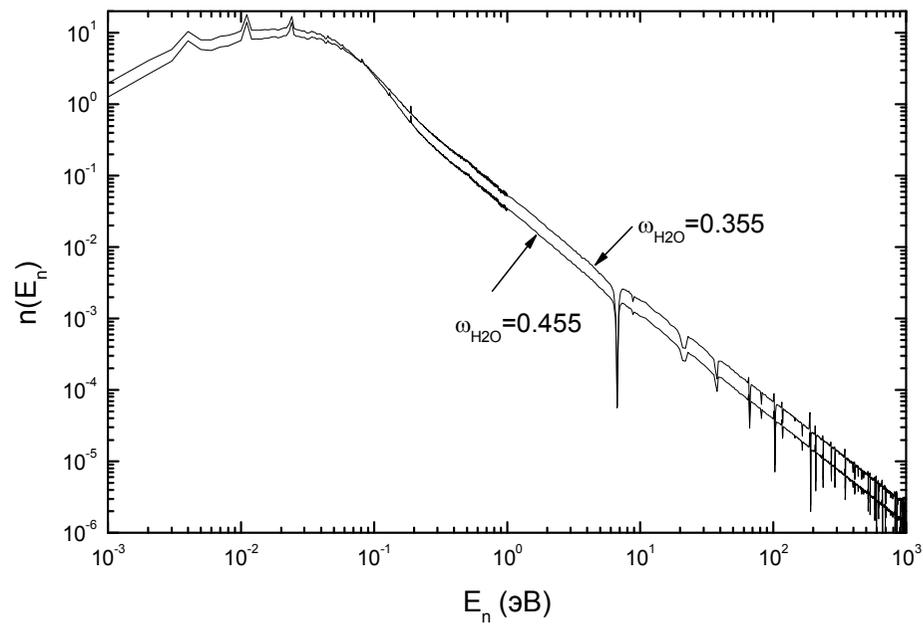
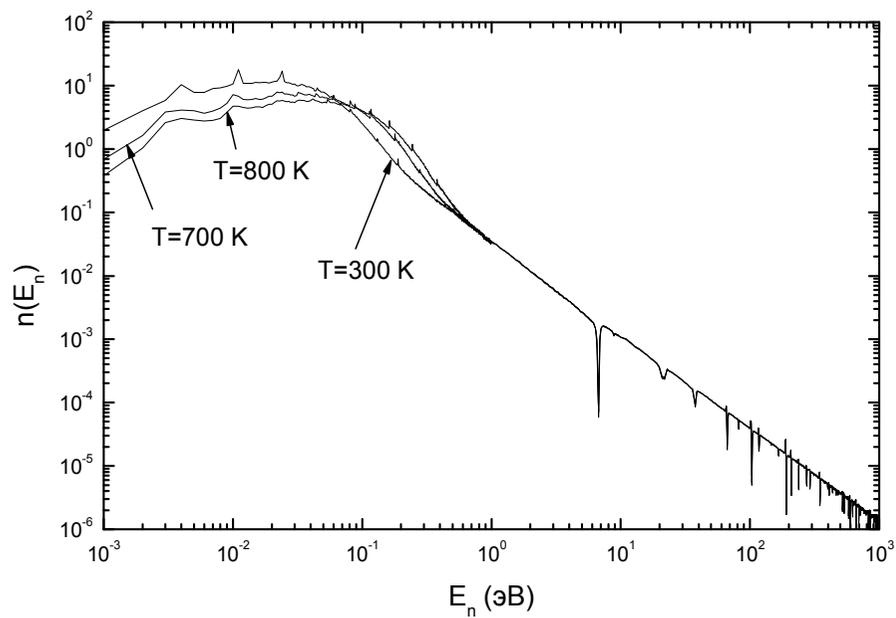


Так при детальном анализе проб из скважины SC-36 Руффенахом и Ноде (в 1991 году) на основе этих продуктов реакции был получен возраст реактора 1950 ± 40 млн. лет.

Условия при которых протекала цепная реакция

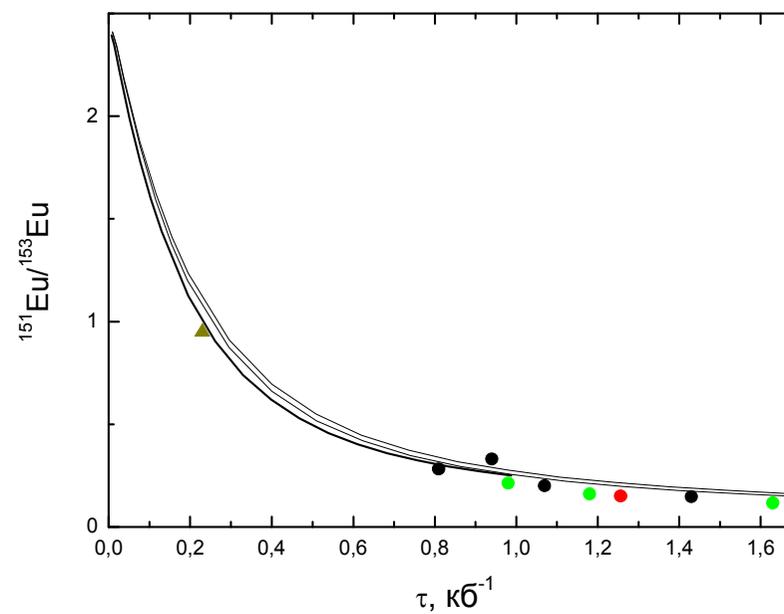
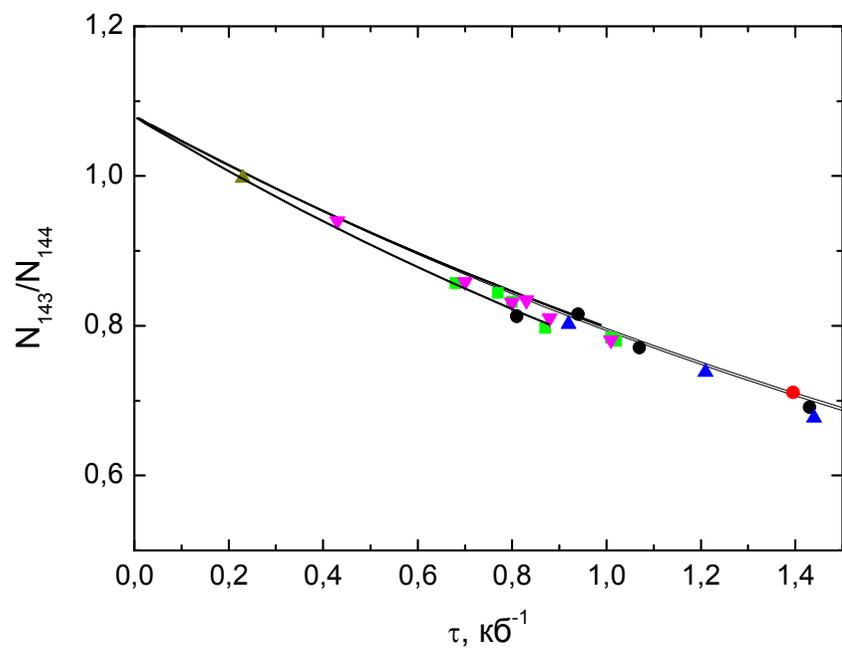
- Количество воды в зоне цепной реакции
- Температура породы при протекании цепной реакции
- Длительность работы реактора
- Сценарий работы реактора

