

エピカドミウム中性子スペクトルと  
実効エピカドミウム断面積

1962年12月

日本原子力研究所

Japan Atomic Energy Research Institute

## エピカドミウム中性子スペクトルと実効エピカドミウム断面積

### 要　　旨

熱中性子原子炉におけるエピカドミウム中性子スペクトルが、いわゆる  $1/E$  分布からずれている場合に、その中性子スペクトルに対する反応率の表現方法を導入する。この方法はエピカドミウム中性子スペクトルの特徴を記述するのに適しており、また中性子スペクトルの  $1/E$  分布からのずれの程度を表わすパラメータを簡単に測定することができる。この測定のための検出器として核分裂検出器が適しているが、そのうちで  $^{235}\text{U}$  のものの感度が最も高い。実さいの臨界集合体内の中性子スペクトルについて  $^{235}\text{U}$  核分裂計数管と  $\text{BF}_3$  比例計数管を用いてこのパラメータを測定した結果を示し、さらに中性子スペクトルの理論値を用いて求めた結果と実験値との比較をおこなう。

1962 年 9 月

日本原子力研究所原子炉物理部原子炉物理第 2 研究室

井 上 和 彦, 鹿 取 謙 二\*

## Epi-cadmium Neutron Spectrum and Effective Epi-cadmium Cross Section

### abstract

Although the neutron spectra of epi-thermal region in the thermal reactors are usually assumed to be  $1/E$  distribution, it is important to consider the deviation of the distribution from  $1/E$  shape in some cases. In this paper an approach for the representation of reaction rate in the epi-cadmium energy neutron is presented, and a parameter defining the deviation from  $1/E$  shape is introduced. This parameter is useful in studying the spatial dependence of epi-cadmium neutron spectra in thermal reactors. It is shown that a  $^{235}\text{U}$  fission detector is one of the most feasible detector. The measurements are performed by using a  $^{235}\text{U}$  fission chamber in the SHE critical assembly. The Experimental results obtained are compared with the theoretical calculations, and the agreement between the theoretical and experimental results is good.

Sep. 1962

Kazuhiko Inoue  
Kenji Katori\*

Japan Atomic Energy Research Institute

---

\* 日本原子力事業株式会社 NAIG 総合研究所 Nippon Atomic Industry Group Co., Ltd.

## 目 次

|                                |    |
|--------------------------------|----|
| 1. 序 言 .....                   | 3  |
| 2. 実効エピカドミウム断面積 .....          | 4  |
| 3. 中性子スペクトルと核分裂断面積 .....       | 6  |
| 4. $\gamma$ 因子の測定と理論との比較 ..... | 9  |
| 5. 結 言 .....                   | 13 |
| 付 錄 1. ....                    | 14 |
| 付 錄 2. ....                    | 15 |
| 参考文献 .....                     | 16 |

## Contents

|  |    |
|--|----|
| 1. Introduction .....  | 3  |
| 2. Effective Epi-cadmium Cross Section .....                         | 4  |
| 3. Neutron Spectrum and Fission Cross Sections .....                 | 6  |
| 4. Measurements of $\gamma$ -factor and Comparison with Theory ..... | 9  |
| 5. Conclusions .....   | 13 |
| Appendix 1. ....   | 14 |
| Appendix 2. ....   | 15 |
| References.....  | 16 |

## 1. 序 言

熱中性子原子炉では、中性子をそのエネルギーに応じて、核分裂中性子および熱中性子に分けることができる。原子炉の性質を調べるさいには、これらの中性子スペクトルに対する原子炉材料の反応率を知ることが必要である。減速の過程における中性子の損失が少ない原子炉では、熱中性子に対する反応率が主として問題になる。これに対して、濃縮燃料を用いた均質あるいは均質に近い熱中性子炉においては、熱中性子エネルギー領域以外で起こる核分裂が、全核分裂の 10ないし 30% に達する。したがって、核分裂についてこのような混合スペクトルを有する原子炉では、中性子スペクトル全体にわたって、核分裂物質の反応率を正確に知ることが必要である。

反応率を表わすために、現象論的な中性子スペクトルと全実効断面積を用いる方法が WESTCOTT<sup>1)</sup>によって提案されているが、この方法は中性子スペクトルを MAXWELL 分布と  $1/E$  分布の適当な合成で近似できる場合に最も適している。しかし、減速中性子の吸収と漏洩が大きな熱中性子炉では、 $1/E$  分布の中性子スペクトルによる近似はもはや妥当ではない。このような場合には  $1/E$  分布からのずれを考慮する必要がある。この論文ではエピカドミウムエネルギーの中性子を 1 群として扱い、この中性子束に対する反応率を表現するための様式を導入する。この様式は、エピカドミウム反応率とエピカドミウム中性子スペクトルを簡単に表現するのに適しているとともに、特に中性子スペクトルの場所による変化を調べるさいに便利なパラメータを含んでいる。そのパラメータの測定方法は

簡単であって、エピカドミウム中性子スペクトルの、場所による変化を、容易に知ることができる。

エピカドミウム反応率は、実効エピカドミウム断面積に、中性子密度に比例するエピカドミウム中性子束を掛けることによって与えられる。実効エピカドミウム断面積は、実効共鳴積分と因子  $\tau$  の積で表わされる。この  $\tau$  因子は、エピカドミウム中性子スペクトルの  $1/E$  分布からのずれに関する情報を示すもので、中性子スペクトルのかたちが知られておれば、特定の検出体について容易に計算される。この因子の測定方法は 2 つあって、第 1 の方法では  $1/E$  分布であることが知られているエピカドミウム中性子スペクトルと対象としている中性子スペクトルにおけるそれぞのエピカドミウム反応率の測定値から  $\tau$  因子が求められる。第 2 の方法では、その検出体のサブカドミウム反応率と実効共鳴積分が知られているならば、カドミウム比の測定によって  $\tau$  因子を求めることができる。

実効エピカドミウム断面積と  $\tau$  因子は、熱中性子炉における反応率と中性子スペクトルの場所による変化を調べるさいに便利であり、2 ではこれらの量の導入について述べる。検出体としては、断面積の性質のために  $^{235}\text{U}$  等の核分裂が適しており、核分裂計数管と  $1/\nu$  吸収体計数管を用いて 2 つの方法のいずれかによって中性子スペクトルの  $1/E$  からのずれを測ることができる。3 では、核分裂実効断面積とエピカドミウム中性子スペクトルとの関係を説明する。最後に 4 では、 $\tau$  因子の測定法と実さいの測定例について述べ、あわせて理論値との比較をおこなう。

## 2. 実効エピカドミウム断面積

カドミウム切断エネルギーよりも高いエネルギーを持つ中性子に対する場所  $r$  における 1 個の原子核当たりの反応率  $R$  は

$$R(r) = \int_{-\infty}^{u_c+\delta} \sigma(u) \phi(u, r) du \quad (1)$$

で与られる。ここで  $u$  はレサジーであり、 $u_c$  は中性子スペクトル  $\phi(u, r)$  における  $1/v$  断面積に対するカドミウム切断エネルギーのレサジーである。 $\delta$  は原子核の断面積  $\sigma(u)$  が  $1/v$  法則からずれているための補正因子である。

