システム・ソフトウェア開発

中性子線放射化による岩石試料中の γ 線スペクトル解析プログラム“NACP”

渡部芳夫*・岩森 光**

Instrumental Neutron Activation Analysis of Rock Samples by Means of Automated Peak-fitting Procedures on Micro Computers

Yoshio WATANABE* and Hikaru IWAMORI**

Abstract: An intelligible γ -ray spectra data processing system is developed for instrumental neutron activation analyses. The system works on an ordinary personal computer into which analog-digital converted 4096 channel data are introduced. The functions include automated-peak search and smoothing for peaks and base lines at the same time. Users can set various conditions for the automatic calculation or choose the Kovell method in case many peaks are overlapped. The source list is written in BASIC language which, along with the executable system, is provided for public use.

Key Words: Neutron activation analysis, γ -ray spectra, Numerical function fitting, BASIC language

1. はじめに

1970年代後半から、熱中性子線による放射化分析は極低濃度元素の非破壊分析法として、地質試料中の希土類元素等の分析に多用されるようになっていく。放射化に必要な原子炉が利用できること、放射化に適した元素が比較的限られること、定量までかなりの時間(数カ月)を要すること等の制限があるものの、分析機器環境の整備されている環境では比較的簡便に微量元素の定量が可能のため、現在でも誘導結合プラズマ質量分析法・安定同位体希釈質量分析法等と並んで頻繁に利用されている。

これらの分析では、一般にマルチチャンネルアナライザーによって計量された各試料の γ 線スペクトルは、各研究者により定量されなければならない場合が多い。近年 γ 線スペクトルデータ自体がマイクロコンピュータに導入可能な形態で格納されるようになり、スペクトル解析～定量計算自体の自動化により同時処理可能試料数を飛躍的に増加させることを目的としたシステムが開発・利用されるようになった(橋本編,1978;池田,1979;田中他,1988;上岡・田中,1989)。しかし、田中ら(1988)が述べているように、多くのオンライン解析システムは、汎用性を持っているがための使いづらさや不正確さが認められることが多

い。さらに運用に特別な機器(ミニコン等)を要する場合もあり、一般には個々の研究者のレベルでは、プログラムソースの確認や変更等は不可能な場合が多い。結果的に、定量計算部のブラックボックス化とシステム導入費用の著しい増加という状況は、経費的な制限から新規にスペクトル解析機器自体を導入する環境以外では、既存のシステムの導入を非常に難しくしている。

そこで、報告者らは試料調整・中性子線放射化・マルチチャンネルアナライザーによるスペクトルデータ摂取までの過程を関知せず、デジタル化された γ 線スペクトルデータのみを対象として元素定量処理を汎用のマイクロコンピュータで自動化する本システム(プログラム)を、公開利用を前提にして開発した。熱中性子線照射については利用する原子炉や試料の形態に従って様々な手順が存在するが、 γ 線スペクトルの形態でデータが入手されれば、どのような試料・分析手法についても本システムは汎用スペクトル解析ルーチンとして利用可能である。また、計算処理内容がソースより判読でき、かつ必要に応じてプログラム内容の変更が可能な数少ないマイクロコンピュータ上のシステムといえる。

本報告では、あらかじめ計測された試料の γ 線スペクトルデータが4キロ(4,096)チャンネルにデジタル化され、種々の形式のMS-DOSファイルに格納されているときに、それらのスペクトルデータから元素濃度を自動定量する会話型プログラム“NACP”について、その操作の流れと解析ルーチンの内容について解説する。

* 地質調査所 Geological Survey of Japan, 1-1-3 Higashi, Tsukuba 305, Japan.