Влияние температуры и количества воды на спектр нейтронов



Определение флюенса нейтронов

По изотопным соотношениям $^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$; $^{151}\text{Eu}/^{153}\text{Eu}$

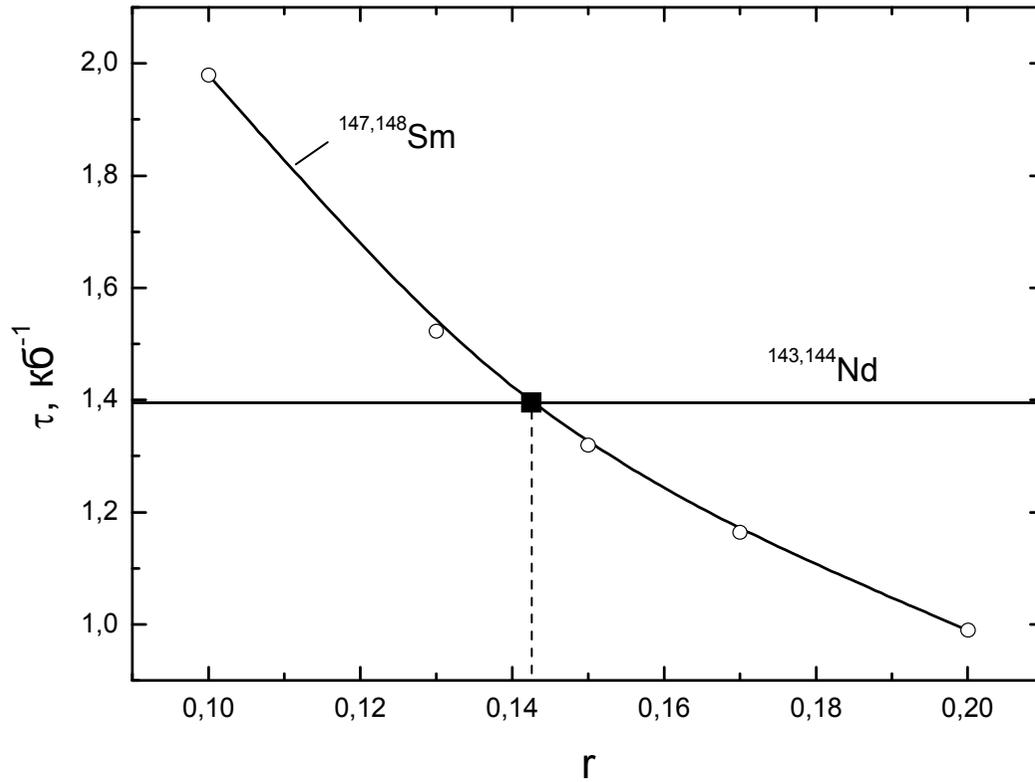


$$\phi = \nu_0 \int dE \Phi(E) / \nu(E)$$

$$\tau = \int \phi(t) dt$$

Доля воды ω в зоне определяет жесткость спектра r , которая, в свою очередь, влияет на сечение захвата нейтрона ядрами $^{143,145}\text{Nd}$, ^{147}Sm :

$$\hat{\sigma}(r, T) = \hat{\sigma}_0(T) + rI$$



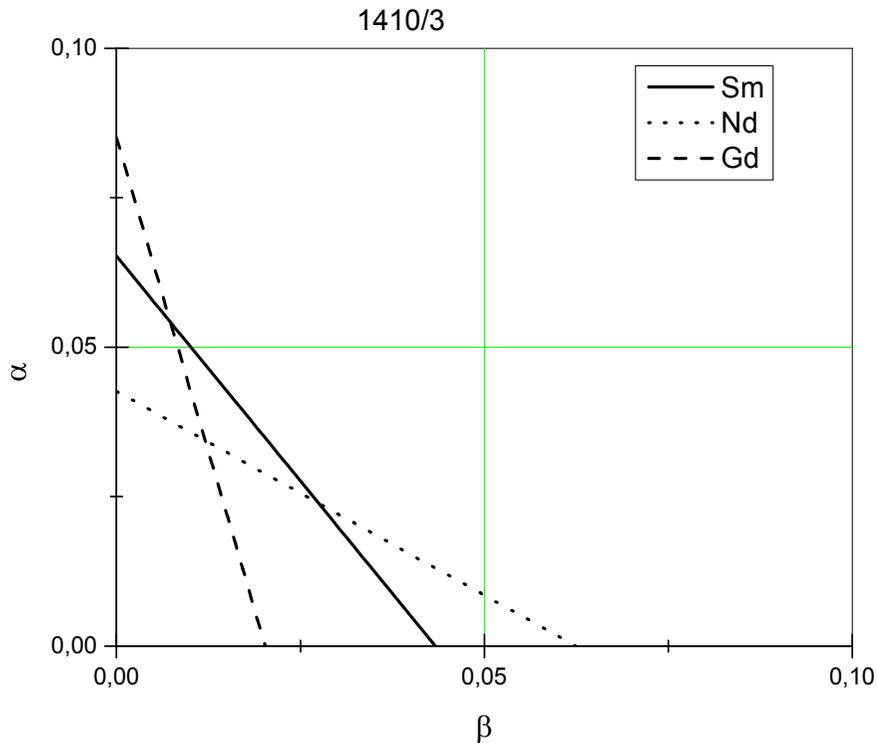
Определение доли делений ^{238}U (α) и ^{239}Pu (β)

