

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2012年8月30日(30.08.2012)



(10) 国際公開番号

WO 2012/114805 A1

- (51) 国際特許分類:
B01J 19/12 (2006.01) G02B 5/08 (2006.01)
B01D 59/34 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2012/051319
- (22) 国際出願日: 2012年1月23日(23.01.2012)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2011-037045 2011年2月23日(23.02.2011) JP
- (71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 大陽日酸株式会社(TAIYO NIPPON SANSO CORPORATION) [JP/JP]; 〒1428558 東京都品川区小山一丁目3番26号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 林田 茂(HAYASHIDA Shigeru) [JP/JP]; 〒1428558 東京都品川区小山一丁目3番26号 大陽日酸株式会社

内 Tokyo (JP). 神邊 貴史(KAMBE Takashi) [JP/JP]; 〒1428558 東京都品川区小山一丁目3番26号 大陽日酸株式会社内 Tokyo (JP). 佐藤 哲也(SATOU Tetsuya) [JP/JP]; 〒1428558 東京都品川区小山一丁目3番26号 大陽日酸株式会社内 Tokyo (JP). 五十嵐 健大(IGARASHI Takehiro) [JP/JP]; 〒1428558 東京都品川区小山一丁目3番26号 大陽日酸株式会社内 Tokyo (JP). 久世宏明(KUZE Hiroaki) [JP/JP]; 〒2638522 千葉県千葉市稲毛区弥生町1番33号 国立大学法人千葉大学内 Chiba (JP).

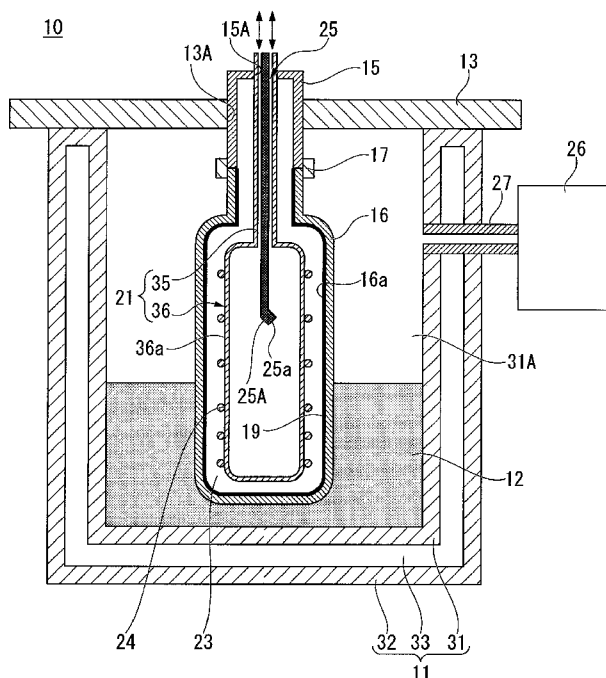
- (74) 代理人: 志賀 正武, 外(SHIGA Masatake et al.); 〒1006620 東京都千代田区丸の内一丁目9番2号 Tokyo (JP).
- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT,

[続葉有]

(54) Title: PHOTOCHEMICAL REACTION DEVICE AND ISOTOPE ENRICHMENT METHOD USING PHOTOCHEMICAL REACTION DEVICE

(54) 発明の名称: 光化学反応装置及び光化学反応装置を用いた同位体濃縮方法

[図3]



(57) Abstract: This photochemical reaction device has: a light-transmissive reaction vessel (21) for using laser light to photochemically react process gas fed to the interior; a metal mirror (19) for reflecting the laser light, the metal mirror being disposed outside the light-transmissive reaction vessel (21) so as to surround the light-transmissive reaction vessel (21); and a cryostat (11) for maintaining the temperature of the metal mirror (19) at a cryogenic temperature using a cryogenic fluid (12), the cryostat being adapted to accommodate the light-transmissive reaction vessel (21), the metal mirror (19), and the cryogenic fluid (12).

(57) 要約: 内部に供給されたプロセスガスを、レーザ光により光化学反応させる光透過性反応容器(21)と、光透過性反応容器(21)の外側に、光透過性反応容器(21)を囲むように配置され、レーザ光を反射する金属ミラー(19)と、光透過性反応容器(21)、金属ミラー(19)、及び極低温液体(12)を収容する構成であって、極低温液体(12)により、金属ミラー(19)の温度を極低温に保持するクライオスタット(11)と、を有する。



LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

ロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨー

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

明 細 書

発明の名称：

光化学反応装置及び光化学反応装置を用いた同位体濃縮方法

技術分野

[0001] 本発明は、レーザ光を用いた光化学反応装置、及び光化学反応装置を用いた同位体濃縮方法に関する。

本願は、2011年2月23日に、日本に出願された特願2011-037045号に基づき優先権を主張し、その内容をここに援用する。

背景技術

[0002] レーザ光を用いる光化学反応装置は、大別して2種類ある。1つは光化学反応セルと呼ばれる光化学反応容器にレーザ光を1度だけ通過させるone-pass方式であり、もう1つはレーザ光を複数回反射させる多重反射(multi-reflection)方式である。

[0003] 多重反射方式は、設置する反射ミラーの位置決めなど、光学的に複雑でありかつ精密さを必要とする方式であるが、レーザ光を光化学反応に効率よく利用できる。ガス分析用の市販の多重反射セル(例えば、White cell; Whiteは人名)としては、光路長が200~300mのものがあり、このセルでは200~300回光を反射させている。

多重反射方式を使用する場合の光吸収は、下記(1)式に示すようにLambert-Beerの法則で表される。

[数1]

$$I(z) = I_0 e^{-\sigma N z} \quad \dots (1)$$

上記(1)式において、 I_0 は初期光量[W]、 $I(z)$ は光路長 z [cm]における光量[W]、 σ は光吸収断面積[cm²/molecule]、 N は分子密度[molecules/cm³]を示している。上記(1)式では、光路長 z が大きいほど光吸収が大きくなる。

[0004] また、光利用率 η は、下記(2)式で表され(但し、 $\sigma N z \ll 1$ の場合)

、光路長 z に比例して大きい。

[数2]

$$\eta \equiv \frac{I(z) - I_0}{I_0} = 1 - e^{-\sigma N z} \cong \sigma N z \quad \cdot \cdot \cdot (2)$$

[0005] 特許文献1, 2には、酸素同位体である ^{17}O や ^{18}O を含むオゾン分子にレーザー光を照射し、これらオゾン分子を選択的に分解して ^{17}O や ^{18}O を濃縮する方法が開示されている。

このような方法を使用する場合、オゾンのw u l f b a n d（近赤外領域700～1200nm）における比較的吸収が大きい波長での光吸収断面積 σ は、 $10^{-23} \text{ cm}^2 / \text{ molecule}$ という小さな値（水の光吸収断面積より約4桁小さい）であり、よって光化学反応セルの光路長としては1000m以上が望まれる。

したがって、上記のような光吸収断面積が小さい光化学反応を行う場合、光化学反応セルは多重反射方式のセルを用いる事が有利である。

先行技術文献

特許文献

[0006] 特許文献1：特許第4364529号公報

特許文献2：特開2006-272090号公報

特許文献3：特開平7-265669号公報

特許文献4：特開平7-150270号公報

特許文献5：特開平3-329885号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0007] ところで、多重反射方式の光化学反応セルについて考えると、ミラーの反射率が0.90程度のものでは、反射を10回（5往復）させると、最終光強度は $0.90^{10} = 0.35$ であり、ミラーにおける光損失は65%となる。このことから、前述のような反射率のセルを用いた場合では、光の利用効

率をあまり大きくできないという問題がある。

[0008] 例えば、室温（例えば、 20°C ）において、波長 1000 nm における金ミラーの反射率は、 0.98 である。よって、室温では大きな反射回数をとれない（反射回数 50 回での最終光強度は、 $0.98^{50}=0.36$ ）。

反射回数が 1000 回以上の場合でも光損失が小さいようにするためには、反射率は 0.999 以上であることを必要とする（この場合の最終光強度は、 $0.999^{1000}=0.37$ ）。例えば、反射率が 0.9999 で反射回数を 10000 回とした場合、最終光強度は $0.9999^{10000}=0.37$ となり、 1 回反射するまでの平均光路長を 1 m とすると、全光路長は 10000 m 以上となる。

[0009] 誘電体多層膜は、 0.9999 以上の高い反射率を有するが、入射角が大きいと反射率が低下する問題がある。そのため、多重反射方式の光化学反応装置に誘電体多層膜を適用するためには、レーザの入射方法や光軸調整など難しい課題を有する。

[0010] 例えば、キャビティーリングダウン分光分析に使用される誘電体多層膜は、 0.9999 以上の高い反射率を有する。しかし、初めに誘電体多層膜に光を透過させて入射させる方式をとる場合、透過率は数%以下であるため、透過損失が大きい。よって誘電体多層膜は、分光分析には使用できるが、光化学反応には向いていない。

[0011] このように、従来技術では高い反射率をもつミラーの種類が限られており、全光路長を長くする方法、すなわち光化学反応におけるレーザ光の利用効率を高める方法が限られていた。

