

JAERI-M

6668

放射性同位体製造資料-1194

ガドリニウム・ターゲットの検討  
( $^{161}\text{Tb}$ の製造と強い熱中性子吸収体 $\text{Gd}_2\text{O}_3$   
におけるRI生成量)

1976年8月

関根俊明・馬場宏

この報告書は、日本原子力研究所が JAERI-M レポートとして、不定期に刊行している研究報告書です。入手、複製などのお問い合わせは、日本原子力研究所技術情報部（茨城県那珂郡東海村）あて、お申しこしてください。

JAERI-M reports, issued irregularly, describe the results of research works carried out in JAERI. Inquiries about the availability of reports and their reproduction should be addressed to Division of Technical Information, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken, Japan.

## ガドリニウム・ターゲットの検討

(  $^{161}\text{Tb}$  の製造と強い熱中性子吸収体  $\text{Gd}_2\text{O}_3$  における RI 生成量 )

日本原子力研究所アイソトープ事業部製造部

関根俊明・馬場宏

( 1976年7月20日受理 )

天然同位体組成のガドリニウムをターゲットとして、 $(n, \gamma)$  反応により  $^{161}\text{Tb}$  ( $\beta^-$  崩壊、半減期 6.9 日) を製造するさいに役立てるため、ターゲット中の希土類元素不純物の定量を行なうと共に、 $^{161}\text{Tb}$  生成量の計算値と実験値とを比較することを試みた。

熱中性子の自己遮蔽と副反応を考慮した放射化分析により、市販の最高純度の酸化ガドリニウム中に、イッテルビウム 10 ppm, ルテチウム 58 ppm, ユーロピウム 53 ppm, テルビウム 0.08 ppm が含まれていることを見出した。

板状試料について、熱中性子の自己遮蔽、熱外中性子の寄与、原子核の burn-out, 多重中性子捕獲を考慮して生成放射能を計算するプログラムを作成した。これによる  $^{153}\text{Gd}$ ,  $^{160}\text{Tb}$ ,  $^{161}\text{Tb}$  生成量の計算値は実験値の  $1/2 \sim 2$  倍の範囲で一致した。

Impurities of the radioisotopes produced in (n,  $\gamma$ ) reactions: Purity of the product  $^{161}\text{Tb}$  and radioisotope yields in strongly-neutron-absorbing  $\text{Gd}_2\text{O}_3$ .

Toshiaki SEKINE and Hiroshi BABA

Division of Radioisotope Production, Radioisotope Center,  
JAERI

(Received July 20, 1976)

The radioisotope  $^{161}\text{Tb}$  with 6.9-day half-life is produced in  $^{160}\text{Gd}(n, \gamma)^{161}\text{Gd}$  reaction followed by  $\beta^-$  decay of  $^{161}\text{Gd}$ . Described are the impurities in the gadolinium oxide reagent used as a target for producing  $^{161}\text{Tb}$  and yields of the radioisotopes in the material.

The impurities of 10 ppm Yb, 58 ppm Lu, 53 ppm Eu and 0.08 ppm Tb existed in the gadolinium oxide reagent, which is the purest commercially available at present. These impurity values were determined by activation analysis under such irradiation conditions as unaffected by thermal neutron self-shielding and secondary reaction.

A computer program has been developed for calculation of the yields, taking into consideration the thermal neutron self-shielding, epithermal neutron capture, burn-out and successive neutron capture. In the disk target, the yields calculated of  $^{153}\text{Gd}$ ,  $^{160}\text{Tb}$  and  $^{161}\text{Tb}$  are in agreement with the experimental ones within a factor of two.

## 目 次

|   |    |
|---|----|
| 1. まえがき .....   | 1  |
| 2. $^{161}\text{Tb}$ の調製とターゲット中の不純物 .....                       | 3  |
| 2.1 陽イオン交換法による $^{161}\text{Tb}$ の調製 .....                      | 3  |
| 2.2 ガドリニウム の再照射 .....   | 4  |
| 2.3 テルビウム の放射化分析 .....  | 7  |
| 2.4 希土類元素不純物の放射化分析 .....  | 8  |
| 3. 熱中性子自己遮蔽, 熱外中性子, 原子核の burn-out が影響する場合の<br>生成放射能の計算と実験 ..... | 11 |
| 3.1 計 算 法 .....   | 11 |
| 3.1.1 熱中性子と熱外中性子による放射化 .....                                    | 11 |
| 3.1.2 平板状試料中の中性子束 .....   | 11 |
| 3.1.3 熱外中性子の自己遮蔽 .....  | 13 |
| 3.1.4 一般化された Bateman 方程式 .....                                  | 13 |
| 3.1.5 数値計算 .....  | 15 |
| 3.2 円板状ターゲットによる実験 .....   | 15 |
| 3.3 結果と考察 .....   | 18 |
| 4. 結 論 .....  | 25 |
| 文 献 .....   | 26 |
| 付 録 .....   | 28 |

## 1. ま え が き

$^{161}\text{Tb}$  は 6.9 日の半減期で  $\beta^-$  崩壊する核種であって、ガドリニウムの原子炉照射のさいに  $^{160}\text{Gd}$  の中性子捕獲によって生じた  $^{161}\text{Gd}$  が 3.6 分の半減期で  $\beta^-$  崩壊することによって生成するので、無担体で得られる点に特長がある。

$^{161}\text{Tb}$  を製造するさいの主要なプロセスは  $^{161}\text{Tb}$  のガドリニウム・ターゲットからの分離であるが、これには  $\alpha$ -ヒドロキシソラク酸を溶離剤とした陽イオン交換法を使うことができる。この方法による希土類元素ラジオアイソトープの製造については夏目<sup>1)</sup>、久保田<sup>2),3)</sup>、天野らの詳しい研究がある。 $^{161}\text{Tb}$  の製造法についても既に夏目と佐藤<sup>4)</sup>によって研究されているので、彼らの方法をそのまま用いることができる。したがって本報告ではその方法によって  $^{161}\text{Tb}$  の製造が可能であることを確認するに止め、主眼を含まれてくる放射化学的不純物  $^{160}\text{Tb}$  と burn-out が無視し得ない場合の生成放射能の推定の問題に置いた。

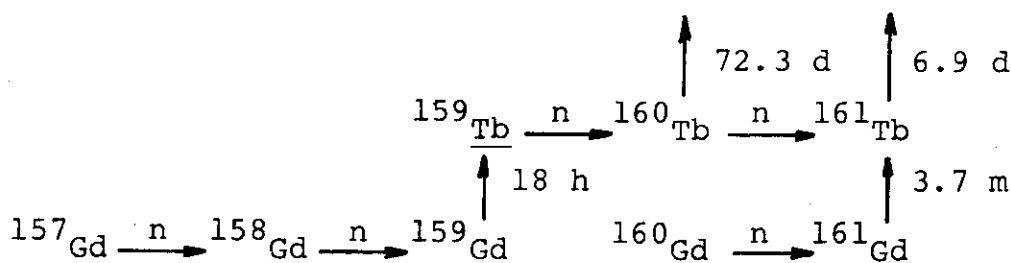


Fig. 1 Gadolinium neutron capture chain.

天然同位体組成のガドリニウムを中性子照射したときに起る核反応のうち、関連する部分を図式的に表わすと Fig. 1 のようになる。これから、主たる不純物核種である  $^{160}\text{Tb}$  の生成経路には、(1)不純物として含まれるテルビウムによる  $^{159}\text{Tb}(n, \gamma)^{160}\text{Tb}$  と (2)  $^{158}\text{Gd}(n, \gamma)^{159}\text{Gd} \xrightarrow{\beta^-} ^{159}\text{Tb}(n, \gamma)^{160}\text{Tb}$  との 2 つが考えられる。(1)の経路の寄与を知るためにはテルビウムの含量を知らねばならない。第 2 章では  $^{161}\text{Tb}$  製造法と共にターゲット中のテルビウム等の希土類元素不純物の分析について述べる。

ガドリニウムの熱中性子捕獲断面積は  $49000\text{ b}$  (原子断面積) と非常に大きいので、ガドリニウム・ターゲット中に生成する放射能を計算するには熱中性子の自己遮蔽を考慮しなければならない。単純な熱中性子束の自己遮蔽を補正するための式はよく知られているが、<sup>5)</sup> 今の場合、更に burn-out を考慮する必要がある。すなわち、 $^{161}\text{Tb}$  の製造に要する照射時間 (約 300 時間) 内に、大きな熱中性子捕獲断面積をもつ原子核は burn-out してしまうため、ガドリニウムの同位体比が時間と共に変化する。因みに、 $^{157}\text{Gd}$  が  $2 \times 10^{13}\text{ n/cm}^2/\text{sec}$  の熱中性子束のもとで半減するに要する時間は 40 時間である。また、熱中性子を自己遮蔽してしまう結果、熱外領域の中性子による放射化の寄与が無視できなくなる。<sup>6)</sup>

このような問題を取扱った報文には、Scoville らのジスプロシウムにおける burn-up の<sup>7)</sup> 計算と実験があるが、彼らの場合、熱中性子束の自己遮蔽は無視されている。Clarke は酸化<sup>8)</sup> ガドリニウム中の中性子束分布と burn-up を計算するコードについて報告し、Görner は炉

内におかれたカドミウム・シールドの burn-out の計算を行なっている。これらの報文を参考にして、熱中性子自己遮蔽，熱外中性子，原子核の burn-out が影響する場合の生成放射能の計算法を開発した結果を第4章において述べると共に，計算値と実験値とを比較する。

## 2. $^{161}\text{Tb}$ の調製とターゲット中の不純物

### 2.1 陽イオン交換法による $^{161}\text{Tb}$ の調製

Johnson Matthey 社製 specpure 酸化ガドリニウム 208mg を高純度銅箔に包んでターゲットとし、JRR-2 原子炉の VT-4 照射孔で 1 サイクル照射 (290 時間) し、数日間冷却した後化学処理を行なった。まず濃硝酸でターゲットを銅箔と共に溶解のち、赤外ランプで蒸発乾固し、濃塩酸を加えて蒸発乾固することを 2 回繰り返してから、6N HCl で満たした陰イオン交換樹脂カラム (Cl 型, ダイイオン SA#100, 100~200 メッシュ, 10mm $\phi$  × 10 cm) に注いだ。20ml の 6N HCl で希土類元素を流出させ、銅と分離した。溶出液を蒸発濃縮してから水を加えて 0.1N HCl 溶液に調製し、陽イオン交換樹脂カラム (NH<sub>4</sub> 型, ダイイオン SK#1, 100~200 メッシュ, 10mm $\phi$  × 28 cm) に吸着させ、5 ml の水でピッカーとカラムを洗浄した。

希土類元素の相互分離は、夏目・佐藤<sup>4)</sup>の方法に従った。すなわち、25M  $\alpha$ -ヒドロキシソラク酸 (HB と表わす) およびそのアンモニウム塩 (NH<sub>4</sub>B) 溶液から 2 種の溶離液を調製した。溶離液 I は 0.5M HB と 0.5M NH<sub>4</sub>B とが 166 対 34 という組成であって、PH は 3.21 である。溶離液 II は 0.5M HB と 0.5M NH<sub>4</sub>B とが 155 対 45 という組成で PH は 3.40 である。初めに溶離液 I を用いてテルビウムを溶離し、次に溶離液 II によってガドリニウムを溶離した。溶離速度は 30 ml/hr であった。溶出液はポリエチレン管で GM 管に導き、計数率計で放射能をモニターしつつ、適宜メスシリンダーに分取した。溶出液の一滴ずつをステンレス試料皿にとり、GM 管で放射能を測定して得た溶離曲線を Fig. 2 に示す。

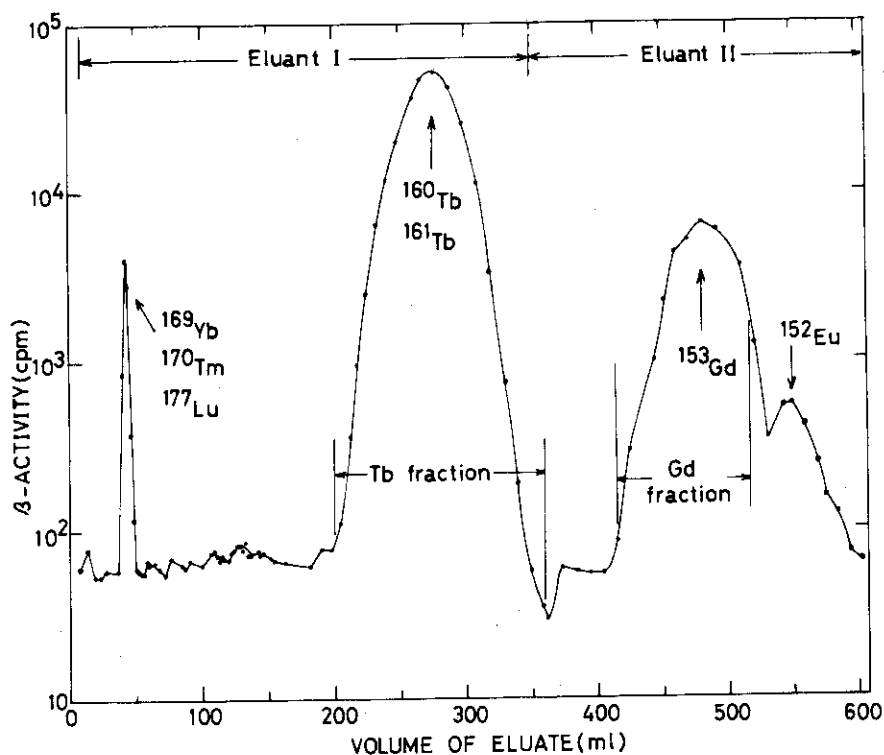


Fig. 2 Elution curve of the chromatographic separation of irradiated gadolinium oxide.



濃縮するために分取されたテルビウム・フラクシオンは次のようにして塩酸形に変えた。まず、このフラクシオンに含まれるアンモニウム塩と当量の1N HClを加えてから陽イオン交換樹脂カラム(H型, ダイイオンSK#1, 100~200メッシュ, 6mmφ×15cm)に吸着させた。40mlの2N HClでアンモニウムイオンを溶出させた後, 40mlの6N HClでテルビウムを溶離した。溶出液は赤外ランプで蒸発乾固してから1N HClを加え, ポリエチレン製の棒ビンに入れてγ線測定を行なった。ユーロピウム・フラクシオンも同様な処理を行なったが, イッテルビウム等のフラクシオンは体積が小さいので, 加熱濃縮するだけでγ線測定に移した。

Elscint社製の相対計数効率8%のGe(Li)検出器を用いてγ線スペクトルを測定し, Fig.2に示した各フラクシオンに含まれる放射性核種を同定した。Fig.3-aには低エネルギーの部分を示してあるが, ほとんどのピークは $^{161}\text{Tb}$ によるものである。ただ, 299 keVのγ線は $^{160}\text{Tb}$ に帰属する。Fig.3-bには高エネルギー部分を示したが, ここでは $^{160}\text{Tb}$ の放出するγ線だけが見出された。57 keVのピークをIAEA製標準線源の $^{241}\text{Am}$ の放出する60 keVのγ線強度と比較することにより,  $^{161}\text{Tb}$ の照射終了時における生成量として $5.8 \times 10^7$  dpsを得た(生成量の決定については3.4を参照されたい)。同様に, 299 keVと879 keVのピークの面積から $^{160}\text{Tb}$ 生成量として $5.7 \times 10^3$  dpsを得た。

## 2.2 ガドリニウムの再照射

前節で分取されたガドリニウム・フラクシオンにはテルビウムは含まれていないので, これを再び中性子照射して, テルビウムをガドリニウムから分離すれば,  $^{158}\text{Gd}$ の逐次反応による $^{160}\text{Tb}$ の生成について調べることができる。

ガドリニウム・フラクシオンからガドリニウムを回収してターゲットとするために次のような操作を行なった。まず, このフラクシオンに含まれるアンモニウム塩と当量の1N HClを加えてから, 飽和ショウ酸水溶液を加えてショウ酸ガドリニウムを沈殿させた。沈殿は一晩放置してから口過し, 1%ショウ酸水溶液とエタノールで洗浄した。沈殿をろ紙と共に磁製ルツボに移し, 灰化・強熱して酸化ガドリニウム $\text{Gd}_2\text{O}_3$  1.78 mgを得た。これを前節と同様に高純度銅箔に包んだ。この酸化ガドリニウム中には, 約 $100 \mu\text{Ci}$ の $^{153}\text{Gd}$ (半減期242日)が含まれているので, 更に石英アンプルに封じてターゲットとし, JRR-2原子炉のVT-4照射孔によって1サイクル照射した。

照射後, 2.1で述べたと同様な化学処理を行なった。陽イオン交換における溶離曲線をFig.4に示す。この場合の溶離液の組成は2.1の場合と同じであるが, ガドリニウムの溶離が終るまで溶離液Iを用いている点が異なる。この理由は次節2.3に述べるように, テルビウムの放射化分析に役立つためである。なお, ガドリニウムの溶出ののちユーロピウムが溶出しているが, Fig.2から分るように, これはガドリニウムとユーロピウムの分離が不十分であるために混入したものである。

テルビウム・フラクシオンのγ線スペクトルは $^{160}\text{Tb}$ が生成していることを示した。照射終了時における $^{160}\text{Tb}$ の生成量は $9.8 \times 10^2$  dps,  $^{161}\text{Tb}$ の生成量は $3.2 \times 10^7$  dpsであった。酸化ガドリニウム試料を包んだ銅箔は試料と共に溶かされているので, 銅箔だけを照射するブラ

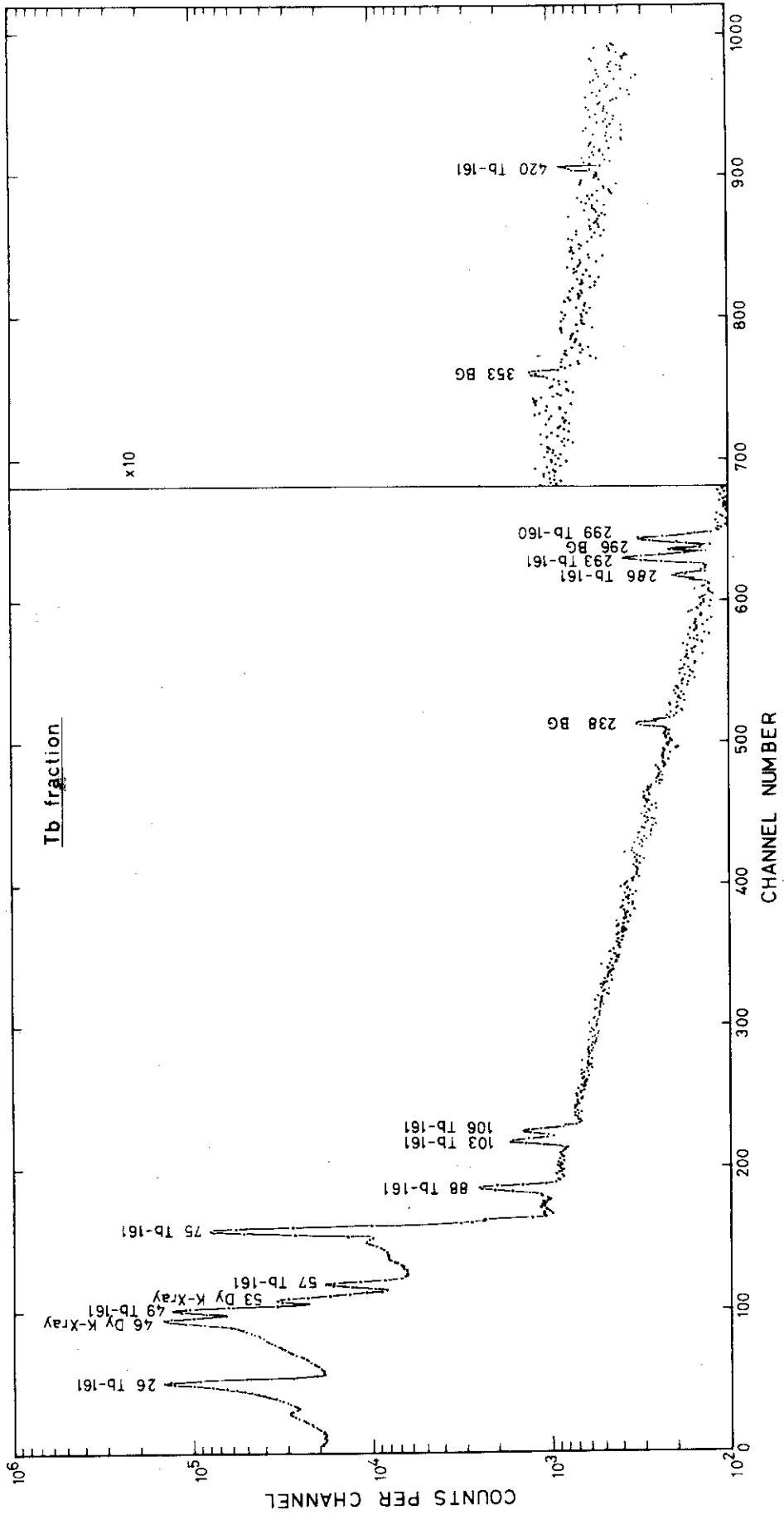


Fig. 3-a Photon spectrum of the terbium fraction measured 38 days after irradiation.