** 東京大学地震研究所 Earthquake Research Institute, University of Tokyo, 1-1-1 Yayoi, Bunkyo-ku, Tokyo 113, Japan.

2. プログラム仕様

初めに本プログラムの仕様並びに実行環境等について略記する。

1) 記載言語：NEC N88BASICコンパイラ (MS-DOS版)

ソース自体はN88BASIC言語で記載されているが、2000行を上回る規模のためコンパイル後でなければ実行不可。また、実行に際してはコンパイラのランタイムライブラリファイルが必要であるため、利用者はNEC製のN88BASICコンパイラのバージョン3以上のシステムを所持している必要がある。

2) 実行環境：NEC PC-9801シリーズ (Vシリーズ以降) およびその互換機種

プログラムの制限から主記憶640Kb、実行時空き容量500Kb以上が好ましい。アナログ16色表示機能と136桁プリンタが必要。実行にはNEC製N88BASICコンパイラに付属のライブラリ (N88BASIC.LIB) を呼び出す。

3) 入力データ形式：4096チャンネルのスペクトルデータ (0を含む整数値) の、カンマ・リターンコード区切りのアスキーファイルまたはランダムファイル。ただし後述のデータヘッダーが必要。

4) 出力形式：プリンタ/アスキーファイルへの測定条件付きでの定量元素ごとの定量値と標準偏差・計量誤差の出力

5) 標準試料データ形式：プログラム中に第1表に示す地質調査所標準岩石試料JB-1の値が格納済み。その他の標準試料値はファイルより読み込み可能である。原則的には、これらのデータファイルに含まれる核種のみが解析可能となる。

6) 定量方法：自動ピーク検索に引き続きバックグラウンド及びピーク曲線を関数フィッティングし、Kovel法/ガウス分布近似法/二次微分多項式最小二乗近似法によるピーク面積積分により標準試料ピークとの比較相対計算を行う。

3. スペクトルデータ採取

本報告は岩石試料の分析法そのものについての報告ではないので、 γ 線スペクトル採取までの手順については、報告者らがを行っている手法を略記するにとどめる。

3.1. 分析試料調整

試料粉末50～100mgを、ポリエチレンバッグにポリシーラーにより封入する。封入後のサンプルバッグの形態は、均一の厚さと面積を持ちかつなるべく小さく薄い平板状を持つことが好ましい。これらの条件は、照射時中性子フラックスの不均一性を最小にしかつフラックスモニターと同一照射量に近づけるため、またその後の測定時を含めて自己吸収と自己遮蔽効果を少なくするための必要条件である。一方照射時のカプセルの形状による制限を考えると、1バッチ試料数をかせぐためには、試料総体積を少なくする必要

がある。同一形状を重視すれば、試料の比重に応じて封入量を調節する必要も生じる。また、中性子線照射時の加熱によるサンプルバッグの変形を防ぐためには、試料中の吸着水のみならずバッグ内の空気も十分に排出 (減圧封入) しておかなければならない。

フラックスモニターとしては、別個にバッグに封入した99.999%保証の高純度の鉄線100mg程度を用い、未知試料サンプルバッグ片側中央部に添付してから、両者を2次サンプルバッグに封入して1試料とした。標準試料 (数個) についても同様の調整を行い、通常1バッチ試料は合計20数個とした。1バッチ試料は、照射フラックスのバッチごとの再現性をできるだけ保つために、専用試料カプセルの基底から5cm程度上方の位置に挿入するようにした。

3.2. 中性子線放射化と γ 線スペクトル採取

中性子線の放射は、立教大学原子力研究所TRIGA II原子炉の回転試料筒 (RSR #1) を使用して、 $1012\text{n}/\text{cm}^2$ のフラックス24時間照射により行った。照射時間は、検出感度を向上させるために利用可能上限時間とした。また、中性子線フラックスの試料筒内でのばらつきが、フラックスモニターによりほぼ完全に補正可能なように、回転試料筒を利用した。フラックスモニターの計測によれば、カプセル内での中性子線フラックスの有意なばらつきは認められないことが多く、フラックス量比にして最大12%のばらつきを持つバッチが認められたが、これらは、標準試料をカプセル内の両外壁側と未知試料の中央部に挟むことにより、ほぼ完全に補正されている。