エピカドミウム反応率  $R$  をエピカドミウム中性子密度  $n$  と実効エピカドミウム断面積  $\tilde{\sigma}$  との積に比例するように定義すると、(1) 式は次のようになる。

$$R = v_e n \tilde{\sigma} = \tilde{\phi} \tilde{\sigma} \quad (2)$$

ここで  $v_e$  は比例定数である。 $v_e n$  をエピカドミウム中性子束と定義して、これを  $\tilde{\phi}$  と書く。この比例定数  $v_e$  の選定は任意であるが、ここでは  $v_e$  として、 $u_0 v_0 / 2$  を用いる、 $v_0$  はエネルギー  $E_0$  の中性子の速度に等しい。ここで  $E_0$  は (6) 式で中性子スペクトルが表わされる場合の  $1/v$  断面積のカドミウム切断エネルギーであり、 $u_0$  はそのレサジーである。(1) および(2)式より実効エピカドミウム断面積は

$$\tilde{\sigma} = \gamma \frac{1}{u_0} \quad (3)$$

となる注)。ここで因子  $\gamma$  は次式で定義される量である。

注) エピカドミウム中性子密度  $n$  を、その中性子スペクトルにおける  $1/v$  検出体のカドミウム切断エネルギー以上のエネルギーの中性子密度と定義する。したがって、場所  $r$  におけるエピカドミウム中性子密度は

$$n(r) = \int_{-\infty}^{u_c} v^{-1} \phi(u, r) du$$

で与えられる。

$$\gamma(r) = \frac{\left( \int_{-\infty}^{u_c+\delta} \sigma(u) \phi(u, r) du \right) \cdot \left( \int_{-\infty}^{u_0} \varphi(u) e^{u/2} du \right)}{\left( \int_{-\infty}^{u_0+\delta} \sigma(u) \varphi(u) du \right) \cdot \left( \int_{-\infty}^{u_c} \phi(u, r) e^{u/2} du \right)} \quad (4)$$

(3) 式の  $I$  は  $1/E$  分布の中性子スペクトルにおける実効共鳴積分に対応する量である。核分裂中性子スペクトルがエネルギーの広がりを持つときは、単位レサージ当りの規格化された核分裂中性子スペクトルを  $\chi(u)$  とすれば、 $I$  は次式で定義される。

$$I = \frac{2v^*}{v_0} \frac{\int_{-\infty}^{u_0+\delta} \sigma(u) \varphi(u) du}{\int_{-\infty}^{u_0} \varphi(u) e^{u/2} du} \quad (5)$$

ここで

$$\varphi(u) = \{\xi \sigma_n(u)\}^{-1} \int_0^u \chi(u') du' \quad (6)$$

であり、 $v^*$  は核分中性子スペクトルの上限のエネルギーの中性子の速度である。 $\xi \sigma_n(u)$  は考えている原子核当たりの全散乱断面積に平均のレサジーの増加を掛けたものである。 $\xi \sigma_n(u)$  が  $u_0$  以下で一定値で、核分裂中性子のエネルギーが単色である場合には、 $\varphi(u)$  は定数になる。この場合にはエピカドミウム中性子スペクトルは完全な  $1/E$  分布になり、 $I$  は通常の実効共鳴積分に等しくなる。普通使用される減速材では  $E_0$  から約 100 keV 付近までのエネルギー領域では  $\xi \sigma_n(u)$  はほぼ一定であるが、約 100 keV 付近以上で若干変動する。しかし、一般に考えられる断面積では、このような高いエネルギー領域における (5) 式の積分への寄与は小さいから、 $I$  は実効共鳴積分にほとんど等しい。

$\sigma(u)$  と中性子スペクトル  $\phi(u)$  が与えられている場合には、(4) 式を用いて  $\gamma$  因子の値を計算することができます。このさい  $\sigma(u)$  に対するカドミウム切断

エネルギーのレサジーと  $1/v$  断面積に対するカドミウム切断エネルギーのレサジーは(4)式に示すように一般に異なった値であるが、その差は小さい。また(4)式自体がその差による影響を減少させるようなかたちをしている。この差については、あとで再び述べる。(4)式は特定の中性子スペクトル内における  $\sigma(u)$  および  $1/v$  断面積のエピカドミウム反応率の測定値の比と、(6)式の意味での  $1/E$  中性子スペクトル内の前記2つの断面積の反応率の測定値の比から  $\gamma$  因子が与えられることを示しているが、サブカドミウム反応率とカドミウム比を用いて(4)式を書きかえると次のようになる。

$$\tau(r) = \frac{CR_{1/v} - 1}{CR_\sigma - 1} \frac{\int_0^{E'_c} \sigma(E) \phi(E, r) dE}{\int_0^{E_c} \sigma_0(E) \phi(E, r) dE} \quad (7)$$

ここで  $CR_{1/v}$  と  $CR_\sigma$  は、考へている中性子スペクトル内における  $1/v$  断面積と  $\sigma(E)$  のカドミウム比である。また、 $\sigma_0(E)$  は

$$\sigma_0(E) = \frac{I}{2} \sqrt{\frac{E_c}{E}} \quad (8)$$

であり、 $E_c$  は  $u_c$  に  $E'_c$  は  $u_c + \delta$  に対応するエネルギーである。実効共鳴積分およびカドミウム切断エネルギー以下の中性子束のエネルギー分布と断面積が知られているならば、(7)式の右辺の積分は容易に計算される。 $\sigma(E)$  がカドミウム切断エネルギー以下で  $1/v$  法則に従う場合には  $\sigma(E)$  と  $\sigma_0(E)$  の比のみが必要であって、サブカドミウム中性子スペクトルに関する知識はほとんど重要でなくなる。しかし、この場合にも  $E_c$  の値は重要であるが、かなり中性子スペクトルが変化しても  $E_c$  の変動は付録に示されるようにきわめてわずかであり、簡単に補正できる。

### 3. 中性子スペクトルと核分裂断面積

核分裂断面積の $\tau$ 因子について述べる前に、近似的なエピカドミウム中性子スペクトルと断面積を用いて $\tau$ 因子の振舞について調べておく。炉内の場所 $r$ におけるエピカドミウム中性子スペクトルを次のような近似式で表わす。

$$\phi(u, r) \sim \frac{e^{\beta(r)u}}{\xi\sigma_s(u)} \int_{-\infty}^u \chi(u') du' \quad (9)$$

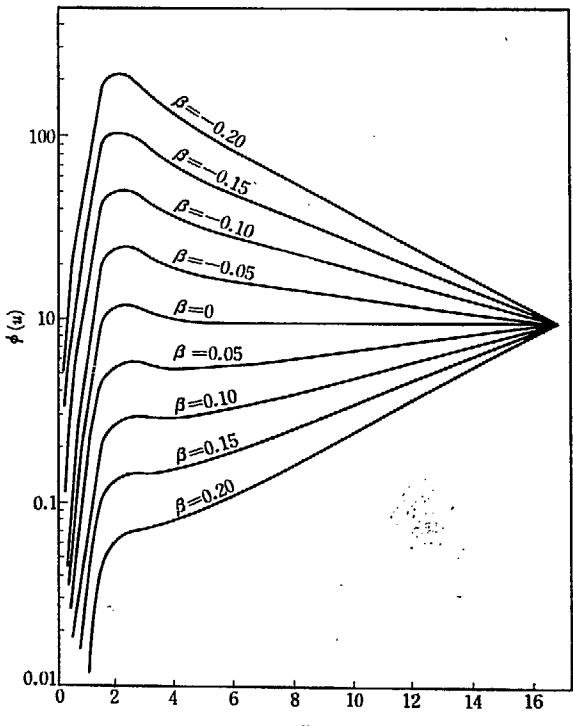
ここで $\beta(r)$ は小さな正または負の量であって、体系の性質と形状の特徴を示すパラメータである。この式はウラン等の共鳴吸収によるエピカドミウム中性子スペクトルの微細変化を表現することができないけれども、スペクトルの全般的なかたちを近似的に表わすことができる。 $\xi\sigma_s(u)$ が一定で単色エネルギー中性子源ならば、(9)式の中性子スペクトルは $E^{-(1+\beta)}$ 分布に相当する。一般に核分裂中性子源が存在して吸収や漏洩がある場合には $\beta$ は負になり、吸収と漏洩がない場合には $\beta$ はほとんど零になる。核分裂中性子源が存在せず、吸収が小さく、中性子が他の領域からの拡散によって供給される場合には、 $\beta$ は正になる。次にせまいエネルギー区間について平均された断面積のエネルギーに対する変化を次式で近似する。

$$\sigma(E) \sim E^{-\lambda/2} \quad (10)$$

ここで $\lambda$ は適当なパラメータであり、この式は核分裂断面積の平均的な振舞を比較的よい近似で表わすことができる。(4)式によって示されるように、 $\beta=0$ ならば、定義により $\tau$ 因子は $\sigma(E)$ に無関係に1に等しい。したがって任意の $\sigma(E)$ に対して $\tau$ 因子の測定値が1の場合には、中性子スペクトルがほとんど $1/E$ 分布に等しいことを意味している。次に $\lambda=1$ の場合、すなわち $1/v$ 断面積に対してても $\tau$ 因子は中性子スペクトルに無関係であって、恒等的に1になる。**Fig. 1**は種々の $\beta$ の値に対する黒鉛減速系における(9)式の中性子スペクトルを示す。**Fig. 2**は、この中性子スペクトルに対して $\lambda$ の変化によって $\tau$ 因子

