

ウラン酸化物の放射線による溶解挙動の研究

日本原子力研究開発機構 原子力科学研究所 原子力基礎工学研究センター 化学・環境・放射線ディビジョン
原子力化学研究グループ
熊谷 友多*

Oxidation and dissolution of uranium oxide materials have been a subject of numerous studies as a basis of the geological disposal technology for spent nuclear fuel. The understandings obtained by these studies provide useful suggestions for research and development regarding the retrieval and storage of nuclear fuel debris generated by a nuclear severe accident. Here, these research backgrounds of oxidative dissolution of uranium oxides are briefly reviewed and some studies relating to radiation-induced reactions will be introduced.

1 はじめに

2022年9月に「ウラン酸化物の放射線による溶解挙動の研究」に対して、放射線化学賞を賜った。筆者の尊敬する諸先輩方が受賞されるのを目にしてきただけに、大変光栄であり、また身の引き締まる思いを感じた。まずは、この研究を進める上でご協力いただいた共同研究者や同僚に、さまざまな形でご支援、ご指導いただいた先生方、先輩方に感謝申し上げる。また、振り返ると、この度の受賞に結び付いた研究は、所属原子力機構で内部公募の形式を取る萌芽研究開発制度で研究予算を得て、ちょうど10年前の2013年に着手したものであった。この制度は所属原子力機構への寄付金を原資とするもので、寄付を下された皆様には、

この研究を進めるきっかけを与えていただいたことを御礼申し上げたい。

今回受賞の対象となった研究の内容については、詳しくは拙著論文¹⁻³⁾にまとめており、また概要については、すでに2022年の第65回放射線化学討論会における受賞講演の要旨に記載したので、そちらを参照していただきたい。本稿では関連研究について少し広く取り上げて、筆者の研究の背景や意義について述べてみたいと思う。

2 二酸化ウランの酸化溶解反応と直接処分技術開発

二酸化ウラン (UO_2) は多くの軽水炉で使われている核燃料の化学形である。 UO_2 は4価のウラン U(IV) で構成され、水への溶解度は中性付近の pH (4-10) では $< 10^{-9} \text{ mol dm}^{-3}$ と低いが、酸化されて化学形が変化すると溶けやすくなる。たとえば、6価ウラン U(VI) の化合物である $\text{UO}_3 \cdot 2\text{H}_2\text{O}$ では $10^{-5} \text{ mol dm}^{-3}$ 程度まで溶解度が増加する⁴⁾。この溶解度の増加は、U(VI) がウラニルイオン (UO_2^{2+}) として水に溶解するためであり、炭酸(水素)イオン ($\text{HCO}_3^-/\text{CO}_3^{2-}$) のように UO_2^{2+} と水溶性の錯体を形成する溶質が含まれている場合、さらに溶解度は高くなる。水の放射線分解では、ヒドロキシルラジカル ($\cdot\text{OH}$) や過酸化水素 (H_2O_2) といった酸化剤が生成するため、水中の UO_2 に放射線を照射すると酸化溶解反応が起きる。

この UO_2 の酸化溶解反応は、使用済核燃料の地層処分を背景として研究されてきた。核燃料として利用されるウラン自体は、天然ウランの99.3%を占める U-238 で約45億年、存在比0.7%の U-235 で約7億年の非常に長い半減期を持つため、比放射能は低い。原子炉で燃料として利用されることで、Cs-137 といった放射性の核分裂生成物や、ウランが中性子を捕獲することでプルトニウムやアメリシウム等のアクチノイド元素が生成し、使用済核燃料は高い放射能を持つようになる。そのため、使用済核燃料が地層処分され、地

Radiation-Induced Dissolution of Uranium Oxide Materials in Water

Yuta KUMAGAI* (Japan Atomic Energy Agency, Nuclear Science Research Institute, Nuclear Science and Engineering Center, Chemistry, Environment, and Radiation Division, Research Group for Nuclear Chemistry),

〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方 2-4

TEL: 029-282-5268, E-mail: kumagai.yuta@jaea.go.jp

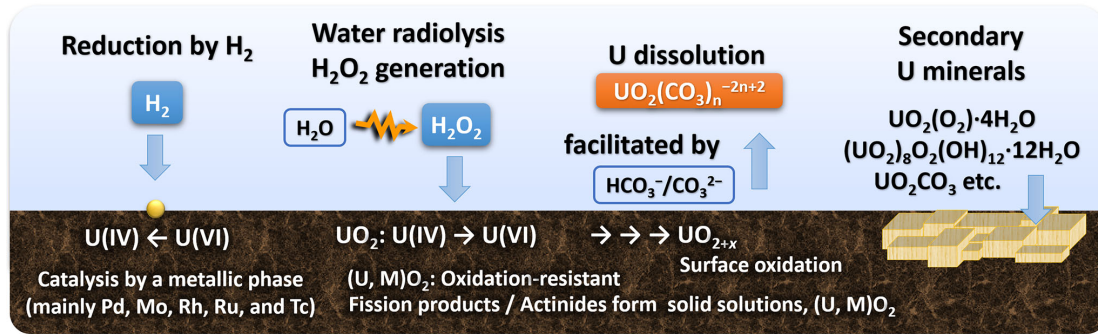


Figure 1. Various reactions having impacts on the oxidative dissolution of spent nuclear fuel under the geological repository condition.

下水と接触する状況になると、水の放射線分解によって酸化反応が進み、母材の UO_2 が地下水に溶け出すことになる。

使用済核燃料の直接処分は、燃料再処理後のガラス固化した高レベル放射性廃棄物の地層処分とコンセプトは同様であり、処分後すぐに使用済核燃料が地下水と接触するわけではない。どちらの処分概念でも、地下深部に処分場を建設して、廃棄体を埋設処分することになっているが、廃棄体はキャニスターやオーバーバックと呼ばれる金属製容器に格納され、さらにその外側に核種の移行を抑制するためにベントナイト等の緩衝材が配置される。これらは人口バリアと呼ばれ、使用済核燃料を閉じ込めて、地下環境に放射性核種が拡散することを防ぐための措置である。そのため、使用済核燃料が地下水と接触するのは、金属製容器が腐食等により閉じ込め機能を喪失した後であり、地層処分の安全性を評価するための解析における保守的な設定でも、地下水との接触は処分後 1000 年後を想定する場合が多い⁵⁾。

この金属製容器による閉じ込め期間は、単純に 10^3 年– 10^4 年の期間に渡って放射性核種の放出を阻止するというだけでなく、使用済核燃料に含まれる放射能の減衰を待つ猶予期間としての効果がある。原子炉から取り出したばかりの使用済核燃料は非常に放射能が高く、炉型や燃焼度による違いはあるが 10^{13} Bq/kg 程度になる。しかし、その放射能の大部分はあまり半減期の長くない核分裂生成物、たとえば Cs-137 (半減期 30.1 年) や Sr-90 (半減期 28.79 年) によるもので、 10^3 年の時点では無視できる水準まで減衰する。核分裂生成物の減衰後は Am-241 (半減期 432.2 年) の寄与が大きくなるが、半減期からわかるように 10^4 年まで経過すると減衰により無視できるようになる。そのた

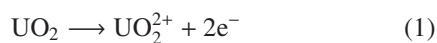
め、放射線に起因する UO_2 の酸化溶解の速度も大きく低減され、評価モデルにより異なるが 10^4 年– 10^6 年程度で UO_2 母材の溶解と放射性核種の放出挙動に対して、放射線分解は考慮すべき影響を持たなくなると推定されている⁶⁾。

使用済核燃料の溶解挙動に対して放射線が影響を持つのは、地下水との接触から放射能の減衰までの 10^3 年– 10^6 年と考えることができるが、この期間は多くの安全解析で公衆被ばく線量が最大となることが予想されている時期と重なる。公衆被ばく線量は、地層処分の安全性を判断するための重要な指標の一つである。この期間における放射線分解が使用済核燃料の溶解に与える影響については、いくつかの評価モデルにおいて考慮されており、溶解速度を 2 桁程度高める効果が想定されている^{7,8)}。さらに、カナダの直接処分の安全解析では、燃料溶解速度の設定値に対する感度解析が行われ、燃料溶解速度を 10 倍に設定することで公衆被ばく線量も 1 桁程度上昇することが報告されている⁸⁾。したがって、使用済核燃料の直接処分の安全性を評価する上で、水の放射線分解は無視できない影響を持つ現象の一つである。

