飛沫同伴に関する研究 ——液状放射性廃棄物の蒸発処理*——

三 石 信 雄¹・松 田 裕 二¹
山 本 寛²・大 山 義 年³

1. 緒 言

原子力工業の発展に伴ない、付随して起る大きな問題に放射性廃棄物の処理がある。そして液状の放射性廃棄物の処理方法の一つとして蒸発法が提案されているが、放射能の除染処理において問題となる飛沫同伴については、従来からあまり行われていない。そこで著者らは、まず気泡または蒸気泡の破裂時における飛沫の生成についての基礎研究を行い、その後、蒸発缶のパイロットプラントによる研究から、飛沫同伴の特性を明らかにすることができたのでここに報告する。

2. 飛沫同伴の基礎実験

気泡または蒸気泡が破裂した場合の飛沫の生成に関する研究は、2, 3^{2,5)}の例を除き、ほとんど行われていない。従来行われた研究も大胆な仮定が多く実験方法、その他に種々の問題がある。わずかに高速度写真による撮影結果^{3,6)}があるので、これを Fig. 1 に示す。Fig. 1 で (a)~(h) のごとく進行して飛沫が生成するが、飛沫同伴量の決定的因子となるものは (h) の噴射作用 (Jet action) によるものであるので、著者らはこの点についての基礎実験を行った。

Fig. 1 Mechanism of drop formation from gas or vapor bubbles

a, b, c: Glass cock ① Air blower ② Compressed air reservoir ③ Pressure manometer ④ Fiber filter ⑤ Capillary for controlling air flow rate ⑥ Glass nozzle ⑦ Glass vessel in which gas bubbles are formed ⑧ Water ⑨ Liquid used ⑩ Slide ⑪ Thermometer ⑫ Height adjuster ⑬ Lamp

Fig. 2 Experimental apparatus used for bursting gas bubble

* 昭和 33 年 7 月 3 日受理

1 日本原子力研究所 2 東京大学生産技術研究所
3 東京工業大学

使用気体としては空気を用い、液体としては蒸留水、2.1%酪酸水溶液、50%および60%グリセリン水溶液を用い、いずれも 20°±0.5°C で実験した。

なお、使用液体の実測物性常数を Table 1 に示す。

基礎実験に用いた装置を Fig. 2 に示す。なお、ガラス製ノズルの先端と液表面との距離は 5cm 一定とした。他に 1cm の場合も行ったがその間には差が認められなかった。

生成気泡はいずれの場合も液表面に達してから 1 秒前後経過して破裂した。かつまた、原則として液面上の単一気泡が、気泡相互の干渉を受けないで破裂する場合のみを測定した。

気泡の直径の測定に際しては、ビュレットを逆に保ち、その中に水を満たして気泡を捕

Table 1 Physical constants of liquid used (20°C)

	Surface tension [dyne/cm]	Viscosity [C. P.]	Specific gravity [g/cc]
Distilled water	72.8	1	1
2.1% n-Butyric acid aqueous solution	48.8	1	1
50% Glycerin aqueous solution	62.0	6.05	1.13
60% Glycerin aqueous solution	61.5	10.96	1.16

集し、気泡個数（400 個以上）およびビュレットの水柱降下量を読み、水柱高さ（通常 30 cm 前後）を大気圧に補正して、1 個の気泡径を求めた。気泡の流出速度は 1 分間約 60 個程度とした。

液表面上で気泡が破裂して生成する飛沫は、液面からの距離がねちにより自由に正確に調節できるスライド⑩を用いて捕集された。スライドには、ワセリンと軽油とを適当に混合して（約 1 : 3）一度加熱し、実験に用いている液体を加えて飽和させ、塗布した。ワセリンと軽油との混合物はできうる限りやわらかく、しかも下方にたれ落ちることのないよう、混合比が選定された。

ワセリンと軽油の混合物中に捕集された飛沫は、顕微鏡によりその粒径が測定された。この場合、捕集した液滴の直径が果して液面を噴射する際の液滴の直径と等しいかどうかを確認するため、同一の噴射液滴についてスライドの高さを変えて捕集した。その結果、同一の粒径を示すことから、空気中での飛翔時における蒸発による粒径の減少が無視できることを確認した。ワセリンと軽油の混合物中に捕集された液滴は、約 5 分間その粒径が同一であることから、捕集液滴の油中への溶解その他による粒径の変化が皆無であることも確認した。また、油中に捕集された液滴は、そのままの状態では衝突時の変形が残っているが、ガラス棒で少し油を混ぜると、表面張力の差により、液滴がほとんど球形になることも確認された。

