

## 放射化分析用放射線自動計測・解析システムの開発と岩石標準試料の分析

田中 剛\* 上岡 晃\* 山中宏青\*\*

TANAKA, T., KAMIOKA, H. and YAMANAKA, K. (1988) A fully automated  $\gamma$ -ray counting and data processing system for INAA and analysis of rock reference samples. *Bull. Geol. Surv. Japan*, vol. 39 (8), p. 537-557.

**Abstract:** A fully automated  $\gamma$ -ray counting and data processing system is developed for nondestructive neutron activation analysis.

Automated sample changer keeps thirty activated samples without any interference in a detector. Samples are changed under the control of presetting time and maximum counts per channel.  $\gamma$ -ray energies of peak and base positions for the interested nuclide are presetted. Energy/channel calibration is performed for each measurement using some prominent peaks such as Sc, Fe, Co, La, and Sm in geologic samples.

Then, data processings are always done by the equivalent peak/base area for each sample analyzed. Sample weights are put in a computer before the measurement, and analytical results are printed out in terms of ppm or percent.

By the employment of this system, Na, Sc, Cr, Fe, Co, Zn, Cs, Ba, La, Ce, Nd, Sm, Eu, Tb, Yb, Lu, Hf, Ta, Th and U abundances are determined for the Geological Survey of Japan rock reference samples JB-1 and JG-1. Accuracy and precision for most of the above elements are better than 5%. This system will enable us to analyze more than 1000 geologic samples per year.

## 1. 緒 言

中性子放射化分析法は半導体検出器の出現により、試料の化学処理をしないで（非破壊法）多数の元素を定量できる方法として広く用いられている（例えば日下, 1973; 橋本, 1978）。本法が多岐にわたる分野への応用が可能であることから、既製の $\gamma$ 線エネルギースペクトルの解析プログラムは、さまざまな試料への対応を考え、汎用性を持たせて作られている。しかし、個々の場合においてはこのようなプログラムでは不十分な点もみられた。たとえば、目的とするエネルギーピークを含むいくつかのピークが隣接する場合、コンピュータは複合ピークとして一括処理をしたり、単独ピークとして解析された場合でも、そのベースラインがピーク本体からはるかに離れた場所に設定され、不適当な値を与えることがあった。従って地質試料のように種々の元素を含む場合において精度の良い分析結果を得るためには、最終的に、目視によるスペクトルの確認と電卓による手計算が

解析手法としての大勢を占めている。しかしながら、地質試料においては出現する $\gamma$ 線エネルギーピークは複雑ではあるものの、全体としては極めて限定された化学組成の反映である（例えば工業素材のように金50%を含む合金中に鉄が100ppm含まれるものは存在しない）。

本研究では、地質学において多成分元素の分析が必要な試料の多くが、花崗岩-玄武岩の化学組成をもつものであるという現状をふまえ、以下の観点から放射化分析用放射線自動計測・解析システムを開発した。

① その主要化学組成から、玄武岩-花崗岩の範疇に入るものが高精度で自動分析できること。

② 最近、蛍光X線分析法やICP発光分光分析法の進歩により、珪酸塩試料の主成分の分析が精度よく、容易に成し得るようになったので（たとえば杉崎ほか, 1977; 今井, 1986）、本研究で主成分元素は分析の対象としない。

③ 多数の試料を分析することと作業従事者への放射線被曝を減らすことを目的とし、位置再現性の優れた自動試料交換装置（オートサンプルチェンジャー）を開発・装備する。

\* 技術部

\*\* セイコー・EG &amp; G 株式会社

④ 自動解析プログラムを構築し、電卓による手作業および集計などの作表作業を可能なかぎり省く。更に解析結果を用いて考察を行う段階での分析値転写ミスをなくするため、フロッピーディスク中への分析値出力も可能とする。

⑤ 作業手順を単純化し、安全性と信頼性を増す。

⑥ 試料の準備および測定・装置の維持から結果の表示に至る全分析過程における経費が少ないものとする。

以上 6 点を主な目標とし、放射化分析用放射線自動計測・解析システムを開発した。更に、このシステムを用いてさまざまな条件下で岩石標準試料 (玄武岩 (JB-1) および花崗閃緑岩 (JG-1)) の繰り返し測定を行った。

本報告では上記自動計測・解析システムについて詳述し、ここで分析された岩石標準試料の値から本システムの能力および岩石標準試料の持つ問題点を論じる。なお、地質調査所で発行している多種類の岩石標準試料のうち、本報告で取り扱わなかった試料の分析結果と分析値の評価については上岡・田中 (準備中) に報告されている。

**謝 辞** 本報告は地質調査所放射化分析室においてなされた研究の第一報である。本放射化分析室 (密封されていない放射性同位元素使用施設) の開設にあたって、五井博事務官を始めとする総務部の方々には多くの尽力をいただいた。またここで用いた技法の基本は筆者の一人田中がシカゴ大学において A.M. DAVIS 博士および L. GROSSMAN 教授から習得したもので、本研究はそれをもとに、高度の自動計測・解析システムを開発したものである。本稿をまとめるにあたっては、安藤 厚化学課長に標準岩石試料の分析データとそれらの信頼度について多くの御教示をいただいた。ここに記し、これらの方々々に感謝申し上げる。

なお、本研究は経常研究「地球化学の研究」および、国立機関公害防止等試験研究「地球化学図による元素のバックグラウンドと人為汚染の評価技術に関する研究」(伊藤ほか, 1987 参照) の一環として行ったものである。

## 2. 原 理

試料を高エネルギーの荷電粒子 (陽子・ $\alpha$  粒子など)、中性子、光子などで照射すると、試料中の元素はその核種の特性に従って核反応を起こす。その結果、不安定な放射性核種が生成される。この放射性核種は、それから放出される  $\beta$  線、 $\gamma$  線等の放射線により検知され、放射線のエネルギー (波長) と半減期により核種が同定される。

$t$  時間の照射によって生ずる放射能を  $A$  (dps), 目

的とする核種の原子数を  $N$ , 照射粒子の線束を  $f$  ( $n/cm^2 \cdot sec$ ), 目的とする核種の核反応断面積を  $\sigma$  (バーン  $= 1 \times 10^{-24} cm^2$ ), 生成放射性核種の壊変定数を  $\lambda$  とすれば  $t$  時間の照射を終了した時の放射能  $A_0$  は

$$A_0 = N \cdot f \cdot \sigma \cdot (1 - e^{-\lambda t}) \dots \dots \dots (1)$$

となる。

照射終了後  $T$  時間経過した時目的核種の放射能  $A_T$  は

$$A_T = N \cdot f \cdot \sigma \cdot (1 - e^{-\lambda t}) e^{-\lambda T} \dots \dots \dots (2)$$

である。

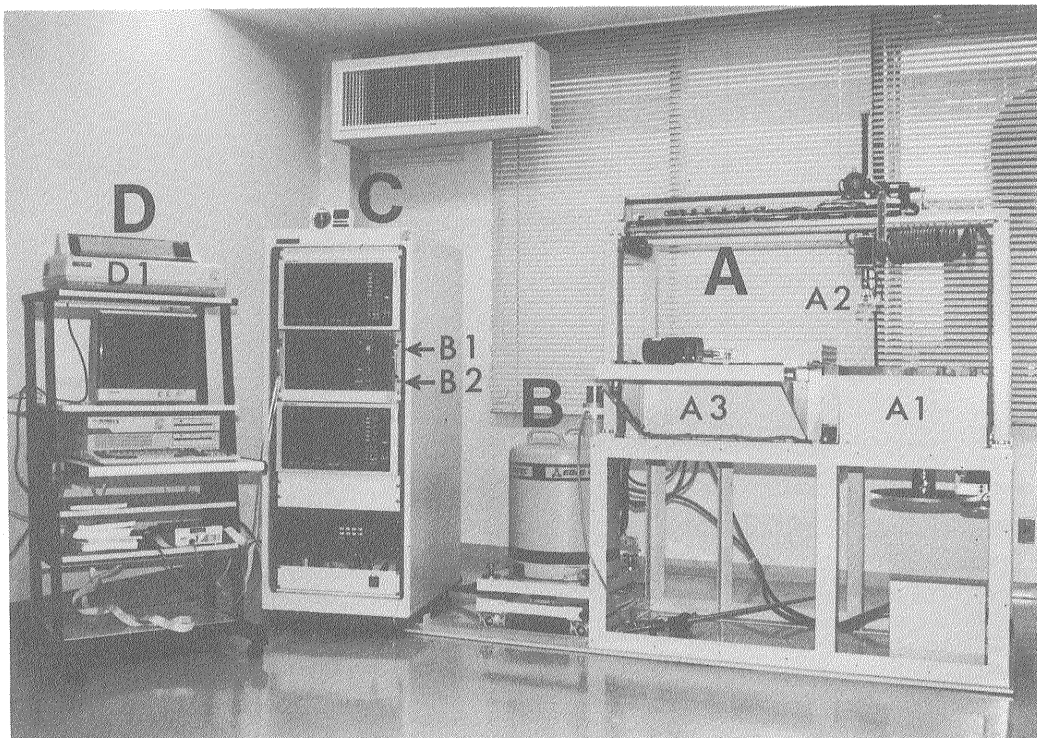
未知試料において (2) 式の  $N$  以外の項は物理定数あるいは照射条件として知ることができるので、 $A_T$  を測定すれば  $N$  の量を求めることが可能である。しかし、一般の測定において、 $f$  や  $A_T$  を絶対値として精度良く求めることは極めて難しい。従って一般に  $N$  が既知 ( $N_s$ ) の物質を標準試料とし、未知試料と同時に均質な  $f$  で照射し、同じ測定条件で  $A_t$  を求め、未知試料の  $N$  を標準試料の  $N_s$  との相対値として求める。

本研究における測定は標準試料として JB-1, JG-1, BCR-1 など元素存在度が既知の岩石標準試料又は実験室で調合した試薬を用いる相対測定である。また、放射化には熱中性子を用いた。光子による放射化分析は熱中性子によるものとは異なる核反応に基づいており、YOSHIDA *et al.* (1986) に詳説されているように、分析される元素もいくぶん異なる。

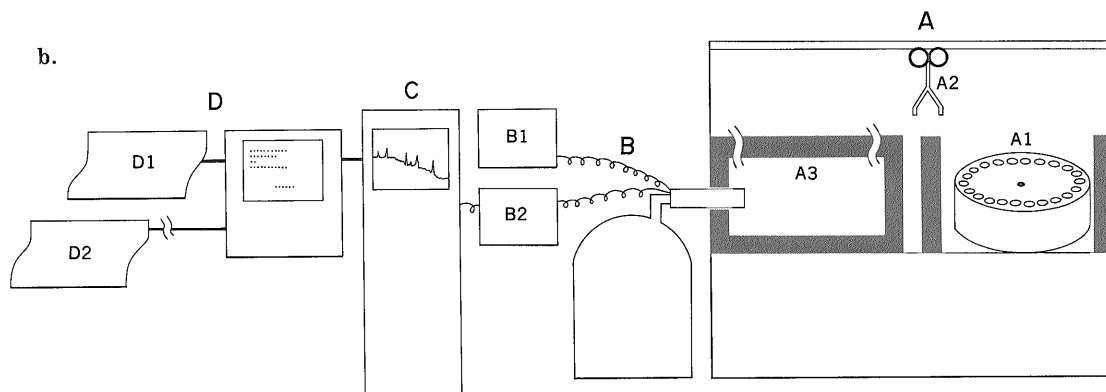
## 3. 装 置

この計測・解析システムは、A シャーヘイ体付サンプルチェンジャー部、B 検出器部、C 波高分析器部、および D データ処理部、より構成される。第 1 図 a および b にシステムの全容および略図を示す。A は東京シャーヘイ機器製シャーヘイ体付サンプルチェンジャー SC-101-S 型 (特別注文製作) である。第 1 図の A1 部分に 30 個の試料が待機できるようになっており、周囲は作業従事者の安全と測定系への干渉を防ぐために 5 cm 厚の鉛で囲われている。試料はマジックハンド A2 により自動的に測定用シャーヘイ体 A3 に搬入・搬出がなされる。シャーヘイ体 A3 は 5 cm 厚の鉛、5 mm 厚の無酸素銅およびアクリルで囲われている。内部は 18 cm  $\times$  18 cm  $\times$  48 cm の空間容積を持つ。A3 上部はスライドシャッターとなっており、試料交換時に自動的に開閉する。A3 内部は検出器ヘッドに至近の位置 (ヘッドから 0.5 cm) および 3 cm, 6 cm, 10 cm, 15 cm, 21 cm, 28 cm, 35 cm, それぞれ離れた位置に試料をセットできるようになっており、試料の持つ放射線強度により、測定に最適の場所が選択される (第 2 図)。試料を

a.



b.