安全解析に反映するため、放射線による UO_2 の酸化溶解に対する反応モデルが作られているが、そのメカニズムは単純ではない。固液の界面反応であるため固体側、溶液側の条件に依存する。これまでに報告されている影響を Fig. 1 に模式的に示した^{4,9,10)}。本稿では筆者の研究と関連する UO_2 の酸化状態と溶液条件の影響について述べることにし、それ以上については、先に引用した総説等を参照していただきたい。

3 二酸化ウランの酸化状態の影響

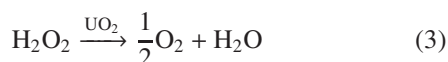
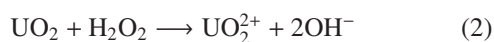
UO_2 の酸化による溶解反応を単純な反応式にすれば、次式ようになる。



実際には UO_2 が 2 電子酸化を受けて UO_2^{2+} に変化するまでに、中間的な酸化状態を取る。ウランは溶液中では 4 価もしくは 6 価が安定であり、固体では 5 価の化合物も知られ¹¹⁾、ウラン酸化物だけでも UO_2 から U_3O_8 の間に、 U_4O_9 や U_3O_7 、また UO_2 の過定比状態 (UO_{2+x}) や U_4O_9 の亜定比状態 (U_4O_{9-y}) 等の酸化状態を取る¹²⁾。そのため、 UO_2 表面の反応挙動は、表面の酸化状態に依存する。

UO_2 を電極として、水中で電位を掛けて酸化溶解に伴う電流を測定すると、時間とともに電流値が減少し、 U(VI) が表面に蓄積することで表面酸化層 (< 10 nm 程度) が形成され、それ以上の酸化反応が減速されることが報告されている⁴⁾。表面酸化の進展については X 線光電子分光法により分析されており、 UO_2^{2+} の溶解にいたる前に $\text{O/U} = 2.3$ 程度まで酸化が進む。表面酸化層の形成は、酸化反応と溶解反応との速度論的な関係に依存し、溶液中に U(VI) の溶出を促進する $\text{HCO}_3^-/\text{CO}_2^{2-}$ が溶存している場合には表面酸化層の形成は抑制される。これらの知見から、 UO_2 の酸化溶解反応を腐食反応としてモデル化し、溶液中の酸化還元電位から UO_2 の酸化溶解の速度を評価することができる¹⁰⁾。

水の放射線分解による酸化溶解反応は、電気化学モデルによる評価よりも複雑になる。水の放射線分解では、 H_2O_2 による酸化反応が UO_2 の溶解に大きな寄与を持つ。照射下での溶液中の H_2O_2 濃度は、放射線の LET・線種、溶質の組成等に依存するが、地層処分想定される条件では UO_2 の酸化溶解に対する H_2O_2 の寄与は 99% 以上と評価されている¹⁴⁾。 H_2O_2 の UO_2 表面での反応は、酸化還元反応と触媒的な分解反応が競争関係にある。



そのため、放射線誘起反応の解析では、反応 (3) の H_2O_2 の触媒的な分解を考慮する必要があり、水の放射線分解と溶液中の反応に UO_2 の表面反応を組み合わせた反応モデルが用いられてきた⁹⁾。一方で、この

放射線反応モデルでは、電気化学モデルの知見が反映されず、 UO_2 表面酸化の影響は考慮されてこなかった。反応 (2) の UO_2 の酸化については、実験値に基づいて反応速度は $7.33 \times 10^{-8} \text{ ms}^{-1}$ とされ、反応分岐比も反応 (2) が 80%、反応 (3) が 20% で一定として扱われていた。

この電気化学モデルと放射線反応モデルの不整合に疑問を感じ、筆者らは H_2O_2 の反応に対する表面酸化状態の影響を研究した。 O/U 比が 2.0 の UO_2 を調製し、 H_2O_2 との反応挙動を測定することで、反応 (2) の速度が表面酸化の進展とともに減少することを明らかにした²⁾。これにより、放射線誘起反応の解析においても表面酸化による反応挙動の変化を考慮する必要があることを示すことができた。また反応 (2) と (3) の分岐比についても研究し、 H_2O_2 濃度依存性があることを示した¹⁵⁾。反応分岐比についての研究では、 H_2O_2 濃度に対する依存性から、表面 OH ラジカルや U(V) サイトのような反応の中間状態が存在することも提案した。今後より信頼性の高い解析モデルを構築する上では、 UO_2 表面での微視的な反応メカニズムを確立することは不可欠であろうと考えている。