放射化された試料は、照射後72時間程度冷却し、試料及びフラックスモニターを別の2次バッグに詰め替えた後、容量50mlのGe (Li) 半導体検出器及び4096チャンネル波高分析器を用いて γ 線スペクトルを採取した。なお、本プログラムでは、1週間から10日程度の冷却後ナトリウムの妨害が減少した時点を最適条件とする中半減期核種群と1カ月程度以上冷却を要する長半減期核種群を別個に扱い、解析時にどちらかを選択するようにしている。

3.3. スペクトルデータの測定条件データ

本プログラムにより γ 線スペクトルデータを解析するためには、以下の測定条件を保存しておく必要がある。

- ・試料名とスペクトルデータのファイル名
- ・試料重量
- ・測定日付と時刻
- ・シンチレーションカウンターの全計測時間 (True Time)
- ・シンチレーションカウンターの不感時間補正計測時間 (Live Time)
- ・冷却時間
- ・フラックスモニターカウント数

第 1 表. 地質調査所標準試料JB-1データテーブル (プログラム中に組み込み済み)
JB-1のデータは Ando *et al.* (1987) による.

親核種	核種名	エネルギー (KeV)	半減期 (Hour)	JB-1 (ppm)	半減期 グループ°	標準核種	補正項
Na	Na- 24	1369	15.02	27900	中		
Sc	Sc- 46	1121	2011.2	27.4	長	+	
Cr	Cr- 51	320	664.8	469	長		
Fe	Fe- 59	1292	1070	89700	長	+	
Co	Co- 60	1173	46174	38.7	長		
Co	Co- 60	1333	46174	38.7	長	+	
Fe	Fe- 59	1099	1070	89700	長	+	
Sr	Sr- 85	514	1555.2	435	長		
Rb	Rb- 86	1077	451.2	41.2	長		
Mo	Mo- 99	141	66.02	34.4	中	+	
Fe	Fe- 59	144	1070	89700	長	+	
Cs	Cs-134	796	18396	1.19	長		
Ba	Ba-131	496	288.0	490	中		
La	La-140	329	40.27	38.0	中	+	
La	La-140	1597	40.27	38.0	中	+	
Ce	Ce-141	145	780.6	67.0	長	+	- Mo-99
Nd	Nd-147	91	264.0	27	中	+	
Nd	Nd-147	531	264.0	27	中	+	
Sm	Sm-153	70	46.8	5.0	中	+	
Sm	Sm-153	103	46.8	5.0	中	+	
Eu	Eu-152	122	113800	1.52	長	+	+ Ba-131
Gd	Gd-153	103	18.5	4.7	中		
Tb	Tb-160	299	1730.4	1.2	長	+	+ Pa-233 (M)
Tb	Tb-160	1178	1730.4	1.2	長	+	
Tm	Tm-170	84	3048	0.35	長		
Yb	Yb-175	396	101	2.1	中	+	
Lu	Lu-177	208	161.1	0.31	中	+	
Hf	Hf-181	482	1017.6	3.4	長	+	
Ta	Ta-182	152	2760.5	3.6	長	+	
W	W-187	480	24	20	中	+	
Th	Pa-233	312	647.6	9.2	長	+	
U	Np-239	278	56.46	1.7	中	+	

・ Ba-133/Cs-137/Co-60の標準試料ピークを同条件で計測することにより求めたエネルギーチャンネル更正值

3.4. スペクトルデータのファイル構造

本プログラムで直接読み込めるスペクトルデータファイルの構造は、基本的には前節に示した測定条件データをヘッダーとするアスキーファイルであるが、ヘッダーデータの形式により3種類の形式がある。これらの形式は、報

告者の利用環境に応じて必要とされたもので、全ヘッダーデータが含まれれば読み込みルーチンの修正により容易に独自の形式への対応が可能である。ここでは、本プログラム内で“Packed Form”と呼ぶ標準形式について記載する。この場合のファイル名は、“.PAC”の拡張子を付けることにより自動的に認識される。

