

研究成果報告書

(国立情報学研究所の民間助成研究成果概要データベース・登録原稿)

研究テーマ (和文) AB		多次元電気泳動法を用いるアクチノイドイオンの腐植物質による保持挙動の解明			
研究テーマ (欧文) AZ		Multi-dimensional electrophoresis of actinide complexes with humic substances			
研究氏 代表 者	カナ CC	姓) サイトウ	名) シンゴ	研究期間 B	2017～ 2018年
	漢字 CB	齋藤	伸吾	報告年度 YR	2018年
	ローマ字 CZ	Saito	Shingo	研究機関名	埼玉大学
研究代表者 CD 所属機関・職名		埼玉大学大学院理工学研究科・教授			
概要 EA (600字～800字程度にまとめてください。)					
<p>土壌・水環境において、動植物の排泄物や遺骸は土壌中の微生物による分解・縮合を経て、最終的に不定形の有機高分子である腐植物質(HS)となり、その中でも酸に不溶でかつアルカリに可溶性な高分子であるフミン酸(HA)は分子内に多種多様な官能基を有するため、環境中の金属イオンと錯形成し、それらの動態を制御している。よって、環境評価や放射性廃棄物の地層処分に関する安全評価において、金属-HA錯体の知見は重要である。しかし、HAは特定の組成や重合度を持たない複雑な混合物であるため、HAによる金属イオンの保持挙動については未解明な部分が多い。また、HAは金属イオンとの錯形成によって超分子錯体を形成する超分子化仮説が唱えられているが、分子レベルでの超分子化の観測はされていない。本研究では、対象金属イオンをランタノイドイオン(Ln³⁺)およびアクチノイドイオン(Anⁿ⁺: Th⁴⁺, UO₂²⁺, NpO₂²⁺, Pu⁴⁺, Cm³⁺)群とし、これらのHA錯体に対して、ポリアクリルアミドゲル電気泳動法(PAGE)を基盤とした新規分析法を構築した。この手法では、PAGEでHAを分子量に基づき空間分離した後、金属検出PAGE、UV-Vis測定および励起蛍光マトリクス-平行因子分析(EEM-PARAFAC)を接続する。これにより、HA分子量に対する金属結合量、HA濃度および蛍光成分濃度などの相関を多角的に評価した。</p> <p>測定の結果、特定の分子量帯に金属イオンが局在して分布し、かつAnⁿ⁺の種類によって分布に大きな違いが観測された。このことから、HA中の配位サイトは分子量に対して不均一に分布し、かつ金属イオンの特性(電荷、配位座、酸化状態)によって金属イオンとHAとの親和性は大きく異なることが明らかになった。また、タンパク質様のHA成分はTb³⁺やUO₂²⁺との錯形成に深く関与することなどが判明した。</p> <p>さらに、超分子化したHA成分だけを単離可能な方法であるホロ/アポ変換二次元PAGEをTb³⁺-HA錯体に適用し、様々な分子量のHA成分がTb³⁺を介して超分子化していることを分子レベルで初めて実証した。</p> <p>この様に金属イオンのHAによる保持に関する幾つかの興味深い知見が得られた。以上の研究成果は、現在、欧文学術雑誌に投稿中である。</p>					
キーワード FA	フミン酸	金属錯体	アクチノイド	超分子化	

(以下は記入しないでください。)

助成財団コード TA					研究課題番号 AA								
研究機関番号 AC					シート番号								

発表文献（この研究を発表した雑誌・図書について記入してください。）									
雑誌	論文標題 ^{GB}								
	著者名 ^{GA}		雑誌名 ^{GC}						
	ページ ^{GF}	～	発行年 ^{GE}					巻号 ^{GD}	
雑誌	論文標題 ^{GB}								
	著者名 ^{GA}		雑誌名 ^{GC}						
	ページ ^{GF}	～	発行年 ^{GE}					巻号 ^{GD}	
雑誌	論文標題 ^{GB}								
	著者名 ^{GA}		雑誌名 ^{GC}						
	ページ ^{GF}	～	発行年 ^{GE}					巻号 ^{GD}	
図書	著者名 ^{HA}								
	書名 ^{HC}								
	出版者 ^{HB}		発行年 ^{HD}					総ページ ^{HE}	
図書	著者名 ^{HA}								
	書名 ^{HC}								
	出版者 ^{HB}		発行年 ^{HD}					総ページ ^{HE}	

欧文概要 EZ

Humic acid substances (HASs), which are responsible for the fate of metal ions in the environment. Here, we developed a new polyacrylamide gel electrophoresis (PAGE) based-techniques to investigate the MW distributions of metal ions (lanthanide (Ln) and actinide (An) ions) that are strongly complexed with humic acid (HA). Combining PAGE systems for HA separation and for detection of metal ions provided the distribution of HA-bound metal ions. Coupling this system with UV-Vis spectrometry and the excitation-emission matrix (EEM) spectrometry-parallel factor analysis (PARAFAC) method showed new insights into kinetically stable interactions between HA and metal ions. Interestingly, the MW distributions of the metal ions were entirely different in terms of Th⁴⁺, UO₂²⁺, NpO₂²⁺, Pu⁴⁺, and Cm³⁺, indicating that the presence of specific binding sites in HA depending on its MWs and metal ion species. The MW distributions of fluorescent components obtained by EEM-PARAFAC were associated with the metal ion distributions. Consequently, it was found that the localization of protein-like components in the large and small MW regions cooperatively occurred through metal ion binding. In addition, supramolecular assembly of HA in molecular level was observed via complexation with Tb³⁺ by means of holo/apo conversion two-dimensional PAGE system.