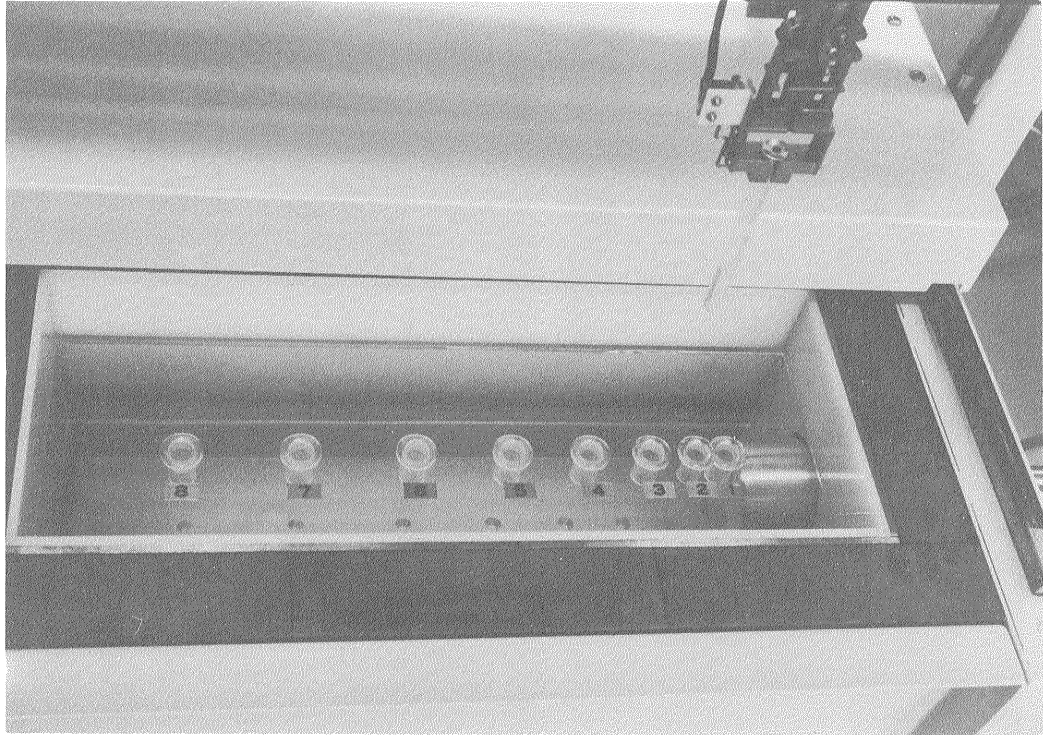
第1図 放射化分析用放射線自動計測・解析システムの全容 a および略図 b. 各部 (A-D) については本文参照  
 Fig. 1 An outline of fully automated  $\gamma$ -ray counting and data processing system.  
 See the text for A-D.

セットする位置の再現性は 0.1 mm より良い。

検出器 B はオルテック社製の高純度ゲルマニウム検出器 GEM 20180 型で、オルテック社製 459 型高压電源 (B1) により 3500 V の電圧を付加して用いる。地質調査所に据付後の測定検査では相対効率 22%、ピーク/コンプトン比 57.02 であり、1.33 MeV および 122 keV においてそれぞれ 1.78 keV および 0.79 keV の

半値幅分解能を持つ。検出器は水平ストリームライン型で 30 l のオフセットポート型デュワにセットされている。検出器からの信号は EG & G・オルテック社製の 572 型増幅器 (B2) で増幅されるが、放射化分析においては高い係数率での測定がなされるので、本増幅器はパイルアップリジェクターが装備されたものである。

C の波高分析器はセイコー EG & G 社製 7800-8 A 2



第2図 鉛しゃへい体内の試料ホルダーと検出器  
Fig. 2 Sample holder and high pure Ge detector in lead shield.

型波高分析器および1820型ADC(アナログ-デジタルコンバーター)を含む。ADCは4096チャンネルを用いている。ADCは本研究で測定が予定されているツリウム $^{170}\text{Tm}$ の84 keVからアンチモン $^{124}\text{Sb}$ の1691 keVをカバーするために、波高分析器の1チャンネルが約0.42 keVになるようにセットした。

Dは日本電気製PC9801 VX4パーソナルコンピューターで、20 MBのハードディスクが内蔵されている。機器制御および解析プログラム、各種ファイルはすべてハードディスクに収められており、データの収録、解析結果の保存もここへなされる。必要な測定・解析が終われば、それらの値は試料重量、測定時刻などの基本ファイルとともにフロッピーディスクへコピーされ保管される。以下においては特に断わらない限り、ハードディスクをディスクと称する。プリンターはD1、D2で示すように2台備えている。D2は放射線管理区域外に設置され、放射線管理を全く気にせずに大量の出力が可能となっている。本研究ではDで使用する解析ソフトの開発に重点を置いたが、それについては7節において詳述する。

#### 4. 試料調製

岩石粉末試料には密度の異なるさまざまな鉱物粒子が含まれている。特に酸性岩ではスフェンやジルコンといった希元素に富む副成分鉱物が十分に粉碎されなかったり、粉碎されても粉体試料中に偏在することがしばしばみられる。従って、その試料が地球化学的に正確な意味を持つため(試料がその岩石全体を代表すること)にはできるだけ多量の試料を分析に使用することが望ましい。しかし、大きな試料サイズは中性子照射時および $\gamma$ 線測定時の自己しゃへい・自己吸収、照射時の中性子フラックスの不均一性、および測定時の位置(ジオメトリー)の再現性についての問題がある。中性子および $\gamma$ 線の自己吸収についてはPortts(1987)による総括がある。Portts(1987)において直接表現されていないが、そのデータから検討すれば、粉体の岩石試料500 mg(比重を1.6とすれば直径、高さとも約6 mmの円柱となる)内での吸収等による中性子束、 $\gamma$ 線の変動は最大2%と判断せられる。また、このような吸収等による変動は分析の標準物質として類似の主成分を持つものを用いれば、その相殺が期待されることから、重量約1 gま

ではさほど問題ではないと考えられる。しかし、後述のように、1gの粉体試料を石英製の試料チューブに入れることを仮定すれば、照射カプセル1個に数個の試料チューブを格納できるにすぎない。この仮定は試料の均一性から見れば優れているものの、多数の試料を簡便に分析するという所期の目的に合致しない。多数試料の分析という見地からはできるだけ多数の試料が同時に処理されることが望ましい。加えて、中性子照射が、本研究において照射依頼をする日本原子力研究所東海研究所において、直径28mm、長さ70mmのカプセルを単位として、有料でなされることから1つのカプセルにできるだけ多数の試料を入れることが望まれる。結果として試料1個のサイズは小さくなる。このように放射化分析では試料の量と数の拮抗の上に立ち、それらの条件を決める必要がある。また本方法で分析を予定している元素の内、半減期の短いものは、主成分として他の方法でも容易に分析されるナトリウムとカリウムを除き、 $^{76}\text{As}$ の26.3時間、 $^{140}\text{La}$ の40.3時間である。従ってこれらの元素を目的とする1シリーズの測定は40-50時間以内に終わることが望ましい。すなわち1試料5000秒の測定を仮定すれば、照射カプセル1個に入れる試料は20-30試料以内が望ましいということになる。以上の点から試料1個の量を約100mgとし、本研究では1回に約25試料づつ中性子照射することとした。100mgの試料量は同位体希釈法や原子吸光法などによる分析時にもよく用いられる量であり、十分な注意をもって準備された試料粉末では多くの元素についてその均質性に問題はないと考えられる。試料の不均一性によると考えられる2-3の元素分析値のばらつきについては本文第9節および上岡・田中(準備中)において議論を重ねた。

岩石粉末試料は、中性子や $\gamma$ 線の吸収が少なく、放射化されにくい容器の中に入れて中性子照射される。一般にポリエチレン容器又はバッグ、又は石英チューブに封入されることが多い。前者は比較的手軽で安価であるが、静電気などでバッグが汚染され易く、熱に弱い。後者はやや高価であるが、力学破損を除けば安全である。ここでは石英チューブ封入方式を採用し、力学的な破壊を避けるため、照射洗浄後テフロン熱収縮チューブで周囲をカバーすることとした。

手順の概要を第3図に示す。石英チューブとして、東芝セラミックス製合成石英管 T-4040、内径約3mm、外径約4.5mm(Q-2)を用いた。石英管は10cmの長さに切断し、ピーカの中に立て、洗剤、熱硝酸で洗浄後、純水で十分に酸を除き、乾燥する。清浄な環境において石英管の中央部を酸素・ガスバーナで切断すると、

長さ5cmの片封じ管ができあがる。(この程度の太さの石英管の工作には酸・水素バーナは不用である)。この石英チューブに100mgの岩石粉末試料を封入すると、その長さは約8mmとなる。試料番号はタングステンカーバイトの針を持つ彫刻器(ストライカー)により、石英管の表面に刻字し、油性マーカーでなぞり、読み易くした。試料封入後、石英チューブは熱硝酸で洗浄、冷純水中に放置する。封入が不完全な試料チューブは、水が石英管内部に侵入することにより容易に判別される。

## 5. 中性子照射

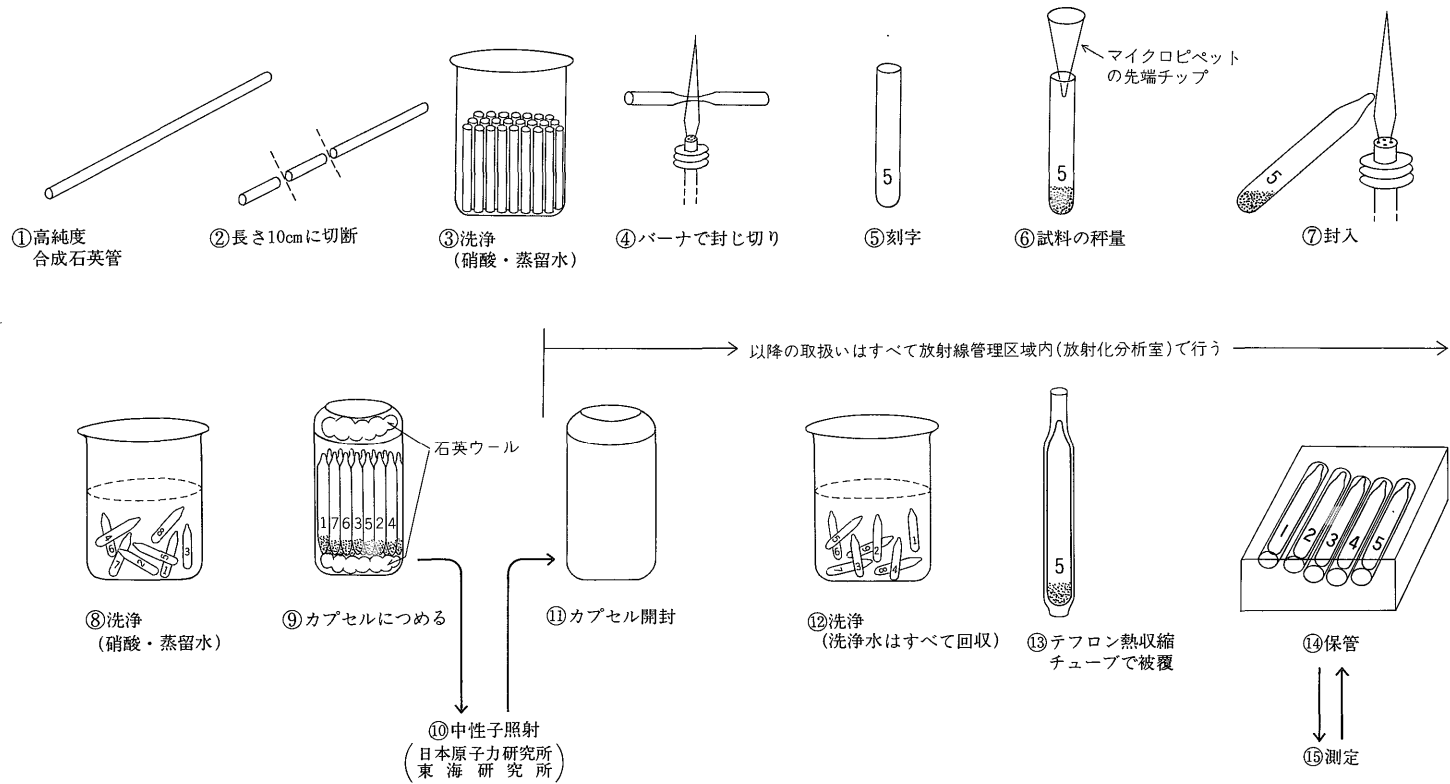
分析対象とする放射性核種の半減期から考えると、照射時間が50-60時間位までは照射時間の長さとともに検出感度が向上する。しかし、前述のように、日本原子力研究所 JRR-4 による照射経費 G 円が照射時間 H の関数

$$G = 6000 + 6920 \times H$$

であること(日本原子力研究所, 1985)、および必要以上に強い放射能は取扱いの安全上からも好ましくないことから、計測装置の持つ計数速度を十分に発揮し得るのに必要最低量(すなわち、長半減期を持つ核種の測定時において、試料を最も検出器に近付けた位置で検出器の不感時間が5-10%となる)が得られる照射時間を本研究における最適照射時間とした。この最適照射時間は試料の化学組成、特にスカンジウム、鉄、コバルト等の含有量により変化するが、岩石粉末試料100mgをJRR-4, Sパイプで照射することを仮定すれば、1-3時間の照射で十分な $\gamma$ 線強度が得られることがわかった。