[0012] そこで、本発明は、光化学反応におけるレーザ光の利用効率を高めることが可能な光化学反応装置、及び光化学反応装置を用いた同位体濃縮方法を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0013] 本発明の第一の態様は、以下の光化学反応装置を提供する。

（１）内部に供給されたプロセスガスを、レーザ光により光化学反応させる

光透過性反应用容器と、前記光透過性反应用容器の外側に、前記光透過性反应用容器を囲むように配置され、前記レーザ光を反射する金属ミラーと、前記光透過性反应用容器、前記金属ミラー、及び極低温液体を収容する構成であって、前記極低温液体により、前記金属ミラーの温度を極低温に保持するクライオスタットと、を有する光化学反応装置である。

また（１）の光化学反応装置は、以下に示される特徴を有する事も好ましい。

[0014] （２） 上記（１）の光化学反応装置は、前記金属ミラーの温度が、１００Ｋ以下である。

[0015] （３） 上記（１）から（２）に示される光化学反応装置は、前記光透過性反应用容器と前記金属ミラーとの間に、真空断熱空間を有する。

[0016] （４） 上記（１）から（３）に示される光化学反応装置は、前記金属ミラーを構成する金属が、金、銀、銅、アルミニウムのうちのいずれか１つである。

[0017] （５） 上記（４）の光化学反応装置は、前記金属の純度が、９９．９９９以上である。

[0018] （６） 上記（１）から（５）に示される光化学反応装置は、前記金属ミラーが、金属膜である。

[0019] （７） 上記（１）から（６）に示される光化学反応装置は、前記光透過性反应用容器が、石英ガラスまたはアクリル樹脂よりなる。

[0020] （８） 上記（１）から（７）に示される光化学反応装置は、前記プロセスガスに、前記レーザ光を照射するレーザ光導波部材を有する。

[0021] （９） 上記（１）から（８）に示される光化学反応装置は、前記金属ミラーを構成する金属と同じ種類であって、かつ前記金属ミラーを構成する金属よりも純度の低い金属よりなり、前記クライオスタットに収容されると共に、前記光透過性反应用容器を収容する金属容器を有し、かつ、前記金属ミラーが、前記金属容器の内面を覆うように配置される。

[0022] （１０） 上記（１）から（８）に示される光化学反応装置は、前記クライ

オスタットに收容され、かつ前記光透過性反応用容器を收容すると共に、前記レーザ光を透過する、石英ガラス容器を有し、
前記金属ミラーは、前記石英ガラス容器の内面、または前記石英ガラス容器の外面を覆うように配置される。

[0023] (11) 上記(10)の光化学反応装置は、前記石英ガラス容器が純度99%以上、かつ光透過損失0.1 dB/m以下の高純度の石英ガラスよりなる。

[0024] (12) 上記(8)と(9)に示される光化学反応装置は、前記レーザ光導波部材を、前記光透過性反応用容器内に配置する。

[0025] (13) 上記(8)から(11)に示される光化学反応装置は、前記レーザ光導波部材を、前記真空断熱空間に配置する。

[0026] (14) 上記(8)から(13)に示される光化学反応装置は、前記レーザ光導波部材が、光ファイバである。

[0027] (15) 上記(1)から(14)に示される光化学反応装置は、前記光透過性反応用容器の外壁に、ヒータ線が巻きつけられている。

[0028] (16) 上記(9)の光化学反応装置は、前記光透過性反応用容器と前記金属ミラーとの間に、前記レーザ光を透過させ、かつ前記光透過性反応用容器を囲む石英ガラス容器を設け、前記光透過性反応用容器と前記石英ガラス容器との間に、真空断熱空間が配置される。

[0029] (17) 上記(16)の光化学反応装置は、前記レーザ光導波部材を、前記石英ガラス容器の外側に配置する。

[0030] (18) 上記(16)と(17)に示される光化学反応装置は、前記石英ガラス容器が、純度99%以上、かつ光透過損失0.1 dB/m以下の高純度の石英ガラスよりなる。

[0031] (19) 上記(1)から(18)に示される光化学反応装置は、前記光透過性反応用容器が純度99%以上、かつ光透過損失0.1 dB/m以下の高純度の石英ガラスよりなる。

[0032] (20) 上記(1)から(19)に示される光化学反応装置は、前記ク

ライオスタットが、前記極低温液体を収容する第１の容器と、前記第１の容器を収容する第２の容器と、前記第１の容器と第２の容器との間に設けられた真空断熱空間と、を有する。