が変わる様子を示す。 $\lambda$ が1より小さな断面積としては $^{233}\text{U}$ や $^{235}\text{U}$ や $^{239}\text{Pu}$ などの吸収または核分裂断面積がその典型的な例であるが、このような断面積に対しても $1/E$ 分布に比べて高エネルギー領域が相対的に高い中性子スペクトルでは $\tau$ 因子が1より大きくなり、低エネルギー領域が相対的に高い中性子スペクトルでは $\tau$ 因子が1より小さくなる。前者のような中性子スペクトルは、普通には炉心内で見られ、後者のようなものは、厚い反射体の外に近い場所で現われる。

実効エピカドミウム断面積は、一般に熱中性子炉に



**Fig. 1.** Fictitious epi-cadmium neutron spectra [Eq. 9] in the graphite moderated system as a function of the lethargy for various values of  $\beta$ . Curves are normalized to be same value for maximum lethargy.

おけるエピカドミウムエネルギーの中性子反応率に適用することができるが、最も有用な適用例の1つは核分裂物質に対するものである<sup>注)</sup>。核分裂物質では、そのレベル間隔がせまく、局所的に平均した断面積が比較的単調に変化する。 $\tau$  因子はエピカドミウム中性子スペクトルと断面積に関する積分に関する量であるから、この場合には中性子スペクトルあるいは断面積に関する局所的な情報よりも、むしろ全エネルギー領域にわたっての平均的な特徴を  $\tau$  因子が表わす。次に  $^{233}\text{U}$  と  $^{235}\text{U}$  と  $^{239}\text{Pu}$  の核分裂について、その実効エピカドミウム断面積と中性子スペクトルの関係を調べる。これらの核分裂物質は、現実に重要なものであり、また、あとで述べるように、これらの物質は中性子スペクトルを調べるさいの検出器として有用なものである。

$^{233}\text{U}$  と  $^{235}\text{U}$  および  $^{239}\text{Pu}$  の核分裂断面積について必要なエネルギー領域にわたって測定データが知られているが、個々の共鳴レベルパラメータについては、わずかしか知らない。DOPPLER 効果が顕著な場合には、反応率の計算に当ってレベルパラメータに関するデータが必要であるけれども、ここで考えるような核分裂物質当たりのポテンシャル散乱が大きい場合

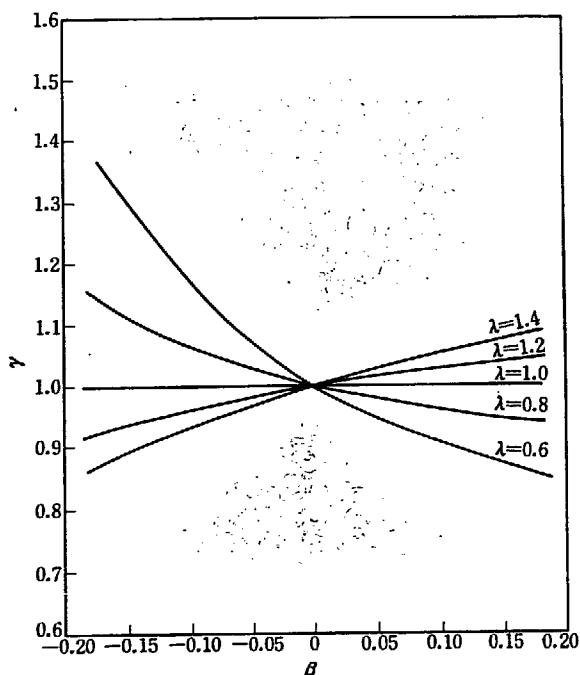


Fig. 2. The  $\tau$  factor versus  $\beta$  of fictitious epi-cadmium neutron spectra for various values of  $\lambda$ .

注) 共鳴検出体を用いた取り扱いが別におこなわれている<sup>2)</sup>。

には DOPPLER 効果はあまり問題にならないから、レベルパラメータのデータの不足は、大きな困難ではない。数 eV 以下の領域については BNL-325 の断面積カーブを用いて反応率を計算し、数 eV 以上のレベルパラメータが知られているものについてはこれを用い

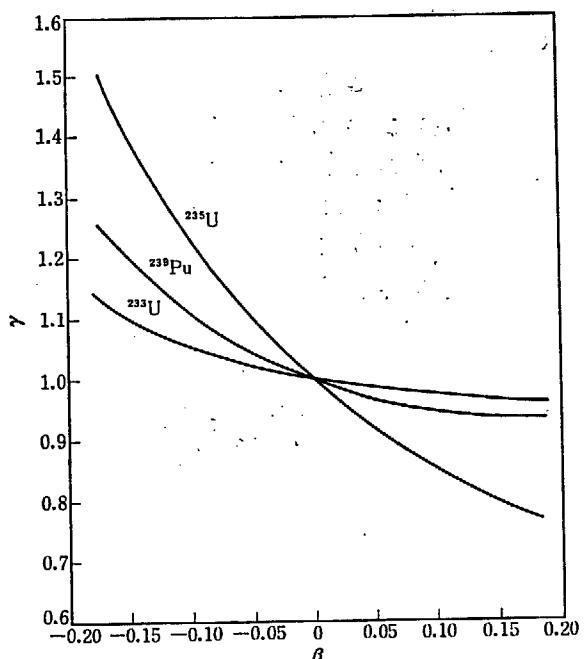


Fig. 3. The  $\tau$  factor versus  $\beta$  of fictitious epi-cadmium neutron spectra for  $^{233}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ , and  $^{239}\text{Pu}$  fission cross sections.

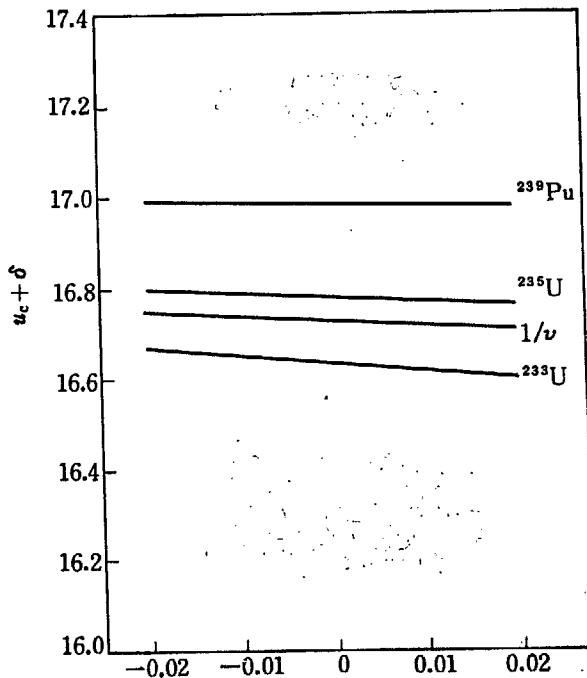


Fig. 4. Lethargy of effective cadmium cut-off energy for  $^{233}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  and  $^{239}\text{Pu}$  fission detectors and  $1/v$  detector.