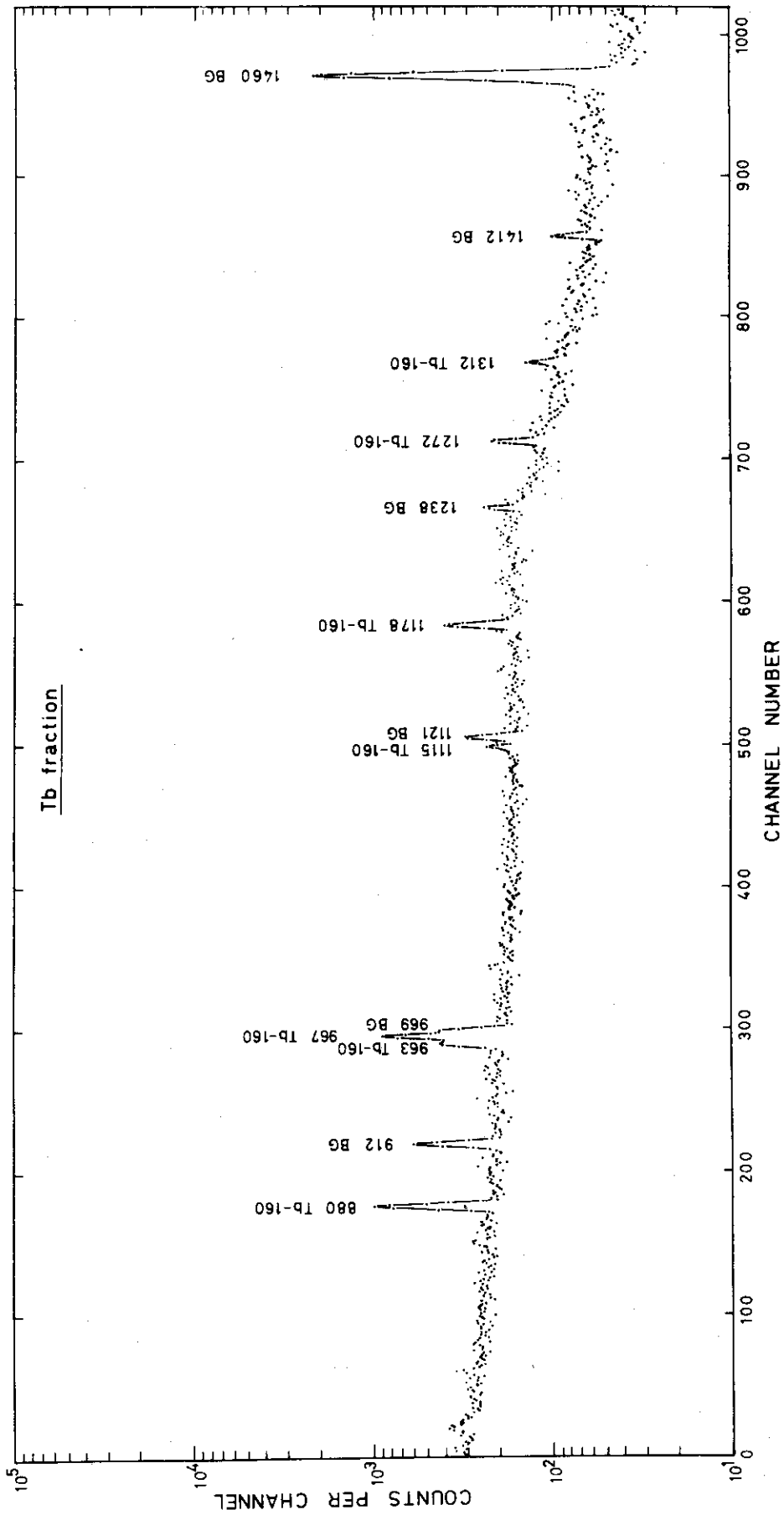


Fig. 3-b Photon spectrum of the terbium fraction measured 46 days after irradiation.

ソク・テストを行なったが、 $^{160}\text{Tb}$ は検出されなかった。

まえがきで述べたような熱中性子の自己遮蔽と burn-out による同位体比の変化があることと、中性子束モニターを行なっていないことのために、これまでの結果について定量的な結論は下せないが、再照射実験における  $^{160}\text{Tb}$  の生成量は一回目の照射実験でのそれに近いことから、かなりの量の  $^{160}\text{Tb}$  は  $^{158}\text{Gd}$  の逐次反応によっていることが分る。

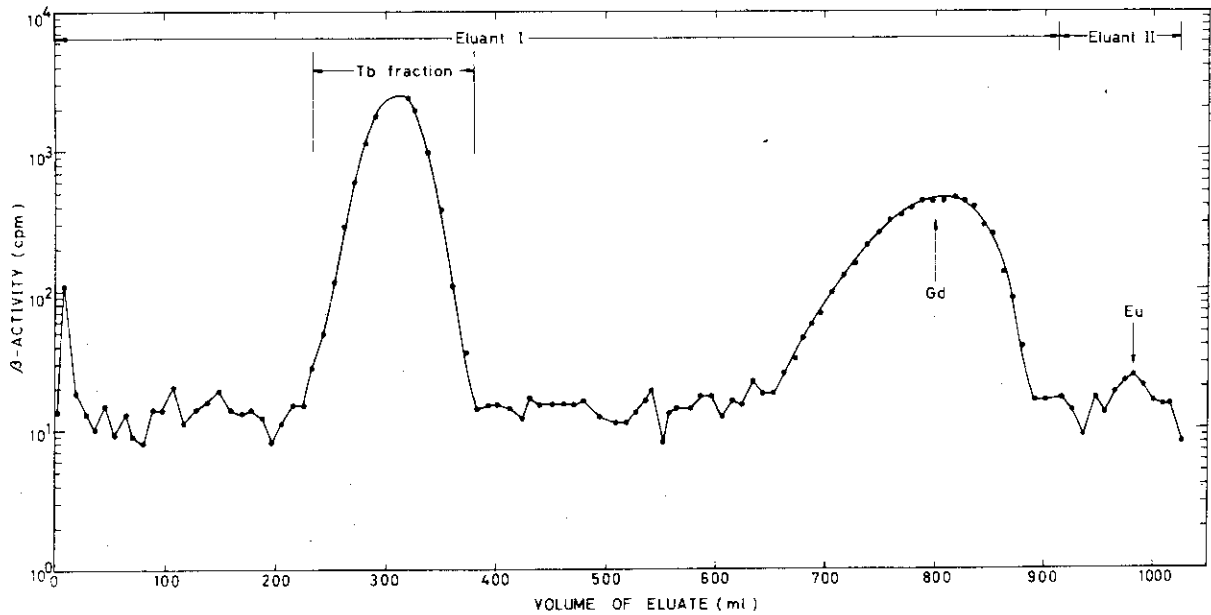


Fig. 4 Elution curve of the chromatographic separation of the re-irradiated gadolinium from which terbium was removed before irradiation.

### 2.3 テルビウムの放射化分析

前節の結果から、 $^{160}\text{Tb}$  の生成には  $^{158}\text{Gd}$  の逐次反応の寄与が大きいことが明らかになったが、次に不純物テルビウムによる  $^{160}\text{Tb}$  の生成量を計算するために、テルビウムの定量を試みた。微量のテルビウムを検出するには中性子放射化法が優れているが、ガドリニウムの共存は著しく妨害となる。この問題は、中性子照射前にテルビウムをガドリニウムから分離しておくことによって解決される。

そこで、未照射の酸化ガドリニウム 22mg について 2.2 と同様な陽イオン交換法によって希土類元素の相互分離を行なった。このとき溶出位置の指標とするために  $^{153}\text{Gd}$  を加え、このガドリニウムの溶出位置からテルビウムの溶出位置を推定した。この方法は久保田・天野<sup>2)</sup>らが酸化ユーロピウム中のガドリニウムの定量に用いている。テルビウムのフラクションは塩酸形に変えてから加熱濃縮し、石英アンプルに入れて蒸発乾固してから封じて試料とした。テルビウムの標準試料は Johnson Matthey 社製 Specpure 酸化テルビウム  $\text{Tb}_4\text{O}_7$  を硝酸で溶解し、石英アンプル中で蒸発乾固して封じて調製した。この標準試料中のテルビウムの量は  $0.109\mu\text{g}$  であった。

これらを空試験用の石英アンブルと共に JRR-2 原子炉で 1 サイクル照射し、そのまま Ge (Li) 検出器による  $\gamma$  線測定を行なった。得られたスペクトルを Fig. 5 に示す。最下段のスペクトルが酸化ガドリニウム試薬から分離したテルビウムによるものである。このスペクトルに  $^{82}\text{Br}$  の  $\gamma$  線ピークが認められるのは、分離操作中に臭素が混入したものである。  $^{160}\text{Tb}$  の  $\gamma$  線の中では 880 keV のピークが顕著に認められる。これと 299 keV  $\gamma$  線のピーク面積を標準試料のそれと比較した結果、酸化ガドリニウム試薬中に含まれるテルビウムは  $0.08 \pm 0.03$  ppm であると結論された。

#### 2.4 希土類元素不純物の放射化分析

ガドリニウム・ターゲット中の不純物を定量することを目的として、2.1 で検出されたイッテルビウム、ツリウム、ルテチウム、ユーロピウムの放射化分析を試みた。

放射化分析では分析する目的の試料とその中の対象となる元素の既知量を含む標準試料を同一条件で中性子照射し、生成放射能を比較して定量する。ガドリニウム試料においては熱中性子自己遮蔽を無視できないので、標準試料の方も熱中性子自己遮蔽を同一にしなければならない。それには標準試料そのものを目的の分析試料に加えれば良い。原理的には標準試料が添加されていない試料と標準試料が添加された試料の 2 個の試料を照射すれば目的は達せられるが、以下に述べる実験においては標準試料の添加量の異なる 4 個の試料を調製し、標準試料の添加量と生成放射能の比例性を調べた。

酸化ガドリニウムを硝酸で溶解し、 $\text{Gd}_2\text{O}_3$  に換算して 2.05 mg に相当する量のガドリニウムを含む溶液 0.1 ml を直径 2 cm の口紙に吸収させて試料とした。添加する標準試料は Johnson Matthey 社製 specpure 酸化イッテルビウム、酸化ツリウム、酸化ルテチウム、酸化ユーロピウム、酸化テルビウムを塩酸または硝酸に溶解してから硝酸ガドリニウム溶液に加え、0.1 ml を口紙に吸収させて作成した。テルビウムはこの方法では定量できないが、2.3 で得られた結果と矛盾しないことを確かめるために添加した。これらの口紙試料はそれぞれ高純度アルミニウム箔に包み、JRR-2 原子炉で 1 サイクル照射した。

照射終了後、試料をアルミニウム箔に包んだまま Ge (Li) 検出器でその  $\gamma$  線スペクトルを測定した。添加したユーロピウムの量と生成放射能の関係を Fig. 6 に示す。縦軸には  $^{153}\text{Gd}$  の放出する 97 keV  $\gamma$  線のピーク面積  $A_{97}$  と  $^{152}\text{Eu}$  の放出する 122 keV  $\gamma$  線のピーク面積  $A_{122}$  との比をとってある。ユーロピウムの添加量を  $X$  ppm とすると、Fig. 6 から

$$\frac{A_{122}}{A_{97}} = a \cdot X + b \quad (1)$$

という関係がよく成立していることが分る。ここで定数  $a$ ,  $b$  について  $a = 0.000385 (\text{ppm}^{-1})$ ,  $b = 0.0204$  という値が得られた。これから、求めるユーロピウムの含量は  $b/a = 53$  ppm であった。同様に 208 keV  $\gamma$  線からルテチウムが 58 ppm, 177 keV  $\gamma$  線からイッテルビウムが 10 ppm 含まれていることが求められた。しかし、ツリウムについては  $^{170}\text{Tm}$  の放出する 84 keV の  $\gamma$  線が  $^{153}\text{Gd}$  の  $\gamma$  線のコンプトン散乱によって隠されてしまうため、この方法では定量できなかった。なお、テルビウムは 0.4 ppm 以下となり、前節の結果と矛盾はしなかった。

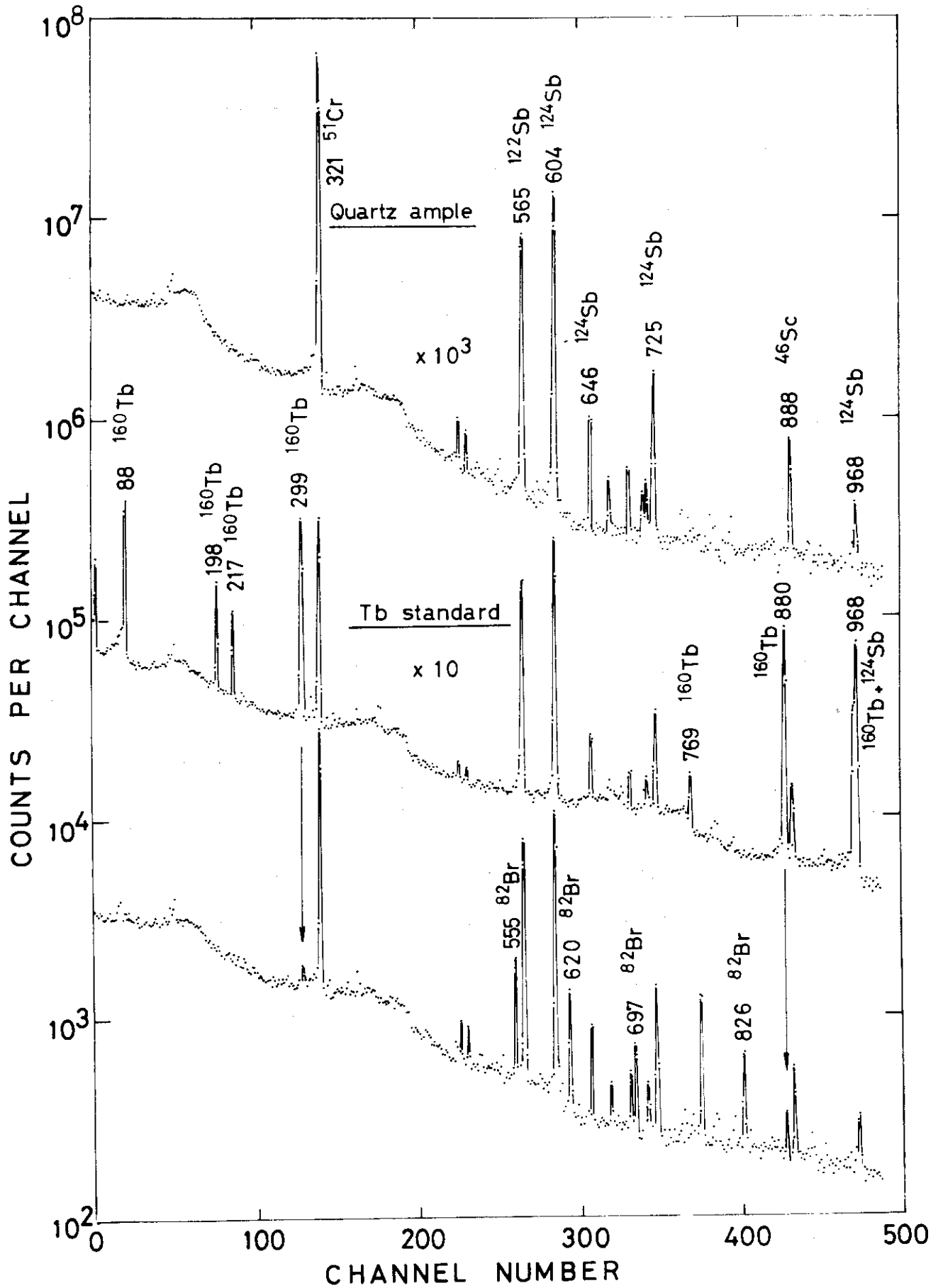


Fig. 5 Photon spectra of the quartz ample, the terbium standard and the terbium fraction separated from the gadolinium oxide reagent. They were measured 12 days after irradiation.