4 二酸化ウランの酸化溶解に対する溶液条件の影響

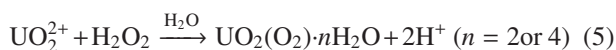
UO_2 の酸化溶解反応は固液の界面での反応であるため、溶液条件にも強く依存する。最も理解が進んでいるのは、 $\text{HCO}_3^-/\text{CO}_2^{2-}$ についてである。多くの研究が直接処分を背景として進められてきたため、溶液条件としては地下水が想定される。地下水中の溶質は地層環境の影響を受けるが、 $\text{HCO}_3^-/\text{CO}_2^{2-}$ は普遍的に存在する¹⁶⁾。 UO_2 の酸化溶解において、 $\text{HCO}_3^-/\text{CO}_2^{2-}$ には前述のとおり、 UO_2^{2+} と水溶性錯体を形成して溶解度を高める効果がある。



溶解速度に対しても大きな影響があり、 UO_2 電極を用いた酸化溶解電流の測定では、 5 mmol dm^{-3} の $\text{HCO}_3^-/\text{CO}_2^{2-}$ により電流値が 2 桁上昇することが報告されている⁴⁾。また、 H_2O_2 による酸化溶解反応においても、 $\text{HCO}_3^-/\text{CO}_2^{2-}$ による反応速度の増加が報告されている¹⁷⁾。 20 mmol dm^{-3} の H_2O_2 水溶液を用いた場合においても、 1 mmol dm^{-3} の $\text{HCO}_3^-/\text{CO}_2^{2-}$ により反応速度は一定となり、それ以上の $\text{HCO}_3^-/\text{CO}_2^{2-}$ 添加が速度に影響しないことから、律速段階は反応 (2) の酸化と考えられている。この H_2O_2 濃度は放射線分解で想定される濃度と比較してかなり高いため、地下環境

での放射線による UO_2 の溶解では酸化が律速と考えられている。

$\text{HCO}_3^-/\text{CO}_3^{2-}$ を含まない場合には、酸化の進展によって UO_2 の表面に U(VI) の化合物が二次鉱物として生成するため、反応挙動は極めて複雑になる。 H_2O_2 による酸化の場合、 UO_2 表面には過酸化ウラニルの層が成長する¹⁸⁾。



H_2O_2 濃度が低い場合には、りん酸イオン、ケイ酸イオンやアルカリ/アルカリ土類イオンとの反応により、多様な鉱物が生成する可能性がある¹⁹⁾。

$\text{HCO}_3^-/\text{CO}_3^{2-}$ の他に研究が進んでいる溶質としては、溶存水素 (H_2) と 2 価鉄イオン (Fe^{2+}) がある。どちらも地層処分環境での反応に関与する可能性が高いため、研究の対象とされてきた。使用済核燃料と地下水との接触が起こる時点では、金属製容器の腐食が進んでおり、周辺の水質が変化していると考えられる。使用済核燃料を格納する容器が鉄鋼製であれば、鉄の嫌気性腐食で H_2 と Fe^{2+} が発生する。これらは還元剤として反応するため、溶液の酸化還元電位を下げ、 UO_2 の溶解反応を抑制する効果が知られている。そのため、 H_2 や Fe^{2+} の反応を考慮すると、還元反応の速度が H_2O_2 等による酸化の速度を超えるため、 UO_2 の酸化溶解は進展しないと評価も報告されている⁹⁾。