$$R = \frac{Y_5'(1-\alpha-\beta) + Y_8'\alpha + Y_9'\beta}{Y_5''(1-\alpha-\beta) + Y_8''\alpha + Y_9''\beta}$$

$$^{150}\text{Nd}/(^{143}\text{Nd} + ^{144}\text{Nd} + ^{145}\text{Nd} + ^{146}\text{Nd})$$

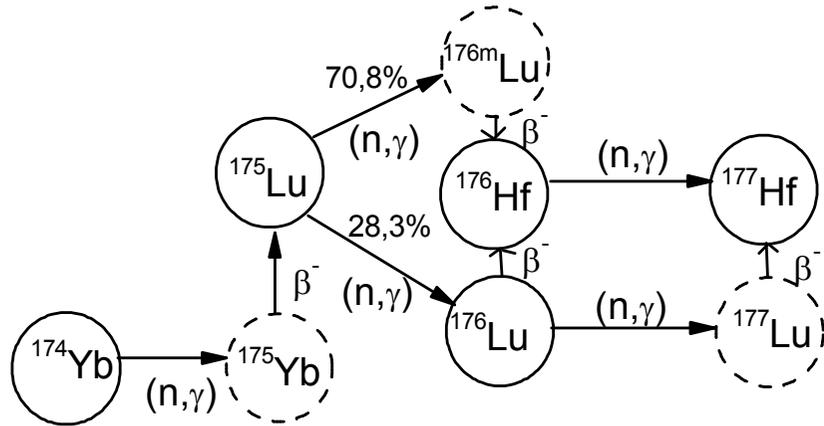
$$^{154}\text{Sm}/(^{147}\text{Sm} + ^{148}\text{Sm});$$

$$(^{157}\text{Gd} + ^{158}\text{Gd})/(^{155}\text{Gd} + ^{156}\text{Gd}).$$



Кумулятивный выход изотопов $^{157}\text{Gd} + ^{158}\text{Gd}$ при делении плутония равен 0,1156, тогда как при делении ядра ^{235}U этот выход составляет 0,00944

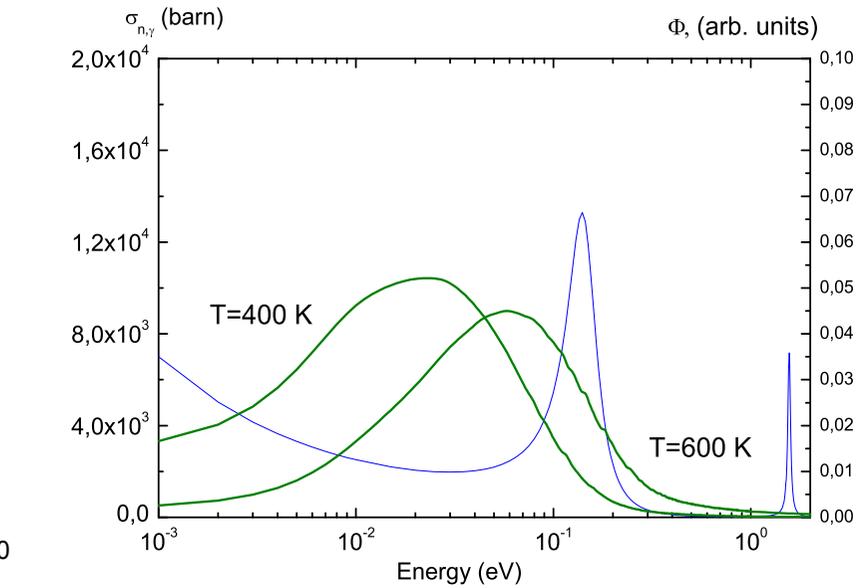
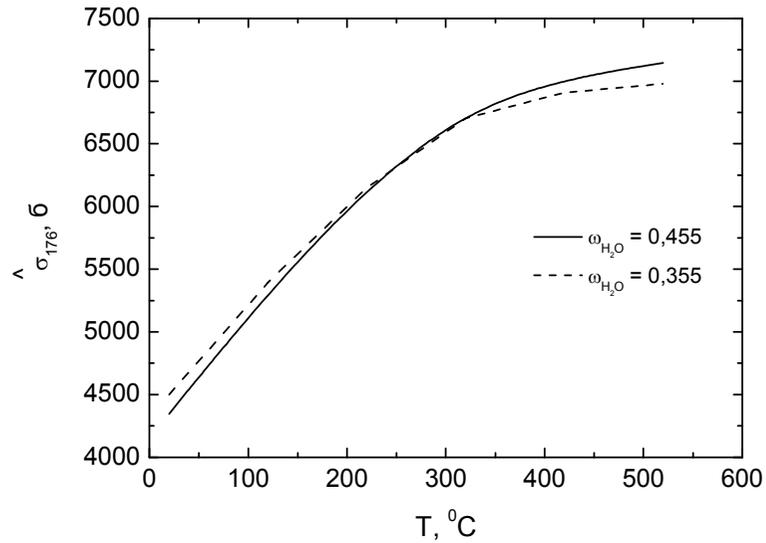
Определение температуры в зоне по ^{176}Lu



$$\frac{dN_{176}}{d\tau} = 0,283 \hat{\sigma}_{175} N_{175} - \hat{\sigma}_{176} N_{176} - \frac{\lambda_{176}}{\phi(\tau)}$$

$$T_{1/2}(^{176}\text{Lu}) = 3,76 \times 10^{10} \text{ лет}$$

$$(N_{176} / N_{175})_{nat} = 0,02659$$



ФФК 2010

Определение длительности работы реактора

Ядро ^{239}Pu играет важную роль в балансе числа делений, поскольку в результате α -распада оно превращается в ядро ^{235}U .