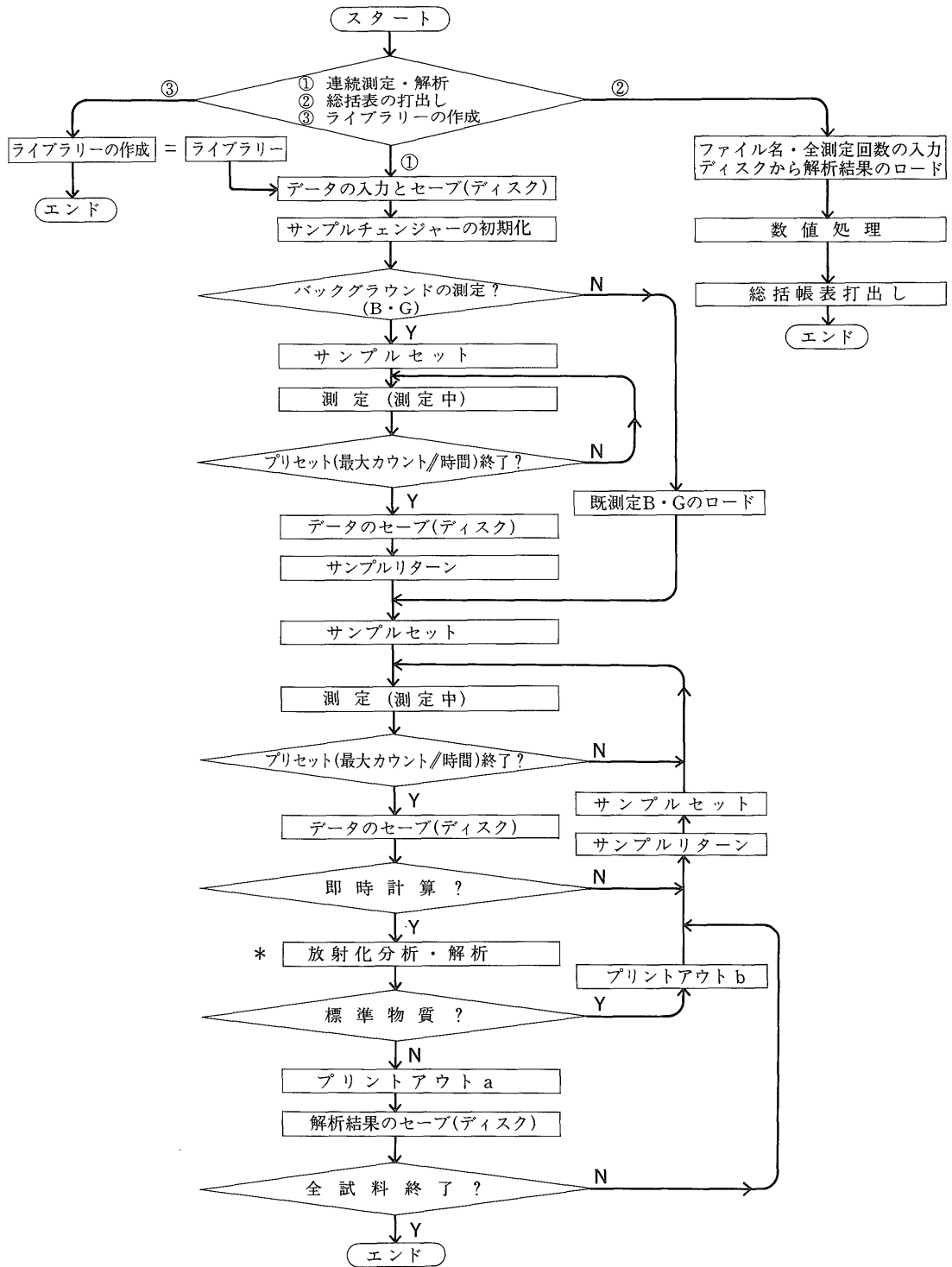
## 6. 測定

一般の岩石中にはナトリウムが $\text{Na}_2\text{O}$ として1-3%含まれる。ナトリウムはよく放射化され、中性子照射直後を除き、最も多量の $\gamma$ 線を放出するので、分析目標とする元素からの $\gamma$ 線は $^{24}\text{Na}$ のコンプトンピークに隠れいさがちである。従って本研究では照射後約1週間の冷却により、 $^{24}\text{Na}$ による $\gamma$ 線が弱くなった後、第1回目の測定を行った。又、30-40日後に長半減期核種の測定を行った。測定時間はいずれも5000-10000秒である。測定手順の概略を第4図に示す。第3図⑬の状態で保管されている試料を標準試料、未知試料の順にサンプルチェンジャーにセットする。測定は、測定のみ、測定と同時に解析、解析のみ等を選択して行える。停電等により測定が中断した場合も、既に得られたデータを無駄にすることなく測定が継続される。測定に先立ち、測



第3図 試料調製の手順概略

Fig. 3 An outline of sample preparation for automated INAA system.



第4図 分析システムの作動流れ図 データ解析部(\*印)の詳細は第6図に示す

Fig. 4 Flow diagram of analytical process. Details of data processing (\* marked) are shown in Fig. 6.

定番号, 試料(番号)名, 試料重量, 標準試料名, 壊変補正基準日時, プリセット条件, 測定位置等を入力する。前5条件は, 長半減期核種測定時にも同じなので2回目以降の測定では入力を省略できる。バックグラウンドの測定はサンプルチェンジャーに待機する多数の試料による測定系への影響を考慮して行われるが, 標準試料と未知試料の組成がともに玄武岩-花崗岩の範囲にある場合は全く問題とならない。しかし, 例えば, オスミウム, イリジウムといった元素を精度よく測定するために, 未知試料に比べて濃度が著しく高い標準試料がサンプルチェンジャーに待機する場合, 考慮の対象となろう。バックグラウンドを測定しない場合, 既に長時間測定されたルームバックグラウンドがディスクからロードされる。

プリセットは測定時間とチャンネルあたりの最大カウンターの両方を同時に用いることができ, 早くその設定条件に達した方により規制される。これは試薬を用いた標準試料と通常の岩石試料が共存する場合を考慮したもので, 前者では2-3の単純なエネルギーチャンネルのみに急速な積算がなされ, 後者ではたくさんのエネルギーチャンネルにまんべんなく積算がなされる。前者は最大カウントプリセットにより比較的短時間に十分な測定を終え, 後者は良いデータを得るに十分なだけ長時間測定することになる。地質調査所標準岩石試料 JB-1(玄武岩)の測定例を第5図に示す。冷却時間の差により, 測定される $\gamma$ 線の相対強度が大きく異なることが理解されよう。

測定を終えたデータはディスクにセーブされるが, 即時計算を指示してあれば, その場で解析がなされ, その結果が印字される。解析結果は後日の総括帳表作成(第8節参照)のためにその誤差とともにディスクにセーブされる。

## 7. 解析

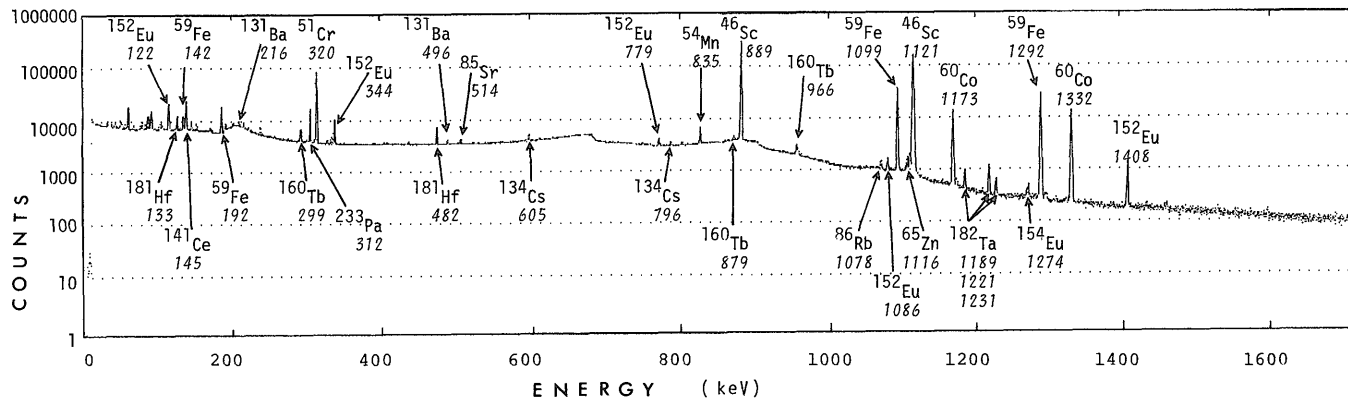
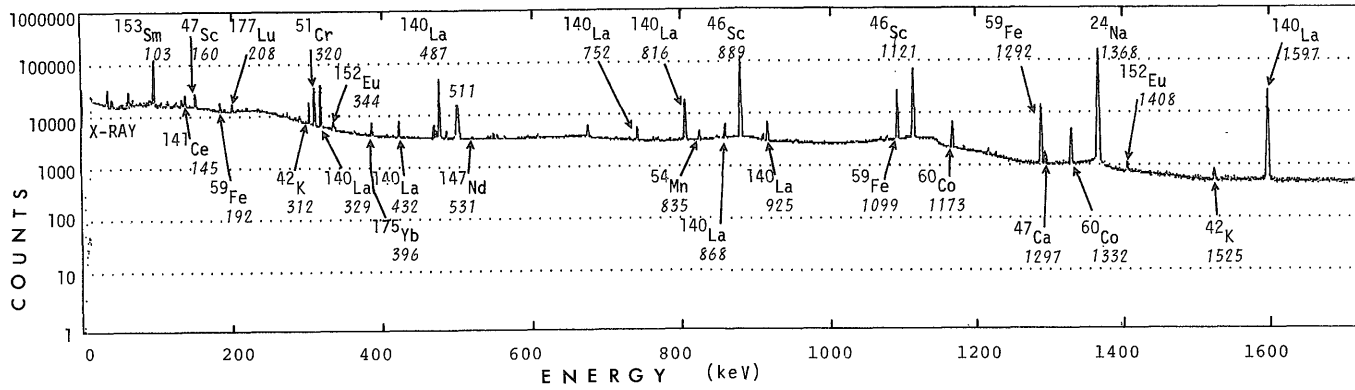
測定対象とする放射性核種はそれぞれ複数のエネルギーを持つ $\gamma$ 線を放出するものが多い。地質試料の分析に用いる $\gamma$ 線エネルギーの選択においては, その強度と他の核種による干渉補正などの見地から多くの研究がなされている。本研究では PERLMAN and ASARO (1969), 日下 (1973), LAUL (1977), 橋本 (1978) および DAVIS *et al.* (1982) による検討に基づき, 第1表 B および C に示す核種とエネルギーを持つ $\gamma$ 線を解析に用いた。

ガンマ線エネルギースペクトルをコンピューターにより解析する場合, 一般にはスペクトルのスムージング(平滑化)ののち, ピークの判定, ピーク領域の設定,

半値幅の算出, ベース領域の設定がなされ, 最後にピーク面積の計算がなされる。この方法(プログラム)は通常起こりうるあらゆるケースを想定して作られている(たとえばセイコー・EG & G 株式会社, 1985)。従って広範囲の問題に対応するものの, 個々の場合において, たとえば目的とするピークの近くに近接ピークがいくつも存在する場合, ベースの設定がピークから遠く離れてしまうなど細かい対応が不十分なことが多い。この対応の困難さと解決の1方法については池田 (1979) による検討がある。

さて, 一般の地質学的試料では, 多種類の元素が存在することにより, ピークスペクトルは極めて複雑である。しかし, そのピークスペクトルは玄武岩-花崗岩といった地質試料に限定すれば, そこに含まれる元素数が多いものの, その存在度は相互に類似性を持っている。従って本研究ではピークの中心をその測定ごとに定め, あらかじめ花崗岩-玄武岩を用いて設定してあるピーク領域, ベース領域を用いてピーク面積を算出するシステムを構築した。その手法は蛍光 X 線分析がその機器性能および安定性の向上により, ピークを記録紙上に書かせて強度を計算していた時代から, ピークとベース領域の波長を設定し, その位置の X 線強度を求めるよう手法の転換がなされたことに対応するものであろう。玄武岩-花崗岩といった地質学的試料の中には, 鉄, コバルト, スカンジウム, ランタン, サマリウム等の元素が必ず含まれ, これらの元素はよく放射化され, 強い $\gamma$ 線を放出する。解析システムはこれらの核種についての情報を持ち, 精度良く測定された(計数誤差1%未満)ピークを用い, その測定自身のエネルギー/チャンネル calibration を行う。求められたエネルギー/チャンネル関係を用い, 弱小ピークについてピーク中心チャンネル N を規定する。第1表 H, I, J 項に指定した条件ですべての予想されるピーク領域においてピーク, 低エネルギー側ベース, 高エネルギー側ベースを選び, Covell 法によりピーク面積を求める。その過程をフローチャートとして第6図に示す。このピーク面積計算法は弱小ピークについて精度の良い値が得られるのみならず, 個々の測定ごとにエネルギー/チャンネルの calibration を行うので数時間(1測定期間)を越えるエネルギー/チャンネル関係の変動(ドリフト)を問題にしないで良い利点がある。すなわち従来のマルチチャンネルアナライザーでは室温の変化に由来する ADC や増幅器の電氣的特性の変動を問題としていたが, 本システム全体が絶対的に安定したものであり, システム設置以来1年間のエネルギー/チャンネル関係の変動が最大部分において2チ





第5図 JB-1 を日本原子力研究所東海研究所 JRR-4 号炉 D 照射孔 ( $5.5 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ ) において3時間中性子照射. 6日冷却後 (A), および27日冷却後 (B) にそれぞれ8000秒, および4465秒測定した時の $\gamma$ 線スペクトル図. 観察される主なピークに核種名とエネルギー値 (斜字, keV) を付記した.