このような研究の進展を踏まえて、筆者が着目したのは有機酸の影響である。炭酸塩水溶液の放射線分解は、やはり地層処分を背景として研究されており、不活性雰囲気でもギ酸やシュウ酸が生成することがわかっている²⁰⁾。また深地層環境においても、 1 mgC dm^{-3} – 10 mgC dm^{-3} 程度の有機物は溶存し²¹⁾、メタンの溶存が確認される場合もある²²⁾。このような水質条件で放射線分解が起きれば、種々の有機酸が生成することが予想される。そこで、フタル酸をモデル物質として UO_2 の溶解反応への影響を研究し、ガンマ線照射による酸化溶解は抑制されることを明らかにした³⁾。一方で、 H_2O_2 添加による反応の場合、フタル酸は UO_2 表面に吸着するが、 H_2O_2 の表面酸化反応には有意な影響は認められなかった。酸化ジルコニウム表面での H_2O_2 の分解反応では、Tris(hydroxymethyl)aminomethane の酸化によるホルムアルデヒドの生成が報告されており²³⁾、有機物の表面吸着の構造等も反応に影響する可能性が示唆される。この研究については、地下環境で放射線によって生成する有機酸の性状も詳しくわかっていないのが現状であるが、近年の直接処分に関する研究では、より現実的な安全解析を目指して還元性地

下水中の使用済核燃料の経年変化挙動が注目されており²⁴⁾、その一環として今後も取り組んでいきたいと考えている。

5 燃料デブリの酸化溶解に関する研究

ウラン酸化物の酸化溶解に関する研究は、使用済核燃料の直接処分を背景として進められてきたことを述べたが、その知見は原子炉の過酷事故により生じる燃料デブリの経年変化挙動を理解する上でも重要である。燃料デブリは過酷事故で溶融した燃料が、周囲の金属材料と高温で反応し、不均質な混合物として冷え固まったものである。燃料デブリは事故のために閉じ込め機能が失われ、冷却水に曝露されることになるが、冷却期間のある処分時の使用済核燃料とは異なり、放射線が極めて高い。そのため、放射線分解による反応の進行も速いと想定される。

燃料デブリの組成は原子炉型や事故進展に依存して多様であり、放射線による化学変化の評価は挑戦的な課題である。例として、筆者らの研究で用いた模擬燃料デブリの分析で観測された主要な固相を Table 1 に示す^{25,26)}。相組成は出発物質や加熱処理時の温度、雰囲気、処理時間に依存して変化する²⁷⁾。これらの固相が放射線に対してどのように応答するのかは、未解明な部分が多く残されている。しかし、燃料デブリが酸化反応の影響を受けるとウラン含有相が変質し、 U(VI) を含む化合物が表面に形成されることは、Chernobyl 原子力発電所事故で生成した燃料デブリの分析で報告されている^{28,29)}。Chernobyl 事故では溶融した燃料が溶岩状となって流出し、原子炉の構造材や遮蔽体として使われていたケイ酸塩鉱物と高温で反応し、ケイ酸ガラスの母材の中にさまざまな固相が包含された燃料デブリが形成された。内容物には、燃料成分であるウラン酸化物相や、燃料被覆管のジルコニウム (Zr) との反応で形成されるウランとジルコニウムの酸化物固溶体 ($(\text{U}, \text{Zr})\text{O}_2$)、遮蔽体中のケイ素を取り込んだジルコン相 ($(\text{Zr}, \text{U})\text{SiO}_4$)、ステンレス鋼成分からなる金属相などが観察されている。

事故後の Chernobyl 原子力発電所から採取された燃料デブリ試料を用いた浸漬試験では、ウラニル化合物の形成やアクチノイド元素の顕著な溶出が観測され、Chernobyl の燃料デブリについては、化学的な安定性が使用済核燃料と比べても低いことが報告されている³⁰⁾。この報告では、母材の変質や放射性核種の溶出が起こりやすい原因として、 U_4O_9 相や U_3O_8 相が試験に用いた燃料デブリ試料に含まれていたことを議論し

Table 1. Major phases in simulated fuel debris samples synthesized from UO_2 , Zr, and stainless steel^{30,32)}.

UO_2	One of the starting materials, remaining unreacted.
$\text{UO}_2(\text{s.s.})$	Solid solutions of UO_2 with Zr and/or Fe formed by the pyrochemical treatment.
U_3O_8	A uranium oxide with higher oxidation state than UO_2 .
$(\text{Fe,Cr})\text{UO}_4$	Uranates containing Fe and Cr, a U(V) compound.
Spinel oxides	Oxides of Fe, Cr, and Ni having the spinel structure produced by oxidation of stainless steel.
m-ZrO ₂	A Zr oxide (monoclinic).
t-ZrO ₂	A Zr oxide (tetragonal), formation of solid solution with U is expected.