[0033] (21) 上記(20)の光化学反応装置は、前記第１の容器と接続され、前記極低温液体から形成された気体を再液化させる、再液化装置を有する。

[0034] (22) 上記(1)から(21)に示される光化学反応装置は、前記極低温液体が、液体ヘリウムである。

[0035] 本発明の第二の態様は、以下の同位体濃縮方法を提供する。

(23) (1)から(22)のうち、いずれかの光化学反応装置を用いた同位体濃縮方法であって、前記プロセスガスとして O_3 と CF_4 との混合ガスを、前記光透過性反応用容器内に供給する工程と、その後、前記混合ガスに前記レーザ光を照射して光化学反応させることで、酸素同位体 ^{17}O または ^{18}O を含む前記 O_3 を選択的に光分解させる工程と、を有することを特徴とする光化学反応装置を用いた同位体濃縮方法。

[0036] また(23)の同位体濃縮方法は、以下に示される特徴を有する事も好ましい。

(24) 上記(23)の同位体濃縮方法は、前記光分解させる際の前記レーザ光の波長領域が、 500 nm 以上である。

[0037] (25) 上記(23)の同位体濃縮方法は、前記光分解させる際の前記レーザ光の波長領域が、 $700\sim 1500\text{ nm}$ である。

発明の効果

[0038] 本発明の光化学反応装置、及び光化学反応装置を用いた同位体濃縮方法によれば、極低温液体を用いて金属ミラーが極低温となるように冷却することで、金属ミラーのレーザ光の反射率を高めることが可能となる。これにより、光化学反応におけるレーザ光の利用効率を高めることができる。

図面の簡単な説明

[0039] [図1]室温（例えば、 20°C ）における金、銀、銅の反射率と波長との関係を

示す図である。

[図2]極低温における銅とアルミニウムとの比抵抗を示す図である。

[図3]本発明の第1の実施の形態に係る光化学反応装置の概略構成を示す断面図である。

[図4]本発明の第2の実施の形態に係る光化学反応装置の概略構成を示す断面図である。

[図5]本発明の第3の実施の形態に係る光化学反応装置の概略構成を示す断面図である。

[図6]本発明の第3の実施の形態の変形例に係る光化学反応装置の概略構成を示す断面図である。

[図7]本発明の第4の実施の形態に係る光化学反応装置の概略構成を示す断面図である。

発明を実施するための形態

[0040] 赤外及び近赤外(波長約800nm以上)における金属の反射率は、下記(3)式に示すHagen-Rubensの式で求められる。

[数3]

$$R = 1 - \sqrt{\frac{16\pi\epsilon_0 c \rho}{\lambda}} \quad \dots (3)$$

上記(3)式において、 R は反射率、 ϵ_0 は真空の誘電率[F/m]、 c は光速[m/s]、 λ は光の波長[m]、 ρ は電気比抵抗[Ωm]である。

[0041] ところで、波長 λ が一定のレーザ光については、上記(3)式は、下記(4)式で表すことができる。

[数4]

$$R = 1 - \text{const} \sqrt{\rho} \quad \dots (4)$$

ここで、上記(4)式において、右辺第2項は渦電流損(eddy current loss)に該当し、比抵抗が小さいほど反射率は大きくなる

。光は電磁波であり、金属表面で光の磁場変化を打ち消すように渦電流が発生し、電気抵抗（＝比抵抗×長さ／断面積）によりエネルギー損失が起きる。完全伝導体（超伝導体ではなく仮想的な物質）では、渦電流損はゼロの場合、全反射する（ $R = 1$ ）。

[0042] 例えば、純度の高い銅は、室温（例えば、 20°C ）で比抵抗 $\rho \doteq 1.0 \times 10^{-8} \Omega \text{ m}$ であり、波長 λ を 1000 nm とすると、上記（3）式の右辺第2項は、 0.0364 となる。ゆえに、反射率 R は、下記（5）式に示す値となる。

[数5]

$$R = 1 - 0.0364 = 0.9636 \quad \cdot \cdot \cdot (5)$$

[0043] 図1は、室温（例えば、 20°C ）における金、銀、銅の反射率と波長との関係を示す図である。なお、図1は、理科年表（国立天文台編纂のデータブック）に記載のデータを引用したものである。

図1を参照するに、波長が 800 nm 以上の領域において、反射率は銀＞銅＞金の順となっており、比抵抗は銀＜銅＜金の順であるので、上記（4）式が成立している。

[0044] 比抵抗 ρ は、下記（6）式で表され、Matthiessenの法則（Matthiessen's rule）に従い、温度 T [K] が下がるにつれて小さくなる。また、極低温液体である液体ヘリウムの温度（ 4.2 K ）では、比抵抗 ρ は、残留抵抗 ρ_r [$\Omega \text{ m}$] と呼ばれる一定値になる。 ρ_r は金属中の不純物、格子欠陥などに起因した値をとり、高純度であるほど極低温で小さい値となる。