$$T_{1/2}(^{239}\text{Pu}) = 24110 \text{ лет}$$

При анализе числа делений вводят фактор конверсии C , который характеризует долю от полного числа захватов нейтрона ядром ^{235}U за счет ядер, образовавшихся в результате распада ^{239}Pu :

$$\frac{dN_{235}}{dt} = -N_{235} \hat{\sigma}_{235} (1 - C) \phi = -N_{235} \hat{\sigma}_{235} \phi + N_{239} \lambda_{239}$$

$$\Delta t = \frac{\hat{\sigma}_{239,f} \hat{\sigma}_{235}}{\hat{\sigma}_{235,f}} \frac{1 - \alpha - \beta}{\beta} \frac{C \tau}{\lambda_{239}}$$

$$C^* = R^{-1} \frac{\hat{\sigma}_{238}^0}{\hat{\sigma}_{235}} + (1 - p) \nu_5 \frac{\hat{\sigma}_{235,f}}{\hat{\sigma}_{235}}$$

$$C = \frac{C^*}{1 + \phi \hat{\sigma}_{239} / \lambda_9}$$

$$\hat{\sigma}_{235}^* = (1 - C) \hat{\sigma}_{235}$$

$$N_{235}(t) = N_{235}(0) \text{Exp}\left(-\int_0^t \hat{\sigma}_{235}^* \phi(t') dt'\right) = N_{235}(0) e^{-\hat{\sigma}_{235}^* \tau}$$

$$w = \frac{0,00725}{(N_5 / N_8)_{\text{сегодня}}}$$

ФФК 2010

$$w = e^{\hat{\sigma}_{235}^* \tau}$$

Постоянство фундаментальных констант

$$E_r = E_1 - E_2$$

$$H = H_n + H_c$$

В сечении взаимодействия нейтронов с ядрами имеются резонансы. На положение резонансов влияют значения фундаментальных констант.

E_1 – собственное значение энергии для ядра ^{150}Sm в возбужденном состоянии

E_2 – собственное значение гамильтониана ядра ^{149}Sm в основном состоянии

$$H_c = e^2 \sum R_{ij}^{-1}$$

$$\frac{dE_r}{de^2} < -\frac{Z^2}{2R_1^3} \delta_{12}(r^2)$$

$$\delta_{12}(r^2) > 0,211 \pm 0,017 \text{ фм}^2 (3\sigma)$$

$$\alpha \frac{dE_r}{d\alpha} < -(1,09 \pm 0,09) \text{ МэВ}$$

$$\delta E_r = M \frac{\delta\alpha}{\alpha}$$

Экспериментальное определение сечения захвата нейтрона ядром ^{149}Sm

Используя w и флюенс нейтронов τ , можно вычислить эффективное сечение захвата нейтрона ядром ^{149}Sm :

$$\hat{\sigma}_{149} = \frac{1}{\tau} \left[\ln w + \frac{y_{149}}{y_{147}} \frac{\ln w}{w-1} \frac{N_{147} + N_{148} - n \cdot N_{144}}{N_{149}} \right],$$

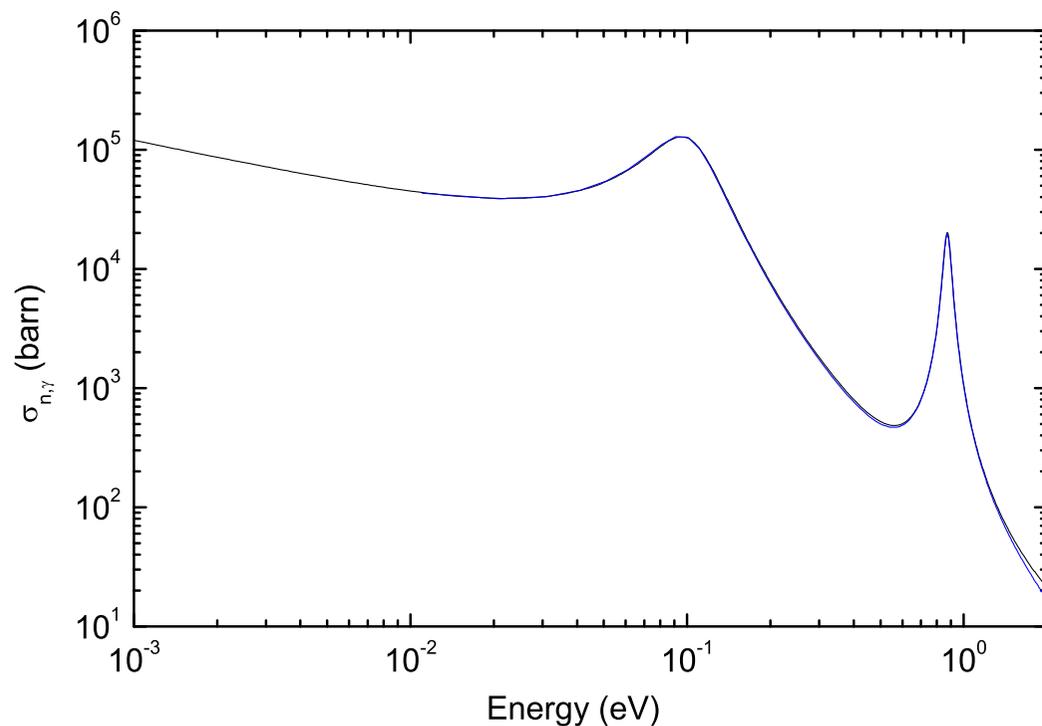
$$n = \frac{n_{147} + n_{148}}{n_{144}} \simeq 8,54.$$

Здесь, $N_{144, 147, 148, 149}$ – концентрации ядер $^{144,147,148,149}\text{Sm}$ в образцах руды,
 $n_{144,147,148}$ – нормальные распространённости изотопов $^{144,147,148}\text{Sm}$.