ヘッダー部：先頭より6変数(可変データ長)がカンマで区切られる。

- 1 試料名(文字)
- 2 試料重量(実数; mg)
- 3 測定日付(文字; \$DATE変数を直接格納した形式)
- 4 測定開始時刻(文字; \$TIME変数を直接格納した形式)
- 5 全計測時間(整数; 秒)
- 6 不感時間補正計測時間(整数; 秒)

スペクトルデータ部：4096個の、0を含む整数変数をカンマまたは改行で区切る。

なお、それぞれの試料のフラックスモニターは、前もって適当な冷却時間後にFeスペクトルについて計測しておく、冷却時間とモニター質量による補正をしておく。このモニター値と各試料の冷却時間は、定量計算時に別個入力される。

4. 本プログラムによる定量計算操作

本プログラムの基本構造は、標準試料のスペクトル解析と未知試料の定量の2つのモジュールとそれらから呼び出されるピークの関数フィッティングサブルーチン群、ピーク面積から定量計算を行うサブルーチン群、そして会話型のウィンドー入出力モジュールに分けられる。実際に1つのバッチについて定量を行う場合の流れは、以下のようになる。

4.1. 標準試料のスペクトル解析

- ・メインメニューから標準試料データルーチンを選択する。
- ・標準試料の γ 線スペクトルデータを読み込む。
- ・冷却時間に応じて、解析対象が中半減期核種群か長半減期核種群かを指定する(第1表参照)。
- ・標準試料がJB-1の場合はプログラム中に格納されているデータを、その他の標準試料の場合は、標準試料データファイルを指定してプログラム外部から読み込む。
- ・標準試料データテーブルに格納されている全核種リストから、測定対象を選択する。
- ・スペクトルエネルギー対チャンネル数更正定数を、Ba-133/Cs-137/Co-60の標準試料ピークのチャンネル数を入力することにより設定する。
- ・スペクトル採取時の冷却時間とフラックスモニターの更正値を入力する。
- ・測定核種のピークを指定し、それぞれの γ 線スペクトルエネルギー値をもとに拡大表示画面に検索表示する。
- ・表示されたピーク形状に応じて、ピーク及びベースラインの領域を全て手動で指定するマニュアルモード、

バックグラウンド域のみを指定するセミオートモード、ピーク検索とピーク及びベースライン曲線の関数フィッティングを行うオートモードのいずれかを選択し、ピーク面積を計算する(第1図)。

- ・セミオートモード及びオートモードの場合は、フィッティング関数の選択とフィッティング及びピーク検索の条件指定を行う。
- ・関数フィッティングを行った場合は、拡大表示画面にフィッティングデータと原スペクトルデータが表示されるので(第2図)、それらの類似度、及び計算された

第1図：標準試料のスペクトル解析時の画面例。上部の横長画面(全スペクトル表示画面)に4096チャンネルのデータが、中央右の画面(拡大表示画面)に対象核種ピーク周辺の拡大が、中央左の画面(チャンネルデータ表示域)には、拡大表示されているデータの値と各種のメッセージが表示される。

第2図：標準試料のスペクトルの関数フィッティングを行った例。右側の拡大表示画面には、小さなドットで示される原スペクトルデータと共に、ベースラインをスムージングしピーク曲線を関数フィッティングした結果が大きなドットで示されている。個々のデータ値と共に、計算されたピーク面積値は、左側のチャンネルデータ表示域に表示されている。