なお、ここでいう極低温液体とは、液体窒素、液体酸素、液体アルゴン、液体水素、液体ヘリウムなど、標準沸点が 100 K 以下の液化ガスを意味する。また、そのような液体を使用する温度領域を極低温と呼ぶ。

[数6]

$$\rho(T) = \rho_r - \rho_{ph}(T) \quad \cdot \cdot \cdot (6)$$

上記式（6）において、 $\rho_{ph}(T)$ は、phonon散乱による項であり

温度依存性がある。

[0045] 図2は、極低温における銅とアルミニウムの比抵抗をそれぞれ示す図である。なお、図2は、超伝導・低温工学ハンドブック（社団法人低温工学協会、（株）オーム社出版）から引用した（原出典はHandbook on Materials for Superconducting Machinery 1977）の1084ページ参照。

図2に示すRRR（Residual Resistivity Ratio）は、下記（7）式で表される。

[数7]

$$RRR = \frac{\rho(300K)}{\rho_r} \quad \dots (7)$$

[0046] 図2に示すように、RRR=30000が報告されており、この値を上記（4）式及び上記（5）式に代入すると、上記（3）式の右辺第2項は、 $0.0364\sqrt{(1/30000)} = 0.00021$ となる。したがって、反射率Rは、下記（8）式に示すように、0.99979となる。

[数8]

$$R = 1 - 0.00021 = 0.99979 \quad \dots (8)$$

[0047] このように、室温（例えば、20℃）で反射率Rが0.96の銅よりなる金属ミラーの温度が極低温となるように冷却することで、反射率Rを0.99979（0.9999に近い値）まで高めることができる。また、この反射率Rは、光の入射角に依存しない優れた特徴がある。

[0048] さらに、金、銀、アルミニウムのうち、いずれかの材料よりなる金属ミラーについても、上記銅よりなる金属ミラーと同様に、室温（例えば、20℃）で反射率Rが0.9～0.99の金属ミラーを極低温にすることにより、反射率Rを0.99～0.999、或いはそれ以上に高めることが可能となる。よって、極低温とされた金属ミラーを光化学反応に用いることで、光化学反応における光の利用効率を高めることができる。

また、上記金属ミラーの材料となる金属は、問題のない限り任意で選択してよいが、銅、金、銀、及びアルミニウムのうち、いずれか1つを用いることが好ましい。

また、金属ミラーの材料となる金属としては、純度が99.9999%以上とされた銅、金、銀、及びアルミニウム等が好ましい。

[0049] ここでは、液体ヘリウム（温度4.2 K）を用いて、高純度の銅よりなる金属ミラーを冷却し高反射率を達成する場合を例に挙げて説明した。しかし、反射率Rが0.999程度で良い場合には、金属ミラーの温度が40 K程度となるように冷却すればよい。

また、金属ミラーの温度が100 K程度となるように冷却した場合でも、反射率Rは0.99に近い値となり、反射回数を100回程度確保することが可能となる。よって、100 K程度に冷却された金属ミラーを光化学反応に用いることでも、光化学反応における光の利用効率を高めることができる。

[0050] さらに、金属ミラーを極低温にする一方、光化学反応を行う光化学反応セルの温度は、光化学反応に適した温度にする必要がある。

すなわち、光化学反応はガス状態で行うが、液体ヘリウムの温度では、ほとんどのガスが固化してしまう問題があるためである。また、光化学反応セルの材質は、レーザ光を損失無く透過するものでなければならない。

[0051] 上記問題を解決する手段として、光化学反応セル（後述する図3～図7に示す光透過性反応用容器21）の材質としては、光ファイバで使用される、純度が99%以上、かつ光透過損失0.1 dB/m以下の、高純度の合成石英ガラス、或いはアクリル樹脂等を使用することができる。

光化学反応を行なう際は、高純度の石英ガラスで製作された容器（後述する図3～図7に示す光透過性反応用容器21）内に、光化学反応を行うために必要なプロセスガスを封入し又は任意で循環させ、一方で、金属ミラーと前記石英ガラスからなる光透過性反応用容器の間には第1の真空断熱空間を設けるとよい。また、第1の真空断熱空間に、熱伝導性の悪い希薄なガス等

を充填してもよい。

[0052] 特に、光ファイバに使用される石英ガラスの光損失は、1 kmあたり数dBと極めて小さく、反射ミラーの多重反射による光損失よりも非常に小さいため、問題とならない大きさである。また、光透過性反応用容器21の表面（外面および内面の両方）においてレーザ光が数%反射（残りは光透過性反応用容器21を透過）するが、この反射光は続いて金属ミラー或いは光透過性反応用容器21で反射されるなど、いずれは光透過性反応用容器22内のプロセスガスに照射されるので、レーザ光は無駄なく利用される。