て、各レベルの実効共鳴積分を計算した。35 eV 以上のエネルギー領域については、ふたたび断面積カーブを用いて計算した。(9)式の中性子スペクトルを用いて各核分裂物質に関する  $\tau$  因子を計算した結果を Fig. 3 に示す。この結果から同一の  $\beta$  に対して 3 種類の核分裂物質のうちで  $^{235}\text{U}$  の  $\tau$  の絶対値が最も大きいことがわかる。したがって、エビカドミウム中性子スペクトルの  $1/E$  分布からのずれを調べるために  $^{235}\text{U}$  の検出器が最も感度が高いことになる。

ここで用いられた  $u_0$  の値は 16.73 であって、これは、0.544 eV に相当する。カドミウムフィルターの厚さが十分厚ければ、各断面積についてそれぞれの  $\delta$  はあまり変化しない。0.5 mm の板フィルターについて等方中性子束に対して無限に薄い検出体の近似で計算した  $u_c + \delta$  を Fig. 4 に示す。この計算で用いた中性子スペクトルは次の現象論的なものである。

$$\phi(E) = \zeta \frac{E}{(\kappa_0 T)^2} e^{-E/\kappa_0 T} + \left( \frac{E_1}{E} \right)^\beta \frac{A(E)}{E} \quad (11)$$

$\zeta$  は MAXWELL 部分の相対的大きさを表わす定数であり、この計算では 6 を用いた。 $A(E)$  は  $1/E$  分布の下限に対する切断関数であり、WESTCOTT の  $A_1(E)$  を用いた<sup>1)</sup>。 $E_1$  は  $\zeta$  と関連して定まるパラメータである。Fig. 4 に示すように  $\beta$  が変化しても  $\delta$  はほぼ一定であって、 $\delta$  を定数として Table 1 に示すような値を用いることができる。

Table 1. Values of  $\delta$  for fission cross sections.

| エレメント             | $\delta$ |
|-------------------|----------|
| $^{235}\text{U}$  | -0.09    |
| $^{235}\text{U}$  | 0.05     |
| $^{239}\text{Pu}$ | 0.26     |

## 4. $\gamma$ 因子の測定と理論との比較

実効エピカドミウム断面積あるいは $\gamma$ 因子の測定法には、前に述べたように2つ方法がある。あらかじめ $1/E$ 分布であることが知られている中性子スペクトルを使用できる場合には、(4)式の方法によって、 $1/E$ 分布の中性子スペクトルと、問題としている中性子スペクトル内における $1/v$ 検出体とnon- $1/v$ 検出体のエピカドミウム反応率の測定値から $\gamma$ 因子を求めることができる。この場合には、使用できる $1/E$ 分布の中性子スペクトルを見つけることが問題になるが、核分裂スペクトルを除いても完全な $1/E$ 分布の中性子スペクトルを炉心内で有するような炉はきわめて少ない。しかし、厚い反射体を持った熱中性子炉の反射体内における炉心反射体境界付近では、炉心から漏れてくる中性子と反射体から漏れ出る中性子のつりあいによって(9)式の $\beta$ が零であるような分布、すなわち(6)式の分布に近い中性子スペクトルが存在する場合がある。

あらかじめ $1/E$ 分布の中性子スペクトルを利用できない場合には、第2の方法を用いて $\gamma$ 因子を求めることができる。この方法は第1の方法より実用的であるが、前に述べたようにサブカドミウム中性子に対する反応率の評価を必要とする。したがって、サブカドミウムエネルギー領域における中性子スペクトルと断面積に関する知識を、あらかじめ持っていないなければならない。ただし、検出体の断面積がサブカドミウムエネルギー領域で $1/v$ 法則に従う場合には、(7)式のかたちからわかるように、中性子スペクトルについて厳密な知識を必要としない。**Fig. 5** は低エネルギー中性子に対する $^{233}\text{U}$ と $^{235}\text{U}$ と $^{239}\text{Pu}$ の核分裂断面積 $\sigma_F(E)$ とエネルギーの平方根 $\sqrt{E}$ の積をBNL-325から引用したものである。 $^{233}\text{U}$ の $\sigma_F \sqrt{E}$ が他の2つの核のものに比べて最も変化が少なく、 $^{239}\text{Pu}$ のものが最も変化が大きい。 $^{233}\text{U}$ のサブカドミウム断面積が最も $1/v$ 法則に近いから、 $^{233}\text{U}$ を用いれば、熱中性子スペクトルに関してほとんど知識がなくても、あと

で述べるように(7)式の積分を含む項を $\sigma_0$ の係数を除いて約0.5%以内の精度で評価することができる。これに対して、 $^{235}\text{U}$ を用いると、このあいまさがほぼ数倍になることがある。しかし、前章で示したように $1/E$ 分布のそれに対する $^{233}\text{U}$ の感度は $^{235}\text{U}$ の数分の1しかない。したがって、熱中性子スペクトルに関する知識があれば $^{235}\text{U}$ を検出体として用いる方が有利である。なお、この方法では $\gamma$ 因子を求めるために実効共鳴積分の値が必要であるが、これが知られない場合には $\gamma$ 因子でなく、むしろ実効エピカドミウム断面積 $\tilde{\sigma}$ が測定される。

$^{235}\text{U}$ の核分裂を検出体として $\gamma$ 因子の測定が第2の方法で、SHE 臨界集合体<sup>3)</sup>においておこなわれた。

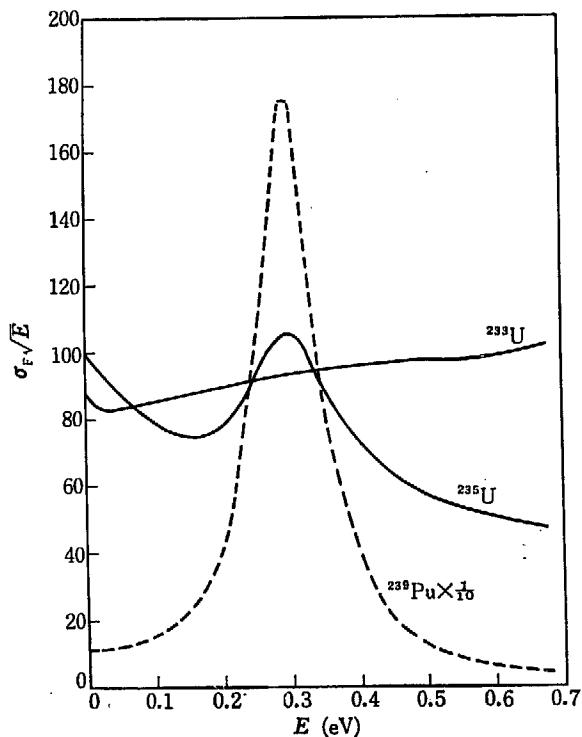


Fig. 5. Fission cross sections of  $^{233}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  and  $^{239}\text{Pu}$  multiplied by square root of neutron energy.

SHE 臨界集合体の炉心組成は、黒鉛と  $^{235}\text{U}$  の原子数比で 5378 であり、小型の  $^{235}\text{U}$  核分裂計数管と  $\text{BF}_3$  比例計数管が用いられた。カドミウムフィルターは小型計数管の有効体積を完全におおい、かつ同軸ケーブルからの熱中性子の流入を十分少なくするように寸法が定められた。使用したカドミウム板の厚さは 0.5 mm で、フィルターは内径が 13 mm で長さ 200 mm の円筒状である。測定は炉心中央軸方向および半径方向についておこなわれた。2つの計数管について、それぞれカドミウム比が測られたが、毎回の計数時の中性子束レベルの規格化のために、別に  $\text{BF}_3$  比例計数管が用いられた。それぞれの計数と計数率を、測定器の不感時間の影響を小さく抑え、かつ十分な統計が得られるように選定し、SHE の出力レベルをこれに応じて定めた。Fig. 6 はカドミウム比の測定結果を示す。異なる方向の測定値が系統的に若干ずれているのは、炉心が 6 角柱状をしているためである。