第3図：未知試料のスペクトル解析画面の例。関数フィッティングを行ってピーク面積を計算させた結果、定量値が誤差値と共に左側のチャンネルデータ表示域に示されている。

ピーク積分面積と標準偏差をもとに計算結果の妥当性を判断し、採用する場合は次の核種へ、不採用の場合はフィッティング条件を再設定し繰り返す。

- ・全ての核種の解析が終了した後、データファイルの格納、及び必要に応じて印刷を行う。
- ・メインメニューに戻る。

4.2. 未知試料のスペクトル解析

- ・メインメニューから未知試料定量ルーチンを選択する。
- ・参照する標準試料データをファイルから読み込む。ただし、標準試料のスペクトル解析を行った直後の場合は、メモリー中に保存されている標準試料データを使用できる。
- ・未知試料のγ線スペクトルデータを読み込む。
- ・スペクトル採取時の冷却時間とフラックスモニターの更正値を入力する。
- ・読み込んだ標準試料データに記録されている核種とそのチャンネル数が、自動的に表示されるので、順次あるいは必要な核種を選択する。
- ・核種を選択すると、拡大表示画面は標準試料スペクトルにおける対象核種のピーク位置に移動する。適当なピークが表示された場合は、該当スペクトルと判定し、定量計算を行う。ピークが表示されない場合は、検出器温度の変動等によりエネルギーチャンネル更正値が標準試料と未知試料測定時に変化した可能性があるため、全スペクトル表示画面を参考に、前後のチャンネル領域から該当核種のピークを検索する必要がある。（報告者のシステムでは、検出器温度の管理が徹底しているため、エネルギーチャンネル更正値の変動が認められたことはない。）
- ・定量計算を、標準試料解析時と同様の手続きで行う。

その際のモードは、最終的には個々のピーク形状に基づいて決定されるべきである。ただし、特定の核種ピークには存在量（ピークの大きさ）には左右されにくい特徴的形状を持つ場合があるので、それらの場合には、標準試料の当該核種ピークの計算モードを参考にすることが必要である。

- ・定量結果は、標準偏差値の相対誤差表示値と共に表示される（第3図）。この誤差値を勘案して、必要な場合は他のモードで定量しなおす。
- ・対象核種全ての定量が終了した後、データファイルの格納、及び必要に応じて印刷を行う。
- ・必要に応じて次の未知試料のγ線スペクトルデータを読み込む。その際、別の標準試料ファイルにより定量する場合は、標準試料データを指定し直すことが可能。
- ・メインメニューに戻る。

以上の操作により一連のバッチ試料の定量が行える。この間、ファイル選択や測定核種選択といったデータ読み込み前の手続きを除くと、本プログラムによるスペクトル解析のほとんどの作業は、第1図に示す解析画面において行われる。この画面では、最上部には解析対象ファイルの情報が、最下部にはその場に応じたコマンドがファンクションキー表示されており、残りの画面中央部はさらに以下に示す3画面に区切られる。

上部の全スペクトル表示画面には、4096チャンネルの全スペクトルがグラフィック表示される。また、次に述べる拡大表示画面の表示域も示されるため、スペクトルのどの領域を拡大表示しているかが判読できる。

中央左側のチャンネルデータ表示域には、基本的には拡大表示している領域のチャンネルごとのデータがスクロール表示される。また、各種のメッセージや計算結果値もこの領域に表示される。

拡大表示領域には、全スペクトルの一部が拡大して表示される。関数フィッティングを行った後は、関数フィッティング値も同時に表示される。また、ガイドラインと呼ぶカーソル線が表示され、拡大表示領域を変更する際の中央点や、ピーク端等の特定のチャンネルを指定する際にカーソルキーにより移動させる。チャンネル数あるいはγ線エネルギー値を指定する拡大表示領域の変更、ガイドラインの左右移動とガイドラインチャンネルへのセンタリング、拡大表示域の拡大縮小、ピークのLog/Linear表示の切り替え、ピーク表示の高さ変更等は、コマンドキー入力により行える。HELPキーにより、コマンド一覧の表示も可能である。

この解析画面では、本システムの使用を容易にするために、できるだけ情報を表示するようにした。選択可能な解析コマンドの場合に応じたファンクションキー表示もそ

の一例である。また、不用意な操作による解析途中での異常終了やディスク関係のエラーによる計算結果の損失を防ぐために、キー入力チェックルーチンやディスク出力直前の計算結果のテンポラリーファイル自動保存ルーチン等を付加してある。