ている。筆者らの U_3O_8 の酸化溶解挙動に関する研究でも、ウランの溶出量が UO_2 と比較して増加することは認められており³¹⁾、高酸化状態のウラン酸化物相の含有は燃料デブリの化学的安定性を損なう可能性があると考えられる。

一方で、筆者らの $(\text{U, Zr})\text{O}_2$ に関する研究では、 H_2O_2 による酸化に対して高い安定性が確認された¹⁾。燃料デブリで観測される固相の中でも $(\text{U, Zr})\text{O}_2$ は典型的な成分であり、Three Mile Island (TMI) 原子力発電所事故の燃料デブリでも形成が報告されている。そこで、燃料デブリの放射線による化学変化の基礎として、 $(\text{U, Zr})\text{O}_2$ と H_2O_2 との反応について研究し、 UO_2 相へのジルコニウムの固溶は、 H_2O_2 による酸化を抑制する効果があることを示すことができた¹⁾。 UO_2 相への異種金属元素の固溶が酸化溶解反応に影響することは、使用済核燃料に関する研究で知られている。たとえば、3 価希土類元素のガドリニウム (Gd) を添加した UO_2 では H_2O_2 による酸化溶解反応が抑制され、8% の Gd 添加によりウランの溶出が 1 桁低くなることが報告されている³²⁾。固溶体形成による酸化溶解に対する安定化は、どこまで一般化できるかはわからないが、筆者らの研究の結果も、既往研究で報告されている傾向と一致するものである。

筆者らの模擬燃料デブリを用いた研究でも、相組成の影響として同様の傾向が見られている²⁵⁾。U と Zr に加えて、ステンレス鋼成分の Fe、クロム (Cr)、ニッケル (Ni) を含む模擬デブリを作成し、 H_2O_2 水溶液への浸漬を行った結果、 UO_2 相へのジルコニウムの固溶化によって、ウランの溶出や、U(VI) 変質相の形成が抑制されることが観測された。また、定量的な評価は難しかったが、 U_3O_8 相を含む模擬デブリではウランの溶出が多い傾向も観測された。燃料デブリの組成は極めて複雑であるが、どのような固相が生成したかという点が、照射下での安定性を支配するものと考えら

れる。

6 今後の研究について

ウラン酸化物の放射線による溶液中の反応について、いくつかの観点から研究に取り組んできたが、今後の研究において最も重要な課題となるのは、還元性地下水条件での UO_2 の反応挙動であると考えられる。還元雰囲気では、水の放射線分解による UO_2 の酸化溶解は抑制されると期待できるため、酸化溶解の影響を考慮することで保守的な評価が可能であるとの議論がある。しかし、放射線による反応は、筆者の研究で検討した有機酸の生成など³⁾、地下水の液性に影響する可能性がある。そのため、放射線の影響を酸化に限定せずに、地層処分条件において幅広くさまざまな反応について検討しておく必要があると考えている。地層処分は超長期の現象を扱うため、地下環境における核燃料の経年変化について、科学的な根拠に基づいて、より現実的な評価モデルを構築することが、処分技術の信頼性を担保するためには必要であり、ひいてはその社会的受容性を高めることにつながると期待される。燃料デブリに関しても、廃炉工程のその先を見据えれば、地層処分についても選択肢のひとつとして検討されるはずであり、地下環境における放射線反応についての精緻な理解は、重要な基礎となると考えている。

〈謝 辞〉

本研究の端緒は冒頭に述べたとおり、所属内での公募予算に提案を行ったことである。研究課題名は「燃料デブリ溶出挙動評価に向けた U-Zr 酸化物固溶体の放射線誘起水溶化反応の研究」であった。当然のことだが、ウランを含む試料は市販されていないので、自前で用意する必要があった。この研究を始めるにあた