Fig. 5  $\gamma$ -ray spectrum of JB-1, showing 6 days (A) and 27 days (B) cooling after 3 hours irradiation by D irradiation by JRR-4 ( $5.5 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$ ). Observed nuclides and their  $\gamma$ -ray energies (keV) are indicated.

第1表 標準物質ファイルの1例  
Table 1 An example of reference material files

A	B	C	D	E	F	G	H	I	J	K			
Na, Na-24	,1368.5	,15.02	,H	,2.07	,%	,N-7	,N+6	,N-13,N-9	,N+8	,N+12	,	,	,
K, K-42	,1524.7	,12.36	,H	,1.18	,%	,N-5	,N+4	,N-11,N-7	,N+6	,N+10	,	,	,
Sc, Sc-46	,889.3	,83.83	,D	,27.4	,ppm	,N-7	,N+6	,N-13,N-9	,N+8	,N+12	,	,	,
Cr, Cr-51	,320.0	,27.704	,D	,469	,ppm	,N-3	,N+3	,N-4, N-4	,N+4	,N+8	,	,	,
Fe, Fe-59	,1099.2	,45.1	,D	,6.26	,%	,N-7	,N+6	,N-13,N-9	,N+8	,N+12	,	,	,
Co, Co-59	,1332.5	,5.26	,Y	,38.7	,ppm	,N-7	,N+6	,N-13,N-9	,N+8	,N+12	,	,	,
Ni, Ni-58	,810.8	,70.76	,D	,139	,ppm	,N-3	,N+3	,N-7, N-5	,N+5	,N+7	, -0.014	, Eu-152	,
Zn, Zn-65	,1115.5	,244.1	,D	,83	,ppm	,N-4	,N+4	,N-16, N-14	,N+5	,N+5	,	,	,
Se, Se-75	,264.65	,120.4	,D	,26	,ppb	,N-2	,N+2	,N-5, N-3	,N+4	,N+6	, -0.20	, Ta-182	,
As, As-76	,559.5	,26.32	,H	,2.48	,ppm	,N-4	,N+3	,N-8, N-6	,N+5	,N+7	,	,	,
Br, Br-82	,554.3	,35.30	,D	,580	,ppb	,N-2	,N+2	,N-5, N-3	,N+3	,N+5	,	,	,
Rb, Rb-86	,1078.8	,18.66	,D	,41.2	,ppm	,N-5	,N+4	,N-7, N-6	,N+5	,N+6	,	,	,
Sr, Sr-85	,514.0	,65.19	,D	,143	,ppm	,N-2	,N+1	,N-5, N-3	,N+2	,N+4	,	,	,
Zr, Zr-95	,756.7	,63.98	,D	,435	,ppm	,N-3	,N+3	,N-8, N-5	,N+5	,N+8	, -0.024	, Eu-152	,
Ru, Ru-103	,610.29	,39.35	,D	,0.01	,ppb	,N-4	,N+3	,N-9, N-6	,N+5	,N+8	,	,	,
Ag, Ag-110m	,658	,253	,D	,41	,ppb	,N-5	,N+4	,N-12, N-8	,N+7	,N+11	,	,	,
Sb, Sb-124	,1691.0	,60.20	,D	,0.35	,ppm	,N-6	,N+5	,N-12, N-8	,N+7	,N+11	,	,	,
Cs, Cs-134	,795.8	,2.062	,Y	,1.19	,ppm	,N-4	,N+4	,N-10, N-6	,N+6	,N+10	,	,	,
Ba, Ba-131	,496.3	,11.8	,D	,490	,ppm	,N-4	,N+3	,N-9, N-6	,N+5	,N+8	,	,	,
La, La-140	,1596.4	,40.272	,H	,37.0	,ppm	,N-7	,N+6	,N-27, N-18	,N+8	,N+16	,	,	,
Ce, Ce-141	,145.4	,32.50	,D	,67.5	,ppm	,N-2	,N+2	,N-11, N-9	,N+4	,N+6	,	,	,
Nd, Nd-147	,531.4	,10.98	,D	,26.8	,ppm	,N-3	,N+2	,N-7, N-5	,N+4	,N+6	,	,	,
Sm, Sm-153	,103.2	,1.946	,D	,5.13	,ppm	,N-2	,N+2	,N-5, N-3	,N+9	,N+11	, -1.545	, Np-239a	,
Np, Np-239a	,103.2	,2.355	,D	,.001	,ppb	,N-6	,N+8	,N+3, N+5	,N+9	,N+11	,	,	,
Eu, Eu-152	,1408.0	,13.2	,Y	,1.55	,ppm	,N-6	,N+5	,N-14, N-8	,N+7	,N+13	,	,	,
Tb, Tb-160	,1177.9	,72.3	,D	,0.74	,ppm	,N-4	,N+3	,N-6, N-5	,N+5	,N+6	,	,	,
Dy, Dy-166	,82.5	,81.6	,H	,4.19	,ppm	,N-1	,N+1	,N-2, N-2	,N+2	,N+2	,	,	,
Tm, Tm-170	,84.3	,128.6	,D	,0.33	,ppm	,N-1	,N+1	,N-2, N-2	,N+2	,N+2	, -0.58	, Ta-182	,
Yb, Yb-175	,396.3	,4.19	,D	,2.1	,ppm	,N-3	,N+3	,N-7, N-5	,N+5	,N+7	,	,	,
Lu, Lu-177	,208.4	,6.71	,D	,0.31	,ppm	,N-3	,N+3	,N-6, N-4	,N+8	,N+8	,	,	,
Hf, Hf-181	,133.0	,42.4	,D	,3.4	,ppm	,N-2	,N+2	,N-5, N-3	,N+3	,N+5	,	,	,
Ta, Ta-182	,1221.4	,115.0	,D	,3.6	,ppm	,N-6	,N+5	,N-11, N-7	,N+6	,N+10	,	,	,
W, W-187	,685.7	,23.9	,H	,20	,ppm	,N-4	,N+3	,N-7, N-5	,N+4	,N+6	,	,	,
Re, Re-186	,137.15	,88.9	,H	,4.9	,ppb	,N-2	,N+1	,N-4, N-3	,N+2	,N+3	,	,	,
Os, Os-191	,129.4	,15.4	,D	,0.01	,ppb	,N-2	,N+1	,N-5, N-4	,N+2	,N+3	,	,	,
Ir, Ir-192	,468.1	,74.02	,D	,0.01	,ppb	,N-4	,N+3	,N-21, N-17	,N+7	,N+11	,	,	,
Pt, Au-199	,158.37	,3.13	,D	,6.7	,ppb	,N-2	,N+2	,N-6, N-4	,N+4	,N+6	,	,	,
Au, Au-198	,411.8	,2.696	,D	,0.85	,ppb	,N-3	,N+3	,N-10, N-6	,N+5	,N+9	, -0.300	, Eu-152	,
Th, Pa-233	,311.9	,27.0	,D	,9.2	,ppm	,N-3	,N+2	,N-7, N-5	,N+4	,N+6	,	,	,
U, Np-239	,277.6	,2.355	,D	,1.7	,ppm	,N-2	,N+2	,N-8, N-4	,N+4	,N+6	,	,	,

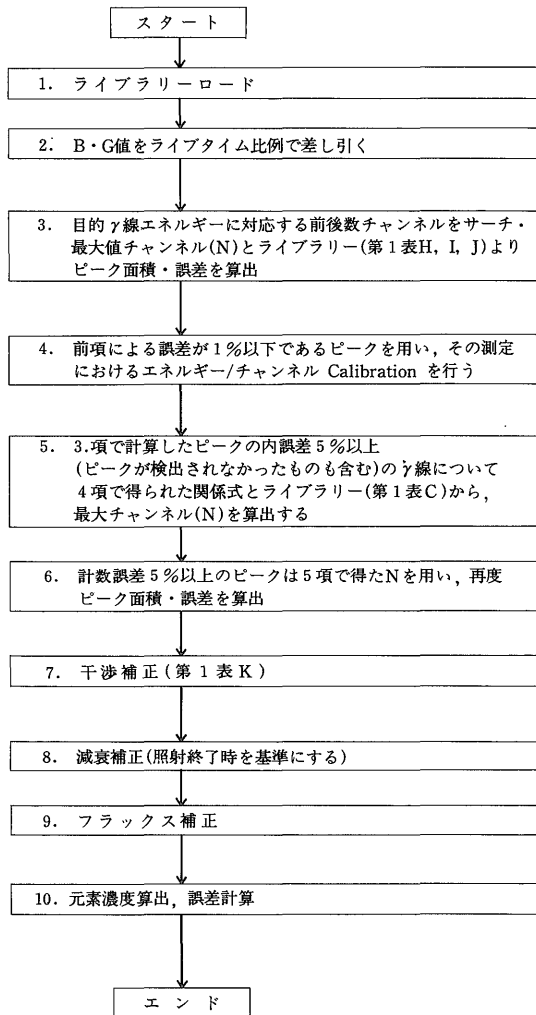
A: 分析元素, B: 使用核種, C: エネルギー, D: 半減期, E: D の単位, F: 標準物質 (ここでは JB-1) の元素含有量, G: F の単位, H: ピーク中心を N チャンネルとした時ピークとすべき範囲, I: 同じく低エネルギー側ベースとすべき範囲, J: 高エネルギー側ベースの範囲, K: 補正項  
A: elements, B: nucleus using analysis, C:  $\gamma$ -ray energy using analysis, D: half-life, E: unit of half-life, F: element abundances in reference material (JB-1), G: unit of term F, H: range of peak area when peak center is N, I: basement area at low energy side, J: basement area at high energy side, K: interference correction

チャンネルを越えないこと、および放射化分析室が1階北側に位置することもあり、室温の日変化は最大2℃以内、数時間の室温変化が1℃以内であることから、1個の測定時間内でのピーク/チャンネル関係の変動は極めて少ない。以上のことから、夏期を除き空調が不用となり、第10節に述べるように多大の経費の節減がなされた。

本研究では JB-1 および JG-1 を中性子照射後1週間、および1ヶ月冷却後測定したピークスペクトルにより、目的とするピーク中心を N とした時のピークとすべき領域、低エネルギー側ベース領域を決定した。この選択領域は JB-1, JG-1 を基準として設定されたものであるから、超苦鉄質岩、あるいは石灰岩などその化学組成が玄武岩-花崗岩と大きく異なるものの測定についてはその精度が悪くなることが予想される。しかし、そ

の場合でも超苦鉄質岩あるいは石灰岩 (たとえば JP-1, JLS-1) を標準試料とする上記3領域を設定すれば問題はない。本研究で開発したプログラムではどのような地質試料の分析にも対応が可能なように多数の (コンピューターのメモリの許す範囲で無限の) 標準試料ファイルスペースが確保されている。1例として JB-1 のファイルを第1表に示す。白金属を含むいくつかの元素については本研究で用いた装置での設定が未完了で、推定によるピーク、ベース設定が組込まれている。また、JB-1 中の白金属元素については充分確立された値がなく、その含有量には無意味な値が組込まれている (実測定において、白金属元素は試薬を用いた標準物質 (別ファイル) を使う)。

求められる  $\gamma$  線強度は、他のピークの干渉があれば



第6図 放射化分析システムデータ解析部分の作動流れ図  
Fig. 6 Details of data processing flow.