[0053] 以下に本発明の好ましい例を具体的に説明するが、本発明はこれらの例のみに限定されることは無い。本発明の趣旨を逸脱しない範囲で、構成の付加、省略、置換、その他の変更が可能である。

（第1の実施の形態）

図3は、本発明の第1の実施の形態に係る光化学反応装置の概略構成を示す断面図である。

図3の光化学反応装置10は、クライオスタット11と、蓋体13と、環状部材15と、金属容器16と、フランジ17と、金属ミラー19と、光透過性反応用容器21と、第1の真空断熱空間23と、ヒータ線24と、レーザ光導波部材25と、再液化装置26と、管路27と、を有する。

[0054] クライオスタット11は、第1の容器31と、第2の容器32と、第2の真空断熱空間33と、を有する。第1の容器31は、極低温液体12を収容する容器である。

第2の容器32は、第1の容器31に対して離間した状態で、第1の容器31の外壁を囲むように配置されている。第2の容器32は、第1の容器31を収容している。第2の容器32は、第1の容器31と一体に構成されている。第1の容器31と第2の容器32の形は任意に選択でき、円柱や四角柱などを例として挙げる事ができる。

[0055] 第2の真空断熱空間33は、第1の容器31と第2の容器32との間に設けられた気密された空間である。第2の真空断熱空間33は、真空とされて

いる。

このように、第１の容器３１と第２の容器３２との間に、真空とされた第２の真空断熱空間３３を設けることにより、第１の容器３１に収容された極低温液体１２の温度が上昇することを抑制できる。

上記構成とされたクライオスタット１１は、極低温液体１２により、金属ミラー１９の温度を極低温（１００Ｋ以下）に冷却保持する。

本発明において“金属ミラーの温度を極低温に保持する”とは“金属ミラーが極低温液体によって、直接、又は金属ミラーが設けられた容器を介して間接的に、冷却された状態を維持する”ことを意味する。

よって金属ミラーは一般的な意味の極低温まで冷却されても良いが、効果が得られる限り、一般的な極低温まで冷却されていなくても良く、任意の温度を選択できる。また効果が得られる限り、金属ミラーの温度は全体に均一であっても、あるいは部分的に異なっても良い。金属ミラーの好ましい冷却温度の例を挙げれば、上述したように一般的には１００Ｋ以下、より好ましくは４０Ｋ以下であり、液体ヘリウム温度（４．２Ｋ）である事が更に好ましい。

また極低温液体１２の量と種類は任意で選択でき、極低温液体１２の容器３１への供給方法や供給するタイミングも問題のない限り任意に選択できる。

[0056] 以上のように、冷却された金属ミラー１９の温度は、目的に応じて選択でき、例えば１００Ｋ以下の範囲内で適宜選択することができる。また、極低温液体１２としては、例えば、液体ヘリウム（温度４．２Ｋ）を好ましく用いることができる。

[0057] 蓋体１３は、クライオスタット１１の上端に設けられている。これにより、第１の容器３１内の空間３１Ａ（極低温液体１２、及び金属容器１６が収容される空間）は、気密されている。蓋体１３は、環状部材１５を貫通させるための貫通部１３Ａを有する。

環状部材１５は、蓋体１３を貫通するように、貫通部１３Ａに固定されて

いる。環状部材 15 の上端は、光透過性反応用容器 21 を構成する後述する管状部 35 を貫通させるための貫通部 15A を有する。環状部材 15 の下端は、開放端とされている。環状部材 15 の材料としては、例えば、ステンレスを用いることができる。

[0058] 金属容器 16 は、その一部が極低温液体 12 に浸漬するように、第 1 の容器 31 内（空間 31A）に收容されている。金属容器 16 の上端は、環状部材 15 の下端に対して、フランジ 17 により固定されている。フランジ 17 による固定方法としては、溶接フランジ、またはねじ込みフランジなどを用いることができる。フランジ 17 は、金属容器 16 と環状部材 15 との接合部に設けられている。

金属容器 16 は、金属容器 16 と光透過性反応用容器 21 との間に隙間を介在させた状態で、光透過性反応用容器 21 を收容している。

[0059] 金属容器 16 は、金属ミラー 19 を構成する金属と同じ種類であって、かつ金属ミラー 19 を構成する金属よりも純度の低い金属により構成されている。金属容器 16 の材料となる金属としては任意に選択でき、例えば、金、銀、銅、アルミニウムのうち、いずれか 1 つの金属を用いることができる。金属容器 16 の材料となる金属として、金、銀、銅、アルミニウム等を用いた場合、前記金属の純度は、99.9999%以上の範囲内とすることができる。