り核燃料の専門家として協力を快諾いただき、実験試料を合成して下さった高野 公秀博士（原子力機構）には大変感謝している。また、筆者はこの研究を始めるまで、非密封の放射性物質を使った実験は経験がなく、核燃料物質の取扱いや管理についてもまったくの素人であった。当時の上司であった木村 貴海博士（原子力機構）や、放射性物質を使った実験のいろはを教えてもらった青柳 登博士（原子力機構）には、研究を進める上で大変お世話になった。

研究を取りまとめるのにかなり時間を要したが、なんとか論文投稿までこぎつけると、当時の上司の渡邊 雅之博士（原子力機構）から、アカデミアに縁遠くとも東京電力福島第一原子力発電所事故に関心を寄せる方々にとって重要な知見があると評価していただき、プレスリリースを勧めて下さった。この話を頂戴した時の筆者の本心をあけすけに書いてしまえば、「面倒くさい」であった。そう思いつつも取り組んでみると、思ったとおり難物であった。研究の中身をわかりやすく説明して差し上げるというのは、研究者にとってはお馴染みの試練である。苦労はしたのだが、やってみると業界紙などに取り上げてもらえ、その後の研究評価の際にも活躍し、大変有難い経験であった。難航したプレスリリースの手続きに最後まで伴走いただいた渡邊博士に感謝申し上げる。

燃料デブリに関する研究を進めている最中であったが、所属の人材育成制度「原子力留学」を利用して、海外の研究室に1年間滞在して、新しい環境で研究に取り組む機会を得た。そこで、燃料デブリに関する研究を進める中で参考にしていた、Mats Jonsson 教授（KTH, Sweden）の研究室を訪問することにした。この訪問が筆者のウラン酸化物についての研究を広げていく契機になったのは間違いない。振り返ってみると、KTH 滞在中は自由にやらせてもらったものどと感じ、筆者を客員研究員として受け入れてくれた Jonsson 教授には大変感謝している。今回の受賞は Jonsson 教授の厚意なくしてはあり得なかったであろう。また筆者の原子力留学を強く後押ししていただいた、山本 正弘博士（原子力機構）にも御礼申し上げたい。若手研究者の方々には、新型コロナの影響でなかなか難しい状況が続いてはいるが、是非海外での研究を経験されることをお勧めする。それと同時に、筆者がスウェーデン滞在を満喫している間、地球の反対側で所属グループの運営を切り盛りしていただいた渡邊博士、青柳博士、明石 優佳里氏（原子力機構・当時）に感謝申し上げる。小さな研究グループであったため、1名減員の影響は甚大で、大変苦労をお掛けしたと伺っている。

最後に、筆者のこれまでの研究や現在進めている仕事は、いずれも放射線分解に関するもので、修士・博士課程を通じて東京大学勝村研究室で培った素養の上に積み上げてきたものである。学生時代に大変お世話になった恩師の勝村 庸介先生（東大・当時）、室屋 裕佐先生（東大・当時）、林 銘章先生（東大・当時）、山下 真一先生（東大）に心から感謝申し上げる。

〈参 考 文 献〉

- 1) Y. Kumagai, M. Takano, M. Watanabe, *J. Nucl. Mater.*, 497 (2017) 54.
- 2) Y. Kumagai, A. B. Fidalgo, M. Jonsson, *J. Phys. Chem. C*, 123 (2019) 9919.
- 3) Y. Kumagai, M. Jonsson, *Dalton Trans.*, 49 (2020) 1907.
- 4) D. W. Shoesmith, *J. Nucl. Mater.*, 282 (2000) 1.
- 5) SKB, TR-11-01 (2011) Svensk Kärnbränslehantering AB.
- 6) D. W. Shoesmith, NWMO TR 2007-03 (2007) Nuclear Waste Management Organization of Canada.
- 7) Nagra, Project Opalinus Clay Safety Report, Technical Report 02-05 (2002) National Cooperative for the Disposal of Radioactive Waste in Switzerland.
- 8) NWMO, TR-2012-16 (2012) Nuclear Waste Management Organization of Canada.
- 9) M. Jonsson, F. Nielsen, O. Roth, E. Ekeröth, S. Nilsson, M. M. Hossain, *Environ. Sci. Technol.*, 41 (2007) 7087.
- 10) T. E. Eriksen, D. W. Shoesmith, M. Jonsson, *J. Nucl. Mater.*, 420 (2012) 409.
- 11) D. Akiyama, R. Kusaka, Y. Kumagai, M. Nakada, M. Watanabe, Y. Okamoto, T. Nagai, N. Sato, A. Kirishima, *J. Nucl. Mater.*, 568 (2022) 153847.
- 12) Y. S. Kim, *J. Nucl. Mater.*, 279 (2000) 173.
- 13) S. Sunder, D. W. Shoesmith, H. Christensen, N. H. Miller, *J. Nucl. Mater.*, 190 (1992) 78.
- 14) E. Ekeröth, O. Roth, M. Jonsson, *J. Nucl. Mater.*, 335 (2006) 38.
- 15) A. B. Fidalgo, Y. Kumagai, M. Jonsson, *J. Coord. Chem.*, 71 (2018) 1799.
- 16) M. Yui, H. Sasamoto, R. C. Arthur, JNC TN 8400 99-030 (1999) Japan Nuclear Cycle Development Institute.
- 17) M. M. Hossain, E. Ekeröth, M. Jonsson, *J. Nucl. Mater.*, 358 (2006) 202.