その補正後、減衰補正がなされる。標準試料、未知試料とともにその試料重量が入力されており、測定ごとにその元素存在度が%, ppm, ppb単位で、計数誤差とともに出力される(第2表)。

### 8. 解析結果の総括

本測定では第1表に示したように、半減期二十数時間の $^{76}\text{As}$ や $^{187}\text{W}$ から年の単位の半減期を持つ $^{60}\text{Co}$ や $^{152}\text{Eu}$ まで、さまざまな半減期を持った放射性核種が測定の対象となる。従って、 $\gamma$ 線の測定は比較的短い半減期を持つものと長い半減期を持つものに対して、それぞれ実施される。さらに念をいれる場合、3回以上の測定

がなされる。このような場合、同一の元素の存在度が異なった測定により複数回得られる。これらの値は解析結果としてその測定誤差とともにディスク中にセーブされている。全測定終了後、第4図初頭の選択枝において総括表の打出しを指定すると、ディスク中の解析結果がそれぞれの測定誤差の2乗に反比例する重みをつけて平均され、総括表として打出される(第3表)。また、この総括表はアスキーファイルでフロッピーディスクにロードされるようになっており、解析・作図をコンピュータ処理する場合でもデータの転写ミスを生じることがない。

### 9. 岩石標準試料の分析

上記分析手法を用いて、地質調査所発行の岩石標準試料JB-1(玄武岩)およびJG-1(花崗閃緑岩)の繰返し測定を試みた。試料はJB-1およびJG-1を最小71.81 mg, 最大106.60 mgの重量間にそれぞれ9個準備し、標準物質として米国地質調査所発行の岩石標準試料BCR-1(玄武岩)およびG-2(花崗岩)各1個とともに日本原子力研究所JRR-4のD照射孔(熱中性子フラックスは $5.5 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{秒}$ で前述のS照射孔と同条件)で3時間照射した。

試料位置の差による中性子フラックスの違いの程度を検討するため、照射時における各試料の位置をアルミカプセルの横断面として第7図に示す。

計測は本自動分析システムにとって解析が最も容易な場合、すなわち、玄武岩(BCR-1)を標準として玄武岩(JB-1)、花崗岩(G-2)を標準として花崗閃緑岩(JG-1)を分析する場合、および、本自動解析システムにとって、解析が困難な場合、すなわち、花崗岩(G-2)を標準として玄武岩(JB-1)を測定する場合、の組合せでそれぞれ独立に計測・解析を行った。

標準物質としてのBCR-1およびG-2中の元素存在度はGLADNEY *et al.* (1983)による“CONSENSUS VALUE”を用いた(第4表)。GLADNEY *et al.* (1983)による“CONSENSUS VALUE”ではその値に伴う誤差が見積られている。BCR-1のクロム、G-2のクロム、イッテルビウムおよびルテチウムについてはその誤差が20%を越えるが、それ以外の本研究で扱った元素の多くについて、誤差は10%以下と見積られている。

測定はそれぞれの組合せについて、下記のように各3回ずつ行った。第1回目:照射後7日-10日の間に各試料8000秒。第2回目:照射後14日-18日の間に各試料8000秒。第3回目:照射後30日-35日の間に各試料10000秒。これら3回の測定により得られた個々の解析

第2表 解析出力の1例：河川堆積物についての第2回目の測定  
Table 2 An example of analytical output : second time counting of stream sediment

地質調査所		放射化分析データ			スペクトル名：T8712022				
試料名：42101									
データ収集年月日	リアルタイム	ライブタイム	測定位置						
87/09/30	10546	10000	#1						
壊変補正年月日	試料重量(mg)	ピーク積算様式	プログラム V						
87/08/26	76.30	GAMMA/GSJ	1.7						
核種	ピークチャネル	ピーク中心エネルギー	測定半値巾	バック面積	ピーク面積	初生強度*	元素名	含有率	誤差**
KeV	CH	KeV	KeV			CPS			(%)
Na-24	1368.50	3261	1366.73	2.59	3603	66	Na	0.030	-----
K-42	1524.70	3635	1522.85	1.87	2129	-62	K	0.022	-----
Sc-46	889.30	2116	889.09	1.57	72359	990216	Sc	25.79 ppm	0.14
Cr-51	320.00	754	319.98	1.23	34471	28597	Cr	70.15 ppm	1.42
Fe-59	1099.20	2618	1099.06	1.68	17434	252034	Fe	7.85 %	0.31
Co-60	1332.50	3176	1332.34	1.78	4333	42175	Co	24.87 ppm	0.66
Co-58	810.80	1927	809.88	1.53	27464	105	Ni	0.00 ppm	-----
Zn-65	1115.50	2657	1115.35	1.68	13679	11031	Zn	196.48 ppm	6.71
Se-75	264.65	620	264.30	1.19	27413	418	Se	6.77 ppb	-----
As-76	559.50	1326	559.01	1.39	38069	300	As	-----	-----
Br-82	554.30	1314	554.00	1.39	23721	-61	Br	-----	-----
Rb-86	1078.80	2569	1077.87	1.67	15035	-186	Rb	-----	-----
Sr-85	514.00	1217	513.50	1.36	18706	539	Sr	150.12 ppm	34.71
Zr-95	756.70	1798	756.04	1.50	28521	1145	Zr	184.68 ppm	30.17
Ru-103	610.29	1448	609.93	1.42	42095	114	Ru	-----	-----
Ag-110m	658.00	1562	657.52	1.45	12017	-124	Ag	-----	-----
Sb-124	1691.00	4032	1688.57	1.94	1881	219	Sb	-----	-----
Cs-134	795.80	1892	795.27	1.52	34442	5238	Cs	1.84 ppm	8.66
Ba-131	496.30	1175	495.98	1.35	35505	1891	Ba	392.65 ppm	17.70
La-140	1596.40	3806	1594.23	1.90	2501	128	La	<999 ppm	-----
Ce-141	145.40	335	145.33	1.09	33360	34248	Ce	34.26 ppm	1.04
Nd-147	531.40	1259	531.04	1.37	27550	491	Nd	21.11 ppm	-----
Sm-153	103.20	234	103.17	1.04	34521	1746	Sm	3.18 ppm	18.73
Eu-152	1408.00	3357	1407.89	1.82	3011	2964	Eu	0.88 ppm	3.64
Tb-160	1177.90	2806	1176.80	1.71	4720	687	Tb	0.83 ppm	26.73
Dy-166	82.50	184	82.30	1.01	21835	-194	Dy	-----	-----
Tm-170	84.30	188	83.97	1.02	22593	752	Tm	-----	-----
Yb-175	396.30	935	395.80	1.29	32185	-1108	Yb	-----	-----
Lu-177	208.40	485	207.95	1.14	56920	3153	Lu	0.30 ppm	17.55
Hf-181	133.00	305	132.94	1.07	35425	20639	Hf	3.71 ppm	2.02
Ta-182	1221.40	2910	1220.22	1.73	4717	1232	Ta	0.81 ppm	9.01
W-187	685.70	1628	685.08	1.46	51492	489	W	-----	-----
Re-186	137.15	315	136.98	1.08	27734	1743	Re	5.92 ppb	20.69
Os-191	129.40	296	129.06	1.07	29046	-1621	Os	-----	-----
Ir-192	468.10	1107	467.59	1.33	34956	365	Ir	-----	-----
Au-199	158.37	366	158.28	1.10	32643	14	Pt	-----	-----
Au-198	411.80	973	411.66	1.30	31108	479	Au	0.22 ppb	-----
Pa-233	311.90	734	311.80	1.23	29545	25976	Th	5.10 ppm	1.29
Np-239	277.60	651	277.25	1.20	26480	-261	U	-----	-----

\* ピーク面積が計数誤差より小さいもの（負も含む）についての初生強度は計数誤差の3倍を用いて計算してある。

\*\* ここに示した誤差は標準物質とこの試料についての計数誤差を加味したものである。

第3表 総括帳表出力の1例。試料は河川堆積物  
Table 3 An example of summary output: stream sediment

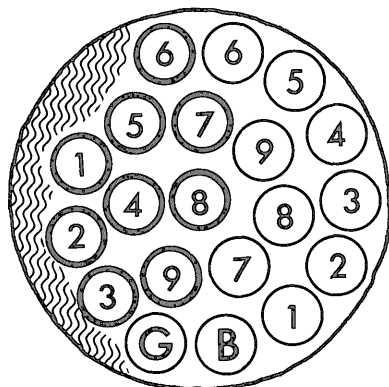
地質調査所 康変補正基準年月日 87/08/26		放射化分析データ (総括) プログラム V 1.1										
元素名 (単位)	42101 T871202		42102 T871203		42103 T871204		42111 T871205		42113 T871206		42114 T871207	
Na (%)	1.10	(0.4)	1.02	(0.4)	0.70	(0.5)	0.72	(0.5)	0.78	(0.5)	0.69	(0.6)
K (%)	1.04	(---)	1.09	(---)	1.16	(---)	1.53	(39.0)	1.32	(---)	1.40	(---)
Sc (ppm)	26.09	(0.1)	28.47	(0.1)	26.13	(0.1)	16.88	(0.1)	24.26	(0.1)	21.70	(0.1)
Cr (ppm)	73.17	(0.9)	53.39	(1.2)	37.71	(1.6)	51.89	(1.1)	66.83	(1.0)	51.65	(1.2)
Fe (%)	7.97	(0.2)	8.25	(0.2)	7.07	(0.2)	5.65	(0.3)	7.93	(0.2)	7.47	(0.2)
Co (ppm)	24.84	(0.6)	26.94	(0.5)	23.19	(0.6)	17.59	(0.6)	26.06	(0.5)	25.27	(0.5)
Ni (ppm)	35.23	(---)	33.40	(---)	33.10	(---)	64.56	(35.1)	32.97	(---)	31.91	(---)
Zn (ppm)	201.38	(6.2)	147.93	(6.5)	148.68	(6.5)	111.59	(6.8)	111.76	(7.0)	143.30	(6.5)
Se (ppb)	6.77	(---)	7.45	(---)	7.33	(---)	9.39	(23.3)	7.13	(---)	6.72	(---)
As (ppm)	5.37	(14.2)	7.22	(13.5)	9.04	(13.3)	8.66	(13.3)	6.22	(14.1)	7.63	(13.7)
Br (ppb)	-----	(---)	-----	(---)	-----	(---)	-----	(---)	-----	(---)	-----	(---)
Rb (ppm)	46.00	(35.7)	30.20	(---)	29.06	(---)	54.05	(32.3)	29.30	(---)	40.73	(36.1)
Sr (ppm)	150.12	(34.7)	299.66	(33.5)	186.33	(27.7)	130.23	(32.8)	140.87	(---)	136.28	(---)
Zr (ppm)	168.12	(23.5)	101.45	(---)	128.46	(34.9)	242.57	(19.3)	196.81	(21.4)	224.53	(20.6)
Ru (ppb)	-----	(---)	-----	(---)	-----	(---)	-----	(---)	-----	(---)	-----	(---)
Ag (ppb)	-----	(---)	-----	(---)	-----	(---)	-----	(---)	-----	(---)	-----	(---)
Sb (ppm)	-----	(---)	-----	(---)	-----	(---)	-----	(---)	-----	(---)	-----	(---)
Cs (ppm)	1.82	(7.3)	1.98	(7.0)	2.40	(6.7)	3.27	(6.2)	1.85	(7.1)	2.39	(6.6)
Ba (ppm)	370.02	(4.9)	354.02	(4.9)	359.29	(4.9)	430.66	(4.2)	298.94	(5.5)	333.17	(5.0)
La (ppm)	17.02	(0.6)	13.39	(0.6)	15.96	(0.6)	23.21	(0.5)	13.83	(0.6)	18.48	(0.6)
Ce (ppm)	36.24	(0.8)	29.28	(0.8)	35.16	(0.8)	48.64	(0.6)	27.70	(0.9)	39.94	(0.7)
Nd (ppm)	17.48	(17.2)	14.67	(19.0)	14.93	(18.9)	18.37	(15.0)	17.34	(16.6)	19.15	(15.3)
Sm (ppm)	3.36	(0.3)	3.41	(0.3)	2.15	(0.3)	4.14	(0.2)	3.17	(0.3)	3.80	(0.3)
Eu (ppm)	0.90	(3.3)	1.05	(3.0)	1.09	(2.9)	1.02	(2.8)	0.91	(3.1)	1.00	(3.0)
Tb (ppm)	0.83	(26.7)	0.87	(25.9)	0.45	(---)	0.40	(---)	0.50	(34.6)	0.76	(26.9)
Dy (ppm)	-----	(---)	-----	(---)	-----	(---)	-----	(---)	-----	(---)	-----	(---)
Tm (ppm)	-----	(---)	-----	(---)	-----	(---)	-----	(---)	-----	(---)	-----	(---)
Yb (ppm)	2.06	(2.3)	2.54	(2.1)	2.48	(2.1)	2.22	(2.1)	2.04	(2.3)	2.44	(2.1)
Lu (ppm)	0.32	(2.7)	0.37	(2.6)	0.38	(2.5)	0.36	(2.5)	0.31	(2.8)	0.37	(2.5)
Hf (ppm)	3.91	(1.7)	4.20	(1.6)	3.68	(1.7)	7.31	(1.4)	4.29	(1.6)	6.62	(1.4)
Ta (ppm)	0.77	(8.5)	0.61	(10.4)	0.57	(10.8)	0.85	(6.5)	0.63	(9.5)	0.65	(9.1)
W (ppm)	1.72	(---)	1.75	(---)	1.84	(---)	1.71	(31.8)	1.97	(---)	1.98	(---)
Re (ppb)	6.04	(18.0)	7.81	(34.1)	5.80	(18.4)	9.65	(15.4)	6.55	(36.1)	10.15	(15.6)
Os (ppb)	-----	(---)	-----	(---)	-----	(---)	-----	(---)	-----	(---)	-----	(---)
Ir (ppb)	-----	(---)	-----	(---)	-----	(---)	-----	(---)	-----	(---)	-----	(---)
Pt (ppb)	-----	(---)	-----	(---)	-----	(---)	-----	(---)	-----	(---)	-----	(---)
Au (ppb)	2.18	(29.6)	-----	(---)	-----	(---)	0.67	(28.0)	-----	(---)	0.29	(33.0)
Th (ppm)	5.39	(0.9)	3.88	(1.0)	4.94	(0.9)	7.73	(0.7)	3.73	(1.1)	5.57	(0.8)
U (ppm)	1.00	(8.8)	1.09	(8.1)	1.48	(6.9)	1.81	(6.0)	1.03	(8.7)	1.39	(7.2)