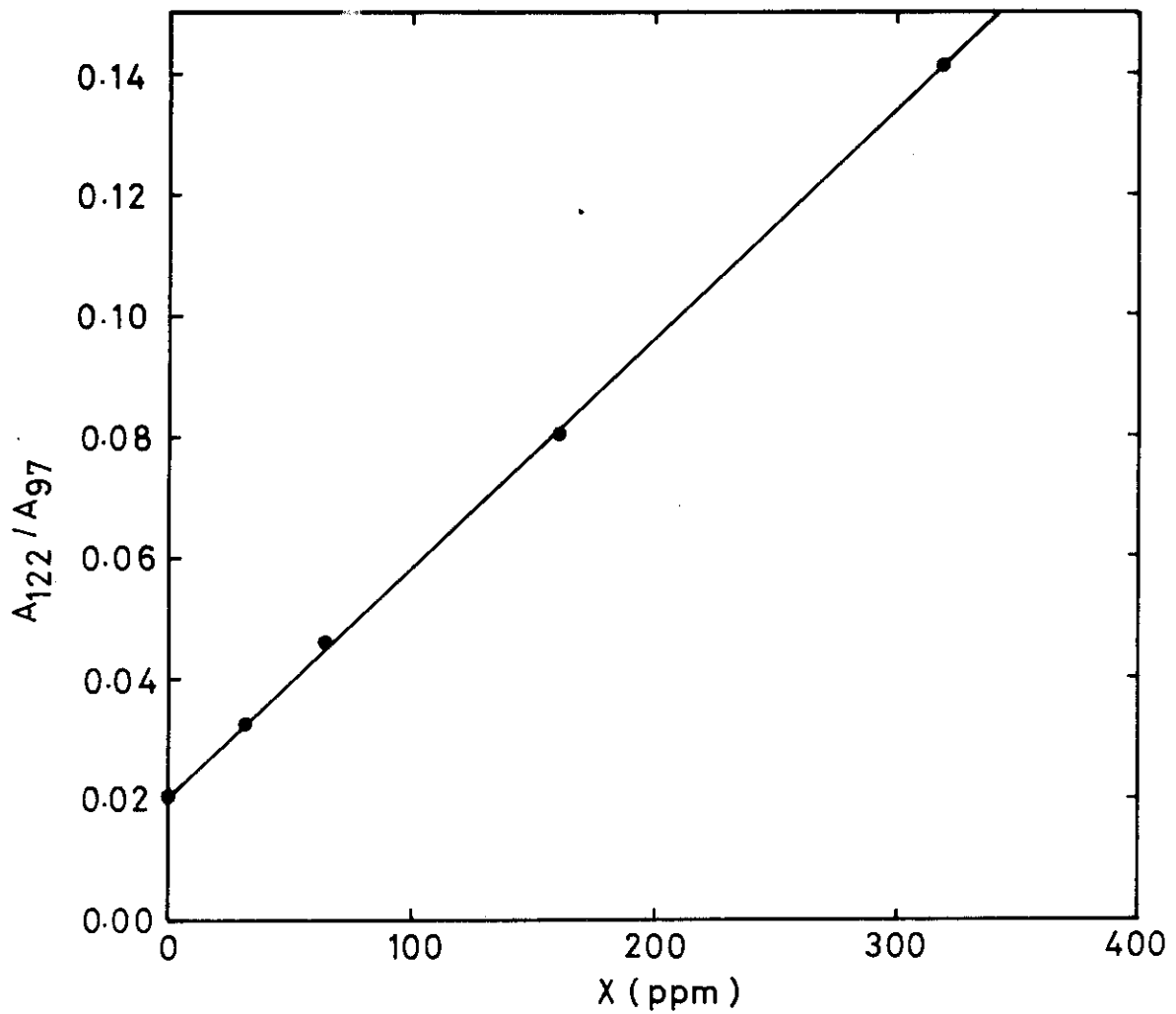


Fig. 6 A relation between the peak intensity ratio and the amount of europium added to the gadolinium oxide reagent. The symbols are defined in the text.

### 3. 熱中性子自己遮蔽, 熱外中性子, 原子核の burn-out が影響する場合の生成放射能の計算と実験

#### 3.1 計算法

これからの取扱いは次のような仮定または条件のもとに進める。

- (1) 原子炉内の中性子は広い範囲のエネルギーを持っているが、ここでは熱中性子と熱外中性子とに分け、それぞれを単一エネルギー的に取扱う。熱外中性子の自己遮蔽も熱中性子の場合と同様に存在するが、この場合は試料全体としてではなく、個々の共鳴レベルについて考える。
- (2) 試料の形状は無限に広い平板とする。
- (3) ガドリニウムを原子炉内に置いたために起きる熱中性子束の低下は、自己遮蔽と共に中性子散乱媒質が存在するために起きるが、<sup>9)</sup>多くの場合、ターゲットの大きさが小さいことと、それがアルミニウムまたは空気中に置かれるので、この効果は無視できるほど小さい。

#### 3.1.1 熱中性子と熱外中性子による放射化

Westcott<sup>10)</sup>らによると良く熱化された中性子スペクトルに対して、実行断面積 $\hat{\sigma}$ は次式によって表わされる。

$$\hat{\sigma} = \sigma_0 \left( g + r \sqrt{\frac{T}{T_0}} s_0 \right) \quad (2)$$

ここで、 $\sigma_0$ は中性子の速度が2200 m/secの時の断面積、 $r\sqrt{T/T_0}$ は中性子スペクトルにおける熱外中性子の成分の相対的な密度、 $g$ は $1/v$ 法則からのずれに依存する因子である。また、 $s_0 = (2/\sqrt{\pi}) (I_0'/\sigma_0)$ であるが、ここで $I_0'$ は共鳴積分から $1/v$ 成分を引き去った量である。(2)式で定義された実行断面積 $\hat{\sigma}$ を使うと、一原子当りの反応率 $R$ は $\hat{\sigma}$ と $nv_0$ の積に等しい。ここで、 $n$ は熱中性子と熱外中性子との両方を含む中性子密度で、 $v_0 = 2200$  m/secである。よって

$$R = nv_0 \sigma_0 \left( g + r \sqrt{\frac{T}{T_0}} s_0 \right) \quad (3)$$

となる。

中性子の自己遮蔽を考えるさいに、(3)式の右辺第1項と第2項とは別々に取扱う。すなわち、右辺第1項は単一エネルギーと仮定し、 $nv_0$ の中性子束が断面積 $\sigma_0 g$ で吸収されて自己遮蔽が起こるとみなす( $nv_0$ は厳密な意味では中性子束ではない。この点については文献10を参照されたい)。この第1項に関する自己遮蔽については次節で、第2項の場合については3.1.3で述べる。

#### 3.1.2 平板状試料中の中性子束

今、中性子束 $nv_0$ の一樣な場の中に平板状試料が置かれたとする。また、次のことを仮定する。(a)試料の中で散乱は起らない。(b)中性子はへりを通して入らない。すなわち、板の直径は厚さに比して十分大きい。(c)試料表面について見ると、どの部分でも中性子束は一定である。

Fig. 7のように座標軸をとると、深さ $x \sim x + dx$ において、単位時間、単位体積当りに吸収される中性子の数は<sup>11)</sup>



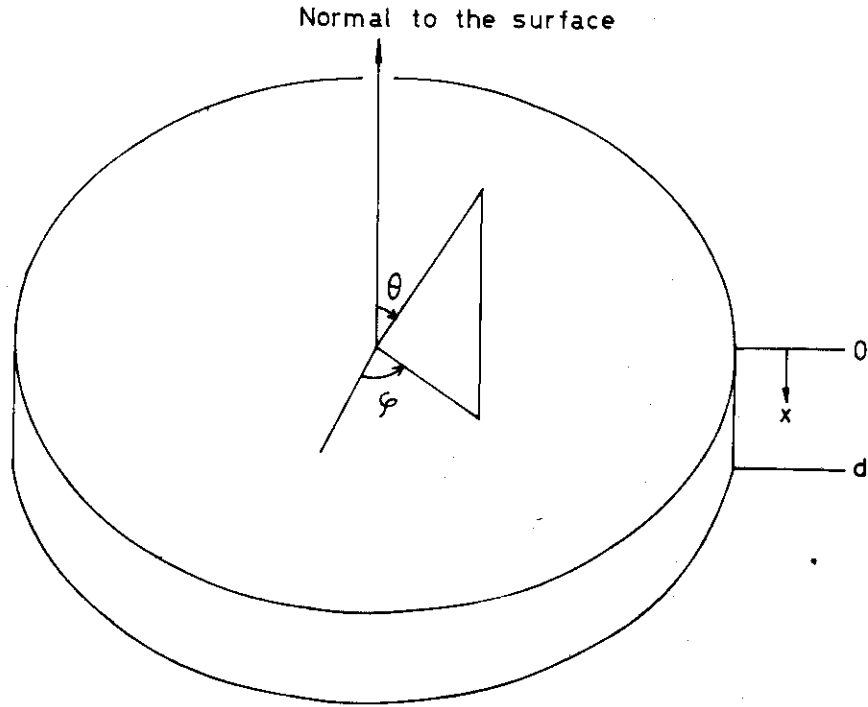


Fig. 7 Geometry for self-shielding calculation.

$$P(x) dx = \left[ \int_0^{\pi/2} \int_0^{2\pi} \frac{nv_0}{4\pi} e^{-\frac{\mu x}{\cos\theta}} \sin\theta d\theta d\varphi \right] \mu dx + \left[ \int_{\pi/2}^{\pi} \int_0^{2\pi} \frac{nv_0}{4\pi} e^{-\frac{\mu(d-x)}{|\cos\theta|}} \sin\theta d\theta d\varphi \right] \mu dx \quad (4)$$

である。右辺の第1項は試料の上から入射する中性子の寄与を表わし、第2項は下から入射する中性子の寄与を表わしている。ここで $\mu$ は線吸収係数である。(4)式から、次式で定義される量 $F(x)$ は深さ $x$ における中性子束を与える。

$$F(x) = \int_0^{\pi/2} \int_0^{2\pi} \frac{nv_0}{4\pi} e^{-\frac{\mu x}{\cos\theta}} \sin\theta d\theta d\varphi + \int_{\pi/2}^{\pi} \int_0^{2\pi} \frac{nv_0}{4\pi} e^{-\frac{\mu(d-x)}{|\cos\theta|}} \sin\theta d\theta d\varphi = \frac{nv_0}{2} \int_0^{\pi/2} \left[ e^{-\frac{\mu x}{\cos\theta}} + e^{-\frac{\mu(d-x)}{\cos\theta}} \right] \sin\theta d\theta \quad (5)$$

ここまでは、暗黙のうちに $\mu$ を一定と考えて来たが、実際には原子核のburn-outによって時間 $t$ と深さ $x$ とにつれて変化することを考慮して、 $\mu(x, t)$ と書き直す。そして、これを用いて次の量 $u(x, t)$ を定義する。

$$\int_0^x \mu(y, t) dy = u(x, t) \quad (6)$$

この量を用いると、時間と共に変化する中性子束 $F(x, t)$ は(5)式から次のように書ける。

$$F(x, t) = \frac{nv_0}{2} \int_0^{\pi/2} \left[ e^{-\frac{u(x, t)}{\cos\theta}} + e^{-\frac{u(d-x, t)}{\cos\theta}} \right] \sin\theta d\theta = \frac{nv_0}{2} \left[ e^{-u(x, t)} - u(x, t) \int_{u(x, t)}^{\infty} \frac{e^{-q}}{q} dq + e^{-u(d-x, t)} - u(d-x, t) \int_{u(d-x, t)}^{\infty} \frac{e^{-q}}{q} dq \right] \quad (7)$$

なお、熱中性子自己遮蔽係数  $G_{th}(t)$  は次式で計算される。

$$G_{th}(t) = \frac{\int_0^d F(x, t) dx}{nv_0 d} \quad (8)$$

### 3.1.3 熱外中性子の自己遮蔽

(3)式の第2項、熱外中性子による反応率を  $R_{epi}$  と表わし、自己遮蔽係数  $G_{epi}$  を導入すると

$$R_{epi} = nv_0 \sigma_0 r \sqrt{\frac{T}{T_0}} S_0 G_{epi} \quad (9)$$

となる。(8)式で定義された  $G_{th}(t)$  とは異なり、 $G_{epi}$  は個々のアイソトープについて与えられ、次のようにして計算できる。<sup>12)</sup>

$$G_{epi} = \frac{I'}{I'_0} \approx \frac{1}{I'_0} \sum_i \frac{\pi \sigma_{0i} \Gamma_{\gamma i}}{2 E_{0i}} G_{ri} \quad (10)$$

ここで、

$$I'_0 = \sum_i \frac{\pi \sigma_{0i} \Gamma_{\gamma i}}{2 E_{0i}} \quad (11)$$

で、 $E_{0i}$ 、 $\sigma_{0i}$ 、 $\Gamma_{\gamma i}$  はそれぞれ  $i$  番目の共鳴レベルの共鳴エネルギー、全断面積のピーク値、<sup>13)</sup> 輻射巾である。 $G_{ri}$  は  $i$  番目の共鳴レベルについての自己遮蔽係数で Trubey らの方法によって計算した。

$$G_{ri} = \begin{cases} 1 + \frac{\tau_i \ell_n \tau_i}{4} - 0.3274 \tau_i & \tau_i \ll 1 \\ \frac{4}{3\pi} \cdot \frac{1}{\sqrt{\tau_i}} & \tau_i \gg 1 \end{cases} \quad (12)$$

ここで、

$$\tau_i = \sigma_{0i} \frac{\Gamma_{\gamma i}}{\Gamma_i} \cdot Nd \quad (13)$$

である。(13)式の  $\Gamma_i$  は  $i$  番目の共鳴レベル全巾 ( $=\Gamma_{\gamma i} + \Gamma_{ni}$ ) である。 $N$  は単位体積当りの問題のアイソトープの数である。(12)式では  $\tau_i \approx 1$  の場合の  $G_{ri}$  は計算できないので、(12)式で表わされる2本の曲線をグラフ紙上に描き、それらを滑らかに接続する曲線を描くことによって、 $\tau_i \approx 1$  での  $G_{ri}$  を求めた。Fig. 8 に  $G_{ri}$  を示す。

### 3.1.4 一般化された Bateman 方程式

Fig. 1 で示されたような連鎖反応系について、一般化された形の生成量の関係式について述べる。今、Fig. 9 に示したように、 $(n, \gamma)$  反応と  $\beta^-$  崩壊で結び合された系を考える。ここで  $N_{k\ell}$  は  $k$  と  $\ell$  の添字で指定された核種の数を表わす。 $k$  は原子番号に関し、 $\ell$  は質量数に関するものである。 $\lambda_{k\ell}$  は  $(k, \ell)$  核の崩壊定数であり、 $R_{k\ell}$  は(3)式の内容(中性子の自己遮蔽があるので、これと全く同じではない。)を持った反応率である。時間  $t$  経過した時、原子核の生成と消滅に関し次式が成り立つ。

$$\frac{dN_{k\ell}}{dt} = - (R_{k\ell} + \lambda_{k\ell}) N_{k\ell} + R_{k(\ell-1)} N_{k(\ell-1)} + \lambda_{(k-1)\ell} N_{(k-1)\ell} \quad (14)$$

これを解くと、時間  $t$  における  $N_{k\ell}$  は次式で表わされる。<sup>14)</sup>

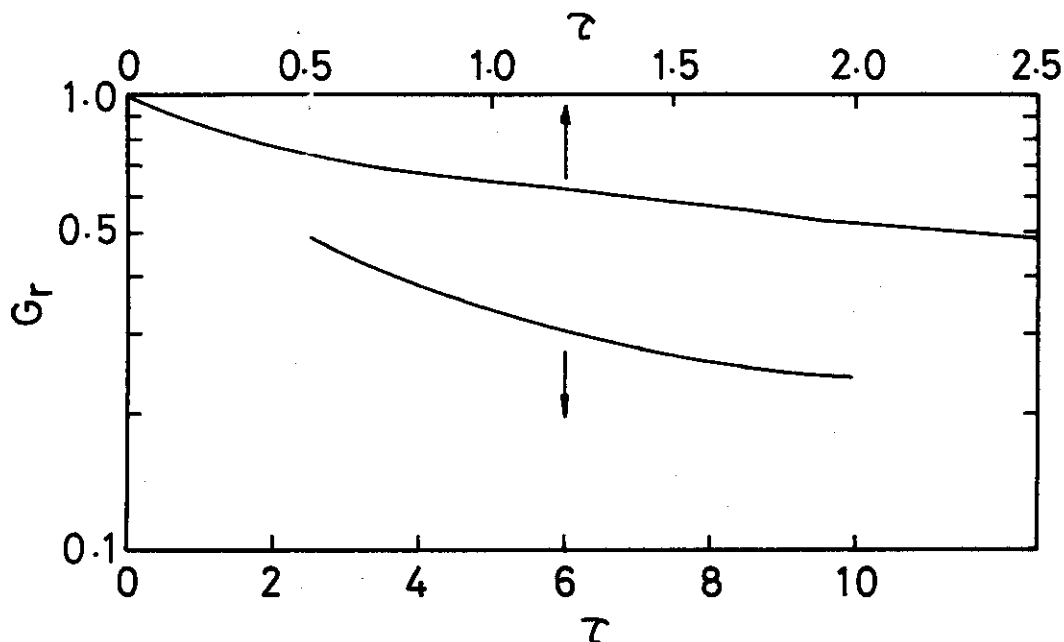


Fig. 8 Calculated values of the self-shielding factor for a single resonance absorption as a function of  $\tau$ , the linear absorption coefficient at the relevant resonance energy multiplied by the thickness.