[0060] 金属ミラー 19 は、金属容器 16 の内面 16a を覆うように設けられている。金属ミラー 19 は、光透過性反応用容器 21 の外側に、空間を隔てて、光透過性反応用容器 21 を囲むように配置されている。金属ミラー 19 は、レーザ光導波部材 25 から照射されたレーザ光を反射することで、反射したレーザ光を光透過性反応用容器 21 内に封入された又は流通されるプロセスガスに照射する。

[0061] 金属ミラー 19 の材料となる金属としては任意で選択できるが、高純度の金、銀、銅、及びアルミニウム等を用いることが好ましい。

金属ミラー 19 を構成する金属として、金、銀、銅、アルミニウム等を用

いる場合、金属ミラー 19 を構成する金属の純度は、例えば、99.9999 以上とすることができる。

[0062] 例えば、液体ヘリウム（温度 4.2 K）により、純度が 99.9999 以上とされた銅よりなる金属ミラー 19 を冷却した場合、金属ミラー 19 の表面の反射率 R を 0.9999 以上とすることができる。

前記反射率 R は、レーザ光の入射角に依存しない優れた特徴があるため、金属容器 16 内面の形状を自由に選択することができる。金属容器 16 内面の形状は、光路長を大きくする観点から球形が有利であるが、円筒形や角型（直方体等）などの他の形状でもよい。

また、レーザ光導波部材 25 から照射されたレーザ光の広がり角や光軸を気にする必要が無い。照射されたレーザ光の大半は、反射回数により減衰するため、極限まで多重反射させることで、光化学反応に利用できる。

[0063] 金属ミラー 19 としては、例えば、CVD (Chemical Vapor Deposition) 法、めっき法、コーティング法、及び蒸着法等の方法により形成された金属膜（具体的には、金膜、銀膜、銅膜、アルミニウム膜等）を用いることができる。

金属ミラー 19 として金属膜を非金属表面にコーティングする場合、前記金属膜の厚さは任意に選択でき、例えば、0.02 ~ 10 μm とすることができる。また、金属ミラー 19 として金属膜を金属表面にコーティングする場合、前記金属膜の厚さは任意に選択でき、例えば、20 nm ~ 1 mm（或いは 1 mm 以上）とすることができる。

[0064] 光透過性反応用容器 21 は、管状部 35 と、反応室 36 と、を有する。管状部 35 は、貫通部 15A に固定されており、金属容器 16 の内部に延在している。管状部 35 の内径は、反応室 36 の内径よりも狭くなるように構成されている。管状部 35 では、一方の端部は、プロセスガスを供給するプロセスガス供給装置（図示せず）、処理ガス回収装置（図示せず）、及び／又は、これらと連絡する、開閉バルブ等を有しても良い連絡部（図示せず）等と接続されており、他方の端部が反応室 36 と接続されている。

[0065] 反応室 36 は、金属ミラー 19 に対して隙間を介在させた状態で、金属容器 16 内に收容されている。反応室 36 は、管状部 35 と一体に構成されている。反応室 36 では、管状部 35 を介してプロセスガスが供給された際、レーザ光によりプロセスガスを光化学反応させる。光透過性反応用容器 21 の材料としては任意に選択できるが、純度 99% 以上、かつ光透過損失 0.1 dB/m 以下の高純度の石英ガラス、或いは、アクリル樹脂を用いる事が好ましい。

[0066] 第 1 の真空断熱空間 23 は、光透過性反応用容器 21 と金属ミラー 19 との間に設けられている。第 1 の真空断熱空間 23 は、真空とされた空間である。

このように、光透過性反応用容器 21 と金属ミラー 19 との間に、第 1 の真空断熱空間 23 を設けることで、極低温液体 12 により光透過性反応用容器 21 が冷却されにくくすることが可能となる。これにより、光透過性反応用容器 21 内に供給されたプロセスガスが固化することを抑制できる。

[0067] ヒータ線 24 は、反応室 36 の外壁 36a に巻きつけられている。このように、反応室 36 の外壁 36a にヒータ線 24 を巻きつけることで、反応室 36 を加熱することが可能となるので、反応室 36 内の温度を光化学反応に適した温度に調整することができる。

[0068] レーザ光導波部材 25 は、管状部 35 の内部、及び反応室 36 の上部に配置されている。レーザ光導波部材 25 は、その先端 25A にレーザ光を照射するレーザ照射面 25a を有する。