A.I. Shlyakhter. Nature. 264, 340 (1976).

T. Damour and F. Dyson. Nuclear Physics, B480, 37 (1996).

Расчет теоретического значения сечения захвата нейтрона ядром ^{149}Sm



^{149}Sm
 $D_0 = 2,1(3) \text{ эВ}$
 $S_0 = 6,3(12) \cdot 10^{-4}$

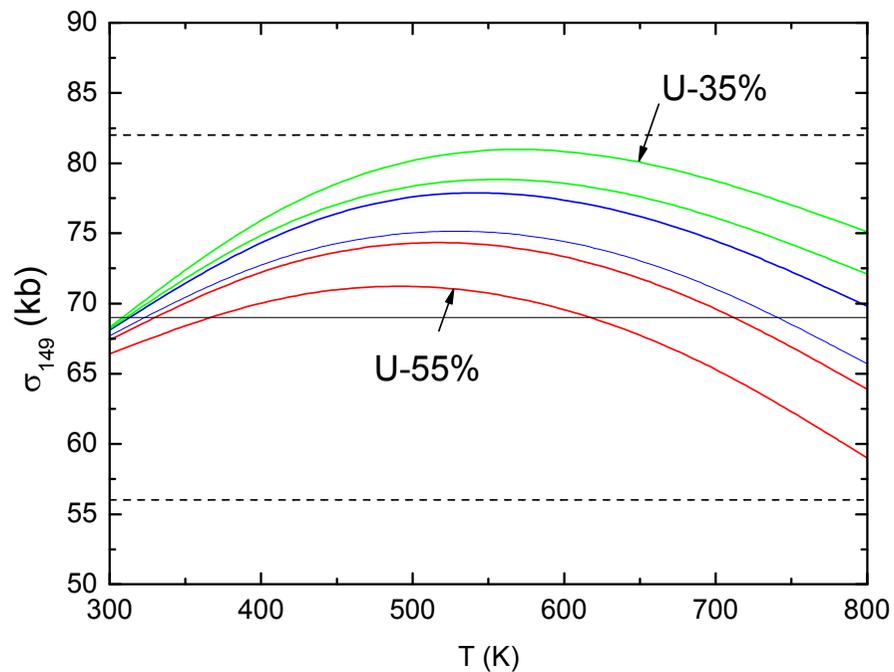
$$\sigma_{n,\gamma}(E) = g_0 \frac{\pi \hbar^2}{2mE} \frac{\Gamma_n(E) \cdot \Gamma_\gamma}{(E - E_r)^2 + \Gamma_{tot}^2 / 4}$$

$$\hat{\sigma}_{149} = \frac{\int \sigma_{149}^{(n,\gamma)}(E) \Phi(E) dE}{\tau}$$