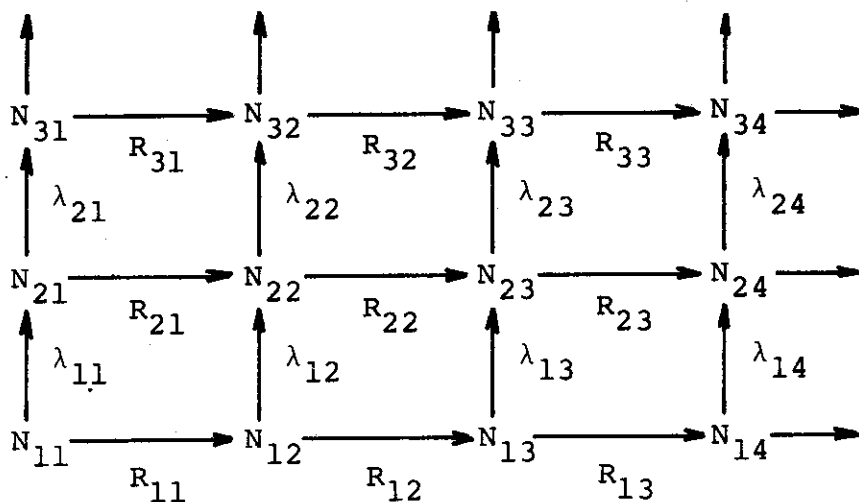


Fig. 9 The chain of neutron capture and  $\beta^-$  decays.

$$N_{kl} = \sum_{r=1}^k \sum_{s=1}^l C_{klrs} \exp [ - ( R_{rs} + \lambda_{rs} ) t ] \tag{15}$$

ここで  $C_{klrs}$  は  $r \neq k$  か  $s \neq l$  のとき,

$$C_{klrs} = \frac{\lambda_{(k-1)l} C_{(k-1)lrs} + R_{k(l-1)} C_{k(l-1)rs}}{(R_{kl} + \lambda_{kl}) - (R_{rs} + \lambda_{rs})} \tag{16}$$

であり,  $r > k$  または  $s > l$  のとき,

$$C_{klrs} = 0 \tag{17}$$

である。また,  $t = 0$  における  $(k, l)$  核の数を  $N_{kl}^0$  と表わすと,

$$C_{klkl} = N_{kl}^0 - \sum_{r,s}^{k,l} C_{klrs} \quad (18)$$

である。この式の右辺の和記号の肩に付された'印は、和をとる時に $C_{klkl}$ それ自身を除くことを意味している。

### 3.1.5 数値計算

3.1.1 ~ 3.1.4 までに述べた要素の全てを取り入れた解析的な解は得られないので、深さ  $x$ 、時間  $t$  をそれぞれ小さな間隔  $\Delta x$  と  $\Delta t$  に分割して計算する。ここで、 $N_{ijkl}$  ( $i = 1, 2, \dots$ ,  $d/\Delta x$ ;  $j = 1, 2, \dots$ ) は深さ  $i \Delta x$ 、時間  $j \Delta t$  における ( $k, l$ ) 核の単位体積当りの数を表わすものとする。

時間  $(j-1) \Delta t$  における中性子束  $F_{ij}$  (熱中性子断面積  $\sigma_0 g$  に関する中性子である。) を求めるための線吸収係数は、

$$\mu_{ij} = \sum_r \sum_s \sigma_{0rs} g_{rs} N_{i(j-1)rs} \quad (19)$$

で与えられる。ここで和は  $r$  と  $s$  との全てについてとるものとする。こうすると(6)式で定義された  $u(x, t) = u_{ij}$  は次式で与えられる。

$$u_{ij} = \sum_{k=1}^{i-1} \mu_{kj} \quad (19)$$

$u(d-x, t)$  は次の量  $U_j$ 、

$$U_j = \sum_{k=1}^{d/\Delta x} \mu_{kj} \quad (20)$$

を定義すると、 $u(d-x, t) = U_j - u_{ij}$  である。これを使うと、中性子束は(7)式により

$$F_{ij} = \frac{nv_0}{2} \left[ e^{-u_{ij}} - u_{ij} \int_{u_{ij}}^{\infty} \frac{e^{-q}}{q} dq + e^{-(U_j - u_{ij})} - (U_j - u_{ij}) \int_{U_j - u_{ij}}^{\infty} \frac{e^{-q}}{q} dq \right] \quad (21)$$

と表わされる。(21)式を用いて表わした反応率

$$R_{ijrs} = F_{ij} \sigma_{0rs} q_{rs} + nv_0 r^* \sqrt{\frac{T}{T_0}} \sigma_{0rs} S_{0rs} G_{epirs} \quad (22)$$

を(19)、(20)式に代入すれば、 $N_{ijkl}$  が決定される。上式で、 $r^*$  は(3)式の  $r$  に等しい。また、(18)式の  $N_{kl}^0$  は  $N_{i(j-1)kl}$  とすることになる。

## 3.2 円板状ターゲットによる実験

円板状ターゲットの半径は一定にし、酸化ガドリニウムの量を変化させた2つの実験AとBとを行なった。実験Aでは酸化ガドリニウムと黒鉛とを均一になるように乳鉢で良く混合して圧縮成型した試料を用い、実験Bでは酸化ガドリニウムだけを圧縮成型して試料とした。Table 1 にそれぞれの含量と直径、厚さを示す。これらの試料は高純度アルミニウム箔に包み、中性子束モニターであるCo-Al合金線 (Co 0.475%) と共に照射した。Fig. 10 と 11 とに試料と中性子束モニターの配置を示す。ここでBlankと書いてあるのは黒鉛だけの空試験用試料である。

Table 1 Details of the targets and irradiation conditions in the experiments A and B.

| Sample | Weight of $Gd_2O_3$ (mg) | Weight of graphite (mg) | Diameter (mm) | Thickness (mm)        | $nv_0$ ( $n/cm^2/sec$ ) | $t_{eff}$ (hour) |
|--------|--------------------------|-------------------------|---------------|-----------------------|-------------------------|------------------|
| A-1    | 8.20                     | 245.80                  | } 13.1        | 0.95                  | $1.92 \times 10^{13}$   | } 280.8          |
| A-2    | 20.76                    | 229.57                  |               | $1.83 \times 10^{13}$ |                         |                  |
| A-3    | 47.95                    | 172.21                  |               | $1.75 \times 10^{13}$ |                         |                  |
| B      | 272.15                   | 0.00                    |               | 0.55                  | $2.19 \times 10^{13}$   | 291.0            |

これらの試料はJRR-2原子炉のVT-4照射孔で1サイクル照射された。Fig.12と13はそのさいの原子炉の運転実績を示している。

照射後、Elscint社製またはORTEC社製の相対計数効率8%のGe(Li)検出器によって $\gamma$ 線を測定し、生成放射能を求めた。実験Aではアルミニウム箔に包んだままの試料を検出器表面から80 cm離して測定した。この時全計数率が2000~4400 cps となったので、Anders<sup>15)</sup>の方法と類似の方法でパルス・パイルアップによる計数損失を補正した。Andersはパルス発生器からの周期的パルスを標準に用いたが、ここでは $0.8 \mu Ci$ の $^{113}Sn$ 線源を検出器表面から10 cmの距離に置き、試料と共に測定した場合と単独の場合との392 keV  $\gamma$ 線のピーク面積の差から補正係数を決定した。この補正係数は1.01~1.05であった。実験Bでは試料を塩酸で溶かして体積を100 mlとし、そのうちの1 mlをポリエチレン製棒ビンによって測定した。

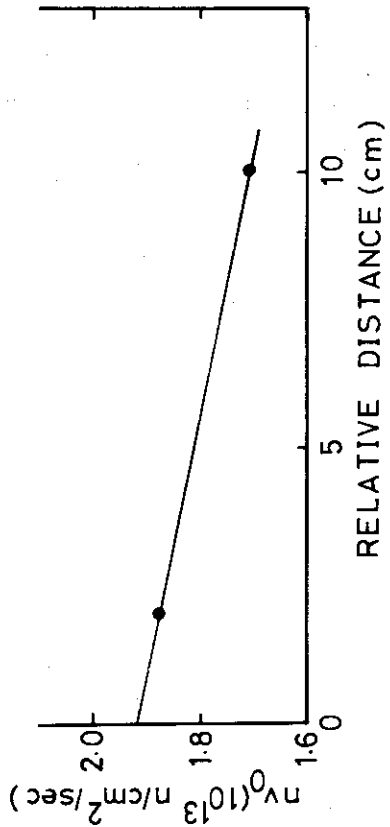
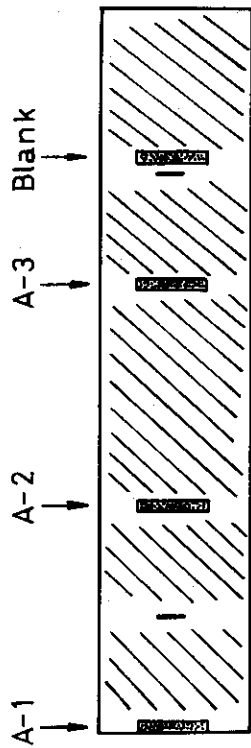
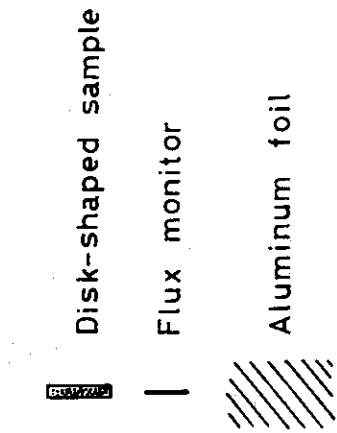


Fig. 10 The target assembly and the neutron flux distribution in the experiment A.

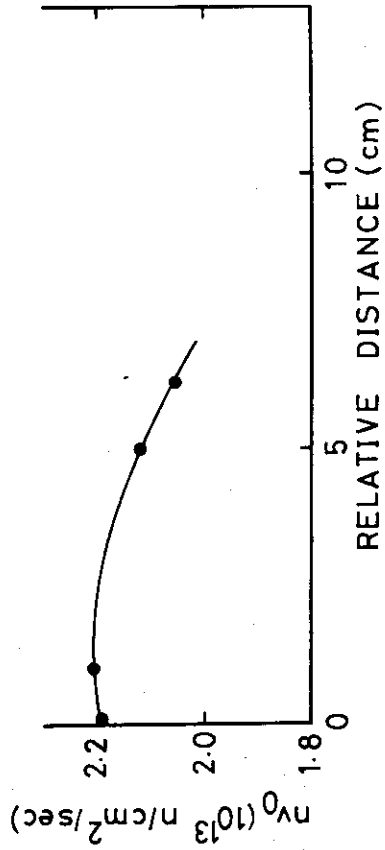
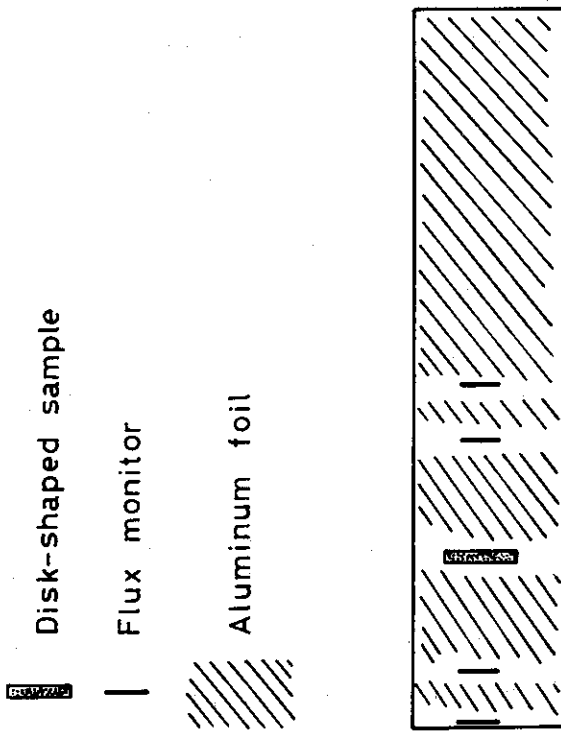


Fig. 11 The target assembly and the neutron flux distribution in the experiment B.

### 3.3 結果と考察

$\gamma$ 線スペクトルのピーク面積に計数効率,  $\gamma$ 線強度, 試料による $\gamma$ 線吸収, 減衰の補正を行なって照射終了時の生成放射能を求めた。計数効率の較正はIAEA製の標準線源によって行なった。用いた $\gamma$ 線のエネルギーと強度はTable 2に示してある。 $\gamma$ 線の自己吸収はStorm<sup>16)</sup>から<sup>17)</sup>の全吸収断面積についての計算値を使って補正した。<sup>16)</sup>Tbの放出する57 keVの $\gamma$ 線の場合にこの吸収される割合が最も大きく, 試料A-3では20%であった。

計算に用いた核データ等はTable 3に示してある。同位体の天然存在比, 半減期,  $\sigma_0$ 等は文献18と19とから得たが,  $I_0'$ の値は文献18に与えられている共鳴パラメーターから(1)式によって計算したものである。ただし, <sup>152</sup>Gdについては, 共鳴パラメーターから計算した $I_0'$ はSteinnesの実測値<sup>20)</sup>3000 b (=  $I_0$ ,  $1/v$ 部分を含む。)の $1/10$ に過ぎないので,  $I_0' = I_0 - 0.45\sigma_0$ という式によって計算した。ここで $0.45\sigma_0$ はカドミウム・カットオフ・エネルギーが0.5 eVの時の共鳴積分に対する $1/v$ 部分の寄与である。<sup>152</sup>Gdの場合には共鳴パラメーターが使えないので,  $G_{epi}$ の値は求められない。それ故に, 計算では $G_{epi} = 1$ と仮定した。また, 全ての場合について $g = 1$ と仮定して計算した。

用いた照射位置での $r\sqrt{T/T_0}$ の値は文献20の<sup>198</sup>Au生成量のカドミウム比から0.007と推定した( $R_{cd} \approx 22$ ,  $g = 1.01$ ,  $\sigma_0 = 9.88$  b,  $I_0' = 1491$  b,  $G_{th} = 0.969$ ,  $G_{epi} = 0.394$ ,  $K$ -係数<sup>10)</sup> $= 2.35$ )。これを用いると中性子束測定に用いた<sup>59</sup>Co( $n, \gamma$ )<sup>60</sup>Co反応における $r\sqrt{T/T_0} \sigma_0$ の値は0.013となる( $\sigma_0 = 3.72$  b,  $g = 1$ ,  $I_0' = 6.02$  b,  $G_{th} = 1.00$ ,  $G_{epi} = 1.00$ )。(3)式によって計算した $nv_0$ から内挿または外挿した試料の位置での $nv_0$ をTable 1に示してある。

Figure 12と13とに実験AとBとにおける原子炉の出力の変動を示す。それぞれ1回の出力低下があるが, 問題にしている核種の半減期が出力変動時間に比較して十分長いので, 計算を簡単にするため図の点線で示した時刻を照射開始時刻と仮定し, 出力は常に一定として計算した。一定出力10 MWで運転されたと考えた時の照射時間 $t_{eff}$ をTable 1に示す。

付録に示したプログラムBOET1を用いて, FACOM 230-75計算機により,  $\Delta x$ と $\Delta t$ とを種々変えて計算した。その結果, 生成量の計算上の誤差を1%以下にするには $\Delta t \leq 5$  hr,  $\mu \Delta x \leq 0.15$ にすれば良いことが見出された。

照射終了時における放射能の実測値と計算値とをFig. 14~16に示す。横軸には試料中の酸化ガドリニウムの重量をとった。この場合, 試料の重量以外の因子, すなわち, 中性子束と照射時間も少しく異なるが, 実測値と計算値との傾向を示すにはこれが適当と思われる。実測値に付した誤差は $\pm 3\sigma$ を示している。また, Fig. 15の<sup>160</sup>Tbの場合に下向きの矢印を付けた実測値は, <sup>160</sup>Tbが明瞭には検出できず上限値を与えるに止まったことを示すものである。まえがきで述べたように, <sup>160</sup>Tbは<sup>158</sup>Gd( $n, \gamma$ )<sup>159</sup>Gd  $\xrightarrow{\beta^-}$  <sup>159</sup>Tb( $n, \gamma$ )<sup>160</sup>Tbという反応と, 試料中に不純物として0.08 ppm含まれているテルビウムから生成する場合の2つの過程によって生成する。計算によれば, 後者は前者の $1/20$ 以下である。Fig. 15には両者の和を示してある。また, 計算値は熱中性子と熱外中性子の寄与の合計と熱中性子だけの寄与( $r\sqrt{T/T_0} = 0$ として計算した。)とで表わしてある。

実験値と計算値とを比較すると, かなり良く一致している所もあるが, 全体として見ると,

Table 2 List of the used  $\gamma$ -ray energies and intensities of  $^{153}\text{Gd}$ ,  $^{160}\text{Tb}$  and  $^{161}\text{Tb}$ .

| Radioisotope      | Energy (keV) | Intensity (per 100 decays) |
|-------------------|--------------|----------------------------|
| $^{153}\text{Gd}$ | 97.5         | 30.0                       |
|                   | 103.2        | 22.5                       |
| $^{160}\text{Tb}$ | 298.5        | 35                         |
| $^{161}\text{Tb}$ | 57.2         | 2.5                        |
|                   | 74.6         | 14                         |

Table 3 The values used for the calculation of the yields of  $^{153}\text{Gd}$ ,  $^{160}\text{Tb}$  and  $^{161}\text{Tb}$  induced in gadolinium and graphite mixtures.

| Isotope           | Natural abundance (%) | Half-life | $\sigma_0$ (b) | $I_0'$ (b) | $G_{\text{epi}}$ |       |       |       |      |       |       |       |       |
|-------------------|-----------------------|-----------|----------------|------------|------------------|-------|-------|-------|------|-------|-------|-------|-------|
|                   |                       |           |                |            | A-1              | A-2   | A-3   | B     |      |       |       |       |       |
| $^{152}\text{Gd}$ | 0.20                  | 242 d     | 1100           | 2500       | 1.00             | 1.00  | 1.00  | 1.00  |      |       |       |       |       |
| $^{153}\text{Gd}$ |                       |           |                |            |                  |       |       |       |      |       |       |       |       |
| $^{155}\text{Gd}$ | 14.9                  |           | 61000          |            |                  |       |       |       |      |       |       |       |       |
| $^{156}\text{Gd}$ | 20.6                  |           | 1.5            |            |                  |       |       |       |      |       |       |       |       |
| $^{157}\text{Gd}$ | 15.7                  |           | 254000         |            |                  |       |       |       |      |       |       |       |       |
| $^{158}\text{Gd}$ | 24.7                  | 18.0 h    | 2.5            | 59.9       | 0.973            | 0.942 | 0.881 | 0.680 |      |       |       |       |       |
| $^{159}\text{Gd}$ |                       |           |                |            |                  |       |       |       |      |       |       |       |       |
| $^{160}\text{Gd}$ | 21.7                  |           | 0.77           |            |                  |       |       |       | 6.96 | 0.994 | 0.986 | 0.968 | 0.874 |
| $^{161}\text{Gd}$ |                       |           | 31000          |            |                  |       |       |       |      |       |       |       |       |
| $^{159}\text{Tb}$ | 100                   | 72.3 d    | 25.5           | 325        | 1.00             | 1.00  | 1.00  | 1.00  |      |       |       |       |       |
| $^{160}\text{Tb}$ |                       |           |                |            |                  |       |       |       |      |       |       |       |       |
| $^{161}\text{Tb}$ |                       |           | 6.9 d          |            |                  |       |       |       |      |       |       |       |       |



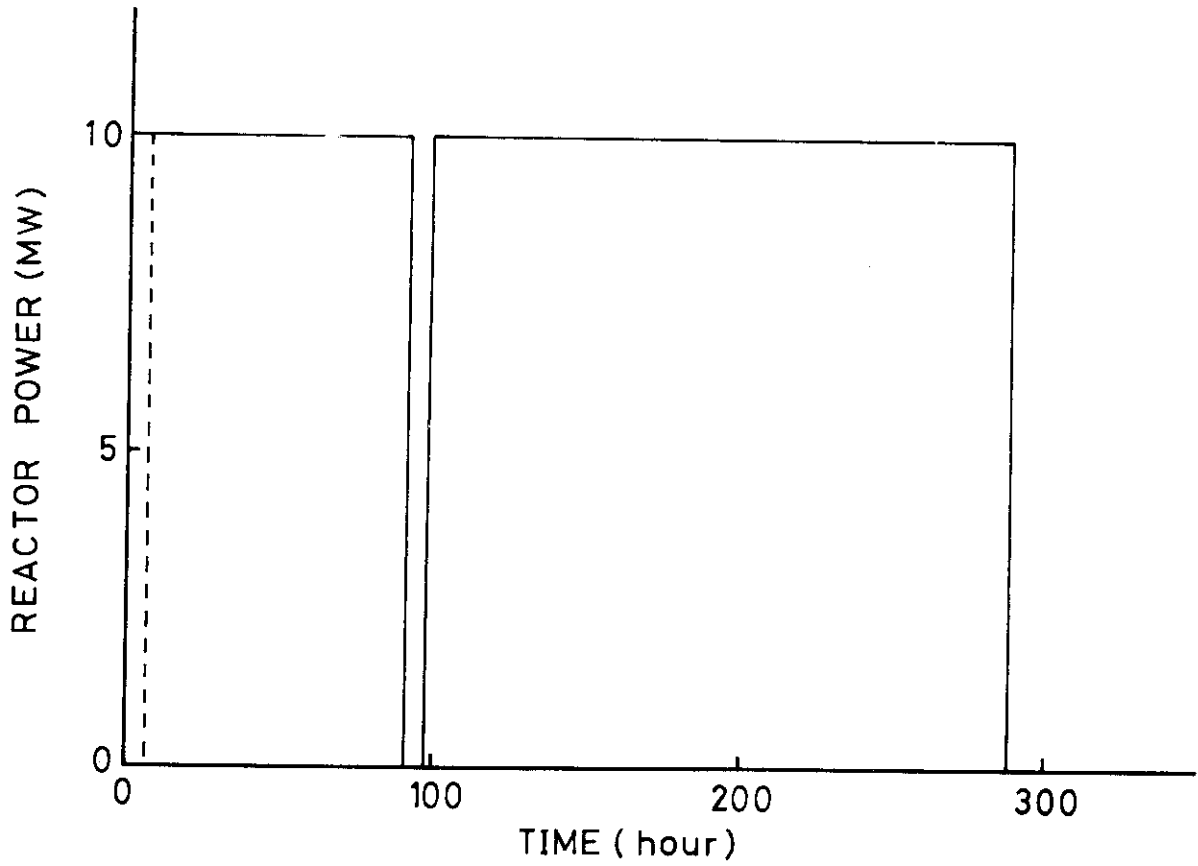


Fig.12 The change of the reactor power in the irradiation of the experiment A.