実験装置を暗室内に設置し、側面より強力な光線を照射することにより、噴射作用による生成飛沫の滴数をしらべた。

3. 基礎実験結果

飛沫の液表面からの飛び出し高さを気泡径に対してプロットした結果を Fig. 3, 4, 5 に示す。いずれの場合も、気泡径の 2 mm 前後のものが飛び出し高さが最高となる。気泡径が 2 mm 以下になると、生成液滴数も 2 滴、3 滴、4 滴などに増大する。

蒸留水と 2.1% 酪酸水溶液の比較から、表面張力の減少は飛び出し高さの減少となることがわかる。

一方、蒸留水とグリセリン水溶液の比較から、粘度の増大もまた、飛び出し高さの減少を意味することがわかり、気泡径の小なところでの生成液滴数の減少となるもわかる。

つぎに、生成液滴の粒径を気泡径に対してプロットした結果を Fig. 6 に示す*

* Fig. 6 には第一滴目の粒径のみをプロットしてある。飛沫が 2 滴以上 4 滴まで生成する場合には、スライドの油中には同時に各液滴を別個に捕集することができた。その結果、第 2 滴目より第 4 滴目までは第 1 滴目の粒径とほとんど同一であった。飛沫が 6 滴生成する場合には、同時に各

Fig. 3 Distilled water ($20^{\circ}\text{C} \pm 0.5^{\circ}\text{C}$)

Fig. 4 2.1% *n*-Butyric acid aqueous solution ($20^{\circ}\text{C} \pm 0.5^{\circ}\text{C}$)

Fig. 5 50% Glycerin aqueous solution ($20^{\circ}\text{C} \pm 0.5^{\circ}\text{C}$)

液滴を別個に捕集することができず、6 滴全部が合体した 1 個の球となった。この粒径を測定した結果、第 1 滴目の飛沫液滴の体積の略 6 倍を示す粒径を示した。それ故、2 滴以上の飛沫が生成しても、それらの各々の粒径はほとんど同一と考えられる。

Fig. 6 Relation between diameter of bubble and diameter of drop

気泡径の増大は生成液滴の粒径の増大となる。かつ、表面張力の変化は生成液滴の粒径に無関係で、また、粘度の増大は生成液滴の粒径の減少となる。

しかし、Fig. 6 の勾配は、いずれの場合もほぼ等しく

$$D_p \propto d^{3/2} \quad \text{または} \quad D_p \propto r^{3/2} \quad (1)$$

であることがわかる。

なお、60%グリセリン水溶液の場合には噴射作用による飛沫の生成は認められなかった。

4. 基礎実験結果の整理

いま、質量 M_p なる液滴が v なる速度で液面を離れる場合、その運動方程式は

$$M_p \frac{dv}{dt} = -V_p g (\rho_w - \rho_g) - \frac{1}{2} C_D \rho_w v^2 A \quad (2)$$

液滴が球形なる場合の $M_p = (\pi/6) D_p^3 \rho_w$; $A = (\pi/4) D_p^2$; また、 $\rho_w - \rho_g \div \rho_w$ を上式に代入し、 $v = dh/dt$ なる関係より、 v , t , の変数を、 v , h , の変数に変換して積分すれば、

$$\int_0^v \frac{dv}{(g/v) + (3/4)(\rho_g/\rho_w D_p) C_D v} = h \quad (3)$$

となり、任意の v に対する Re を計算し、 C を求め、この値を用いて、 $1/\{(g/v) + (3/4)(\rho_g/\rho_w D_p) C_D v\}$ を計算しこの値を縦軸にとり、横軸に v をとって図式積分すれば h が求まる。逆に、著者らの基礎実験で測定した結果の h および D_p から v を求めることができる。この結果を Fig. 7 に示す。いずれも、第1滴目の液滴飛沫の飛び出し初速度である。