$$\Gamma_n(E) = \Gamma_n^0 \sqrt{\frac{E}{E_0}}$$

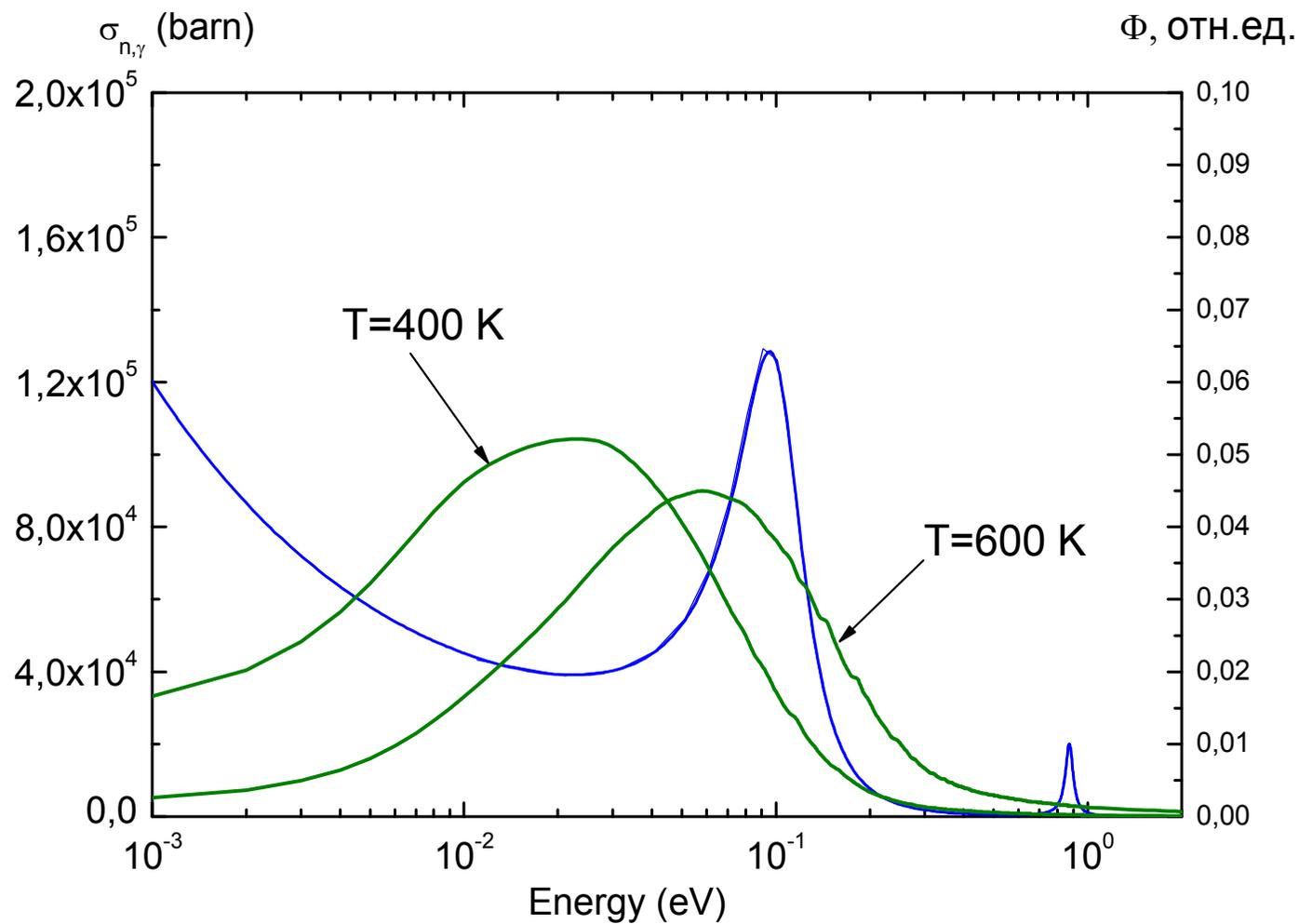
$$E_r = 97.3 \text{ meV}$$

Название образца	Эффективный флюенс τ , кб^{-1}	$\hat{\sigma}_{149}$ кб	Ссылка
KN50-3548	1,25	93	[9]
SC36-1408/4	0,81	73	[8]
SC36-1410/3	1,07	73	[8]
SC36-1413/3	1,43	83	[8]
SC36-1418	0,94	64	[8]
SC39-1383	0,68	66	[10, 19]
SC39-1385	0,80	69	[10, 19]
SC39-1387	1,01	36	[10, 19]
SC39-1389	1,02	64	[10, 19]
SC39-1390	0,87	82	[10, 19]
SC39-1391	1,02	82	[10, 19]
SC39-1393	0,77	68	[10, 19]
SC35bis-2126	0,92	57	[10, 19]
SC35bis-2130	1,44	81	[10, 19]
SC35bis-2134	1,21	71	[10, 19]
SC43-2421	0,85	48	[10]
SC63-1970	0,43	52	[10]
SC63-1972	0,83	58	[10]
SC63-1974	1,01	72	[10]
SC63-1976	0,88	87	[10]
SC63-1978	0,80	63	[10]
SC30-2035	0,49	70	[10]
SC30-2039	0,85	74	[10]
SC52-1472	0,23	75	[11]
		69 ± 13	

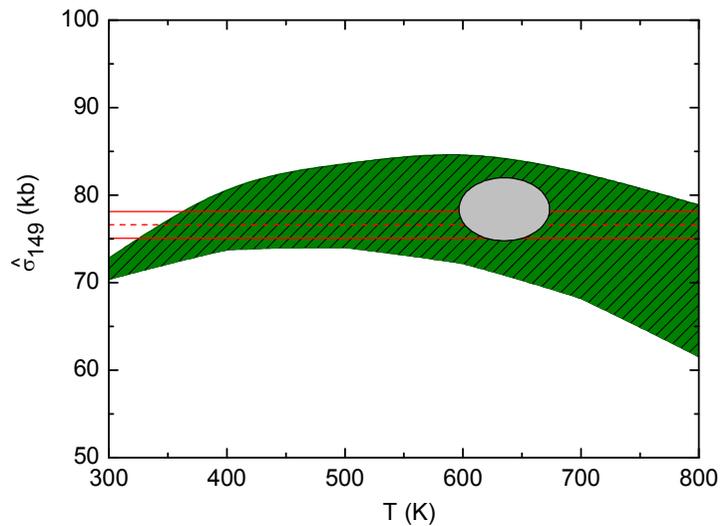


$$-73 \text{ meV} \leq \Delta E_r \leq 62 \text{ meV}$$

Yu.V.Petrov, A.I. Nazarov, M.S. Onegin, V.Yu. Petrov,
and E.G. Sakhnovsky. PRC 74, 064610 (2006)



Синяя кривая – сечение захвата нейтрона ядром ^{149}Sm
 Зеленые кривые – поток нейтронов в зоне при различных температурах



Если увеличить точность определения $\hat{\sigma}_{149}$ до 2% и точнее определить условия, при которых протекала цепная реакция в Окло, можно существенно усилить ограничения на сдвиг резонанса.

Так, в работе *G.R. Gould, E.I. Sharapov and S.K. Lamoreaux – Phys.Rev. C74, 024607 (2006)* был выполнен повторный анализ эксп. данных для зоны 10. В этой работе интервал рабочих температур ограничивался областью **473 – 573 K**. Это позволило существенно сузить разрешенный диапазон для сдвига энергии резонанса:

$$-11.6 \text{ мэВ} \leq \Delta E_r \leq +26.0 \text{ мэВ}$$

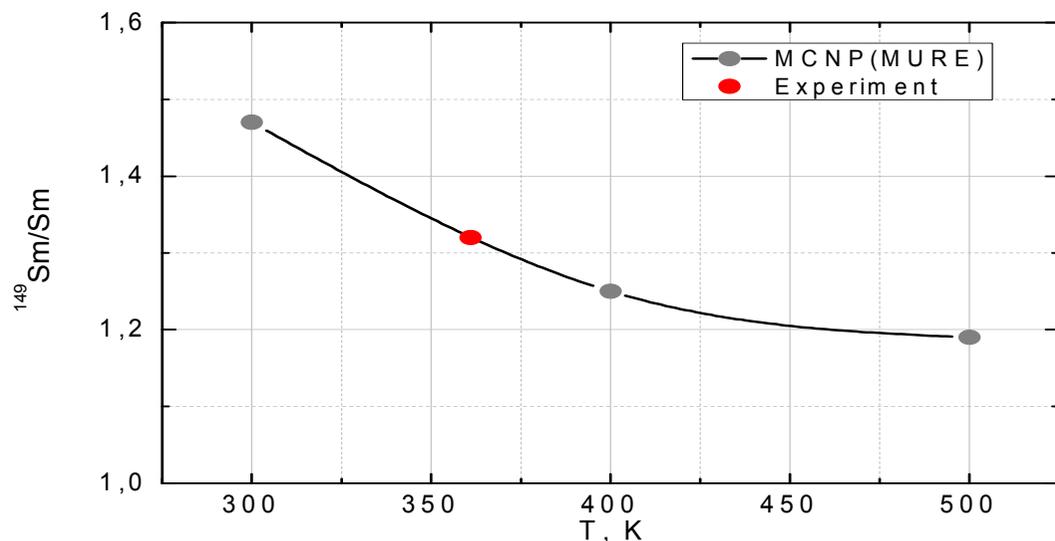
Зона 3
Образец SC56-1472

Содержание U, %	Флюенс, кб ⁻¹	<i>r</i>	Возраст, млрд. лет	Δt, тыс. лет	Удельное энерговыделение, Вт/см ³
32 ± 1	0,228	0,13	1,93	300	0,45×10 ⁻⁴