5. スペクトルのデータ解析サブルーチン

以上に述べてきた操作により、最終的には解析画面からスペクトルデータの解析サブルーチン群が呼び出されて実際の計算が行われる。これらのサブルーチン群は、基本的にはピーク面積計算ルーチン群と濃度定量及び測定誤差計算ルーチン群に分けられる。以下に、それぞれのサブルーチン群での計算内容について概説する。

5.1. ピーク面積の計算

ピーク面積は大まかに次の解析順序で決定される。A) ピークの探索、B) ベースラインの設定、C) ネットカウン트의算出、およびD) ピーク面積の計算、である。我々のプログラムではこの手順に対し前出の3つのモードを設け場合に依じて使い分けた。

“マニュアルモード”では、拡大表示画面に表示されたスペクトルをもとに判断し、A) ピークの両端のチャンネルの指定とB) ピーク両側近隣の仮想ベースラインの代表チャンネルの指定を行う。この場合、仮想ベースラインは指定チャンネルを結ぶ直線近似となる。指定したピーク領域内でネットカウント(グロスカウント-ベースライン値)を加算し、ピーク面積を得る。このモードは主観性が入りやすいのが、ピークが微少であったり非対称性が強い場合等、関数フィッティングに不適切なピーク形状の場合に使用する。

“オートモード”ではピークの探索やスペクトルの関数フィッティングに用いるいくつかのパラメータを指定するだけでA) からD) の手順が自動的に行われる。“セミオートモード”はベースラインの左右端をマニュアルで指定し直線近似とする点以外は“オートモード”と同様である。以下に“オートモード”における計算手順と、関数フィッティングの際に指定するパラメータについて述べる。なおこれらの計算ルーチンは、野口(1980)のスペクトル解析計算式を採用した。

(1) ピークの探索

ベースラインは、ある限られた領域内では直線もしくは緩やかな曲線と考えられることができるので、スペクトルの微分をとることでピーク領域を検出することができる。ここでは、チャンネル*i*の計数*n*(*i*)に対する平滑化二次微分値

$$n''(i) = \sum A_j \times n(i+j) \quad (1)$$

ただし $\sum A_j = 0$

および*n*''(*i*)に対する統計変動

$$\sigma''(i) = \{\sum (A_j)^2 \times \sum n(i+j)\}^{0.5} \quad (2)$$

を比較し

$$|n''(i)| > S \times \sigma''(i) \quad (3)$$

かつ $n''(i) = \max$

を満足させるようなチャンネル(領域)を探索する。ここで、*A_j*は二次微分多項式最小二乗フィルターやガウス関数の二次微分形に対応する定数で、ピークの大きさや分解能などを考慮して*j*の要素数(パラメータ: FILTER NUMBER, 普通7~9)やどちらの微分形を用いるか(パラメータ: FILTER TYPE)などを決める。*S*はピーク探索の感度(パラメータ: SENSITIVITY PEAK)で、小さいほど微小なピークまで拾うことができるが、ノイズをカットするために通常は2~3に設定する。ピーク位置は一次微分値が0となる点とした。

2つ以上のピークが近接し複数の極大値をもつ大きな山が形成されていることがあるが、この時点でそのようなピークは検出される。後述の“オートモード”でのフィッティングやピーク面積の計算からは除外されるが、“マニュアルモード”や“セミオートモード”においては、処理が可能である。

(2) ベースラインの設定

ベースラインは任意の次元の曲線で近似することができる(パラメータ: DIMENSION BASE)が、通常直線ないしは二次曲線でフィッティングを行った。ピークから半値幅のおよそ1.5倍(パラメータ: BASE WIDTH)以上離れたチャンネルを選び出しこれらをベースラインとして扱う。これは注目するピークに対してばかりでなく周辺のピークに対しても適応され、結果として設定されたベースラインがとびとびの領域となることもある。選び出されるチャンネルの数も可変であるが、片側20~30チャンネルの場合が多い。周辺にピークが林立し“オートモード”での選択がうまくいかない場合、ベースラインの設定のみマニュアルで行う“セミオートモード”が有効である。