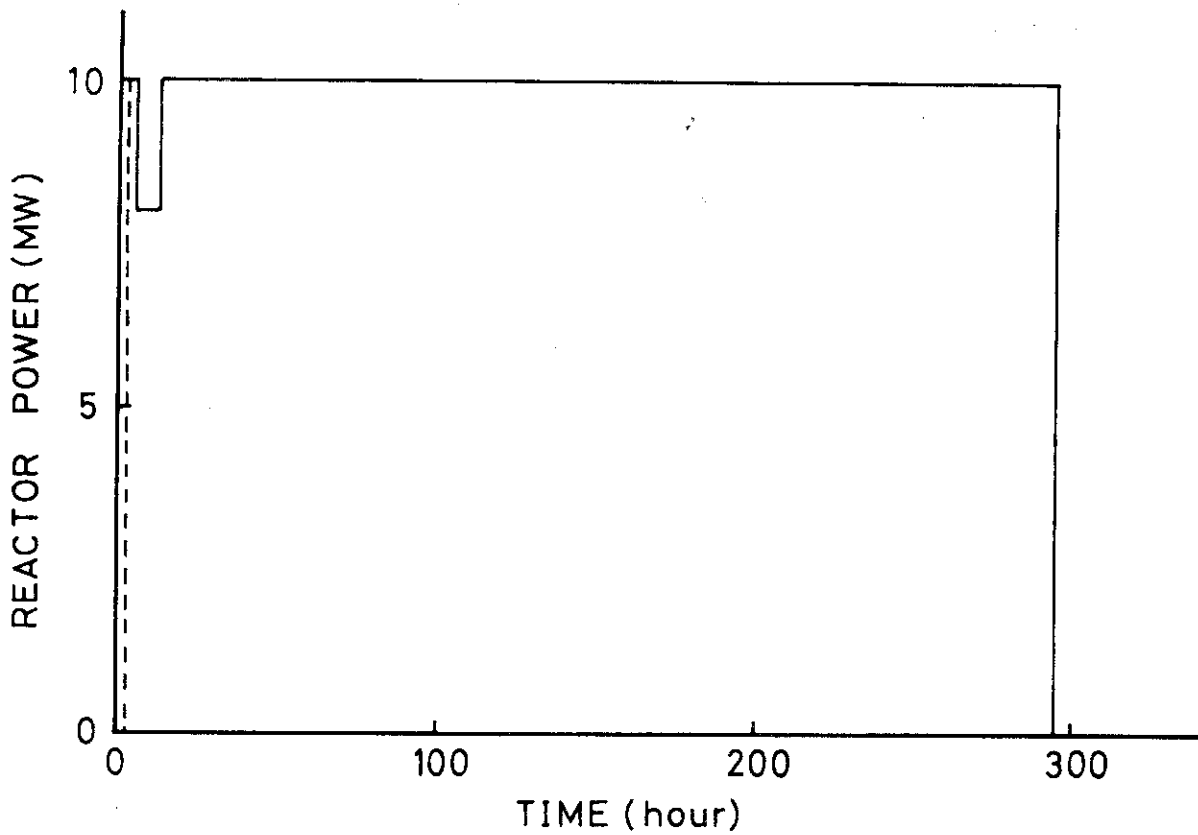


Fig.13 The change of the reactor power in the irradiation of the experiment B.

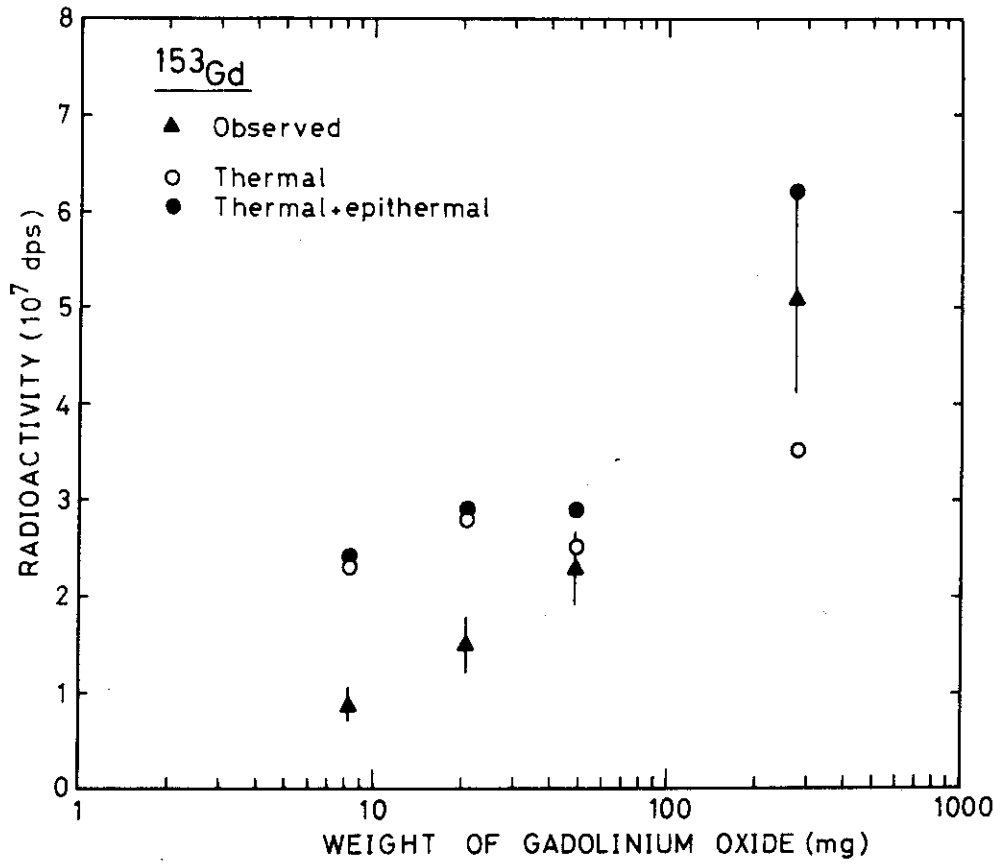


Fig.14 Observed and calculated activities of  $^{153}\text{Gd}$ .

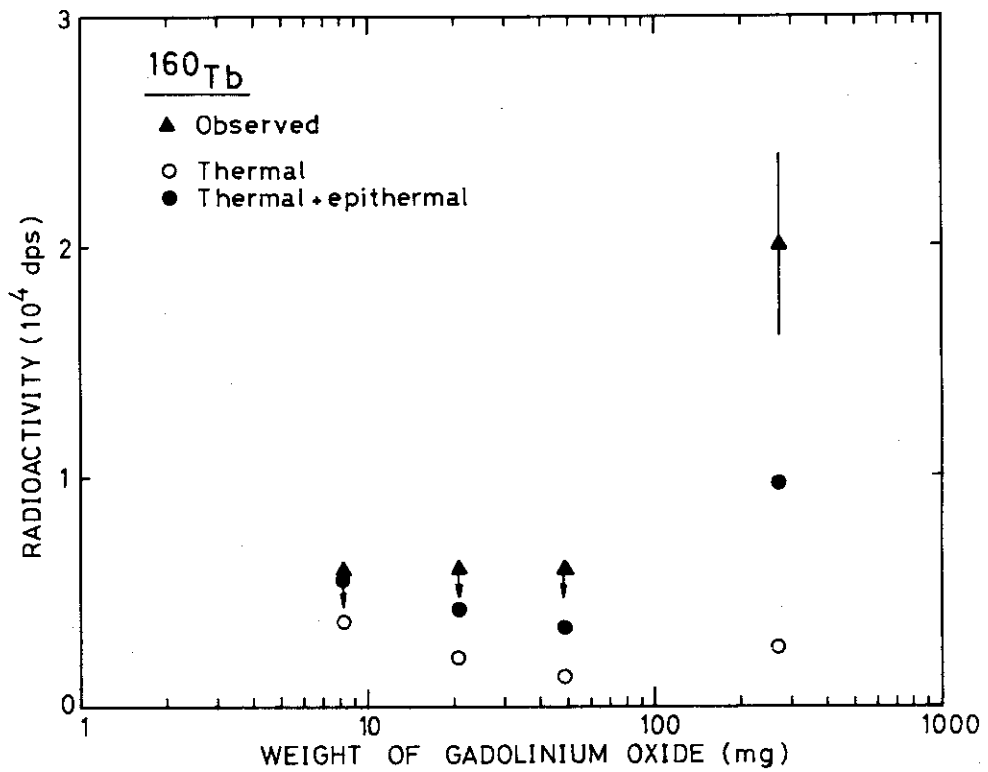


Fig.15 Observed and calculated activities of  $^{160}\text{Tb}$

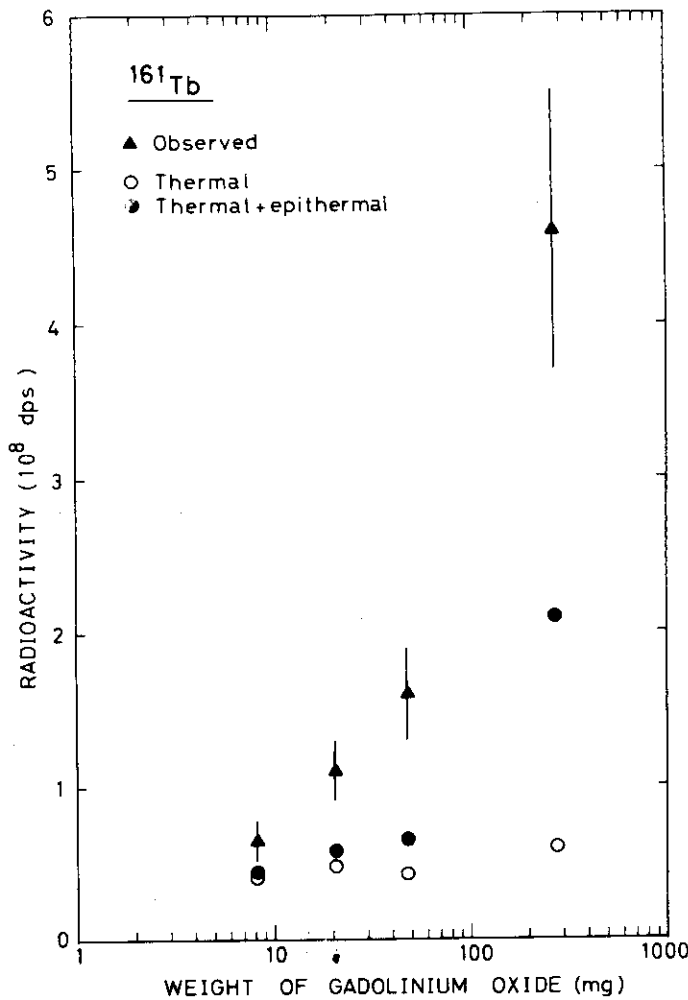


Fig.16 Observed and calculated activities of  $^{161}\text{Tb}$ .

実験値の0.5~2倍の範囲に計算値がある。これは期待した一致の程度よりいくらか悪いようである。計算上の問題点としては、(1)小さな円板を無限円板で近似したこと、(2)  $1/v$  法則からのずれを表わす因子を全て1にしたことと熱中性子領域の中性子を単一エネルギーとしたこと、(3)計算に用いた断面積の値の確かさ、(4)  $r\sqrt{T/T_0}$  の値の確かさ、等が挙げられる。実験上の問題点として、(5)生成量の計算に用いた  $r$  線強度の確かさが考えられる。

(1)については、円板のへりに入射する熱中性子の寄与を考える必要がある。この効果を考えない場合の反応率を1としたとき、この効果についての補正値  $\epsilon$  は中性子の吸収確率が非常に大きい場合、近似的に  $d/R$  である。ここで  $d$  は円板の厚さ、 $R$  は半径である。本実験では A-3 と B における  $^{157}\text{Gd}$  による熱中性子吸収にこの近似を適用できて、 $\epsilon$  はそれぞれ 0.1, 0.08 となる。他の中性子吸収確率が小さい場合については Hanna <sup>22)</sup> の導いた式によって計算できるが、前述の値より小さくなる(約  $1/\pi$ )、したがって、円板のへりに入射する中性子の寄与は 10% を越えないと結論される。

(2)について考えるに、因子  $g$  は  $^{59}\text{Co}(n, \gamma)^{60}\text{Co}$  反応のように熱中性子領域において  $1/v$  法則が成立する場合には 1 に等しい。Westcott によれば、Gd (元素として) では  $T = T_0$  ( $= 293 \text{ K}$ ) の場合に  $g = 0.85$  が与えられている。Gd の熱中性子捕獲断面積に主として寄

与しているのは $^{155}\text{Gd}$ と $^{157}\text{Gd}$ で、共鳴エネルギーがそれぞれ0.0268 eVと0.0314 eVの共鳴レベルを0.0253 eV (2200 m/secの時の中性子のエネルギー)の近くにもつため、 $g < 1$ となっている。 $^{152}\text{Gd}(n, \gamma)^{153}\text{Gd}$ ,  $^{158}\text{Gd}(n, \gamma)^{159}\text{Gd}$ ,  $^{160}\text{Gd}(n, \gamma)^{161}\text{Gd}$ ,  $^{159}\text{Tb}(n, \gamma)^{160}\text{Tb}$ 反応について共鳴パラメーターから計算された $\sigma_0$ の値は実測値の1/2以下に過ぎず、計算においては実測値を使っている。この実測値は実は $g\sigma_0$ であって、熱中性子温度の差を無視する限りにおいて、因子 $g$ は考慮されている。因子 $g$ に関するこれまでの議論は熱中性子がMaxwell分布を持っている場合について成り立つものである。中性子捕獲断面積がエネルギーに依らず一定であるならば、試料内部においてもMaxwell分布が保たれるが、 $^{155}\text{Gd}$   $^{157}\text{Gd}$ のように断面積がエネルギーと共に著しく減少する核種を多量に含む場合には、Maxwell分布からかなりずれた分布を持つことになる。文献7ではこのような断面積のエネルギー依存性を考慮しているが、本実験の場合にどの程度の影響を及ぼすかは明らかでない。

Fig. 14と16とから、 $^{153}\text{Gd}$ の場合は計算値が実験値より大きいのに対し、 $^{161}\text{Tb}$ の場合はその逆になっている。もし、 $r\sqrt{T/T_0}$ の値に誤差があるとして、 $^{161}\text{Tb}$ の実験値に合うように $r\sqrt{T/T_0}$ の値を選べば、その値は $^{153}\text{Gd}$ に対して大き過ぎる計算値を与えることは明らかである。それ故に(4)による説明は無理である。

(3)と(5)の可能性を考え、今までに報告された断面積と $\gamma$ 線強度について調べてみると、 $^{153}\text{Gd}$  <sup>20)</sup>について、 $\gamma$ 線強度は確かと思われるが、断面積についての報告は一つしかない。なお、この断面積の測定において使われた $^{153}\text{Gd}$ の生成量の決定法は著者らの方法と全く等しい。 $^{161}\text{Tb}$ については事情が逆になっていて、断面積の値は信頼度が高いが、 $\gamma$ 線強度は不確かであると思われる。

最後に、burn-upと熱中性子自己遮蔽係数の計算値をFig. 17に示す。ここでは $^{157}\text{Gd}$ のburn-upを示す。burn-upは $^{157}\text{Gd}$ 核の照射開始時の数を $N_0$ 、時間 $t$ における数を $N(t)$ としたとき、 $(N_0 - N(t))/N_0$ で表わしてある。また、熱中性子自己遮蔽係数は(8)式で定義されたものである。

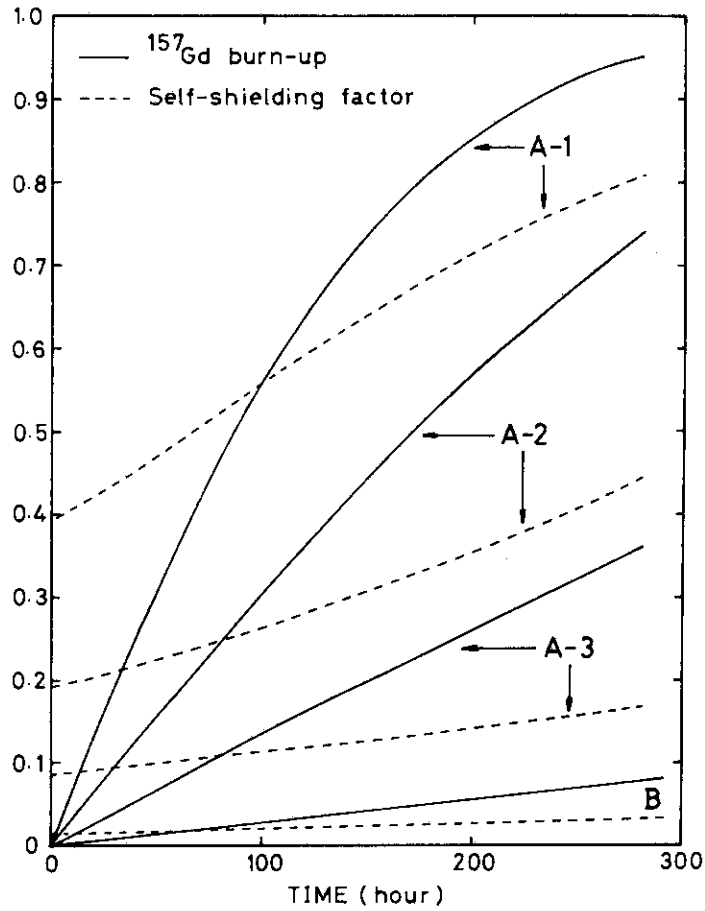


Fig.17 The calculated burn-up of  $^{157}\text{Gd}$  and the thermal neutron self-shielding factor in the experiments A and B, as a function of irradiation time.