- 18) C. Corbel, G. Sattonnay, S. Guilbert, F. Garrido, M. F. Barthe, C. Jegou, *J. Nucl. Mater.*, 248 (2006) 1.
- 19) P. C. Burns, R. C. Ewing, A. Navrotsky, *Science*, 335 (2012) 1184.
- 20) Z. Cai, X. Li, Y. Katsumura, O. Urabe, *Nucl. Technol.*, 136 (2001) 231.
- 21) D. C. Gooddy, K. Hinsby, Organic quality of groundwaters, in: W. M. Edmunds, P. Shand(eds.), *Natural groundwater quality*. Oxford, Blackwell, 2008, pp. 59–70.
- 22) W. G. Darling, D. C. Gooddy, *Chem. Geol.*, 229 (2006) 293.
- 23) C. M. Lousada, M. Jonsson, *J. Phys. Chem. C*, 114 (2010) 11202.
- 24) B. Pastina, J. A. LaVerne, *Appl. Sci.*, 11 (2021) 8566.
- 25) Y. Kumagai, R. Kusaka, M. Nakada, M. Watanabe, D. Akiyama, A. Kirishima, N. Sato, T. Sasaki, *J. Nucl. Sci. Technol.*, 59 (2022) 961.
- 26) R. Kusaka, Y. Kumagai, M. Watanabe, T. Sasaki, D. Akiyama, N. Sato, A. Kirishima, *J. Nucl. Sci. Technol.* (in press).
- 27) A. Kirishima, D. Akiyama, Y. Kumagai, R. Kusaka, M. Nakada, M. Watanabe, T. Sasaki, N. Sato, *J. Nucl. Mater.*, 567 (2022) 153842.
- 28) B. E. Burakov, E. B. Anderson, E.E. Strykanova, *MRS Online Proc. Libr.*, 465 (1997) 1309.
- 29) B. Zubekhina, B. Burakov, E. Silanteva, Y. Petrov, V. Yapaskurt, D. Danilovich, *Sustainability*, 13 (2021) 1073.
- 30) A. A. Shiryaev, I. E. Vlasova, B. E. Burakov, B. I. Ogorodnikov, V. O. Yapaskurt, A. A. Averin, A. V. Pakhnevich, Y. V. Zubavichus, *Prog. Nucl. Energy*, 92 (2016) 104.
- 31) J. McGrady, Y. Kumagai, M. Watanabe, A. Kirishima, D. Akiyama, A. Kitamura, S. Kimuro, *RSC Adv.*, 46 (2021) 28940.
- 32) A. B. Fidalgo, M. Jonsson, *J. Nucl. Mater.*, 514 (2019) 216.

〈著者略歴〉

熊谷 友多：2007年東京大学大学院工学系研究科システム量子工学専攻修士課程修了。2007年原子力機構研究職員。2011年東京大学大学院工学系研究科原子力国際専攻博士課程修了。博士（工学）。2011年原子力機構研究員。2018年同研究副主幹。2022年同研究主幹。現在にいたる。原子炉過酷事故や核燃料再処理、放射性廃棄物処分に関連する放射線効果の研究に携わっている。