(3) ネットカウン트의算出およびピーク面積の計算

“オートモード”および“セミオートモード”ではピークはガウス関数を仮定してパラメータ化される。ネットカウント(グロスカウント-ベースライン値)とピークチャンネルを与えてフィッティングを行うと、ピークの高さ(*H*)および半値幅(*FWHM*)を得る。フィッティングに使用する領域はおおよそ半値幅に対応する部分とした。この時ピーク面積は

$$\text{Area} = 1.064 \times (\text{FWHM}) \times H \quad (4)$$

と表される。

5.2. 濃度決定と測定誤差

未知試料中のある元素の濃度は標準試料との放射能(言い換えればピーク面積)の比を通して得られるが、両者の放射能はある基準状態に換算して比較する必要がある。

第一は半減期に関する補正である。注目する元素の半減期が測定に要する時間スケールに対して十分に長くない時は、基準時刻からのずれ(t_0)と測定時間(t_m)について以下の補正を行う。

$$I_0 = I_m \times \lambda \times t_m / \{ e^{-\lambda \times t_0} \times (1 - e^{-\lambda \times t_m}) \} \quad (5)$$

ここで I_0 、 I_m は基準時および測定時の放射能、 λ は崩壊定数である。通常、標準試料の測定時刻を基準とする。

この他にフラックスモニター(鉄線)による照射線量の補正 F と重量比による補正 W (F 、 W ともに、標準試料の値/未知試料の値)を加える。最終的に、未知試料中にある元素の濃度は

$$C = C_s \times F \times W \times (I_{0u}/I_{0s}) \quad (6)$$

となる。ここで C_s は標準試料中の元素濃度、 I_{0u} と I_{0s} は基準時刻における未知試料と標準試料の放射能である。

測定誤差は主にスペクトル採取の際の計数誤差とフィッティングの誤差(オートおよびセミオートモード時)によって評価した。これらは算出されるピーク面積に反映される。未知試料と標準試料の双方に誤差が含まれることを考慮し、相対誤差を

$$\sigma = \{ (\sigma_{unk}/A_{unk})^2 + (\sigma_{std}/A_{std})^2 \}^{0.5} \quad (7)$$

として求めた。ここで A_{unk} と A_{std} は未知試料および標準試料におけるある元素のピーク面積、 σ_{unk} と σ_{std} はそれらに対応する標準偏差である。

6. 改良や付加を要する機能

本システムでは、以下に示す機能の拡充や改良が要請されているが、現段階では対応していない。一般の使用に際しては特に致命的とは考えていないが、将来的には実現されるべきものであろう。

1) プログラムの記載言語の変更

システム規模の増大につれて、可読性が低下した。機能拡充や他機種への移植を考えると、PASCALやC等への書き換えが必要と思われる。本プログラムは機種依存度の高い画面処理関係のメインルーチン以外は、書き換えを前提とした構造を持たせてあるので、将来的には比較的容易に対応できよう。

2) マルチチャンネルアナライザーに直結したオンライン処理

開発当初の目的が放射線管理区域外でのオフライン解析処理であったため、オンライン処理機能は持たせなかった。現在、 γ 線スペクトルデータのシリアル転送機能・データ印刷等のルーチンを付加したバージョンによるオンライン版を開発済みであるが、報告者の環境ではスペクトル採取用の計算機の性能が非常に低く転送速度も遅いため、現在は使用していない。

3) 放射能強度の減退による核種濃度の補正

現状では、対象としたピークがその核種単一のものである、あるいは複数ピークの重複の影響を完全に補正できるという前提のもとで、大半の核種は1回の測定により濃度決定を行っている。しかしながら、冷却時間を変えた複数のタイミングで測定し、当該ピークのそれぞれの定量値を理論的な減退率と照らし合わせることで、上記の前提が成立しているかどうか判定できる。また、全ての核種の γ 線エネルギーのデータベースを内蔵させることにより、実際に得られたピークの強度減退を成り立たせる異核種ピークの組み合わせとそれぞれの強度の復元を計算させて、対象核種の濃度補正を行うことも可能である。しかしながら、報告者らの測定対象試料が標準試料と比較的似通った元素分布を持つ地質試料であり、エネルギーレベルの異なった複数のピークを定量する事により再現性のチェックが行えることから、現状でも十分に利用可能と考えている。