## 4. 結 論

天然同位体組成の酸化ガドリニウムをターゲットとして $^{161}\text{Tb}$ を製造した場合、 $n\phi_0 \approx 2 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2/\text{sec}$ 、 $t \approx 300 \text{ hr}$ の照射では、99.99%の放射化学的純度（照射終了時で）が得られることが分った。この時混在して来る放射性不純物 $^{160}\text{Tb}$ はほとんど $^{158}\text{Gd}(n, \gamma)^{159}\text{Gd} \xrightarrow{\beta^-} ^{159}\text{Tb}(n, \gamma)^{160}\text{Tb}$ 反応によるものである。よって、これ以上の放射化学的純度を望む場合は、 $^{160}\text{Gd}$ を濃縮したターゲットを用いればよい。この濃縮ターゲットは比較的安価に入手でき、熱中性子自己遮蔽をほとんど無視できる点で有利である。

ガドリニウムという最も熱中性子捕獲断面積（原子断面積）の大きい物質中での放射能の生成量を調べたところ、 $^{153}\text{Gd}$ 、 $^{160}\text{Tb}$ 、 $^{161}\text{Tb}$ 生成量の計算値は実験値の0.5~2倍であった。これらの計算値と実験値との不一致について調べると、 $^{152}\text{Gd}(n, \gamma)^{153}\text{Gd}$ 反応の断面積と $^{161}\text{Tb}$ の $\gamma$ 線強度の測定が必要であることが示唆された。

熱中性子自己遮蔽、burn-out、共鳴領域の寄与を考慮して生成放射能を計算するプログラムBOET1を開発した。このプログラムは53kwordの記憶容量を必要とする。計算時間は、18個の核種を含み、x軸を400メッシュ、時間を280メッシュに分けた時、400秒を要した。

最後に、本研究において希土類元素の陽イオン交換分離について御教示いただいた原子炉化学部次長夏目晴夫氏、燃開室梅沢弘一氏、佐藤忠氏、及び $\gamma$ 線スペクトルの測定に御協力いただいた鈴木敏夫氏に感謝の意を表します。

## 文 献

- 1) 夏目晴夫, 第6回日本アイソトプ会議報文集, p.80 (1964).
- 2) 久保田益充・天野恕, JAERI-memo 3890 (1970).
- 3) 久保田益充・天野恕, JAERI-memo 4280 (1971).
- 4) 夏目晴夫・佐藤忠, 未発表.
- 5) P.F.Zweifel, Nucleonics 18 [11] 174 (1960).
- 6) J.J.Scoville, E.Fast and J.W.Rogers, Nucl. Sci. Eng. 25, 12 (1966).
- 7) R.H.Clarke, RD/B/N1042 (1968).
- 8) W.Görner, Kernenergie 11, 249 (1968).
- 9) A.Sola, Nucleonics 18 [3] 78 (1960).
- 10) C.H.Westcott, W.H.Walker and T.K.Alexander, Paper, P/202, Proc. of the Second Int. Conf. on the peaceful uses of atomic energy, Geneva, United Nations, N.Y. (1958).
- 11) K.H.Beckurts and K.Wirtz, "Neutron Physics" (Springer-verlag, Berlin, 1964).
- 12) T.B.Ryves and E.B.Paul, J. Nucl. Energy 22, 759 (1968).
- 13) D.K.Trubey, T.V.Blosser and G.M.Estabrook, ORNL-2842, p.204 (1959).
- 14) 馬場宏・岡下宏, 未発表.
- 15) O.U.Anders, Nucl. Instr. Meth. 68, 205 (1969).
- 16) G.Erdtman and W.Soyka, Jül-1003-AC (1973).
- 17) E.Storm and H.I.Israel, LA-3753 (1967).
- 18) C.M.Lederer, J.M.Hollander and I.Pearlman, "Table of Isotopes" 6th ed. (John Wiley, New York, 1968).

- 19) S.F.Mughabghab and D.I.Garber, BNL-325, 3rd ed. Vol. 1  
(1973).
- 20) E.Steinness, J. Inorg. Nucl. Chem. 34, 2699 (1972).
- 21) JRR-2 管理課, JAERI-memo 4141 (1970).
- 22) G.C.Hanna, Nucl. Sci. Eng. 15, 325 (1963).



## 付 録

Table A-1 The formats of the input cards in "BOET1"

| Card No. | Symbol   | Columns | Format | Description   |
|----------|--|---------|--------|---|
| 1        | IZ   | 1- 2    | I2     | Number of atomic species in a $\beta^-$ decay chain. $IZ \leq 3$ .      |
|          | IN   | 3- 4    | I2     | Number of isotopes in a neutron capture chain. $IN \leq 10$ .           |
|          | COM  | 5-80    | 19A4   | Comments on the data.   |
| 2        | (In the following description, combination of subscripts K and L represents the lattice point in the matrix consisting of the $\beta^-$ and neutron capture chain shown in Fig.9, $K=1, IZ$ and $L=1, IN$ .) |         |        |   |
|          | ATOM(K,L)  | 1- 4    | A4     | Name of element   |
|          | ANO(K,L)   | 5- 8    | A4     | Mass number   |
|          | AI(K,L)  | 9-20    | E12.5  | Number of the (K,L)-isotope contained in 1 gram of the target material. |
|          | SIGM(K,L)  | 21-32   | E12.5  | Thermal neutron capture cross section, $\sigma_0$ (barn).               |
|          | SZR(K,L)   | 33-44   | E12.5  | $s_0 = (2/\sqrt{\pi}) (I_0'/\sigma_0)$ .                                |
|          | TH(K,L)  | 45-56   | E12.5  | Half-life(hour).  |
| 3        | DL   | 1-12    | E12.5  | Thickness of target disk(cm).   |
|          | SL   | 13-24   | E12.5  | Surface area of one side of the target desk( $\text{cm}^2$ ).           |
|          | WGD  | 25-36   | E12.5  | Weight of the target material (g).                                      |

Table A-1(continued)

|   | COM2    | 37-64 | 7A4    | Comments on the data.  |
|---|---------|-------|--------|--|
| 4 | GR(K,L) | 1-80  | 10F8.6 | Self-shielding factor for epithermal neutrons, K=1,IZ; L=1,IN.   |
| 5 | FLO     | 1-12  | E12.5  | Neutron flux, $nv_0$ (n/cm <sup>2</sup> /sec).   |
|   | RTT0    | 13-24 | E12.5  | Epithermal index, $r\sqrt{(T/T_0)}$ .  |
|   | TIME    | 25-36 | E12.5  | Irradiation time(hour).  |
| 6 | DTHR    | 1-10  | F10.4  | Time interval mesh, $\Delta t$ (hour).   |
|   | MX      | 11-14 | I4     | Number of mesh along the depth.<br>MX=d/ $\Delta x$ .  |
|   | MXW     | 15-18 | I4     | Results are printed once per MXW meshes on the depth.  |
|   | MTW     | 19-22 | I4     | Results are printed once per MTW meshes on the time.   |
|   | IOUTZ   | 23-26 | I4     | =0 Printing of the detailed information on all isotopes.<br>=K Printing of the radioactivities of the K-th atomic-number isotopes. |
|   | ISTP    | 27-30 | I4     | =0 Continuation from reading No.5 card.  |
|   |         |       |        | =1 Continuation from reading No.6 card.  |

Table A-1(continued)

- =2 Continuation from reading  
No.3 card.
- =3 Continuation from reading  
No.1 card.
- =4 End of execution.

Table A-2 An example of input data INPUT DATA FORM II

| 氏名     | プログラムの名 |               |           |        | JOB NO.  | カード色指定   |              |         |     | PUNCH<br>YES <input type="checkbox"/><br>NO <input type="checkbox"/> |
|--------|---------|---------------|-----------|--------|----------|----------|--------------|---------|-----|--|
|        | 研究子番号   |               |           |        |          | 備考       | 7            | 8       | 9   |  |
|        | 1       | 2             | 3         | 4      |          |          |              |         |     |  |
| 2      | 9       | RADIOCHEMICAL | PURITY OF | TB-161 | PRODUCT. | IMPURITY | IS           | TB-160. | EX. | A, B   |
| GD-152 | +0.66   | E19           | +0.11     | E04    | +0.26    | E01      |              | E04     |     |  |
| GD-153 |         |               |           |        |          | +0.581   |              | E04     |     |  |
| GD-155 | +0.495  | E21           | +0.61     | E05    |          |          |              |         |     |  |
| GD-156 | +0.685  | E21           | +0.15     | E01    |          |          |              |         |     |  |
| GD-157 | +0.522  | E21           | +0.254    | E06    |          |          |              |         |     |  |
| GD-158 | +0.821  | E21           | +0.25     | E01    | +0.27    | E02      |              |         |     |  |
| GD-159 |         |               |           |        |          | +0.18    |              | E02     |     |  |
| GD-160 | +0.721  | E21           | +0.77     | E00    | +0.102   | E02      |              |         |     |  |
| GD-161 |         |               | +0.31     | E05    |          | +0.062   |              | E00     |     |  |
| TB-152 |         |               |           |        |          |          |              |         |     |  |
| TB-153 |         |               |           |        |          |          |              |         |     |  |
| TB-159 | +0.0303 | E16           | +0.255    | E02    | +0.144   | E02      |              |         |     |  |
| TB-160 |         |               | +0.525    | E03    |          | +0.1735  |              | E04     |     |  |
| TB-161 |         |               |           |        |          | +0.1656  |              | E03     |     |  |
| TB-158 |         |               |           |        |          |          |              |         |     |  |
| TB-159 |         |               | +0.255    | E02    | +0.144   | E02      |              |         |     |  |
| TB-160 |         |               | +0.525    | E03    |          | +0.1735  |              | E04     |     |  |
| TB-161 |         |               |           |        |          | +0.1656  |              | E03     |     |  |
| +0.055 | E00     | +0.35         | E00       | +0.272 | 15       | E00      | EXPERIMENT-B |         |     |  |

\*73-75: DATAID.75-80: SEQUENTIAL NUMBER



Table A-3 An example of output

\*\*\*\* RADIOCHEMICAL PURITY OF Tb-161 PRODUCT, IMPURITY IS Tb-150, EX. A+B

EXPERIMENT-B

INITIAL SETTING

IZ = 2  
 IN = 9  
 DL = 5.500E-02 (CM)  
 SL = 1.350E+00 (CM+2)  
 #GD = 2.722E-01 (G)  
 FLO = 2.190E+13 (CM-2.SEC-1)  
 RTTU = 7.000E-03  
 TIME = 2.910E+02 (HR)  
 MX = 400  
 MX# = 9  
 MT = 291  
 AT# = 60  
 ISTEP = 2  
 IOUTZ = 0

OX = 1.375E-04 (CM)  
 OT = 1.000E+00 (HR)  
 DTHK2 = 0.0  
 FPO = 1.095E+13 (CM-2.SFC-1)  
 CAB = 5.967E+02 (CM-1)  
 VOLM = 1.856E-04 (CM+3)

|                        | GD-152    | GD-153    | GD-155    | GD-156    | GD-157    | GD-158    | GD-159    | GD-160    | GD-161    |
|------------------------|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|
| NUCL                   | Tb-152    | Tb-153    | Tb-159    | Tb-160    | Tb-161    | Tb-158    | Tb-159    | Tb-160    | Tb-161    |
| TOT.NO.                | 1.796E+18 | 0.0       | 1.347E+20 | 1.864E+20 | 1.421E+20 | 2.234E+20 | 0.0       | 1.962E+20 | 0.0       |
| NO.PER CC              | 2.419E+19 | 0.0       | 1.814E+21 | 2.511E+21 | 1.913E+21 | 3.009E+21 | 0.0       | 2.643E+21 | 0.0       |
| SIGMA(BARN)            | 1.100E+03 | 0.0       | 6.100E+04 | 1.500E+00 | 2.540E+05 | 2.500E+00 | 0.0       | 7.700E-01 | 3.100E+04 |
| SZEKO                  | 2.600E+00 | 0.0       | 0.0       | 0.0       | 0.0       | 2.700E+01 | 0.0       | 1.020E+01 | 0.0       |
| EPITH. SELF-SHI. FACT. | 1.000E+00 | 1.000E+00 | 1.000E+00 | 1.000E+00 | 1.000E+00 | 6.800E-01 | 1.000E+00 | 8.740E-01 | 1.000E+00 |
| HALF LIFE(HR)          | 0.0       | 5.810E+03 | 0.0       | 0.0       | 0.0       | 0.0       | 1.800E+01 | 0.0       | 6.200E-02 |
| DECAY CONST.(/HR)      | 0.0       | 1.193E-04 | 0.0       | 0.0       | 0.0       | 0.0       | 3.851E-02 | 0.0       | 1.118E+01 |
| NUCL                   | Tb-152    | Tb-153    | Tb-159    | Tb-160    | Tb-161    | Tb-158    | Tb-159    | Tb-160    | Tb-161    |
| TOT.NO.                | 0.0       | 0.0       | 8.246E+13 | 0.0       | 0.0       | 0.0       | 0.0       | 0.0       | 0.0       |
| NO.PER CC              | 0.0       | 0.0       | 1.111E+15 | 0.0       | 0.0       | 0.0       | 0.0       | 0.0       | 0.0       |
| SIGMA(BARN)            | 0.0       | 0.0       | 2.550E+01 | 5.250E+02 | 0.0       | 0.0       | 2.550E+01 | 5.250E+02 | 0.0       |
| SZEKO                  | 0.0       | 0.0       | 1.440E+01 | 0.0       | 0.0       | 0.0       | 1.440E+01 | 0.0       | 0.0       |
| EPITH. SELF-SHI. FACT. | 1.000E+00 | 1.000E+00 | 1.000E+00 | 1.000E+00 | 1.000E+00 | 1.000E+00 | 1.000E+00 | 1.000E+00 | 1.000E+00 |
| HALF LIFE(HR)          | 0.0       | 0.0       | 0.0       | 1.735E+03 | 1.656E+02 | 0.0       | 0.0       | 1.735E+03 | 1.656E+02 |
| DECAY CONST.(/HR)      | 0.0       | 0.0       | 0.0       | 3.995E-04 | 4.186E-03 | 0.0       | 0.0       | 3.995E-04 | 4.186E-03 |

\*\*\*\* INITIAL FLUX DISTRIBUTION \*\*\*\*

| JX  | X<br>(CM) | FLUX<br>(CM-2SEC-1) |
|-----|-----------|---------------------|
| 1   | 6.875E-05 | 9.316E+12           |
| 11  | 1.444E-03 | 2.001E+12           |
| 21  | 2.819E-03 | 6.257E+11           |
| 31  | 4.194E-03 | 2.161E+11           |
| 41  | 5.569E-03 | 7.866E+10           |
| 51  | 6.944E-03 | 2.958E+10           |
| 61  | 8.319E-03 | 1.138E+10           |
| 71  | 9.694E-03 | 4.451E+09           |
| 81  | 1.107E-02 | 1.764E+09           |
| 91  | 1.244E-02 | 7.062E+08           |
| 101 | 1.382E-02 | 2.852E+08           |
| 111 | 1.519E-02 | 1.160E+08           |
| 121 | 1.657E-02 | 4.744E+07           |
| 131 | 1.794E-02 | 1.951E+07           |
| 141 | 1.932E-02 | 8.057E+06           |
| 151 | 2.069E-02 | 3.341E+06           |
| 161 | 2.207E-02 | 1.391E+06           |
| 171 | 2.344E-02 | 5.836E+05           |
| 181 | 2.482E-02 | 2.510E+05           |
| 191 | 2.619E-02 | 1.215E+05           |
| 200 | 2.743E-02 | 8.950E+04           |