$^{235}\text{U}$  を用いたために、(7) 式の積分のために炉内の熱中性子スペクトルに関する若干の知識が必要になる。ここでは熱中性子スペクトルに関する知識を、次に述べる方法によって求めた。簡単のために、まず炉内の熱中性子スペクトルが無限大炉心媒質内の中性子スペクトルと、反射体温度の MAXWELL 分布中性子ス

ペクトルとの 1 次結合によって表わされ、反射体内の外のほうで MAXWELL 分布になると仮定する注1)。この仮定に従って、炉心中心から  $r$  の距離のところにおける中性子スペクトルを、次のように書く。

$$\phi(E, r) = [1 - \epsilon(r)]\Psi(E) + \epsilon(r)M(E) \quad (12)$$

ここで  $\Psi(E)$  は無限大炉心媒質内の中性子スペクトルであり、 $M(E)$  は反射体温度の MAXWELL 分布であって、それぞれ次のように規格されている。

$$\int_0^{E_c} \left(\frac{E_{2200}}{E}\right)^{1/2} \Psi(E) dE = \int_0^{E_c} \left(\frac{E_{2200}}{E}\right)^{1/2} M(E) dE = 1 \quad (13)$$

$\epsilon(r)$  は MAXWELL 分布の中性子が含まれる割合を表わすパラメータであり、 $E_{2200}$  は 2200 m/sec 中性子のエネルギーである。ここでは  $\Psi(E)$  として黒鉛の非弾性散乱断面積を用いて BOLTZMANN 方程式を解いて得た結果を用いた注2)。問題になるのは、この  $\epsilon(r)$  を決める方法であるが、 $^{176}\text{Lu}$  の反応率と  $1/v$  吸収体の反応率の比の測定値<sup>4)</sup> と (12) 式を用いて求めた反応率の比の理論値を比較することによって  $\epsilon(r)$  を定めた。得られた結果を Fig. 7 に示す。Fig. 8 は  $^{233}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  の反応率と  $1/v$  検出体の反応率の比の炉内における変化を、この  $\epsilon(r)$  を用いて計算した結果を示す。 $^{235}\text{U}$  については、炉心中心付近と反射

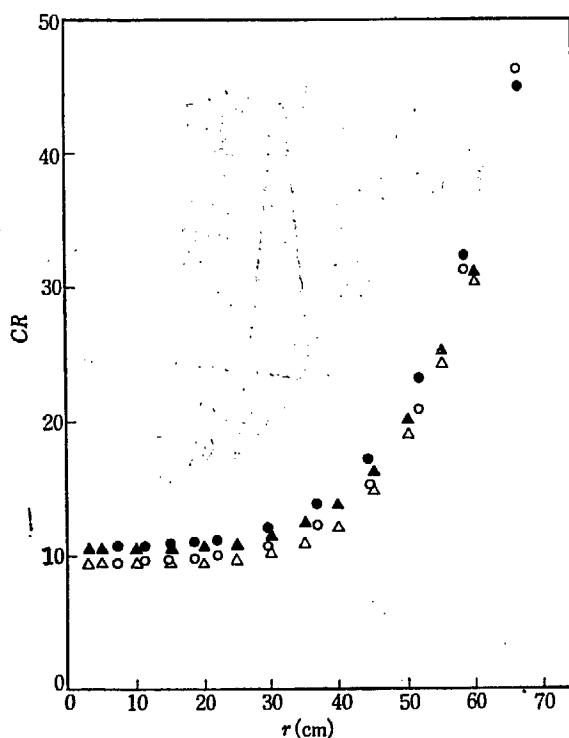


Fig. 6. Spatial distributions of measured cadmium ratios by  $^{235}\text{U}$  fission chamber and  $\text{BF}_3$  counter in the SHE-I assembly.

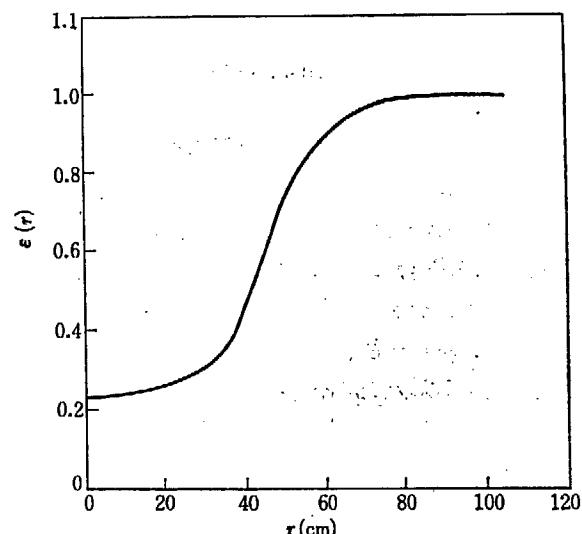


Fig. 7. Measured spatial variation of  $\epsilon(r)$  in the SHE-I assembly.

注 1) 2 領域炉心内の熱中性子スペクトルを微積分方程式を用いて数値的に正確に解いた結果から反射体内の中性子スペクトルに対するこの仮定が十分厚い反射体をもつ系に対して成立立つことが示されている。

注 2) 付録参照。

体内では、同じサブカドミウム中性子密度に対する反応率の比が約3%違う。これに対して  $^{233}\text{U}$  では約0.5%違い、 $^{239}\text{Pu}$  ではその差が約23%に達する。

$1/\nu$  断面積のカドミウム切断エネルギー  $E_c$  は、その平方根が(7)式の分母に現われ、さらに積分  $I$  の積分限界にも現われる。実さいに必要なのは円筒状フィルターに関する切断エネルギーであるが、これを求めるためには膨大な数値積分を必要とする注1)。前章および付録に示されるように、0.5 mm 厚板状カドミウムフィルターの等方中性子束に対する切断エネルギーは0.544 eV であり、ビーム状中性子束に対しては0.402 eV である。幾何学的形状の考察から、円筒状フィルターの切断エネルギーは、板状フィルターの等方およびビーム状の中性子束に対する2つの切断エネルギーの中間にあることが容易にわかる。ここでは、円筒状フィルターの切断エネルギー  $E_c$  を0.5 eV とし、さらに Table 1 の  $\delta$  の値が、そのまま適用されると仮定する。この場合には  $^{235}\text{U}$  の切断エネルギー  $E'_c$  は0.48 eV になる。次に0.48 eV から10 MeV の区間における  $^{235}\text{U}$  の核分裂の  $I$  の値を(5)および(6)式と前章に述べたデータを用いて計算すると、

$$I=254 \text{ b} \quad (14)$$

を得る注2)。

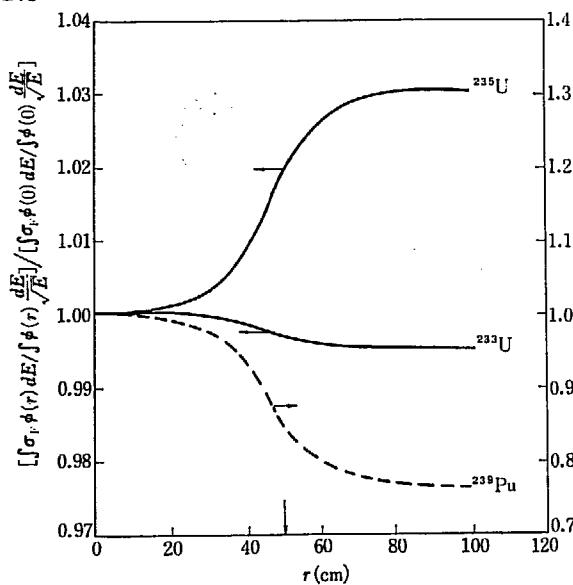


Fig. 8. Variations of the  $^{233}\text{U}$ ,  $^{235}\text{U}$  and  $^{239}\text{Pu}$  fission reaction rates in the SHE-I assembly.