気泡径が小になるにつれて、液面上を離れる初速度が大となる。初速度は、水の場合が最も大であり、つぎに2.1% 酪酸水溶液であって、50% グリセリン水溶液が最

Fig. 7 Velocity of first drop vs. diameter of bubble

小である。気泡径が小になれば、生成液滴数が増大するので、第1滴目の飛沫は十分なエネルギーをうることができず、さらに生成飛沫の粒径が Fig. 6 のように小となるので、その飛び出し高さは、Fig. 3, 4, 5 のように特定の気泡径の所で最大値を示す。

5. 理論式の展開およびその考察

いま、液面上で気泡が破裂する場合、その噴射作用により飛び出す液滴飛沫の噴射初速度を理論的に取り扱うこととする。

従来、この種の研究は、古くは Davies¹⁾、最近では Newitt ら²⁾ によって行われており、定量的ではあるが実験的裏づけのないため、単なる推測にとどまっているに過ぎない。

まず、Davies によれば、液滴飛沫の噴射初速度は

$$v = \left(\frac{3}{2}\right) \left(\frac{\sigma t}{\rho_w}\right) \frac{1}{r^2} \quad (4)$$

に従うとしており、最近に至り Newitt らは (4) 式を否定して

$$v = \left(\frac{3}{4}\right) \left(\frac{t}{r \rho_w}\right) \left(\frac{2\sigma}{r} + p_0\right) \quad (5)$$

なる式を提案している。

著者らは、上記の二つの式を検討した結果、一般に $p_0 \gg (2\sigma/r)$ が成立することから、これらの二つの式は根本的にその内容が異なることを認め、さらに上記の二者は、気泡が破裂し液滴飛沫が生成した場合におこる実際の具体的現象を十分に把握していないため、その解析方法に不備の点があることを発見した。

そこで、著者らは上記の二者とはまったく異なる立場にたち、著者らの基礎実験結果を考慮に入れて、独自に理論式を展開した。

まず、著者らの基礎実験結果によれば、つぎのことが明らかとなっている。

(1) 単一気泡が他の気泡の干渉を受けないで破裂し液滴飛沫が噴射する場合、気泡径が小となれば、多数個の液滴の噴射がおこり、しかも、それらの液滴群の噴射方向は、すべて、気液境界面に垂直方向である。

(2) これらの液滴飛沫群のおおのの粒径は、ほとんど同一である。

(3) これらの液滴飛沫群の各個は、それぞれ特定の飛び出し高さを有している。

(4) 気泡径と生成した液滴飛沫の粒径との間には、ほぼ(1)式のような関係が存在する。

さて、液面上に到達した気泡が、瞬間的に破裂し、液滴飛沫群が噴射した場合、飛沫には一種の衝撃力がはたらいたと見なすことができる。この液滴群にはたらく衝撃力は、気液境界面に垂直な方向すなわち、液滴飛沫群には同一方向にはたらくので、一次元的に取扱うことができる。

いま、Fig. 8 のように、 N 個の液滴飛沫が生成する際、第1滴目、第2滴目、……第 N 滴目の液滴飛沫の噴射初速度を、それぞれ $v_1, v_2, \dots, v_N$ 、なる記号で表わせば、力積の理論より

$$\int_0^t F dt = M_p \sum_{i=1}^N v_i \quad (6)$$

ただし、 F は $t=0$ において $F=P$ なる値をもち、 $t=t$ において $F=0$ である。

そこで、

$$\int_0^t F dt = k_1 P t \quad (7)$$

と便宜上おく。ただし、 $1 > k_1 > 0$ である。

ゆえに、(6)、(7) 式より

$$k_1 P t = M_p \sum_{i=1}^N v_i \quad (8)$$

つぎに、 P の値は $t=0$ における液滴飛沫にはたらく力であり、 $P=(\text{液滴飛沫の投影面積}) \times (\text{気泡内外の圧力差})$ とおくことにすれば

$$P = \left(\frac{\pi}{4} \right) \cdot D_p^2 \cdot (p_i - p_0) \quad (9)$$

* 蒸留水、2.1% 酪酸水溶液の場合 $D_p=0.945 r^{3/2}$ となる。(ただし C.G.S. 単位)