7. おわりに

本システムは、研究者自身が自らの仕様に合わせて作成・改良を重ねているものであり、その意味では柔軟性や機能性を持つものの、市販品にはない未完成の部分やバグが存在するかも知れない。報告者の周辺では、ある程度定型的な処理操作を行っている為、現在のところデータファイルに関わるエラー以外は発生しないが、様々な操作手順により発生するバグが潜在している危険がある。しかしながら、自動ピーク検索と共にピーク・ベースライン曲線両者の関数フィッティングを行うルーチンを持つスペクトル解析プログラムは一般には入手困難であること、様々なフィッティング条件を柔軟に変更できる仕様であること、そしてソースファイルの入手・変更が可能であることから、読者のご参考になれば幸いである。

本システムの完全なソースファイル、コンパイルファイル、及び操作解説書は、地質調査所のオープンファイル(No.162)として公開されている。入手希望者は、筆頭報告者あるいは地質調査所地質情報センター情報管理普及室(0298-54-3603)までご連絡頂きたい。

N88BASICコンパイラ及びそのランタイムライブラリは日本電気(株), MS-DOSはマイクロソフトの製品である。

謝 辞: 本プログラムの開発・改良及びその後の試験公開利用に際し, 東京大学理学部地質学教室 松本 良博士, 静岡大学理学部地球科学教室 海野 進博士, 東京大学理学部化学教室 葉袋佳孝博士, 東京大学理学部地質学教室 多田隆治博士, 荻原成騎博士, 加藤泰治博士には貴重なご意見やご助言を頂き, その大部分は現在のプログラムに反映されている。東京大学理学部化学教室増田彰正教授, 同鉱物学教室豊田和弘博士, 北海道大学理学部地質学鉱物学教室荒牧巻重雄教授には, 対照試料の安定同位体希釈質量分析, 誘導結合プラズマ発光分析, 蛍光X線分析によるデータを参照させて頂いた。ここに記して謝意を表する。

文 献

- Ando, A., Mita, N. and Terashima, S. (1987) 1986 values for fifteen GSJ rock reference samples "Igneous rock series". *Geostandards Newsletter*, **11**, 159-166.
- 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. 200p.
- 池田 隆 (1979) 中性子放射化分析の γ 線スペクトル解析プログラムについて. 九十九地学, no.14, 38-47.
- 上岡 晃・田中 剛 (1989) 機器中性子放射化法による地質試料の分析とその問題点 ー地質調査所岩石標準試料による検討ー. 地質学雑誌, **95**, 835-850.
- 野口正安 (1980) γ 線スペクトロメトリー. 日刊工業新聞社, 243p.
- 田中 剛・上岡 晃・山中宏青 (1988) 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布. 地調月報, **39**, 537-557.

要 旨

中性子線放射化による岩石試料中の γ 線スペクトル解析プログラム"NACP"

: 渡部芳夫・岩森 光

中性子線放射化分析のための γ 線スペクトル解析システムを開発した。本システムは, 4096チャンネルにアナログ・デジタル変換されたデータを入力することにより, ごく普通のパーソナルコンピュータ上でスペクトル解析及び定量計算を行うものである。本システムの特徴は, ピークの自動検索だけでなく, ピーク及びベースライン曲線の関数スムージングも同時に行える点である。細かい条件を設定しての関数フィッティングだけでなく, 自動処理が不適当なピークについては, コーベル法による手動計算も行える。また, 本システムはベーシック言語で書かれたソースファイルと共に, 一般の利用のために公開されている。

キーワード: 中性子線放射化分析, γ 線スペクトル解析, 関数フィッティング, ベーシックプログラム

(1991年 7 月15日受付, 1991年 9 月20日受理)