FSELF = 1.520E-02

Table A-3 (continued) IF IOUTZ = 0,

\*\*\*\* RADIOCHEMICAL PURITY OF T<sub>9</sub>-161 PRODUCT. IMPURITY IS TB-160. EX. A+B  
EXPERIMENT-B  
\*\*\*\*/

\*\*\*\* INTERMEDIATE RESULTS \*\*\*\*

JT = 1  
T = 1.000E+00 (HR)  
FSELF= 1.525E-02



| JX  | X (CM)    | FLUX (CM-2SEC-1) | ARSO. COEF. (CM-1) | ATOM NO. PER CC | NUCL      |           |           |           |           |           |           |           |        |  |
|-----|-----------|------------------|--------------------|-----------------|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|-----------|--------|--|
|     |           |                  |                    |                 | GD-152    | GD-153    | GD-155    | GD-156    | GD-157    | GD-158    | GD-159    | GD-160    | GD-161 |  |
| 1   | 6.875E-05 | 9.325E+12        | 5.923E+02          | 2.419E+19       | 9.306E+14 | 1.811E+21 | 2.514E+21 | 1.897E+21 | 3.025E+21 | 3.232E+14 | 2.643E+21 | 6.999E+12 |        |  |
| 11  | 1.444E-03 | 2.011E+12        | 5.958E+02          | 2.419E+19       | 2.299E+14 | 1.814E+21 | 2.512E+21 | 1.910E+21 | 3.013E+21 | 1.280E+14 | 2.643E+21 | 2.207E+12 |        |  |
| 21  | 2.819E-03 | 6.289E+11        | 5.964E+02          | 2.419E+19       | 9.811E+13 | 1.814E+21 | 2.511E+21 | 1.912E+21 | 3.010E+21 | 9.142E+13 | 2.643E+21 | 1.305E+12 |        |  |
| 31  | 4.194E-03 | 2.173E+11        | 5.966E+02          | 2.419E+19       | 5.898E+13 | 1.814E+21 | 2.511E+21 | 1.913E+21 | 3.010E+21 | 3.053E+13 | 2.643E+21 | 1.037E+12 |        |  |
| 41  | 5.569E-03 | 7.906E+10        | 5.967E+02          | 2.419E+19       | 4.571E+13 | 1.814E+21 | 2.511E+21 | 1.913E+21 | 3.009E+21 | 7.687E+13 | 2.643E+21 | 9.470E+11 |        |  |
| 51  | 6.944E-03 | 2.973E+10        | 5.967E+02          | 2.419E+19       | 4.101E+13 | 1.814E+21 | 2.511E+21 | 1.913E+21 | 3.009E+21 | 7.557E+13 | 2.643E+21 | 9.149E+11 |        |  |
| 61  | 8.319E-03 | 1.143E+10        | 5.967E+02          | 2.419E+19       | 3.927E+13 | 1.814E+21 | 2.511E+21 | 1.913E+21 | 3.009E+21 | 7.508E+13 | 2.643E+21 | 9.029E+11 |        |  |
| 71  | 9.694E-03 | 4.472E+09        | 5.967E+02          | 2.419E+19       | 3.861E+13 | 1.814E+21 | 2.511E+21 | 1.913E+21 | 3.009E+21 | 7.490E+13 | 2.643E+21 | 8.984E+11 |        |  |
| 81  | 1.107E-02 | 1.772E+09        | 5.967E+02          | 2.419E+19       | 3.835E+13 | 1.814E+21 | 2.511E+21 | 1.913E+21 | 3.009E+21 | 7.483E+13 | 2.643E+21 | 8.966E+11 |        |  |
| 91  | 1.244E-02 | 7.096E+08        | 5.967E+02          | 2.419E+19       | 3.825E+13 | 1.814E+21 | 2.511E+21 | 1.913E+21 | 3.009E+21 | 7.480E+13 | 2.643E+21 | 8.959E+11 |        |  |
| 101 | 1.382E-02 | 2.865E+08        | 5.967E+02          | 2.419E+19       | 3.821E+13 | 1.814E+21 | 2.511E+21 | 1.913E+21 | 3.009E+21 | 7.479E+13 | 2.643E+21 | 8.957E+11 |        |  |
| 111 | 1.519E-02 | 1.165E+08        | 5.967E+02          | 2.419E+19       | 3.819E+13 | 1.814E+21 | 2.511E+21 | 1.913E+21 | 3.009E+21 | 7.478E+13 | 2.643E+21 | 8.956E+11 |        |  |
| 121 | 1.657E-02 | 4.767E+07        | 5.967E+02          | 2.419E+19       | 3.818E+13 | 1.814E+21 | 2.511E+21 | 1.913E+21 | 3.009E+21 | 7.478E+13 | 2.643E+21 | 8.955E+11 |        |  |
| 131 | 1.794E-02 | 1.960E+07        | 5.967E+02          | 2.419E+19       | 3.818E+13 | 1.814E+21 | 2.511E+21 | 1.913E+21 | 3.009E+21 | 7.478E+13 | 2.643E+21 | 8.955E+11 |        |  |
| 141 | 1.932E-02 | 8.095E+06        | 5.967E+02          | 2.419E+19       | 3.818E+13 | 1.814E+21 | 2.511E+21 | 1.913E+21 | 3.009E+21 | 7.478E+13 | 2.643E+21 | 8.955E+11 |        |  |
| 151 | 2.069E-02 | 3.356E+06        | 5.967E+02          | 2.419E+19       | 3.818E+13 | 1.814E+21 | 2.511E+21 | 1.913E+21 | 3.009E+21 | 7.478E+13 | 2.643E+21 | 8.955E+11 |        |  |
| 161 | 2.207E-02 | 1.398E+06        | 5.967E+02          | 2.419E+19       | 3.818E+13 | 1.814E+21 | 2.511E+21 | 1.913E+21 | 3.009E+21 | 7.478E+13 | 2.643E+21 | 8.955E+11 |        |  |
| 171 | 2.344E-02 | 5.862E+05        | 5.967E+02          | 2.419E+19       | 3.818E+13 | 1.814E+21 | 2.511E+21 | 1.913E+21 | 3.009E+21 | 7.478E+13 | 2.643E+21 | 8.955E+11 |        |  |
| 181 | 2.482E-02 | 2.522E+05        | 5.967E+02          | 2.419E+19       | 3.818E+13 | 1.814E+21 | 2.511E+21 | 1.913E+21 | 3.009E+21 | 7.478E+13 | 2.643E+21 | 8.955E+11 |        |  |
| 191 | 2.619E-02 | 1.220E+05        | 5.967E+02          | 2.419E+19       | 3.818E+13 | 1.814E+21 | 2.511E+21 | 1.913E+21 | 3.009E+21 | 7.478E+13 | 2.643E+21 | 8.955E+11 |        |  |
| 200 | 2.743E-02 | 8.991E+04        | 5.967E+02          | 2.419E+19       | 3.818E+13 | 1.814E+21 | 2.511E+21 | 1.913E+21 | 3.009E+21 | 7.478E+13 | 2.643E+21 | 8.955E+11 |        |  |

| JX  | X (CM)    | NUCL      | FLUX (CM-2SFC-1) | ABSO. COEF. | ATOM NO. | PER CC | TB-152    | TB-153     | TB-159I   | TB-160I   | TB-161I | TU-158 | TB-159    | TB-160    | TB-161    |
|-----|-----------|-----------|------------------|-------------|----------|--------|-----------|------------|-----------|-----------|---------|--------|-----------|-----------|-----------|
| 1   | 6.875E-05 | 9.325E+12 | 5.923E+02        | 0.0         | 0.0      | 0.0    | 0.0       | 2.550E-23  | 5.250E-22 | 0.0       | 0.0     | 0.0    | 2.550E-23 | 5.250E-22 | 0.0       |
| 11  | 1.444E-03 | 2.011E+12 | 5.958E+02        | 0.0         | 0.0      | 0.0    | 0.0       | 0.0        | 6.246E+06 | 5.962E+05 | 0.0     | 0.0    | 6.246E+06 | 5.962E+05 | 0.0       |
| 21  | 2.819E-03 | 6.289E+11 | 5.964E+02        | 0.0         | 0.0      | 0.0    | 0.0       | 0.0        | 1.110E-07 | 1.163E-06 | 0.0     | 0.0    | 1.110E-07 | 1.163E-06 | 0.0       |
| 31  | 4.194E-03 | 2.173E+11 | 5.966E+02        | 0.0         | 0.0      | 0.0    | 1.672E+12 | 4.442E+17  | 1.036E+11 | 8.516E+04 | 0.0     | 0.0    | 6.483E+14 | 5.920E+07 | 4.526E+15 |
| 41  | 5.569E-03 | 7.906E+10 | 5.967E+02        | 0.0         | 0.0      | 0.0    | 3.103E+08 | 8.246E+13  | 1.923E+07 | 1.581E+01 | 0.0     | 0.0    | 1.203E+11 | 1.099E+04 | 8.401E+11 |
| 51  | 6.944E-03 | 2.973E+10 | 5.967E+02        | 0.0         | 0.0      | 0.0    | 0.0       | -3.052E-05 | 0.0       | 0.0       | 0.0     | 0.0    | 0.0       | 0.0       | 0.0       |
| 61  | 8.319E-03 | 1.143E+10 | 5.967E+02        | 0.0         | 0.0      | 0.0    | 0.0       | 0.0        | 2.134E+00 | 1.838E-05 | 0.0     | 0.0    | 0.0       | 1.220E-03 | 9.768E+05 |
| 71  | 9.694E-03 | 4.472E+09 | 5.967E+02        | 0.0         | 0.0      | 0.0    | 0.0       | 0.0        | 0.0       | 0.0       | 0.0     | 0.0    | 0.0       | 0.0       | 0.0       |
| 81  | 1.107E-02 | 1.772E+09 | 5.967E+02        | 0.0         | 0.0      | 0.0    | 0.0       | 0.0        | 0.0       | 0.0       | 0.0     | 0.0    | 0.0       | 0.0       | 0.0       |
| 91  | 1.244E-02 | 7.096E+08 | 5.967E+02        | 0.0         | 0.0      | 0.0    | 0.0       | 0.0        | 0.0       | 0.0       | 0.0     | 0.0    | 0.0       | 0.0       | 0.0       |
| 101 | 1.382E-02 | 2.865E+08 | 5.967E+02        | 0.0         | 0.0      | 0.0    | 0.0       | 0.0        | 0.0       | 0.0       | 0.0     | 0.0    | 0.0       | 0.0       | 0.0       |
| 111 | 1.519E-02 | 1.165E+08 | 5.967E+02        | 0.0         | 0.0      | 0.0    | 0.0       | 0.0        | 0.0       | 0.0       | 0.0     | 0.0    | 0.0       | 0.0       | 0.0       |
| 121 | 1.657E-02 | 4.767E+07 | 5.967E+02        | 0.0         | 0.0      | 0.0    | 0.0       | 0.0        | 0.0       | 0.0       | 0.0     | 0.0    | 0.0       | 0.0       | 0.0       |
| 131 | 1.794E-02 | 1.960E+07 | 5.967E+02        | 0.0         | 0.0      | 0.0    | 0.0       | 0.0        | 0.0       | 0.0       | 0.0     | 0.0    | 0.0       | 0.0       | 0.0       |
| 141 | 1.932E-02 | 8.095E+06 | 5.967E+02        | 0.0         | 0.0      | 0.0    | 0.0       | 0.0        | 0.0       | 0.0       | 0.0     | 0.0    | 0.0       | 0.0       | 0.0       |
| 151 | 2.069E-02 | 3.356E+06 | 5.967E+02        | 0.0         | 0.0      | 0.0    | 0.0       | 0.0        | 0.0       | 0.0       | 0.0     | 0.0    | 0.0       | 0.0       | 0.0       |
| 161 | 2.207E-02 | 1.398E+06 | 5.967E+02        | 0.0         | 0.0      | 0.0    | 0.0       | 0.0        | 0.0       | 0.0       | 0.0     | 0.0    | 0.0       | 0.0       | 0.0       |
| 171 | 2.344E-02 | 5.862E+05 | 5.967E+02        | 0.0         | 0.0      | 0.0    | 0.0       | 0.0        | 0.0       | 0.0       | 0.0     | 0.0    | 0.0       | 0.0       | 0.0       |
| 181 | 2.482E-02 | 2.522E+05 | 5.967E+02        | 0.0         | 0.0      | 0.0    | 0.0       | 0.0        | 0.0       | 0.0       | 0.0     | 0.0    | 0.0       | 0.0       | 0.0       |
| 191 | 2.619E-02 | 1.220E+05 | 5.967E+02        | 0.0         | 0.0      | 0.0    | 0.0       | 0.0        | 0.0       | 0.0       | 0.0     | 0.0    | 0.0       | 0.0       | 0.0       |
| 200 | 2.743E-02 | 8.991E+04 | 5.967E+02        | 0.0         | 0.0      | 0.0    | 0.0       | 0.0        | 0.0       | 0.0       | 0.0     | 0.0    | 0.0       | 0.0       | 0.0       |

Table A-3 (continued) IF IOUTZ = 2,

| JT | TIME (HR) | FSELF     | NUCL | TB-152 | TB-153 | TB-159I | TB-160I   | TB-161I   | TB-158 | TB-159 | TB-160    | TB-161    |
|----|-----------|-----------|------|--------|--------|---------|-----------|-----------|--------|--------|-----------|-----------|
| 1  | 1.00      | 1.525E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 2.134E+00 | 1.838E-05 | 0.0    | 0.0    | 1.220E-03 | 9.768E+05 |
| 2  | 2.00      | 1.531E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 4.268E+00 | 7.359E-05 | 0.0    | 0.0    | 9.673E-03 | 2.046E+06 |
| 3  | 3.00      | 1.536E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 6.401E+00 | 1.657E-04 | 0.0    | 0.0    | 3.237E-02 | 5.111E+06 |
| 4  | 4.00      | 1.541E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 8.536E+00 | 2.949E-04 | 0.0    | 0.0    | 7.607E-02 | 4.173E+06 |
| 5  | 5.00      | 1.547E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 1.067E+01 | 4.613E-04 | 0.0    | 0.0    | 1.473E-01 | 5.231E+06 |
| 6  | 6.00      | 1.552E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 1.280E+01 | 6.649E-04 | 0.0    | 0.0    | 2.525E-01 | 6.285E+06 |
| 7  | 7.00      | 1.558E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 1.494E+01 | 9.059E-04 | 0.0    | 0.0    | 3.976E-01 | 7.336E+06 |
| 8  | 8.00      | 1.563E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 1.707E+01 | 1.184E-03 | 0.0    | 0.0    | 5.886E-01 | 8.383E+06 |
| 9  | 9.00      | 1.568E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 1.921E+01 | 1.500E-03 | 0.0    | 0.0    | 8.312E-01 | 9.426E+06 |
| 10 | 10.00     | 1.574E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 2.134E+01 | 1.854E-03 | 0.0    | 0.0    | 1.121E+00 | 1.047E+07 |
| 11 | 11.00     | 1.579E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 2.348E+01 | 2.246E-03 | 0.0    | 0.0    | 1.493E+00 | 1.150E+07 |
| 12 | 12.00     | 1.585E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 2.561E+01 | 2.675E-03 | 0.0    | 0.0    | 1.923E+00 | 1.253E+07 |
| 13 | 13.00     | 1.590E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 2.775E+01 | 3.142E-03 | 0.0    | 0.0    | 2.423E+00 | 1.356E+07 |
| 14 | 14.00     | 1.596E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 2.988E+01 | 3.648E-03 | 0.0    | 0.0    | 3.005E+00 | 1.459E+07 |
| 15 | 15.00     | 1.601E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 3.202E+01 | 4.192E-03 | 0.0    | 0.0    | 3.667E+00 | 1.561E+07 |
| 16 | 16.00     | 1.607E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 3.416E+01 | 4.774E-03 | 0.0    | 0.0    | 4.415E+00 | 1.663E+07 |
| 17 | 17.00     | 1.612E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 3.629E+01 | 5.395E-03 | 0.0    | 0.0    | 5.255E+00 | 1.764E+07 |
| 18 | 18.00     | 1.618E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 3.843E+01 | 6.054E-03 | 0.0    | 0.0    | 6.189E+00 | 1.866E+07 |
| 19 | 19.00     | 1.623E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 4.056E+01 | 6.751E-03 | 0.0    | 0.0    | 7.223E+00 | 1.966E+07 |
| 20 | 20.00     | 1.629E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 4.270E+01 | 7.488E-03 | 0.0    | 0.0    | 8.361E+00 | 2.067E+07 |
| 21 | 21.00     | 1.634E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 4.484E+01 | 8.263E-03 | 0.0    | 0.0    | 9.605E+00 | 2.167E+07 |
| 22 | 22.00     | 1.640E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 4.697E+01 | 9.078E-03 | 0.0    | 0.0    | 1.096E+01 | 2.267E+07 |
| 23 | 23.00     | 1.645E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 4.911E+01 | 9.932E-03 | 0.0    | 0.0    | 1.243E+01 | 2.366E+07 |
| 24 | 24.00     | 1.651E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 5.125E+01 | 1.082E-02 | 0.0    | 0.0    | 1.402E+01 | 2.463E+07 |
| 25 | 25.00     | 1.656E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 5.338E+01 | 1.176E-02 | 0.0    | 0.0    | 1.573E+01 | 2.564E+07 |
| 26 | 26.00     | 1.662E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 5.552E+01 | 1.273E-02 | 0.0    | 0.0    | 1.756E+01 | 2.663E+07 |
| 27 | 27.00     | 1.668E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 5.766E+01 | 1.374E-02 | 0.0    | 0.0    | 1.952E+01 | 2.761E+07 |
| 28 | 28.00     | 1.673E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 5.980E+01 | 1.479E-02 | 0.0    | 0.0    | 2.162E+01 | 2.858E+07 |
| 29 | 29.00     | 1.679E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 6.193E+01 | 1.588E-02 | 0.0    | 0.0    | 2.384E+01 | 2.956E+07 |
| 30 | 30.00     | 1.685E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 6.407E+01 | 1.701E-02 | 0.0    | 0.0    | 2.621E+01 | 3.053E+07 |
| 31 | 31.00     | 1.690E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 6.621E+01 | 1.818E-02 | 0.0    | 0.0    | 2.871E+01 | 3.150E+07 |
| 32 | 32.00     | 1.696E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 6.835E+01 | 1.939E-02 | 0.0    | 0.0    | 3.136E+01 | 3.246E+07 |
| 33 | 33.00     | 1.701E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 7.049E+01 | 2.064E-02 | 0.0    | 0.0    | 3.415E+01 | 3.342E+07 |
| 34 | 34.00     | 1.707E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 7.263E+01 | 2.193E-02 | 0.0    | 0.0    | 3.709E+01 | 3.438E+07 |
| 35 | 35.00     | 1.713E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 7.477E+01 | 2.327E-02 | 0.0    | 0.0    | 4.018E+01 | 3.533E+07 |
| 36 | 36.00     | 1.719E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 7.690E+01 | 2.464E-02 | 0.0    | 0.0    | 4.342E+01 | 3.629E+07 |
| 37 | 37.00     | 1.724E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 7.904E+01 | 2.605E-02 | 0.0    | 0.0    | 4.682E+01 | 3.723E+07 |
| 38 | 38.00     | 1.730E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 8.118E+01 | 2.750E-02 | 0.0    | 0.0    | 5.037E+01 | 3.818E+07 |
| 39 | 39.00     | 1.736E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 8.332E+01 | 2.900E-02 | 0.0    | 0.0    | 5.408E+01 | 3.912E+07 |
| 40 | 40.00     | 1.741E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 8.546E+01 | 3.053E-02 | 0.0    | 0.0    | 5.796E+01 | 4.006E+07 |
| 41 | 41.00     | 1.747E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 8.760E+01 | 3.211E-02 | 0.0    | 0.0    | 6.200E+01 | 4.100E+07 |
| 42 | 42.00     | 1.753E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 8.974E+01 | 3.373E-02 | 0.0    | 0.0    | 6.621E+01 | 4.193E+07 |
| 43 | 43.00     | 1.759E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 9.188E+01 | 3.539E-02 | 0.0    | 0.0    | 7.058E+01 | 4.286E+07 |
| 44 | 44.00     | 1.764E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 9.402E+01 | 3.709E-02 | 0.0    | 0.0    | 7.513E+01 | 4.378E+07 |
| 45 | 45.00     | 1.770E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 9.617E+01 | 3.883E-02 | 0.0    | 0.0    | 7.985E+01 | 4.471E+07 |
| 46 | 46.00     | 1.776E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 9.831E+01 | 4.062E-02 | 0.0    | 0.0    | 8.474E+01 | 4.563E+07 |
| 47 | 47.00     | 1.782E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 1.004E+02 | 4.244E-02 | 0.0    | 0.0    | 8.981E+01 | 4.655E+07 |
| 48 | 48.00     | 1.788E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 1.026E+02 | 4.431E-02 | 0.0    | 0.0    | 9.505E+01 | 4.746E+07 |
| 49 | 49.00     | 1.793E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 1.047E+02 | 4.622E-02 | 0.0    | 0.0    | 1.005E+02 | 4.837E+07 |
| 50 | 50.00     | 1.799E-02 | 0.0  | 0.0    | 0.0    | 0.0     | 1.069E+02 | 4.817E-02 | 0.0    | 0.0    | 1.061E+02 | 4.928E+07 |