一方、気泡の内圧、外圧の差は液体の表面張力に起因しており

$$p_i - p_0 = 2\sigma/r \quad (10)$$

となる。

そこで、(9)、(10) 式より

$$P = \frac{\pi D_p^2 \sigma}{2r} \quad (11)$$

さらに、 $M_p = (\pi/6) \cdot D_p^3 \cdot \rho_w$ なることを考えて (8)、(11) 式より

$$\sum_{i=1}^N v_i = (3k_1)(\sigma/\rho_w)(1/D_p r) \quad (12)$$

しかるに、著者らの実験結果によれば、(1) 式より $D_p = k_2 r^{3/2}$ とおくことができるから、(12) 式に代入すると

$$\sum_{i=1}^N v_i = (3k_1/k_2)(\sigma/\rho_w)(1/r^{5/2}) \quad (13)$$

(13) 式が、多数の液滴飛沫群の噴射速度の一般式である。

いま、液滴飛沫の個数が、1 個である特定の場合を考えると、(13) 式は

$$v_1 = (3k_1/k_2)(\sigma/\rho_w)(1/r^{5/2}) \quad (14)$$

で表わされ、Davies の(4)式と比較すると、 r の次数が2より5/2に変化しているが、割合よく似た式となっており、Newitt らの式とはまったく異なっている。

著者らは、さらに(13)式において、 t の値を各気泡径について、一定と仮定し

$$\sum_{i=1}^N v_i = K(\sigma/\rho_w)(1/r^{5/2}) \quad (15)$$

ただし $K = (3k_1 t)/k_2$

と考え、著者らの基礎実験結果から、 $\sum_{i=1}^N v_i$ を計算し、この値を $(\sigma/\rho_w)(1/r^{5/2})$ に対してプロットしてみると Fig. 9 のようになる。

この結果から蒸留水、2.1% 酪酸水溶液の場合、著者らの誘導した(15)式が実測値ときわめてよく合致することがわかる。

ただし、50%グリセリン水溶液の場合、粘度の影響を受けて偏倚することがわかる。60%グリセリン水溶液の場合、液滴飛沫の生成が全然認められなかったことから容易に推測されうる。

さて、蒸留水、2.1% 酪酸水溶液の場合、Fig. 9 の勾配より $K = 1.43 \times 10^{-2}$ の値となる(ただし、すべて C. G. S. 単位)。いまここで K の値を吟味してみると、 $K = (3k_1 t)/k_2$ であり、この中で、 $1 > k_1 > 0$ であるから、便宜上 $k_1 = 1/2$ と仮定し、さらに、 $k_2 = 0.945^*$ より、 t の値を求めてみると、 $t = 9 \times 10^{-3} \text{ sec}$ となり、気泡の破裂がきわめて瞬間的に行われていることが推察される。

Fig. 9 $\sum_{i=1}^N v_i^2$ vs. $(\sigma/\rho_w)(1/r^{5/2})$

6. パイロットプラントによる実験

飛沫同伴の基礎研究結果から大型装置に対し推論することは困難な問題もあり、直接定量的に結びつけることはむずかしいが、著者らはここでパイロットプラントによる実験を行い、液状放射性廃棄物を蒸発処理した場合の特性をしらべてみた。実験に用いたパイロットプラントを Fig. 10 に示す。

蒸発缶内の液体としては LiCl を蒸留水に溶かした液を用いた。また、供給液としては蒸留水を用い、缶内濃度が一定となるようにした。なお、LiCl の濃度は約 10 % となるようにした。また、微量分析法として焰光分析を用いた（島津製焰光光度計使用）。この場合、LiCl 溶液の定量可能な限界は、LiCl の形で 0.01 PPM であった。また、標準溶液としては精製 Li_2CO_3 を HCl に溶かした液を用いた。

6.1 蒸発缶内沸騰状態の観察 パイロットプラントに用いた蒸発缶内の沸騰状態を、パイレックス製視筒より観察した結果を Fig. 11 に示す。蒸発量が小なる場合は、加熱管で生成した多数の微小泡径の蒸気泡が逐次蒸発液面に達し、破裂して蒸発蒸気となる。この際、多数の微小粒径の同伴液滴を生成する。

蒸発量が大きくなるにつれて、蒸気泡の大きさが大とな

① Storage tank ② Pump ③ Feed tank ④ Constant head tank ⑤ Flow meter ⑥ Pressure-reducing valve ⑦ Pressure gauge ⑧ Steam trap ⑨ Cu-constantan thermocouple ⑩ Pyrex peep column ⑪ Evaporator ⑫ Cyclone ⑬ Condenser ⑭ Condensate tank ⑮ Flow meter