注1) 付記参照。

注2) (6)式の代わりに完全な  $1/E$  分布中性子スペクトルを用いると、

$$\int_{0.48 \text{ eV}}^{10 \text{ MeV}} \sigma_{F, 23}(E) \frac{dE}{E} = 254 \text{ b} \quad \text{である}$$

これらの値と前記のカドミウム比の測定値を用いて  $\gamma$  因子を求めるとき Fig. 9 に示すような結果を得る。また年令拡散理論によって SHE-I のエピカドミウム中性子スペクトルを求め、この中性子スペクトルを用いて(4)式によって  $\gamma$  因子を計算した結果をあわせて Fig. 9 に示してある。Fig. 10 はこの計算に用いられた中性子スペクトルの理論値であるが、これは等価球型炉心近似で、炉心半径を49.9 cm として計算された<sup>4)</sup>。

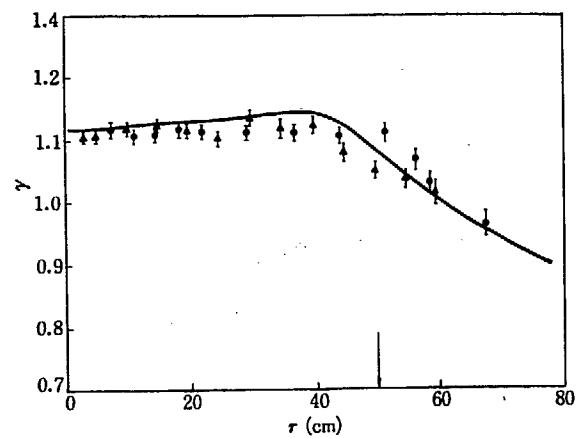


Fig. 9. Experimental and theoretical values of  $\gamma$  factor as a function of the distance from reactor core centre.

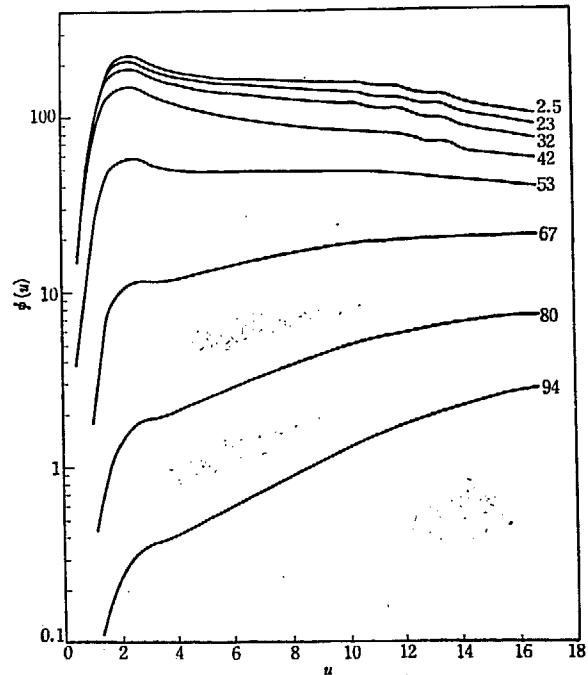


Fig. 10. Calculated epi-cadmium neutron spectra in the SHE-I, as a function of lethargy for various values of the distance from reactor core centre.

Fig. 9 に示されるように、炉心中心から離れたところで  $\tau$  因子が極大値を有する。このことは、相対的に高エネルギー成分が大きいエピカドミウム中性子スペクトルが、炉心の中心から離れたところに存在することを示している。この現象は、次の原因にもとづくものである。すなわち、厚い反射体のために、反射体内で熱中性子束のピークが生じ、炉心内の熱中性子分布が炉心内ではほぼ平坦になる。したがって、核分裂中性子源の分布も、炉心内で平坦に近くなる。これに対して、エピカドミウム中性子の低エネルギー成分の空間分布は、炉心の中心から反射体へかけて漏洩のために著しく減少する。このために、高エネルギー成分が相対的に高くなった  $1/E$  分布からの最も大きなずれが、炉心の中心よりも、むしろ反射体に寄った場所で起こる。

第2の方法によって  $\tau$  因子を求める場合の誤差には、カドミウム比の測定値の誤差と (7) 式の積分を含む項の評価の誤差の2つの組がある。カドミウム比の測定値の誤差は、計数管およびフィルターの挿入による中性子束の歪によって生じるが、用いられた計数管

の寸法と吸収率がほぼ同じであり、この補正は (7) 式において互いに打ち消し合う傾向にあるから、ここではこの補正を省略した。したがって、カドミウム比の測定値の誤差は、計数の統計によるものだけを考慮した。次に (7) 式の後者の誤差は、熱中性子スペクトル自体の誤差と、切断エネルギーの値の誤差、および  $I$  の誤差にわけられる。計算に用いられる熱中性子スペクトルの不正確さによる誤差の程度は、検出器の断面積が  $1/v$  法則からずれている程度によって左右される。 $^{235}\text{U}$  の核分裂断面積に関しては、熱中性子スペクトルの場所による変化を無視しても、前に示したように、そのための誤差はたかだか約 3% 以内である。切断エネルギーの不正確さによる (7) 式の積分を含む項の相対誤差は (7) 式の分子と分母の積分の相対誤差の差になる。したがって、この誤差はもともとあまり大きなものではないのが、さらに打ち消すようになる。また、検出器の断面積が  $1/v$  法則に近いほど、そのための誤差は小さくなる。最後に  $I$  の誤差は断面積データのあいまいさと、切断エネルギーの精度によって左右される。

## 5. 結 言

SHE 臨界集合体におけるエピカドミウム中性子スペクトルの  $1/E$  分布からのずれは、実験値および理論計算の結果から示されるように、中性子の漏洩と吸収のためにかなり顕著である。炉心中心付近の  $\tau$  因子の測定値は約 1.11 であり、この  $\tau$  因子の値に対する  $\beta$  を Fig. 3 から求めると約 -0.05 を得る。(9) 式の  $\beta$  が -0.05 の分布を年令拡散理論で求めた中性子スペクトルと比較すると、前に述べたように微細変化を除けば、そのかたちはよく合っている。 $\tau$  因子の測定値が 1 になるのは、中心から約 60 cm のところであるから、約 60 cm のところに (6) 式のスペクトル、すなわち実さい上の  $1/E$  分布が存在することがわかる。理論の結果も 60 cm 附近に  $1/E$  分布が存在することを示しており、測定結果とよく合っている。

以上に示したように  $\tau$  因子の方法は、熱中性子炉における速い中性子スペクトルの場所による変化に関する情報を、簡単な測定によって与えることができる。その測定結果は、多群理論による炉内のエピカドミウム中性子スペクトルの計算のチェックに役立つ。また計算に先だって  $\tau$  因子の空間変化に関する知識を有する場合には、多群理論の A-Scheme を用いる計算における炉内領域の分割に関する目安を得ることができる。一般に、炉心内におけるエピカドミウム中性子スペクトルの、場所による変動はあまり大きくない。このことは、炉心内の速い中性子の群定数を 1 種類の中性子スペクトルを用いて計算し、群定数の場所による変化を無視することを、ある程度支持するものである。しかし、厚い反射体の炉では、厳密には炉心内でもエピカドニウム中性子スペクトルが変化し、特に反射体境界付近で急激に変化はじめるから、スペクトルの場所による変化に注意しなければならない。このような体系では、速い中性子スペクトルを  $1/E$  分布と仮定すると、速い中性子に対する  $^{235}\text{U}$  の核分裂と炉心からの漏洩を過小評価することになる。特に 2 ないし 3 群の小数群理論による取り扱いでは  $1/E$  分布

からのずれの影響が重要になる。

(7) 式によって示されるように、 $\tau$  因子が 1 の場所が知られているならば、その場所におけるカドミウム比の測定値から  $I$  を求めることができる。SHE-I 炉心における  $\tau$  因子の理論値が 60 cm のところで 1 になる。そこのカドミウム比の測定値とサブカドミウム反応率に関する (7) 式の積分の値を用いると、 $^{235}\text{U}$  の 0.48 eV 以上の  $I$  は  $260 \pm 11$  パーンになる。これに対して断面積データを用いた計算値は 254 パーンである。また、この値は CLAYTON<sup>5)</sup> による 0.47 eV 以上の実効共鳴積分  $271 \pm 25$  パーンおよび HARDY 等<sup>6)</sup> による 0.5 eV 以上の実効共鳴積分  $274 \pm 11$  パーンと比較される。実効共鳴積分の測定値はフィルターの切断エネルギーの値に敏感に影響されるから、フィルターの切断エネルギーを正確に知ることが重要である。これらの問題については別にくわしく調べる。