( ) 内の数字は分析値に付随する計測誤差 (1σ) を表す。  
( ) 内に数字が記入されていない分析値は上限値を示す。

結果について、第8節に示した総括処理を行い、その結果、ほぼ全試料にわたり30%以下の計測誤差で測定がなされているものを以下の検討の対象とした。

玄武岩を標準物質とした玄武岩の分析

まず、BCR-1を標準物質としてJB-1を分析した結果を ANDO *et al.* (1987) による1986値\*と比較して第5表および第8図に示した。本節の初頭において、試料の位置における中性子フラックスの違いを問題としたが、第7図においてカプセル中央部にある7、8、9とそれ以外の外縁部に置かれた試料(たとえばJB-1の1と6)の間に有意の差が見いだされないことからこの程度(100mg)の試料量・サイズでは、検出し得る中性子フラックスの差はないものと考えられる。第5表に示した測定値のなかで計数誤差が最も少なく、精度良く測定されているのは、ナトリウム、スカンジウム、鉄およびコバルトである。これら4元素の測定値における試料間の変動係数(1σ)はそれぞれ1.0%、1.1%、0.8%



第7図 本研究におけるJB-1, JG-1試料分析時の個々の試料位置。◎と⊙はそれぞれG-2とBCR-1の位置、細い丸と太い丸に囲まれた数字はそれぞれJB-1とJG-1を示す。それぞれの数字は第5, 第6, 第7表中の試料番号に対応する。

Fig. 7. Sample position during the irradiation. G and B show the position of reference samples G-2 and BCR-1, respectively. Numerals in faint circles and Numerals in fat circles show sample numbers of JB-1 and JG-1, respectively. The Numerals correspond the sample numbers in Tables 5, 6 and 7.

\* "1986値"とは一般に"推奨値"と称される値であるが、安藤(私信)によれば、分析値の吟味・評価に足るだけの十分な分析がなされていない元素もあり、おしなべて推奨値と呼称することは好ましくないとのこと、以下本文では ANDO *et al.* (1987) の表題にならい"1986値"とする。

および0.8%である。従って試料位置における中性子フラックスの変動は0.8%以下であったことがわかる。

次に分析結果を元素ごとに検討する。第8図および第5表に示すように、ナトリウム、スカンジウム、鉄、コバルト、ランタン、セリウム、サマリウム、ユーロピウム

第4表 本研究における分析で標準物質として用いた米国地質調査所発行の岩石標準試料BCR-1(玄武岩)およびG-2(花崗岩)中の元素存在度\*

Table 4 Elemental abundances in BCR-1 and G-2 which are used here as reference materials.

	BCR-1	G-2
Na (%)	2.43	3.02
K (%)	1.40	3.73
Sc (ppm)	32.8	3.5
Cr (ppm)	16	9
Fe (%)	9.38	1.87
Co (ppm)	36.3	4.6
Ni (ppm)	13	4.9
Zn (ppm)	129	85
Se (ppb)	86	—
As (ppm)	0.64	0.27
Br (ppb)	72	230
Rb (ppm)	47.1	170
Sr (ppm)	330	478
Zr (ppm)	191	300
Ag (ppb)	27	45
Sb (ppm)	0.62	0.078
Cs (ppm)	0.97	1.33
Ba (ppm)	678	1880
La (ppm)	25.0	86
Ce (ppm)	53.7	159
Nd (ppm)	28.7	53
Sm (ppm)	6.58	7.2
Eu (ppm)	1.96	1.41
Tb (ppm)	1.05	0.48
Dy (ppm)	6.35	2.5
Tm (ppm)	0.59	0.17
Yb (ppm)	3.39	0.78
Lu (ppm)	0.512	0.113
Hf (ppm)	4.9	7.9
Ta (ppm)	0.79	0.88
W (ppm)	0.40	0.15
Re (ppb)	0.85	—
Au (ppb)	0.66	1.0
Th (ppm)	6.04	24.6
U (ppm)	1.71	2.04

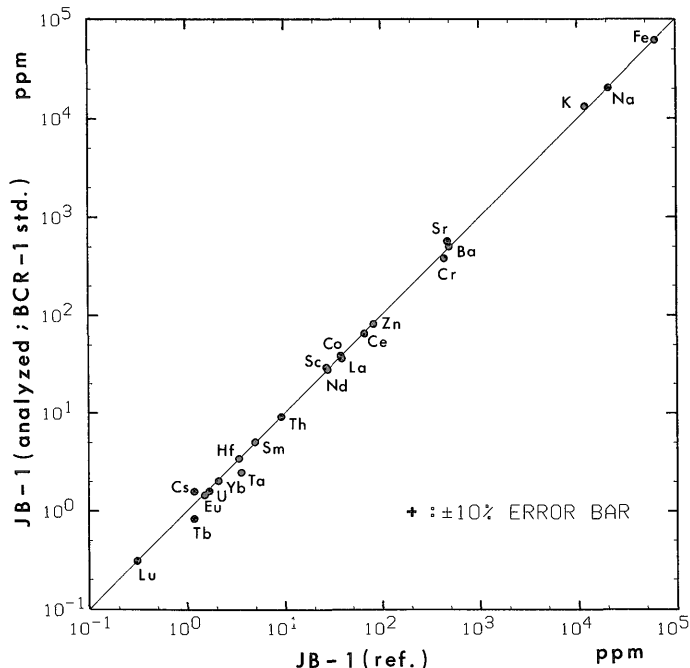
\* GLADNEY *et al.* (1983) による

第5表 米国地質調査所岩石標準試料 BCR-1 を標準物質として測定した JB-1 の分析結果  
Table 5 Analytical results of JB-1 (basalt) using BCR-1 as a standard

element	1	2	3	4	5	6	7	8	9	mean $\pm \sigma_{n-1}$	ref.*
Na (%)	2.01	2.07	2.08	2.07	2.05	2.07	2.06	2.06	2.07	2.06 $\pm$ 0.02	2.07
K (%)	1.26	1.51	1.2	1.4	1.2	1.6	1.3	1.2	1.3	1.3 $\pm$ 0.1	1.18
Sc (ppm)	27.4	27.5	27.8	27.5	28.1	27.3	27.8	28.0	27.4	27.7 $\pm$ 0.3	27.4
Cr (ppm)	570	580	556	574	612	548	577	584	551	572 $\pm$ 20	469
Fe (%)	6.11	6.09	6.22	6.15	6.21	6.10	6.16	6.23	6.12	6.15 $\pm$ 0.05	6.25
Co (ppm)	36.4	35.9	36.5	36.2	36.6	36.0	36.6	36.6	36.3	36.3 $\pm$ 0.3	38.7
Zn (ppm)	76.6	80.1	89.1	78.5	71.2	74.1	86.8	82.7	83.8	80.3 $\pm$ 5.9	83
Sr (ppm)	380	430	460	300	330	420	330	380	360	380 $\pm$ 50	435
Cs (ppm)	1.7	1.6	1.6	1.7	1.8	1.7	1.5	1.5	1.7	1.6 $\pm$ 0.1	1.19
Ba (ppm)	482	493	523	518	501	490	501	492	492	499 $\pm$ 13	490
La (ppm)	37.4	38.1	38.5	38.4	38.1	38.5	38.1	38.8	38.2	38.2 $\pm$ 0.4	38
Ce (ppm)	62.5	64.1	66.2	65.8	64.3	64.6	66.0	66.3	62.3	64.7 $\pm$ 1.5	67
Nd (ppm)	29	29	27	30	32	30	30	29	26	29 $\pm$ 2	27
Sm (ppm)	4.92	5.09	5.21	5.16	5.08	5.15	5.20	5.23	5.20	5.13 $\pm$ 0.10	5.0
Eu (ppm)	1.46	1.44	1.46	1.46	1.48	1.46	1.46	1.48	1.41	1.46 $\pm$ 0.02	1.52
Tb (ppm)	0.62	0.70	0.70	0.61	0.57	0.87	0.71	1.1	0.64	0.72 $\pm$ 0.17	1.2
Yb (ppm)	1.96	2.04	1.95	2.08	2.08	2.07	2.07	2.05	2.05	2.04 $\pm$ 0.05	2.1
Lu (ppm)	0.31	0.32	0.31	0.29	0.32	0.32	0.32	0.31	0.31	0.31 $\pm$ 0.01	0.31
Hf (ppm)	3.38	3.27	3.38	3.47	3.50	3.37	3.39	3.58	3.52	3.43 $\pm$ 0.10	3.4
Ta (ppm)	2.37	2.44	2.51	2.74	2.54	2.39	2.52	2.41	2.43	2.48 $\pm$ 0.11	3.6
Th (ppm)	9.08	9.15	9.36	9.18	9.27	9.20	9.26	9.43	9.13	9.23 $\pm$ 0.11	9.2
U (ppm)	1.6	1.8	1.5	1.9	1.4	1.6	1.8	1.5	1.4	1.6 $\pm$ 0.2	1.7

JB-1 (standard : BCR-1)

計数誤差 10% 以上は 2 ケタで表示

\* ANDO *et al.* (1987) による第8図 米国地質調査所発行の岩石標準試料 BCR-1 (玄武岩) を標準物質として JB-1 (玄武岩) を分析した結果と JB-1 の 1986 値 (ANDO *et al.*, 1987) との比較図Fig. 8 Comparative diagram showing the JB-1 values analysed here using BCR-1 standard with reference values of JB-1 by ANDO *et al.* (1987).