Fig. 10 Pilot plant for liquid waste disposal

Fig. 11 Observed boiling conditions

り、一部、気泡相互の凝集現象も見られ、かつ、蒸気泡相互の干渉も大となるようである。

さらに蒸発量を大にすれば、この傾向がますます大となり、ダウンテークの液水準が急激に減少し、最後には沸騰状態というよりは、むしろ流動状態とも称すべき状

態に到達し、ついには煙霧状となり、飛沫同伴が急激に大となる。

6・2 除染係数について いま、蒸発缶の被処理液の放射能の強さを X_B とし、凝縮液から得られる処理液の放射能の強さを X_D とすれば、蒸発蒸気導管、およびサイクロンをも含めた総括除染係数 $D.F.$ は

$$D.F. = X_B/X_D \quad (16)$$

で示される。なお、非放射性物質の場合は、放射能の強さのかわりに濃度を用いればよい。

いま、パイロットプラントで得られた実験結果を用い $D.F.$ を計算し、この値を蒸発量に対してプロットしてみると Fig. 12 のようになる。蒸発室の高さが、0.6m、および 1.1m の場合につき、別々にプロットしてある。一方、蒸発缶の総括伝熱係数は、正確な測定は行わなかったが、約 $2,000 \text{ kcal/m}^2\text{hr}^\circ\text{C}$ 前後の値であった。

7. パイロットプラントの実験結果の考察

Fig. 12 の結果から、蒸発量が大となるにつれて、 $D.F.$ が大となることがわかる。これは、基礎実験結果および沸騰状態の観察から説明しうる。

すなわち、蒸発量が大となるにつれて、概して蒸気泡の大なるものが多くなり、生成飛沫粒径の大なるものが生成する。これらの大粒径の飛沫は、一部は沸騰液面上にもどり、蒸発蒸気の終端速度に相当する粒径に近いものはそのまま飛散する。しかし、これらの大粒径のものはサイクロンで捕集される。

一方、蒸気泡の上半球の薄膜の破裂による液滴、および小蒸気泡の破裂による噴射液滴はサイクロンで捕集困難であるが、その量は蒸発蒸気量に比較して相対的に小

となり、 $D.F.$ が大となるものと思われる。

しかし、蒸発量がさらに大となると、蒸発室内は一種の流動層と同様になり、ついには煙霧状になり、飛沫同伴量が急速に大となる結果、サイクロンでの十分な分離が不可能になり、 $D.F.$ が急激に減少するものと考えられる。そこで、液状放射性廃棄物の蒸発処理を有効に行うためには、 $D.F.$ の最大となる蒸発量の所で操作することが望ましい。

つぎに、蒸発室の高さが、0.6m および 1.1m の双方の実験結果を比較してみると、総括除染係数の次数を変化させるほどの大きな差は認められない。それゆえ、0.6m 程度の蒸発室の高さでも、十分な総括除染係数が得られるようである。ただし、 $D.F.$ の最大値は、蒸発室が高くなると、少しく蒸発量の大なる側にずれるようである。

8. 結 論

(1) まず、飛沫同伴の基礎研究として、気泡破裂型における噴射液滴の生成について実験を行った。気泡径が大になれば、生成飛沫の粒径は Fig. 6 に示すような関係で大となることがわかった。また、同一泡径であれば、液体の表面張力が変化しても、生成飛沫の粒径が同一であることを見出した。しかし、粘度の増大は、飛沫の粒径の減少となることがわかった。

気泡径が約 2mm 以上の場合、噴射作用による生成飛沫の滴数は 1 個であるが、気泡径が 2mm 以下の場合には、この滴数が増大し、はなはだしきは生成飛沫の滴数が 6 個にも達することのあることを認め、また、それらの飛沫群の各個は、その粒径がほとんど同一であることも認めた。

一方、生成した液滴飛沫の液面を噴射する初速度の式として (15) 式を提案し、粘度の大なる場合を除き、実測値と非常によく合致することを認めた。

(2) つぎに、液状放射性廃棄物を蒸発処理した場合の総括除染係数を求めるため、パイロットプラントの蒸発缶で LiCl 約 10% 前後の液体を蒸発させ、蒸発室の高さが、それぞれ 0.6m、および 1.1m の場合の $D.F.$ (サイクロン、蒸気導管を含む) の値として Fig. 12 のような値を得た。この結果、双方に、 $D.F.$ の次数を変化させるほどの大きな差は認められなかった。