**謝辞** 热中性子スペクトルを求めるために Lu に関する反応率の測定データを貸していただいた飯泉仁研究員に感謝します。また測定にあたって SHE 臨界集合体の運転をしていただいた樋口幸次郎氏および数値計算をしていただいた小田倉愛子娘に感謝します。

**付記** SHE-V, VI, VII, VIII 炉心における  $\tau$  因子の測定がおこなわれておらず、すでに V と VI について結果が得られている。これらの炉心については、体系の幾何学的形状が正確に考慮され、熱中性子スペクトルに関する 2 領域炉心内の基礎方程式が数値的に解かれている。この結果を用いて (7) 式の積分が評価される。また、円筒形フィルターの切断エネルギーについても計算をおこなっている。これらの結果は別の論文にまとめられる。

### 付録 1. $^{233}\text{U}$ , $^{235}\text{U}$ , $^{239}\text{Pu}$ のカドミウム切断エネルギー

核分裂物質の核分裂断面積に対するカドミウム切断エネルギーを計算する。これらの断面積は  $0.5\text{ eV}$  附近で  $1/\nu$  吸収体に対するものとそれぞれ若干異なっている。カドミウム切断エネルギー  $E'_c$  は、次式で与えられる。

$$\int_0^{\infty} T(E) \phi(E) \sigma_F(E) dE = \int_{E'_c}^{\infty} \phi(E) \sigma_F(E) dE \quad (\text{A1})$$

ここで  $T(E)$  は透過係数であり、等方中性子束で無限に薄い検出体に対して、次式で表わされる。

$$T(E) = e^{-\sum_{\text{Cd}} t} + (\sum_{\text{Cd}} t) E_i (-\sum_{\text{Cd}} t) \quad (\text{A2})$$

ここで  $\sum_{\text{Cd}}$  はカドミウムの巨視吸収断面積で、 $t$  はフィルターの厚さである。カドミウムの吸収断面積と核分裂断面積を簡単のために次式によって近似する。

$$\sigma(E) = \frac{1}{\sqrt{E}} \left[ a + \sum_i \frac{c_i}{b_i + (E - e_i)^2} \right] \quad (\text{A3})$$

Table A1. Parameters in cross section function.

|                   | $a$    | $c_i$     | $e_i$   | $b_i$    |
|-------------------|--------|-----------|---------|----------|
| Cd                | 0      | 10.360    | 0.177   | 0.003333 |
|                   |        | -0.0115   | 0.080   | 0.00025  |
| $^{233}\text{U}$  | 49.764 | 24.384    | 1.80    | 0.0225   |
|                   |        | 2.015     | 2.30    | 0.0025   |
|                   |        | 10.886    | 1.45    | 0.0625   |
|                   |        | 0.5693    | 0.43    | 0.040    |
|                   |        | 1.1068    | 0.0     | 0.065    |
|                   |        | 0.2787    | 0.80    | 0.040    |
|                   |        | 0.03284   | 0.28    | 0.010    |
|                   |        | -0.000597 | 0.115   | 0.000615 |
|                   |        | 7.5035    | 123.938 | -1.40    |
| $^{235}\text{U}$  |        | 0.2354    | 0.299   | 0.0049   |
|                   |        | 0.4513    | 1.122   | 0.005625 |
|                   |        | 0.3223    | -0.090  | 0.0081   |
|                   |        | 0.4759    | 0.850   | 0.040    |
|                   |        | 0.0297    | 0.400   | 0.004    |
|                   |        | 0.01735   | 0.025   | 0.004    |
|                   |        | 35.2      | 4.1396  | 0.297    |
|                   |        | 0.340     | 0.0     | 0.01053  |
| $^{239}\text{Pu}$ |        | 0.000065  | 0.0     | 0.000025 |
|                   |        | -0.016    | 0.100   | 0.0025   |

この式の各パラメータに WESTCOTT の値を用いたが、引用した値を Table A1 に示す。(A1) 式の積分は  $T(E)$  と断面積の関数形を考慮して  $0.01\text{ eV}$  から  $2\text{ eV}$  の間について 100 区間に分割して SIMPSON 法で IBM-7090 を用いておこなわれた。計算はフィルターの厚さと中性子スペクトルを変えて、(12) 式の中性子スペクトルについて  $\kappa_0 T$  を  $0.04\text{ eV}$  とし、 $r$  を 6 とし、 $A(E)$  に WESTCOTT の  $A_1(E)$  関数を用いておこなわれた。計算結果を Table A2 に示す。

Table A2. The effective cadmium cut-off energies of various detectors;  $t$  is the thickness of the filter.

| $\beta$ | $t$<br>(mm) | $E'_c$ (eV) |                  |                  |                   |
|---------|-------------|-------------|------------------|------------------|-------------------|
|         |             | $1/\nu$     | $^{233}\text{U}$ | $^{235}\text{U}$ | $^{239}\text{Pu}$ |
| -0.2    | 0.1         | 0.1733      | 0.1779           | 0.1694           | 0.2888            |
|         | 0.3         | 0.4485      | 0.4862           | 0.4099           | 0.3674            |
|         | 0.5         | 0.5551      | 0.6215           | 0.5285           | 0.4250            |
|         | 0.7         | 0.6149      | 0.7111           | 0.5994           | 0.4788            |
|         | 0.9         | 0.6620      | 0.7860           | 0.6551           | 0.5299            |
| -0.1    | 0.1         | 0.1756      | 0.1800           | 0.1722           | 0.2895            |
|         | 0.3         | 0.4447      | 0.4783           | 0.4074           | 0.3665            |
|         | 0.5         | 0.5497      | 0.6095           | 0.5226           | 0.4227            |
|         | 0.7         | 0.6088      | 0.6965           | 0.5926           | 0.4757            |
|         | 0.9         | 0.6554      | 0.7697           | 0.6476           | 0.5252            |
| 0       | 0.1         | 0.1779      | 0.1829           | 0.1750           | 0.2901            |
|         | 0.3         | 0.4411      | 0.4713           | 0.4050           | 0.3658            |
|         | 0.5         | 0.5444      | 0.5981           | 0.5172           | 0.4205            |
|         | 0.7         | 0.6028      | 0.6843           | 0.5859           | 0.4726            |
|         | 0.9         | 0.6489      | 0.7540           | 0.6402           | 0.5206            |
| 0.1     | 0.1         | 0.1804      | 0.1856           | 0.1778           | 0.2908            |
|         | 0.3         | 0.4377      | 0.4648           | 0.4027           | 0.3649            |
|         | 0.5         | 0.5393      | 0.5876           | 0.5121           | 0.4188            |
|         | 0.7         | 0.5970      | 0.6696           | 0.5794           | 0.4696            |
|         | 0.9         | 0.6426      | 0.7390           | 0.6332           | 0.5167            |
| 0.2     | 0.1         | 0.1835      | 0.1886           | 0.1808           | 0.2977            |
|         | 0.3         | 0.4346      | 0.4588           | 0.4005           | 0.3990            |
|         | 0.5         | 0.5345      | 0.5777           | 0.5071           | 0.4172            |
|         | 0.7         | 0.5916      | 0.6572           | 0.5734           | 0.4666            |
|         | 0.9         | 0.6366      | 0.7249           | 0.6263           | 0.5130            |