Table A-4 FORTRAN list of BOET1

FACOM 230-75 (M7) FORTRAN-D -750715- V06-L05 76.06.04 PAGE 1

```

C NEUTRON SELF-SHIELDING AND EPITHERMAL NEUTRON EFFECT FOR PRODUCTION
C OF RADIOACTIVITY
C
C IZ = NUMBER OF ATOMIC SPECIES K=1,IZ
C IN = NUMBER OF ISOTOPES OF AN ATOM L=1,IN
C ATOM(K,L) = CHEMICAL NOTATION EX. GD,TB
C ANO(K,L) = MASS NUMBER EX.161,160
C AO(K,L) = TOTAL NUMBER OF NUCLIDE(K,L) IN SAMPLE
C SIGM(K,L) = ABSORPTION CROSSSECTION(BARN)
C SZR(K,L) = SO IN WESTCOTT CONVENTION
C GR(K,L) = EPITHERMAL NEUTRON SELF-SHIELDING FACTOR
C TH(K,L) = HALF LIFE(HOUR)
C IGO = INDEX OF GEOMETRY OF SAMPLE
C D = THICKNESS OF SAMPLE(CM)
C VOL = VOLUME OF SAMPLE(CM3)
C FLO = FLUX UNPERTURBED (CM-2,SEC-1)
C TIME = IRRADIATION TIME
C MX = NUMBER OF MESH FOR X-AXIS (EVEN NUMBER)
C MXW = PRINT OUT ONCE PER MXW MESH
C MT = NUMBER OF MESH FOR T-AXIS
C MTW = PRINT OUT ONCE PER MTW MESH
C
1 DIMENSION COM(19),COM2(7)
1 ,ATOM(3,10),ANO(3,10),AO(3,10),SIGM(3,10),TH(3,10),AOV(3,10)
1 ,AI(3,10),BNUP(3,10),GR(3,10),SZR(3,10)
2 ,FP(800),FL(800),CAB(400),DCON(3,10),SF(3,10)
3 ,A(3,10,400),C(3,10,3,10)
4 ,SUMAUV(3,10),ANET(3,10),ACTNET(3,10)
2 DOUBLE PRECISION SUMB,SUMN,C,@,Y,EI, SF,DCON,DT,X, Z,NO
C
C DATA INPUT
C
3 100 READ(5,1) IZ,IN,COM
4 READ(5,2)((ATOM(K,L),ANO(K,L),AI(K,L),SIGM(K,L),SZR(K,L)
1 ,TH(K,L),L=1,IN),K=1,IZ)
5 110 READ(5,3) DL,SL,WGD,COM2
6 DO 112 K = 1,IZ
7 READ(5,6) (GR(K,L),L=1,IN)
8 DO 112 L=1,IN
9 IF (GR(K,L),LT,1.E-20) GR(K,L)=1.
10 112 CONTINUE
11 D = DL
12 S = SL
13 VOL = D*S
14 DO 115 K=1,IZ
15 DO 115 L=1,IN
16 115 AO(K,L) = AI(K,L)*WGD
17 120 READ(5,4) FLO,RTTO,TIME
18 150 READ(5,5) DTHR,MX,MXW,MTW,IOUTZ,ISTP
19 IF(MX.EQ.0) MX=100
20 IF(MX.EQ.1) MX =2
21 IF(MX.GE.1) GO TO 170
22 MAX = 0
23 IF(MX.GT.50) MXW = 1 +MX/50
24 IF(MX.GT.800) GO TO 800
25 170 MID=MX/2
26 MX=MID*2
C
C INITIAL SETTING

```

```
(FTMAIN )*
```

```

C
27     DX = D/MX
28     DT = DTHR
29     DTO=DT
30     MT = TIME/DTHR
31     DTHR2 = TIME-MT*DTHR
32     IF(DTHR2.GT.0.) MT = MT+1
33     IF(MTW.GE.1) GO TO 180
34     MTW = MT/2
35     180 VOLM=VOL/MX
36     FPO = 0.5 * FLO
37     DO 202 K=1,I2
38     DO 202 L=1,IN
39     DCON(K,L) = 0.
40     IF(TH(K,L).LT.1.E-15) GO TO 202
41     DCON(K,L) = 0.69315 /TH(K,L)
42     202 CONTINUE
43     DO 220 K=1,I2
44     DO 220 L=1,IN
45     ADV(K,L) = AO(K,L)/VOL
46     DO 220 I=1,MID
47     220 A(K,L,I) = ADV(K,L)
48     225 DO 240 I=1,MID
49     CAB(I) = 0.
50     DO 230 K=1,I2
51     DO 230 L=1,IN
52     230 CAB(I) = CAB(I)+SIGM(K,L)*A(K,L,I)
53     CAB(I) = CAB(I)*1.E-24
54     240 CONTINUE
55     SCAB=0.
56     DO 250 J = 1,MX
57     FP(J) = 0.
58     I=J
59     IF(J.GT.MID) I=MX+1-J
60     SCABT = SCAB+CAB(I)*DX
61     SCAB=SCAB+CAB(I)*DX*0.5
62     IF(SCAB.GT.20.) GO TO 250
63     Y=-SCAB
64     CALL EXPGD(Y,EI)
C
C     EXPGD= FACOM SSL B/003
C
65     FCOR=EXP(-SCAB)+SCAB*EI
66     FP(J) = FPO*FCOR
67     250 SCAB = SCABT
68     SUMF = 0.
69     DO 260 I=1,MX
70     FN = FP(MX+1-I)
71     FL(I) = FP(I)+FN
72     260 SUMF = SUMF+FL(I)
73     FSELF = SUMF/MX/FLO
C
C     PRINT OF INITIAL SETTING
C
74     WRITE(6,900) COM,COM2,I2,IN,DL,SL,WGD
75     WRITE(6,980) FLO,RTTO,TIME
76     WRITE(6,985) MX,MXW,MT,MTW,ISTP
77     WRITE(6,901) IOUTZ,DX,DT,DTHR2,FPO,CAB(1),VOLM
78     DT=DT*3600.

```

(FTMAIN )\*

```

79      DO 270 K=1,IZ
80      WRITE(6,905) (ATOM(K,L),AND(K,L),L=1,IN)
81      WRITE(6,910) (AO(K,L),L=1,IN)
82      WRITE(6,911) (A(K,L,1),L=1,IN)
83      WRITE(6,912) (SIGM(K,L),L=1,IN)
84      WRITE(6,990) (SZR(K,L),L=1,IN)
85      WRITE(6,995) (GR(K,L),L=1,IN)
86      WRITE(6,913) (TH(K,L),L=1,IN)
87      270 WRITE(6,914) (DCON(K,L),L=1,IN)
88      WRITE(6,955)
89      IX = 0
90      DO 275 JX = 1,MID
91      IF(JX.EQ. 1.OR.JX.EQ.MID) GOTO 273
92      IF(IX.EQ.MXW) GO TO 273
93      IX = IX + 1
94      GO TO 275
95      273 X = (JX-0.5)*DX
96      WRITE(6,960) JX,X,FL(JX)
97      IX = 0
98      275 CONTINUE
99      WRITE(6,965) FSELF
      C
      C CHANGE UNIT IN SEC AND CM
      C
100     DO 280 K=1,IZ
101     DO 280 L=1,IN
102     DCON(K,L) = DCON(K,L)/3600.
103     SIGM(K,L) = SIGM(K,L)*1.E-24
104     280 TH(K,L) = TH(K,L)*3600.
      C
      C START
      C
105     IF(IOUTZ.NE.0) ICOL = 100
106     IT = 1
107     T=0.
108     DO 750 JT = 1,MT
109     IF(JT.EQ.MT) DTO = DTHR2
110     T = T+DTU
111     IF(JT.EQ.MT) DT = DTO*3600.
      C
      C BATEMAN EQUATION
      C
112     DO 395 I=1,MID
113     DO 297 K=1,IZ
114     DO 297 L=1,IN
115     SF(K,L) = FLO*SIGM(K,L)*RTTO*SZR(K,L)*GR(K,L)
116     297 SF(K,L) = FL(I)*SIGM(K,L) + SF(K,L)
117     DO 300 K = 1,IZ
118     DO 300 L = 1,IN
119     DO 300 M = 1,IZ
120     DO 300 N = 1,IN
121     300 C(K,L,M,N) = 0.
122     DO 390 K=1,IZ
123     DO 390 L=1,IN
124     NU = A(K,L,1)
125     SUMB=0.
126     SUMN = 0.
127     DO 380 M=1,K
128     DO 380 N=1,L

```

(ETMAIN )\*

```

129      Q = SF(M,N) + DCON(M,N)
130      Q = Q*DT
131      IF(Q.LT.10.0.AND.Q.GE.0.) GO TO 310
132      Q=0.
133      GO TO 320
134      310 Q =DEXP(-Q)
135      320 IF(M.EQ.K.AND.N.EQ.L) GO TO 370
136      Z = SF(K,L) + DCON(K,L)
137      Z = Z-SF(M,N) - DCON(M,N)
138      X = 0.
139      Y = 0.
140      IF(K.EQ.1) GO TO 350
141      X =DCON(K-1,L)*C(K-1,L,M,N)
142      350 IF(L.EQ.1) GO TO 365
143      Y = SF(K,L-1)*C(K,L-1,M,N)
144      365 IF(DABS(Z).LT.1.0D-20) GO TO 380
145      C(K,L,M,N) = (X+Y)/Z
146      SUMB = SUMB +C(K,L,M,N)
147      GO TO 375
148      370 C(K,L,M,N) = NO - SUMB
149      375 SUMN = SUMN + C(K,L,M,N) *Q
150      380 CONTINUE
151      A(K,L,I) = SUMN
152      390 CONTINUE
153      395 CONTINUE

```

C  
C ABSORPTION COEFFICIENT  
C

```

154      DO 410 I=1,MID
155      CAB(I) = 0.
156      DO 410 K=1,I
157      DO 410 L=1,K
158      410 CAB(I) = CAB(I)+SIGM(K,L)*A(K,L,I)

```

C  
C FLUX  
C

```

159      SCAB=0.
160      DO 510 J=1,MX
161      FP(J) = 0.
162      I=J
163      IF(J.GT.MID) I=MX+1-J
164      SCABT = SCAB+CAB(I)*DX
165      SCAB=SCAB+CAB(I)*DX*0.5
166      IF(SCAB.GT.20.) GO TO 510
167      Y=-SCAB
168      CALL EXPGD(Y,EI)
169      FCOR=EXP(-SCAB)+SCAB*EI
170      FP(J) = FPO*FCOR
171      510 SCAB = SCABT
172      SUMF =0.
173      DO 530 I=1,MX
174      II=MX-I+1
175      FN = FP(II)
176      FL(I) = FP(I)+FN
177      530 SUMF = SUMF +FL(I)

```

C  
C SELF-SHIELDING FACTOR FSELF  
C

```

178      FSELF = SUMF/MX/FLO

```

(FTMAIN )\*

```

C
C   TOTAL NO. AND TOTAL ACTIVITY
C
179     DO 540 K=1,IZ
180     DO 540 L=1,IN
181     SUM=0.
182     DO 535 I=1,MID
183     535 SUM = SUM + A(K,L,I)
184     SUMAUV(K,L) = 2.* SUM
185     ANET(K,L) = SUMAUV(K,L)*VOLM
186     BNUP(K,L)=0.
187     IF(AO(K,L),LE,1.E-20) GO TO 540
188     BNUP(K,L)=(AO(K,L)-ANET(K,L))/AO(K,L)*100.
189     540 ACTNET(K,L) = ANET(K,L)*DCON(K,L)
C
C   PRINT OUT
C
190     IF(IOUTZ.EQ,0) GO TO 580
191     IF(ICOL.LT,50) GO TO 550
192     ICOL = 0
193     WRITE(6,904)
194     WRITE(6,905) (ATOM(IOUTZ,L),ANO(IOUTZ,L),L=1,IN)
195     WRITE(6,970)
196     550 WRITE(6,975) JT,T,FSELF,(ACTNET(IOUTZ,L),L=1,IN)
197     ICOL = ICOL + 1
198     GO TO 750
199     580 IF(JT.EQ,1) GO TO 600
200     IF(JT.EQ,MT) GO TO 600
201     IF(IT.EQ,MTW) GO TO 600
202     IT=IT+1
203     GO TO 750
204     600 WRITE(6,915) COM,COM2
205     IF(JT.EQ,MT) WRITE(6,920)
206     IF(JT.NE,MT) WRITE(6,925)
207     WRITE(6,930) JT,T,FSELF
208     DO 690 K=1,IZ
209     WRITE(6,904)
210     WRITE(6,905) (ATOM(K,L),ANO(K,L),L=1,IN)
211     WRITE(6,935) (SIGM(K,L),L=1,IN)
212     WRITE(6,936) (TH(K,L),L=1,IN)
213     WRITE(6,937) (DCON(K,L),L=1,IN)
214     WRITE(6,938) (SUMAUV(K,L),L=1,IN)
215     WRITE(6,939) (ANET(K,L),L=1,IN)
216     WRITE(6,950) (BNUP(K,L),L=1,IN)
217     WRITE(6,941) (ACTNET(K,L),L=1,IN)
218     JX=1
219     IX = 0
220     IPAGE=1
221     610 ICOL=1
222     IF(IPAGE.EQ,1) GO TO 620
223     WRITE(6,904)
224     WRITE(6,905) (ATOM(K,L),ANO(K,L),L=1,IN)
225     620 IF(JX.EQ,1) GO TO 630
226     IF(JX.EQ,MID) GO TO 630
227     IF(IX.EQ,MXW) GO TO 630
228     IX=IX+1
229     GO TO 640
230     630 IF(ICOL.GT,50) IPAGE=0
231     IF(ICOL.GT,50) GO TO 610

```



IMAIN )\*

```

232      X = (JX-0.5)*DX
233      IF(ICOL,EQ,1) WRITE(6,945)
234      WRITE(6,940) JX,X,FL(JX),CAB(JX),(A(K,L,JX),L=1,IN)
235      IX = 0
236      ICOL = ICOL+1
237      640 JX=JX+1
238      IF(JX.LE,MID) GO TO 620
239      690 CONTINUE
240      IT=1
241      750 CONTINUE
242      DO 760 K = 1,IZ
243      DO 760 L = 1,IN
244      DCON(K,L) = DCON(K,L)*3600.
245      SIGM(K,L)=SIGM(K,L)*1.E24
246      760 TH(K,L) = TH(K,L)/3600.
247      800 JSTP = IJSTP+1
248      GO TO(120,150,110,100,850),JSTP
249      850 STOP
250      1 FORMAT(2I2,19A4)
251      2 FORMAT( 2A4,4E12,5)
252      3 FORMAT(3E12,5,7A4)
253      4 FORMAT(6E12,5)
254      5 FORMAT(F10,4,5I4)
255      6 FORMAT(10F8,6)
256      900 FORMAT(1H1///// 20X,6H **** ,19A4///35X, 7A4, 6H **** //15X,
1 16H INITIAL SETTING/
2 20X, 8H IZ = ,I10 /
3 20X, 8H IN = ,I10 /
5 20X, 8H DL = ,10E10,3, 5H (CM)/
8 20X, 8H SL = ,10E10,3,7H (CM+2)/
8 20X, 8H WGD = ,10E10,3,4H (G)/
257      901 FORMAT(
9 20X, 8H IOUTZ= ,I10///
5 20X, 8H DX = ,10E10,3, 5H (CM)/
6 20X, 8H DT = ,10E10,3, 5H (HR)/
6 20X, 8H DTHR2= ,10E10,3, 5H (HR)/
7 20X, 8H FPO = ,10E10,3,13H (CM-2,SEC-1)/
8 20X, 8H CAB = ,10E10,3, 7H (CM-1)/
8 20X, 8H VOLM = ,10E10,3, 7H (CM+3))
258      904 FORMAT(1H1///)
259      905 FORMAT( /30X, 5H NUCL,10(2X,2A4))
260      910 FORMAT(27X, 8H TOT,NO.,10(10E10,3))
261      911 FORMAT(25X,10H NO,PER CC,10(10E10,3))
262      912 FORMAT(23X,12H SIGMA(BARN),10(10E10,3))
263      913 FORMAT(21X,14H HALF LIFE(HR),10(10E10,3))
264      914 FORMAT(17X,18H DECAY CONST,(/HR),10(10E10,3)///)
265      915 FORMAT(1H1///20X,5H**** ,19A4/35X, 7A4, 6H ****//)
266      920 FORMAT(/40X,25H **** FINAL RESULTS **** )
267      925 FORMAT(/40X,31H **** INTERMEDIATE RESULTS ****)
268      930 FORMAT(/50X, 6H JT = ,I5//50X,6H T = ,10E10,3, 5H (HR)/
1 /50X,6HFSELF=,10E10,3///)
269      935 FORMAT(29X, 6H SIGMA,10(10E10,3))
270      936 FORMAT(20X,15H HALF LIFE(SEC),10(10E10,3))
271      937 FORMAT(16X,19H DECAY CONST,(/SEC),10(10E10,3))
272      938 FORMAT(16X,19H NO, IN UNIT VOLUME,10(10E10,3))
273      939 FORMAT(21X,14H NO, IN SAMPLE,10(10E10,3))
274      940 FORMAT(1X,13,1X,13(10E10,3))
275      941 FORMAT(21X,14H ACTIVITY(DPS),10(10E10,3))
276      945 FORMAT(1X, 4H JX ,10H X ,10H FLUX ,

```

FACOM 230-75 (M7) FORTRAN-D -750715- V06-L05 76.06.04 PAGE 7

(FTMAIN )\*

```

      1 10HABSO.COEF.,16H ATOM NO. PER CC/ 5X,10H (CM)
      2 .11H(CM-2SEC-1), 9H (CM-1) )
277 950 FORMAT(21X,14H BURN-UP(P.C.),10(10E10.3))
278 955 FORMAT(1H1/////20X,36H **** INITIAL FLUX DISTRIBUTION ****///
      1 25X, 4H JX ,10H X ,10H FLUX /
      2 29X,10H (CM) ,11H(CM-2SEC-1)//)
279 960 FORMAT(24X,14,1X,2(10E10.3))
280 965 FORMAT(///24X, 9H FSELF = ,10E10.3)
281 970 FORMAT(11X, 4H JT ,11H TIME (HR) ,10H FSELF
      1 ,21H NET ACTIVITY (DPS) /)
282 975 FORMAT(10X,14,1X,F10.2,11(10E10.3))
283 980 FORMAT(/
      7 20X, 8H FLD = ,10E10.3,13H (CM-2,SEC-1)/
      7 20X, 8H RTTO = ,10E10.3/
      8 20X, 8H TIME = ,10E10.3, 5H (HR)//)
284 985 FORMAT(/
      9 20X, 8H MX = ,110 /
      1 20X, 8H MXW = ,110 /
      2 20X, 8H MT = ,110 /
      3 20X, 8H MTW = ,110 /
      9 20X, 8H ISTD = ,110//)
285 990 FORMAT(28X,7H SZERO ,10(10E10.3))
286 995 FORMAT(12X,23H EPITH. SELF-SHI. FACT.,10(10E10.3))
287 END

```