付記： 本研究は、科学研究所化学工学研究室、井上一郎氏の御援助によることが多い。ここに付記して謝意を表する。なお、本研究は、日本原子力研究所東海研究所に建設する液状放射性廃棄物処理用蒸発缶の基礎研究としてなされたものである。

Fig. 12 $D.F.$ vs. G ($\text{kg/m}^2\text{hr}$)

Nomenclature

A : Projected area of drop	[cm ²]
C : Drag coefficient	[—]
$D.F.$: Overall decontamination factor	[—]
D_p : Diameter of drop	[cm ; μ]
d : Diameter of gas bubble	[cm ; mm]
F : Vertical force to the liquid level	[dyne]
G : Vapor mass velocity	[kg/m ² hr]
g : Acceleration of gravity	[cm/sec ²]
h : Height above the liquid level	[cm]
K : Constant (where, $K=(3k_1t)/h_2$)	[—]
k_1 : Constant (where, $1>k_1>0$)	[—]
k_2 : Constant	[—]
M_p : Mass of drop	[g]
N : Number of drops	[—]
P : Vertical force to the liquid level (where, $t=0$)	[dyne]
p_i : Inside pressure of gas bubble	[g/cm ²]
p_0 : Outside pressure of gas bubble	[g/cm ²]
r : Radius of a sphere of volume equal	

to the bubble	[cm ; mm]
t : Time	[sec]
V_p : Volume of drop	[cm ³]
v : Velocity of drop	[cm/sec]
v_1 : Velocity of first drop	[cm/sec]
v_i : Velocity of i -th drop	[cm/sec]
v_g : Gas velocity	[cm/sec]
X_B : Radioactivity of boiling liquid	[μ c/cc]
X_D : Radioactivity of condensate	[μ c/cc]
σ : Surface tension of liquid	[dyne/cm]
ρ_g : Density of gas	[g/cm ³]
ρ_w : Density of liquid	[g/cm ³]

Literature Cited

- 1) Davies, F. . *Proc. Instn. mech. Engrs.*, **144**, 198 (1940)
- 2) Garner, F. H. et al. : *Trans. Instn. Chem. Engrs.*, (London), **32**, 222 (1954)
- 3) Knelman, F. et al. . *Nature*, Feb. 6, 261 (1954)
- 4) Manowitz, B. et al. : *Chem. Engrs. Progr.*, **51**, 313 (1955)
- 5) Newitt, D. M. et al. : *Trans. Instn. Chem. Engrs.*, (London), **32**, 244 (1954)
- 6) Woodcock, A. H. et al. . *Nature*, Dec. 19, 1144 (1953)

Studies on Liquid Entrainment

—Evaporation of radioactive liquid waste—

Nobuo Mitsuishi¹⁾ & Yuji Matsuda¹⁾,
Yutaka Yamamoto²⁾, Yoshitoshi Oyama³⁾

Bursting of gas bubbles was experimentally studied, using the liquids listed in Table 1. Large drops were caught on a slide coated with a mixture of vaseline and light mineral oil, and the diameters of the drops were measured through a microscope.

The relation between the diameter of the gas bubble and the height which the drops entrained above the gas-liquid interface is shown in Figs. 3, 4 and 5, and the relation between the diameter of the gas bubble and the diameter of the drops is shown in Fig. 6. The velocity of the rising drops was calculated from Eq. (3).

In the next stage, a general theoretical formula was derived for the case in which several drops were formed from a single bubble :

$$\sum_{i=1}^N v_i = K \left(\frac{\sigma}{\rho_w} \right)^{1/5} r^{5/2}$$

where, N is the number of drops. Comparison of the theoretical values of the velocity of drops with the experimental data shown in Fig. 9 may verify the adequacy of the above equation, except for the case of liquids with high viscosity.

A natural circulation type evaporator for radioactive liquid waste disposal was constructed, and overall decontamination factor was obtained. The factor ranged over 10^5 to 10^7 for vapor mass velocities of 200~3,000 kg/m²hr as shown in Fig. 12.

1. Japan Atomic Energy Research Institute 2. University of Tokyo 3. Tokyo Institute of Technology