Содержание изотопов Sm в образце в конце работы реактора

Изотоп Sm	Температура, К			Содержание в образце
	300	400	500	
144	0,53	0,54	0,53	0,53 ± 0,005
147	50,93	51,29	50,99	51,55 ± 0,06
148	2,70	2,74	2,71	2,73 ± 0,01
149	1,47	1,25	1,19	1,32 ± 0,005
150	25,60	25,58	25,93	25,36 ± 0,03
152	13,31	13,10	13,16	12,94 ± 0,01
154	5,46	5,51	5,48	5,57 ± 0,01

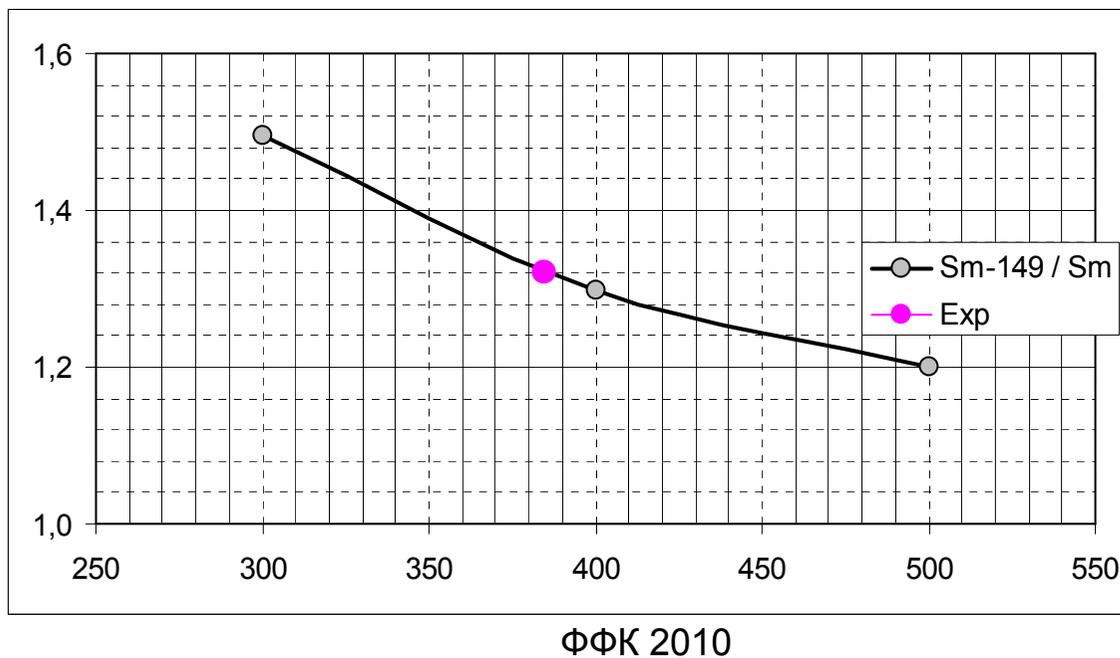
Расчет по программе MURE(MCNP)



T = 367 K

$\sigma_{\text{Sm}149} = 62,9 \text{ кб}$

Расчет по программе MSU-5 (М.С. Юдкевич)

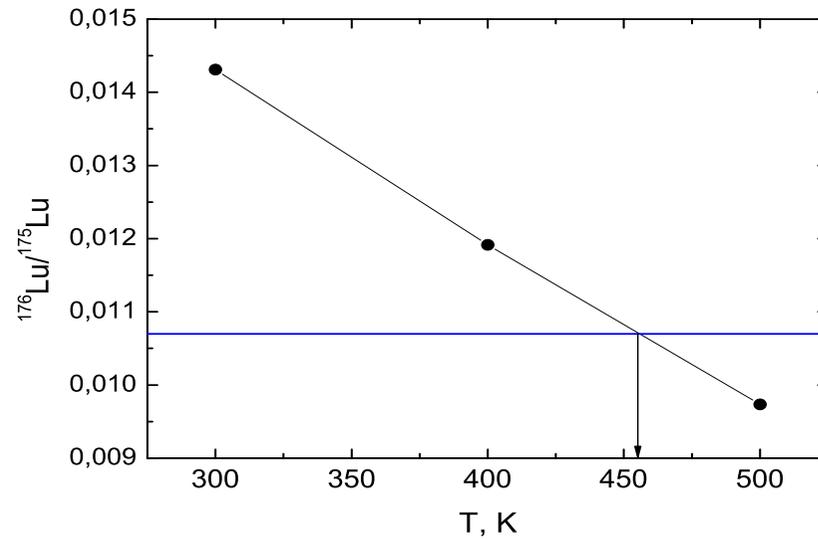


T = 385 K

Содержание изотопов Nd в образце в конце
работы реактора

Изотоп Nd	Температура, К			Содержание в образце
	300	400	500	
142	5,83	5,84	5,84	5,75 ± 0,02
143	24,17	24,17	24,16	24,33 ± 0,04
144	26,85	26,77	26,85	26,84 ± 0,04
145	16,57	16,62	16,57	16,57 ± 0,03
146	15,23	15,21	15,23	15,15 ± 0,03
148	7,61	7,66	7,62	7,62 ± 0,02
150	3,74	3,73	3,74	3,73 ± 0,01

