蛍光分光測定と多変量解析を用いた深部地下水天然有機物と金属イオンの相互作用評価とその起源の整理

Evaluation of the interaction between deep groundwater natural organic matter and metal ions using fluorescence spectroscopy and multivariate analysis and arrangement of their origins

*西 柊作[1]，宮川 和也[2]，戸田 賀奈子[1]，斉藤 拓巳[1]

[1] 東京大学，[2] 日本原子力研究開発機構

深部地下環境中に存在する天然有機物 (NOM) を対象に Eu^{3+}を添加する消光実験を行い，得られた励起蛍光マトリクス（EEM）を多変量解析法の一つである Parallel Factor Analysis を用いて整理・類型化することで，結合反応に寄与する蛍光成分を抽出し，その物理的・化学的性質や起源を考察した.

キーワード：地層処分、天然有機物、蛍光分光測定、PARAFAC、消光

1. 緒言

NOM は，核種の移行挙動を大きく変えるが，その結合量を多様な環境条件下で表すことのできるモデルが表層の NOM については提案されている．そうした結合モデルを地層処分の安全評価で使用するためには，深部地下環境の NOM の類型的な核種に対する結合反応ならびに，既存の結合モデルの適応可能性を評価することが必要である．発表者は，NOM の蛍光が一般に金属イオンと結合することで消光されることに着目し，NOM を含む堆積岩系の深部地下水試料に Eu^{3+}を添加する消光実験を行い, Parallel Factor Analysis（PARAFAC）を用いて，結合反応に寄与する NOM の蛍光成分を特定した．本発表では，新たに地下水試料を加えた同様の評価の結果を表層環境のデータベースやその他モデル物質と比較し，深度による NOM の反応性の違いをその起源や環境条件の違いから網羅的に議論し，深部地下 NOM の性質を総合的に整理する。

2. 実験方法

実験には, JAEA 幌延深地層研究センターの異なる深度で採取した地下水を用いた．この地下水は全無機炭素濃度が高いことから，有機物と Eu^{3+}の錯生成のみを評価するために，予め脱炭酸を行った．脱炭酸後の地下水試料を 5 倍に希釈し，Eu^{3+}を 0 から 0.08 mM の範囲で添加したものを測定試料とした．励起発光マトリクス（EEM）測定には，日本分光製の分光蛍光光度計 FP-8000 を使用した．また，紫外可視吸光光度計 UV-2700（島津製作所製）を用いて, 内部フィルタ効果補正のための吸収スペクトル測定を行った. また, PARAFAC 解析には drEEM ツールボックスを用いた[1]．また，比較のために，原位置の岩石試料から抽出した NOM や地下水から抽出したフミン酸画分(HHA)についても同様の測定を行った.

3. 結果

蛍光の実験の結果より，深部地下水中の NOM 成分が Eu3+と結合し，EEM の特定の箇所で蛍光の消光が生じることが複数試料間で確認できた．また，PARAFAC の適用から，大部分のデータを図 1 に示す 4 個の共通する蛍光成分で説明できることが分かった．発表では，これらの蛍光成分と表層の NOM の PARAFAC データベース，HHA，原位置の岩石試料から抽出した NOM などを比較し，環境条件との関係を整理する事で，深部地下水中の NOM の起源と Eu^{3+}との反応性について議論する．

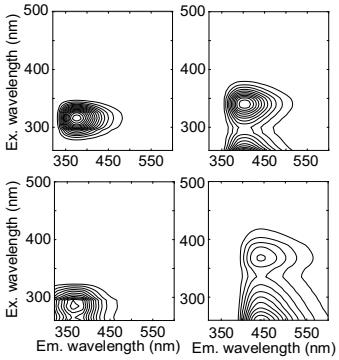


図 1. 上：PARAFAC 解析により抽出された蛍光成分

参考文献

[1] Murphy, K. R., *et al.*, *Anal. Methods,*,**5**, 6557-6566 (2013).

*Shusaku Nishi[1], Kazuya Miyakawa[2], Kanako Toda[1], Takumi Saito[1]

[1] The University of Tokyo., [2] Japan Atomic Energy Agency.