ム、イッテルビウム、ルテチウム、ハフニウム、トリウムおよびウランは精度・確度ともに高く、本分析は十分信頼するに足るものであることがわかる。クロムは精度について、その変動係数は測定値平均の 3.4% ( $1\sigma$ ) と少ないが、ANDO *et al.* (1987) による 1986 値からのずれは 20% に達する。半減期が 1 日より長く  $^{51}\text{Cr}$  の 320 keV に近い  $\gamma$  線を放出する核種として  $^{147}\text{Nd}$  (319.7 keV),  $^{177\text{m}}\text{Lu}$  (319.8 keV),  $^{193}\text{Os}$  (321.56 keV) 等が考えられるが、いずれも存在度の少ない核種であり、 $^{51}\text{Cr}$  の 320 keV に影響を及ぼす大きな干渉ピークは考えられない。

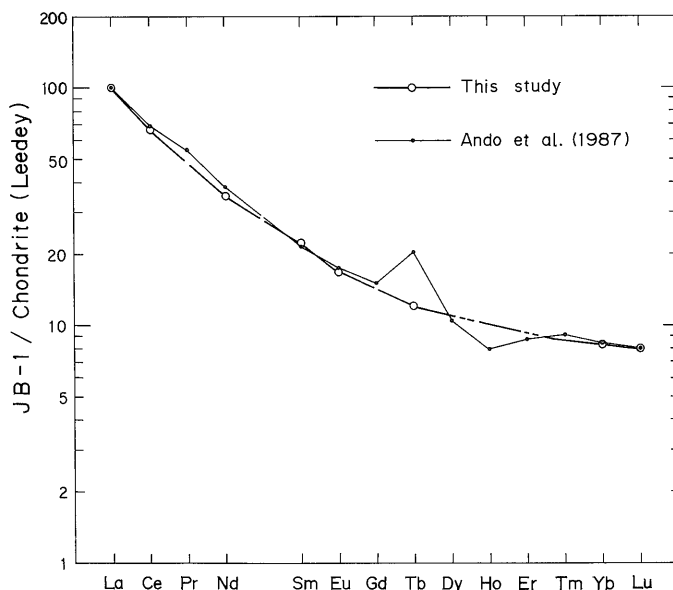
残る可解性の一つとして  $^{54}\text{Fe}$  ( $n, \alpha$ )  $^{51}\text{Cr}$  反応による  $^{51}\text{Cr}$  の生成である。ANDO *et al.* (1987) による 1986 値から計算すれば、JB-1 の Fe/Cr 比は 133.3 であるが GLADNEY *et al.* (1983) による BCR-1 の Fe/Cr 比は 5863 に達する。従って本研究で標準物質とした BCR-1 のクロム含有量は (GLADNEY *et al.* (1983) によれば 16 ppm) その実効値として 16 ppm より大きくなることが考えられる。しかし、その場合でも、標準試料として BCR-1 の値には 16 ppm が入力されているから、計算結果としての JB-1 のクロム値は実際より小さく算出されるはずである。しかし、第 5 表に示す結果は全く逆に大きい値である。従ってクロムの大きな値は  $^{54}\text{Fe}$  ( $n, \alpha$ )  $^{51}\text{Cr}$  反応による影響ではない。

測定値が大きくなった原因の一つとして標準とした

BCR-1 の値も検討を要する。GLADNEY *et al.* (1983) によるクロム含有量は  $16 \pm 4$  ppm と被検体 (JB-1) のそれよりはるかに少なく、相当量 (25%) の誤差が見込まれていることである。標準物質としての BCR-1 に付随する 25% の誤差と、解析過程における外挿演算を考慮すれば、本研究におけるクロムの分析値 565 ppm が ANDO *et al.* (1987) による 1986 値 469 ppm から 20% はずれているのは、標準物質 BCR-1 に由来する誤差範囲内にあると考えることができる。今後、クロムについて確度の高い値を得る必要がある時にはクロム含有量の多い別の標準物質を用いることが必要であろう。

ストロンチウムは同位体希釈法による値を総括した 1986 値 (435 ppm) より 20% 少なく 380 ppm と分析されているが、これは非破壊放射化分析によるストロンチウムの分析は感度が悪く、さほど信頼すべきものでないとされること、また、本研究による測定も個々の値に伴う計数誤差が 10-30% に達することから考え、このずれは測定の困難さによる誤差範囲内にあるものと考えられる。

テルビウム (Tb) も本研究による分析値 0.72 ppm は 1986 値 1.2 ppm から大きく離れる。安藤 (私信) によればテルビウムについての報告は 7 件あるが、0.47 ppm から 1.3 ppm まで大きくばらつき、それらの平均値が 1986 値であること、また、コンドライト隕石 (Leedeey) 中の値 (MASUDA *et al.*, 1973; MASUDA,



第 9 図 JB-1 中の希土類元素存在度パターン  
Fig. 9 REE abundance pattern in JB-1.



1975) で規格化した希土類元素存在度パターンにおいて、本分析値のパターンがより滑らかであること (第9図)、の2点から、本研究における分析値がより精度の高いものであると考えられる。

タンタル (Ta) は本研究による分析値の精度は極めて良いものの、精度については ANDO *et al.* (1987) による 1986 値と大きく異なる。安藤 (私信) によれば、ANDO *et al.* (1987) に報告された値 (3.6 ppm) は大きなばらつきのある 5 件の報告値 (2.7-4.4 ppm) を平均したもので、それらの内、低めの値を出しているグループの値 (PORTS 2.9, CHOU and PEARCE 2.7 ppm) に本研究の値が近い。従って、タンタルの真の値は 3.6 ppm より低い可能性も十分に高いと考えられる。

以上のことから、玄武岩 (BCR-1) を標準とした玄武岩 (JB-1) の測定はクロムおよびストロンチウムを除き十分に満足すべきものである。

#### 花崗岩を標準物質とした玄武岩の分析

本研究で目標とした玄武岩-花崗岩の組成を持った試料の測定において最も測定条件の悪い場合、すなわち、花崗岩 (G-2) を標準として玄武岩 (JB-1) を測定した時、解析プログラムがどれ程良好に作動するかについて検討を行った。解析結果を第6表および第10図に示す。

クロム、テルビウム、タンタルは先に検討を行った BCR-1 を標準物質とした場合と同様に ANDO *et al.* (1987) による 1986 値とやや異なるが、その原因については前記の議論に尽くされていよう。

加えてイッテルビウム (Yb) が約 2 倍の値を示している。<sup>175</sup>Yb の 397 keV には <sup>79</sup>Kr (398 keV), <sup>78</sup>Se (401 keV) 等の干渉が考えられるが、これらはいずれも <sup>175</sup>Yb からの 397 keV  $\gamma$  線強度に比べごく弱いものと考えられる。一方 G-2 の Yb 含有量は 0.78 ppm (隕石中の約 3 倍) と極めて少なく、今回の測定における計数誤差 (1 $\sigma$ ) は 17% である。従って、値の系統的なずれは標準物質 G-2 の計測が不確実であったことによると考えられる。バリウム (Ba) は測定値の平均は ANDO *et al.* (1987) による 1986 値に一致するものの、個々の測定の平均値からのばらつきが大きい。これは解析プログラムの不完全さにより、ピーク位置の移動が生じていたことが判明し、修正を行った。

以上のように主成分組成が大きく異なる花崗岩 (G-2) を基準として玄武岩 (JB-1) を分析した場合にも、主成分の類似する玄武岩 (BCR-1) を基準として分析した場合に比べ、ほとんど遜色のない解析がなされることがわかった。

#### 花崗岩を標準物質とした花崗閃緑岩の分析

G-2 を標準物質として JG-1 を分析した場合の結果を第7表および第11図に示す。ここに示されるようにほとんどの元素については精度・確度ともに平均値、1986 値の  $\pm 10\%$  以内に納まっており、満足すべき結果と言える。クロムの値 50.5 ppm は ANDO *et al.* (1987) による推奨値 64.6% より約 20% 少ない。これは前述の G-2 を標準物質とした JB-1 の測定 (第6表, 第10図) とまったく同じ傾向であり、先に議論をしたようにその原因が標準物質 (G-2) にかかる計測の不十分さにあると考えられる。

イッテルビウム (Yb) についても先に検討したように、標準物質 (G-2) 側の計測が不十分であったことにより、全体として値の偏向 (高くなる) が生じたと考えられる。このことは G-2 を基準にした JB-1 の値と JG-1 の値がいずれも 2.2-2.4 倍と同率の偏向を示すことから裏付けられる。

ランタン (La) は第7表に示すように個々の測定データに付随する計測誤差は少ないものの、測定値間のばらつきが大きいことが注目される。しかもこのランタンにみられる傾向はセリウムおよびサマリウムにも共通している。すなわち、ランタンが高めに測定されている試料はセリウム、サマリウムも高めであり、その逆もまた同様である (第7表参照)。このことからランタンの測定値のばらつきは測定システムに起因するものではなく、試料自身の質のばらつきと考えられる。軽希土に富む副成分鉱物が粉体中に偏在することがその原因であろう。クロムも同様に個々の測定値に付随する誤差は少ないものの、試料間での値のばらつきが大きい。これもクロムに富む鉱物の偏在によるものと考えられる。試料の不均一性については、JG-1 と同一露頭の岩石を用い、その調製に注意を払って新しく作成された試料 JG-1 a を用いて更なる検討を進める必要がある。本分析システムにおいては、本文第4節において述べたように、その経済的観点から、比較的少量 (数十-百ミリグラム) の試料を用いた分析を行っている。特に酸性岩においてはその試料粉末の均一性に十分注意を払う必要がある。

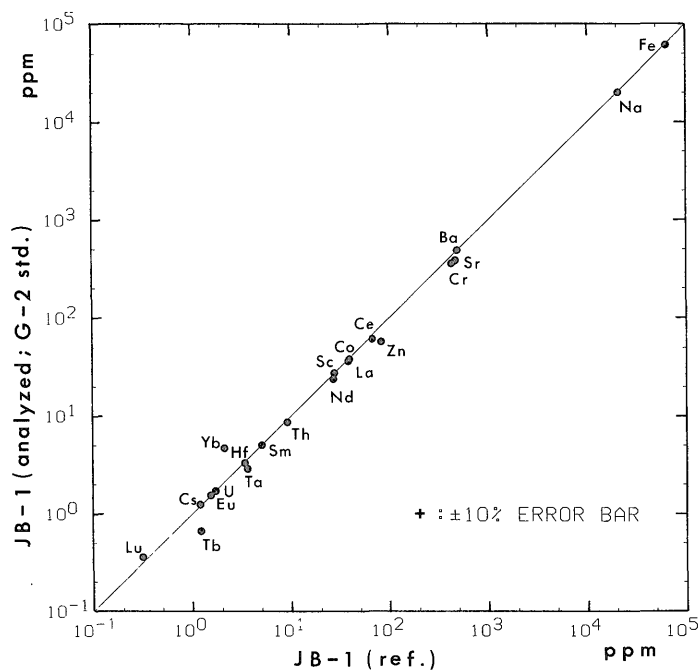
#### 10. 経費から見たシステムの効率

本システムの開発においては分析の自動化、精度の向上、安全性の向上とともに分析にかかる経費の軽減を試みた。ただ、作業従事者 (研究員) の人件費を除く経費の多くが日本原子力研究所における中性子照射費および原子力研究所から当所までの放射性物質 (試料) 運搬委託費で占められる以上、大幅な軽減は困難である。しか

第6表 米国地質調査所岩石標準試料 G-2 を標準物質として測定した JB-1 の分析結果  
 Table 6 Analytical results of JB-1 (basalt) using G-2 as a standard

element	1	2	3	4	5	6	7	8	9	mean ± σ <sub>n-1</sub>	ref.*
Na (%)	2.00	1.98	2.02	2.00	2.01	2.04	1.97	1.97	1.97	2.00 ± 0.03	2.07
Sc (ppm)	27.6	27.3	27.7	27.3	27.8	27.5	27.8	27.8	27.5	27.6 ± 0.2	27.4
Cr (ppm)	382	391	380	380	402	370	388	386	368	382 ± 10	469
Fe (%)	6.06	5.96	6.10	6.02	6.06	6.04	6.10	6.10	6.06	6.06 ± 0.05	6.25
Co (ppm)	38.2	37.7	38.2	37.7	37.8	37.7	38.5	38.3	38.1	38.0 ± 0.3	38.7
Zn (ppm)	58.1	62.1	54.0	49.5	50.0	64.1	61.5	57.6	60.5	57.5 ± 5.3	83
Sr (ppm)	337	397	387	290	330	387	402	371	330	359 ± 39	435
Cs (ppm)	1.16	1.35	1.26	1.29	1.24	1.31	1.27	1.30	1.23	1.27 ± 0.05	1.19
Ba (ppm)	530	515	511	472	449	510	428	493	500	490 ± 34	490
La (ppm)	36.7	36.6	36.5	37.0	36.1	36.8	36.5	36.6	36.3	36.6 ± 0.3	38
Ce (ppm)	60.0	61.3	62.2	60.6	60.3	61.9	61.0	62.0	60.9	61.2 ± 0.8	67
Nd (ppm)	25	20	28	23	24	25	24	27	22	24 ± 2	27
Sm (ppm)	4.98	5.00	5.03	4.90	4.90	4.99	4.95	5.06	5.05	4.98 ± 0.06	5.0
Eu (ppm)	1.51	1.53	1.59	1.52	1.56	1.55	1.56	1.60	1.54	1.55 ± 0.03	1.52
Tb (ppm)	0.63	0.62	0.72	0.77	0.69	0.74	0.60	0.62	0.45	0.67 ± 0.10	1.2
Yb (ppm)	4.6	4.7	5.0	4.7	5.0	4.7	4.4	4.9	4.6	4.7 ± 0.2	2.1
Lu (ppm)	0.36	0.39	0.33	0.35	0.31	0.39	0.35	0.39	0.35	0.36 ± 0.03	0.31
Hf (ppm)	3.31	3.24	3.36	3.22	3.26	3.35	3.37	3.48	3.28	3.32 ± 0.08	3.4
Ta (ppm)	2.80	2.68	2.88	3.23	2.87	2.75	2.86	2.84	2.84	2.86 ± 0.15	3.6
Th (ppm)	8.71	8.59	8.83	8.58	8.60	8.67	8.75	8.82	8.77	8.70 ± 0.10	9.2
U (ppm)	1.6	1.5	2.0	1.9	1.6	1.2	1.7	1.6	1.9	1.7 ± 0.2	1.7

JB-1 (standard: G-2)  
 計数誤差 10% 以上は 2 ケタで表示  
 \* ANDO *et al.* (1987) による



第10図 米国地質調査所発行の岩石標準試料 G-2 (花崗岩) を標準物質として JB-1 (玄武岩) を分析した結果と JB-1 の 1986 値 (ANDO *et al.*, 1987) との比較図

Fig. 10 Comparative diagram showing the JB-1 values analysed here using G-2 standard with reference values of JB-1 by ANDO *et al.* (1987).