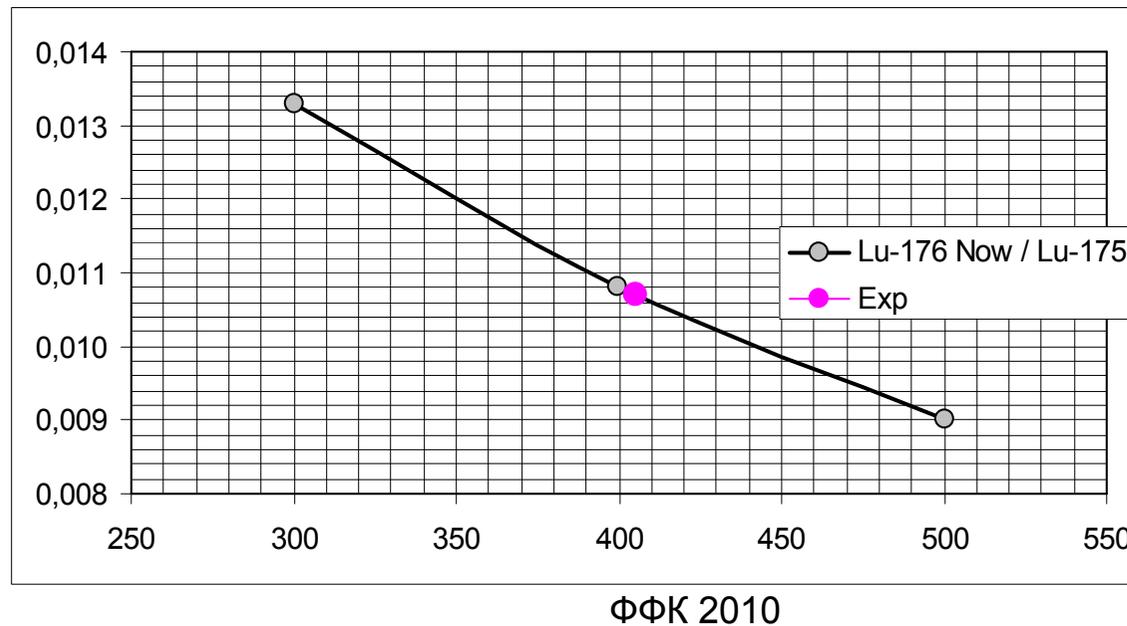
Расчет по программе MURE(MCNP)



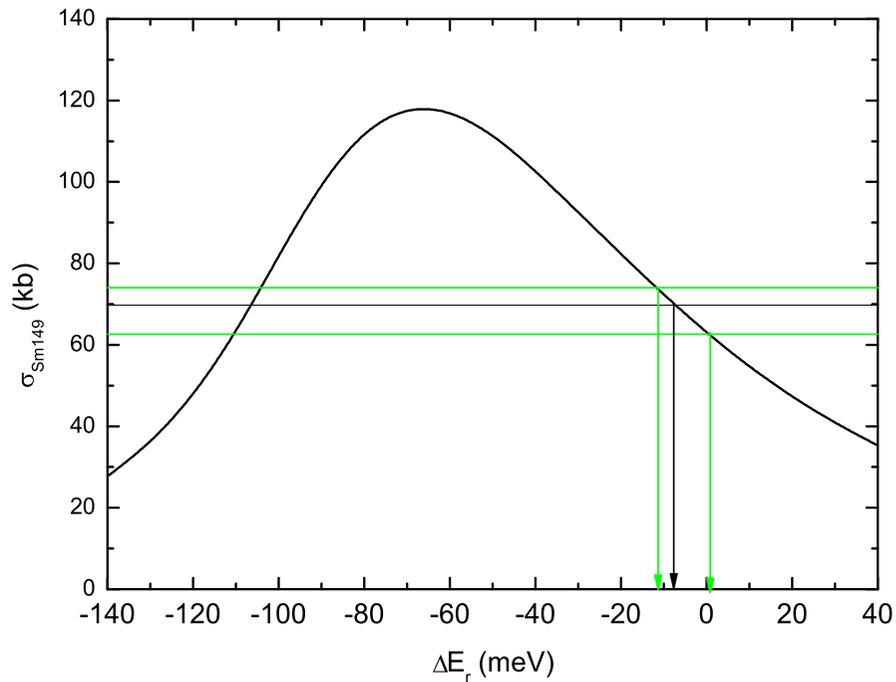
Определение температуры, при которой протекала реакция в реакторе Окло.

$$T_{\text{Lu}} = 455 \text{ K}$$

Расчет по программе MCU-5 (М.С. Юдкевич)



Ограничения на сдвиг резонанса в Sm



$$\sigma_{Sm149}(T_{Lu}=455 \text{ K}) = 69,8 \text{ kbarn}$$

$$\Delta E_r = -7.6 \text{ meV}$$

$$\frac{dN_{176}}{d\tau} = 0,283 \hat{\sigma}_{175} N_{175} - \hat{\sigma}_{176} N_{176} - \frac{\lambda_{176}}{\phi(\tau)}$$

$$364 \text{ K} < T_{Lu} < 525 \text{ K}$$

$$\sigma_{175 Lu(n,\gamma)} = 23.3 \pm 1.1 \text{ barn}$$

$$\sigma_{175 Lu(n,\gamma)^{176g} Lu} = 6.6 \pm 1.3 \text{ barn}$$

$$\frac{\sigma_{prod} (^{176g} Lu)}{\sigma_{prod} (^{176g+176m} Lu)} = 0.283 \pm 0.056 (1\sigma)$$

$$-11.3 < \Delta E_r < 0.8 \text{ meV} (3\sigma)$$

Сравнение ограничений на изменение α , полученных по разным методикам (P=0.95)

$$\frac{\Delta\alpha}{\alpha} = \frac{\Delta E_r}{M} \quad M = -1.1 \text{ MeV}$$

Методика	$\Delta\alpha/\alpha, 10^{-5}$	$\Delta\dot{\alpha}/\alpha, 10^{-15} \text{ лет}^{-1}$
Анализ метеоритов	-0.24 ÷ 0.08	-1.0 ÷ 0.35
Реактор Окло	-0.0007 ÷ 0.001	-0.00035 ÷ 0.005
Оптические часы Hg/Al		-0.062 ÷ 0.03

$$X_q = \frac{m_q}{\Lambda_{QCD}} \sim \frac{m_e}{m_p}$$

$$\delta E_r = 10 \frac{\delta X_q}{X_q} \text{ MeV} \quad - \text{ V.V. Flambaum, R.B. Wiringa. PRC 79, 034302 (2009)}$$