## 付録 2. 黒鉛内の熱中性子スペクトル

入射中性子のエネルギーと運動量を  $E, \mathbf{p}$  とし散乱された中性子のものを  $E', \mathbf{p}'$  とすると incoherent 近似による黒鉛の散乱断面積は、

$$\sigma_{\text{inc}}(\mathbf{p} \rightarrow \mathbf{p}') = \frac{\sigma_0}{8\pi^2 \hbar} \left( \frac{p'}{p} \right) \int_{-\infty}^{\infty} e^{-\frac{i}{\hbar}(E'-E)t} \times \exp \left[ \frac{4p_{\perp}^2}{\hbar^2} \{ W_{T,\parallel}(0,t) - W_{T,\perp}(0,0) \} + \frac{4p_{\perp}^2}{\hbar^2} \{ W_{T,\perp}(0,t) - W_{T,\perp}(0,0) \} \right] dt \quad (\text{A4})$$

ここで  $\sigma_0$  は束縛された核の散乱断面積であり、 $W_{T,\parallel}(0,t)$  と  $W_{T,\perp}(0,t)$  は結晶面に平行な振動モードと垂直な振動モードのホノンに関する相関関数であって、次式で与えられる。

$$W_{T,\parallel \text{ or } \perp}(0,t) = \frac{\hbar}{2M} \int_0^{\infty} \left\{ e^{-i\omega t} + \frac{2 \cos \omega t}{\exp(\hbar\omega/\kappa_0 T) - 1} \right\} \frac{g_{\parallel \text{ or } \perp}(\omega)}{\omega} d\omega \quad (\text{A5})$$

$M$  は中性子質量を単位とした散乱原子核の質量であり、 $\omega$  はホノンの角振動数であり、 $T$  は結晶の温度を表わし、 $\kappa_0$  は BOLTZMANN 定数である。 $g(\omega)$  はホノンの振動モードの規格化された 2 つの振動数分布関数を表わす。

必要な散乱断面積を求めるには散乱角について積分し、結晶面の向きについて平均をとる必要がある。低いエネルギーの中性子に対しては (A5) 式の指數関数を展開してホノン展開近似で計算し、高いエネルギーに対しては相関関数を時間で展開して短時間衝突近似で計算する。

ホノン展開近似による多結晶の原子核当りの断面積は次式で与えられる。

$$\sigma_{\text{inc}}(E \rightarrow E') = \frac{\sigma_0}{4\hbar k^2} \exp \{ (E-E')/2\kappa_0 T \} \times \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{r=0}^l \beta_{\parallel l-r} \beta_{\perp r} A_{l,r}(k, k') Q_{l,r}(\epsilon) \quad (\text{A6})$$

ここで  $l$  は散乱過程で生成消滅する全ホノンの数であり、 $r$  は結晶面に垂直方向の振動モードのホノンの数である。 $A_{l,r}$  と  $Q_{l,r}$  はそれぞれ次のような関数である。

$$A_{l,r}(k, k') = \int_0^1 \frac{(1-r^2)^{l-r} r^{2r}}{F(r)^{l+1}}$$

$$\times \sum_{s=0}^l \left[ \frac{\{(k-k')^2 F(r)\}^s}{S!} e^{-(k-k')^2 F(r)} - \frac{\{(k+k')^2 F(r)\}^s}{S!} e^{-(k+k')^2 F(r)} \right] dr \quad (\text{A7})$$

$$F(r) = (1-r^2) W_{T,\parallel}(0,0) + r^2 W_{T,\perp}(0,0)$$

$$k = p/\hbar$$

$$k' = p'/\hbar$$

$$Q_{l,r}(\epsilon) = \int_{-\infty}^{\infty} Q_{l-1,r-1}(\omega) \frac{g_{\parallel}(\omega) d\omega}{4M \beta_{\parallel} \omega \sinh(\hbar\omega/2\kappa_0 T)} \\ = \int_{-\infty}^{\infty} Q_{l-1,r}(\omega) \frac{g_{\perp}(\omega) d\omega}{4M \beta_{\perp} \omega \sinh(\hbar\omega/2\kappa_0 T)} \quad (\text{A8})$$

$$\hbar\epsilon = E' - E$$

$$\beta_{\parallel \text{ or } \perp} = \frac{\hbar}{2M} \int_0^{\infty} \frac{g_{\parallel \text{ or } \perp}(\omega)}{\omega \sinh(\hbar\omega/2\kappa_0 T)} d\omega$$

次に短時間衝突の断面積は次のようになる。

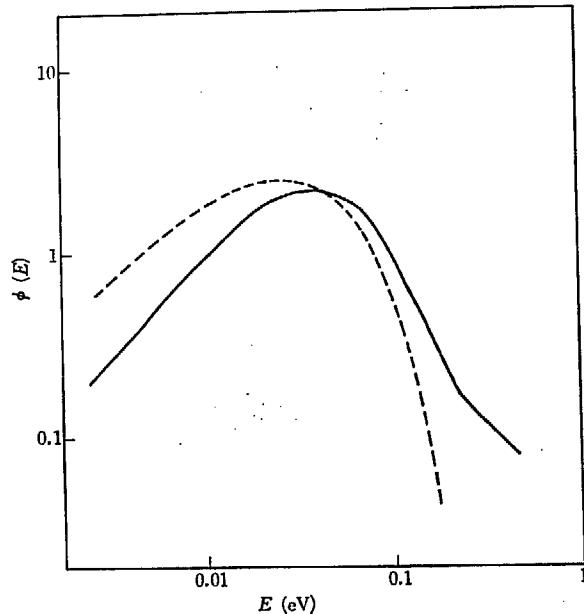


Fig A1. Neutron spectrum in the infinite medium of graphite moderator, absorption cross section per carbon atom is 130 mb; the broken curve is Maxwellian distribution at the room temperature.

$$\sigma_{\text{inc}}(E \rightarrow E') = \frac{\sigma_0}{4\sqrt{\pi}} \left( \frac{p'}{p} \right) \int_{-1}^1 \int_{-1}^1 \frac{1}{\gamma(\mu, \nu)} \times \exp \left[ -\frac{\zeta(\mu)^2}{\gamma(\mu, \nu)} \right] d\mu d\nu \quad (\text{A9})$$

$$\gamma(\mu, \nu) = \frac{1}{M} (E + E' - 2\sqrt{EE'}\mu) (K_{\parallel} (1 - \nu^2) + K_{\perp} \nu^2)$$

$$\zeta(\mu) = (E' - E) + \frac{1}{M} (E - E' - 2\sqrt{EE'}\mu)$$

$$K_{\parallel \text{ or } \perp} = \hbar \int_0^\infty \coth(\hbar\omega/2\kappa_0 T) \omega g_{\parallel \text{ or } \perp}(\omega) d\omega$$

これらの断面積を用いて無限大体系の熱中性子スペクトルを計算する。解かれるべき方程式は、

$$[\Sigma_a(E) + \Sigma_s(E)]\Psi(E) = \int_0^\infty \Sigma(E' \rightarrow E) \Psi(E') dE' + S(E) \quad (\text{A10})$$

である。この式の記号は一般に用いられるものと同じであり、常温で炭素原子核当り 130 mb の吸収断面積の系について数値的に解かれた。結果を常温の MAXWELL 分布とともに Fig A 1. 示す。これらのスペクトルは (13) 式に従って規格化されている。

## 参考文献

- 1) C. H. WESTCOTT : CRRP-960, Effective Cross Section Value for Well-Moderated Thermal Reactor Spectra (1960)
- 2) 飯泉 : 第 3 回原子力研究総合発表会, C 6 (1962)
- 3) K. INOUE *et al.* : JAERI 1032, Measurements and Calculations for Graphite-Moderated Enriched-Fuel Critical Assembly, SHE (1962)
- 4) 飯泉 : 私信
- 5) E. D. CLAYTON : AECD 4167, Epi-Cadmium Fission in  $^{235}\text{U}$  (1955)
- 6) J. HARDY, JR., D. KLEIN, and G. C. SMITH : The Resonance Fission Integral of  $^{235}\text{U}$ ,  $^{239}\text{Pu}$  and  $^{241}\text{Pu}$ , Nuclear Sci. and Eng. 9, 341 (1961)