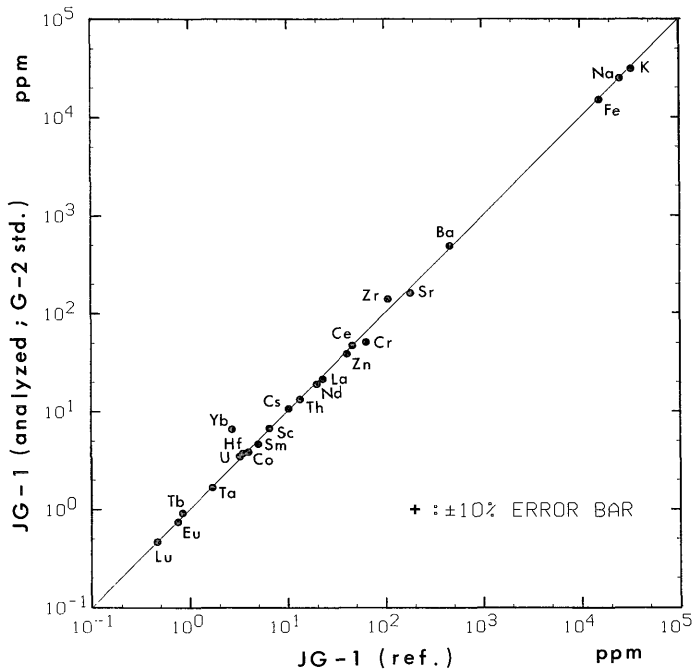
第7表 米国地質調査所岩石標準試料 G-2 を標準物質として測定した JG-1 の分析結果  
 Table 7 Analytical results of JG-1 (granodiorite) using G-2 as a standard

element	1	2	3	4	5	6	7	8	9	mean ± $\sigma_{n-1}$	ref.*
Na (%)	2.45	2.45	2.45	2.43	2.44	2.50	2.48	2.44	2.51	2.46 ± 0.03	2.52
K (%)	3.5	2.7	3.3	4.0	3.7	2.5	3.2	2.2	2.9	3.1 ± 0.6	3.28
Sc (ppm)	6.59	6.53	6.63	6.60	6.72	6.78	6.72	6.72	6.57	6.65 ± 0.09	6.5
Cr (ppm)	52.7	47.8	52.9	51.8	44.7	43.0	45.9	55.2	60.7	50.5 ± 5.7	64.6
Fe (%)	1.46	1.46	1.47	1.47	1.51	1.51	1.49	1.49	1.47	1.48 ± 0.02	1.54
Co (ppm)	3.78	3.85	3.77	3.74	3.97	3.92	3.81	3.86	3.78	3.83 ± 0.08	4.0
Zn (ppm)	38.1	38.7	38.2	39.6	35.1	39.0	40.1	36.3	40.3	38.4 ± 1.7	41.5
Rb (ppm)	143	136	173	172	154	180	133	182	178	161 ± 20	181
Sr (ppm)	177	173	150	189	130	120	170	160	177	161 ± 23	184
Zr (ppm)	110	140	150	130	130	150	140	150	140	140 ± 10	108
Cs (ppm)	10.5	10.5	11.0	10.7	10.7	10.9	10.8	10.7	10.5	10.7 ± 0.2	10.2
Ba (ppm)	483	493	486	478	497	501	475	500	498	490 ± 10	462
La (ppm)	22.3	18.4	19.4	28.3	21.0	22.2	21.3	20.4	17.1	21.2 ± 3.2	23
Ce (ppm)	47.3	38.7	41.5	59.3	46.4	48.1	46.2	43.3	36.0	46.4 ± 6.7	46.6
Nd (ppm)	20.3	15	17	24.5	20.8	21	19	19	15	19 ± 3	20.0
Sm (ppm)	4.88	4.00	4.44	5.59	4.77	5.10	4.47	4.28	3.92	4.61 ± 0.54	5.1
Eu (ppm)	0.75	0.72	0.71	0.75	0.76	0.75	0.76	0.74	0.74	0.74 ± 0.02	0.76
Tb (ppm)	0.96	0.95	0.91	0.91	0.97	0.94	0.92	0.92	0.80	0.92 ± 0.05	0.84
Yb (ppm)	6.4	7.1	6.2	6.1	6.1	6.8	7.7	5.7	7.2	6.6 ± 0.7	2.7
Lu (ppm)	0.45	0.51	0.41	0.42	0.43	0.48	0.52	0.40	0.48	0.46 ± 0.04	0.46
Hf (ppm)	3.93	3.65	3.65	3.40	3.02	4.36	4.19	3.25	3.24	3.71 ± 0.46	3.5
Ta (ppm)	1.75	1.77	1.76	1.60	1.56	1.60	1.58	1.66	1.58	1.65 ± 0.09	1.7
Th (ppm)	14.1	13.4	13.4	14.7	14.6	12.6	13.3	12.1	10.4	13.3 ± 1.35	13.5
U (ppm)	3.4	3.8	3.2	3.6	3.5	3.7	3.5	3.5	3.2	3.5 ± 0.2	3.3

JG-1 (standard : G-2)

計数誤差 10% 以上は 2 ケタで表示

\* ANDO *et al.* (1987) による



第11図 米国地質調査所発行の岩石標準試料 G-2 (花崗岩) を標準物質として JG-1 (花崗閃緑岩) を分析した結果と JG-1 の 1986 値 (ANDO *et al.*, 1987) との比較図

Fig. 11 Comparative diagram showing the JG-1 values analysed here using BCR-1 standard with reference value of JG-1 by ANDO *et al.* (1987).

し、それも原子力研究所との共同研究、あるいは自分で試料の運搬を行えば省くことが可能な経費であろう。

放射線・X線に関係した測定器は、エネルギー/チャンネル関係が温度変化に敏感であり、従来その関係を一定に保つため、室温のコントロールに多大の注意と費用が注がれた。本分析システムでは第7節において述べたように、装置自体が温度変化による特性変化が少ないこと、個々の測定毎に自動的にエネルギー/チャンネル calibration がなされることから、一測定の間のみ温度の恒常性が求められる。放射化分析室の室温の日変化は2度以内であり、夏期を除き空調の必要がない。ほとんど年間にわたって測定を行っている本分析室ではこのことによる間接費の軽減が年間100万円を上廻る。特筆に値するものである。

直接費用としては現在10カプセル/3ヶ月ベースでルーチン分析を行っている河川堆積物の場合、24個の未知試料が入ったカプセル1個の準備・照射・測定・解析に約5万円を要する。また、作業従事者(研究者)を含めた人件費として、試料の準備、装置の維持、操作など1カプセルあたり20時間×1人必要である。

上記の分析経費の計算には設備の償却費を考慮していない。昭和60-61年度において、河川堆積物中の約20元素の放射化分析を依頼するとの仮定にもとづき、国内の分析機関3社に見積を依頼した。見積書によれば、500-1000試料を依頼した場合の1試料あたりの経費は数万円であった。本装置で分析された河川堆積物は設置以来現在(昭和62年12月)までに約450試料である。依頼分析費を基準とした場合、すでに機器の償却を完了した勘定になることを強調したい。また本装置が順調に稼働した場合、河川堆積物の分析と同じ測定条件で測定を行えば(結果として本論文中で示した元素が本文とほぼ同等の精度で得られる)、年間約1000試料の測定・解析が可能であろう。

## 11. 結 論

放射化分析用放射線自動計測・解析システムを開発し、標準岩石試料の繰り返し測定を行った。その結果、本システムは以下の能力を持つことがわかった。

1) 玄武岩-花崗岩の化学組成を持つ試料について、ナトリウム、スカンジウム、鉄、コバルト、ランタン、セリウム、ネオジム、サマリウム、ユーロピウム、イッテルビウム、ルテチウム、ハフニウム、タンタル、トリウムについては5%以内の精度および精度で、クロム、亜鉛、セシウム、バリウム、ネオジム、テルビウム、ウランについては10%以内の精度および精度で、元素分

析が可能である。また計測条件により、セレン、砒素、臭素、ルビジウム、ストロンチウム、ジルコニウム、亜鉛、ツリウム等の分析も可能であることがわかった。

2) 元素組成が類似の物質を標準物質とすることが望ましいが、極端な場合として、玄武岩を分析する場合、花崗岩を標準物質としても、またその逆でも上記1)の分析精度は保たれることがわかった。

3) 計測・解析の自動化により、10カプセル約250試料が3ヶ月で分析できることがわかった。それに必要な労力と消耗・雑役にかかる費用は1カプセル(25試料)あたり約20時間×1人と5万円である。

## 文 献

- ANDO, A., MITA, N. and TERASHIMA, S. (1987) 1986 values for fifteen GSJ rock reference samples "Igneous rock series". *Geostandards Newsletter*, vol. 11, p. 159-166.
- DAVIS, A.M., TANAKA, T., GROSSMAN, L., LEE, T. and WASSERBURG, G.J. (1982) Chemical composition of HAL, an isotopically-unusual Allende inclusion. *Geochim. Cosmochim. Acta*, vol. 46, p. 1627-1651.
- GLADNEY, E.S., BURNS, C.E. and ROELANDTS, I. (1983) 1982 compilation of elemental concentrations in eleven United States Geological Survey rock standards. *Geostandards Newsletter*, vol. 7, p. 3-226.
- 橋本芳一編(1978) 放射化分析の実際. 講談社サイエンティフィック. 講談社, 東京, 216 p.
- 池田 隆(1979) 中性子放射化分析の $\gamma$ 線スペクトル解析プログラムについて. 九十九地学, no. 14, p. 38-47.
- 今井 登(1986) 誘導結合プラズマ発光分析法による岩石中の多元素同時定量. 地調月報, vol. 37, p. 515-523.
- 伊藤司郎・柴田 賢・田中 剛・宇都浩三・玉生茂子・上岡 晃・安藤 厚・寺島 滋・今井 登・金井 豊・岡井貴司・坂本 亨・佐藤興平(1987) 地球化学図による元素のバックグラウンドと人為汚染の評価技術に関する研究. 昭和61年度国立機関公害防止等試験研究成果報告書, p. 81-1-81-19.

- 日下 譲 (1973) 放射化分析. 共立全書 199. 共立出版, 東京, 224 p.
- 上岡 晃・田中 剛 (準備中) 中性子放射化法による地質調査所岩石標準試料の分析とその評価. 地調月報.
- LAUL, J.C. (1977) Neutron activation analysis in geologic materials. *Atomic Energy Rev.* BNWL-SA-6280 (preprint).
- MASUDA, A. (1975) Abundances of monoisotopic REE, consistent with the Leedeey chondrite values. *Geochem. Jour.*, vol. 9, p. 183-148.
- , NAKAMURA, N. and TANAKA, T. (1973) Fine structures of mutually normalized rare-earth patterns of chondrites. *Geochim. Cosmochim. Acta*, vol. 37, p. 239-248.
- 日本原子力研究所 (1985) 共同利用通信 No. 28, 30 p.
- PERLMAN, I. and ASARO, F. (1969) Pottery analysis by neutron activation. *Archaeometry*, vol. 11, p. 21-52.
- POTTS, P.J. (1987) *A handbook of silicate rock analysis*. Blackie, Glasgow and London, 622 p.
- セイコー・EG & G 株式会社 (1985) ガンマ核種分析プログラム分析概要説明書. Rev. 1. 0, 29 p.
- 杉崎隆一・下村孝行・安東和人 (1977) 蛍光 X 線による珪酸塩岩石の主成分元素の自動分析. *地質雑*, vol. 83, p. 725-733.
- YOSHIDA, T., MASUMOTO, K. and AOKI K.-I. (1986) Photon-activation analysis of standard rocks using an automatic  $\gamma$ -ray counting system with a micro-robot. *Jour. Japan. Assoc. Min. Pet. Econ. Geol.*, vol. 81, p. 406-422.

(受付: 1987年11月16日; 受理: 1988年5月6日)