ここで、レーザ光導波部材 25 とは、レンズ・ミラー等により構成された、光学システム機器であって、レーザ光を光透過性反応用容器 21 に導入するための部材である。また、このレーザ光導波部材 25 は任意に選択可能であるが、光ファイバが好適である。

なお、図 1 では、一例として、レーザ照射面 25a からレーザ光が広がった状態で照射される場合を図示したが、レーザ光導波部材 25 の先端 25A にレンズ（図示せず）を配置することで、レーザ光を平行光にしてもよい。

[0069] 再液化装置 26 は、クライオスタット 11 の外部に設けられている。再液化装置 26 は、クライオスタット 11 の側壁を貫通し、かつ第 1 の容器 31 内の空間 31 A と接続された管路 27 と、接続されている。再液化装置 26 は、蒸発した極低温液体 12 をパルスチューブ式冷凍機あるいはギフォード・マクマホン式冷凍機などで冷却して再液化して極低温液体 12 へ戻す装置である。再液化装置 26 や管路 27 には、開閉部（図示せず）が設けられていても良い。

このように、第 1 の容器 31 内に収容された極低温液体 12 が蒸発したものを再液化させる再液化装置 26 を設けることにより、連続して極低温液体 12 を冷却することが可能となるので、金属ミラー 19 の温度を安定して極低温に保つことができる。

[0070] 第 1 の実施の形態の光化学反応装置によれば、内部に供給されたプロセスガスを、レーザ光により光化学反応させる光透過性反応用容器 21 と、光透過性反応用容器 21 の外側に、光透過性反応用容器 21 を囲むように配置され、かつレーザ光を反射する金属ミラー 19 と、金属容器 16 と、光透過性反応用容器 21、金属ミラー 19、及び極低温液体 12 を収容可能な構成であり、極低温液体 12 により、金属ミラー 19 の温度を極低温（100 K 以下の温度）に保持するクライオスタット 11 と、を有することにより、金属ミラー 19 のレーザ光の反射率を高めることが可能となる。これにより、光化学反応におけるレーザ光の利用効率を高めることができる。

[0071] また、極低温液体 12 として液体ヘリウム（温度 4.2 K）を用い、液体ヘリウムの温度に近い温度まで金属ミラー 19 を冷却することにより、0.9999 以上の高い反射率 R を実現可能となるので、光化学反応におけるレーザ光の利用効率を極限まで高めることができる。

[0072] ここで、図 1 を参照して、上記構成とされた光化学反応装置 10 を用いた同位体濃縮方法の例について説明する。なお以下の方法では CF_4 とオゾン（ O_3 ）との混合ガスをプロセスガスとして使用したが、本発明が他のプロセスガスを使用する場合にも適用できるのは言うまでもない。

始めに、プロセスガスとして CF_4 とオゾン (O_3) との混合ガスを光透過性反応容器 21 の反応室 36 に供給する。次いで、レーザ光導波部材 25 により、反応室 36 内に供給された混合ガスにレーザ光を照射して、光化学反応により、オゾン中に含まれる、酸素同位体である ^{17}O または ^{18}O を含むオゾンのアイソトポログ (i s o t o p o l o g u e) を、選択的に酸素に光分解させる。すなわち、分子中に目的の酸素同位体を含むオゾンを、選択的に酸素に分解する。

[0073] このとき、先に説明したように、極低温 (100K 以下) に冷却された金属ミラー 19 を用いてレーザ光を反射することで、レーザ光の反射率が高められるので、光化学反応におけるレーザ光の利用効率を高めることができる。

[0074] 光化学反応を行なう際に光ファイバを用いてレーザ光を導入する場合、レーザ光の波長領域は任意に選択できるが、光ファイバの光損失が小さい $500\sim 1500\text{nm}$ を用いることが最適である。

また、光ファイバを使用しない場合は、例えば、反射鏡やレンズを用いてレーザ光を導入できるが、この場合、レーザ光の波長領域は、金属ミラー 19 の反射率が高い 800nm 以上を用いることが好ましい。

また、オゾンと CF_4 との混合ガスをプロセスガスとして光化学反応を行なう際のレーザ光の波長領域は、W u l f B a n d と呼ばれる $700\sim 1200\text{nm}$ が好ましい。このように、レーザ光の波長領域を $700\sim 1200\text{nm}$ とすることで、酸素同位体 ^{17}O または ^{18}O を含むオゾンを選択的に分解できるという効果を得ることができる。

[0075] その後、混合ガス中の酸素を、未分解のオゾン及び CF_4 から分離させる。このように、分離させた酸素中に酸素同位体である ^{17}O または ^{18}O を濃縮させることができる。

[0076] 第 1 の実施の形態の光化学反応装置を用いた同位体濃縮方法によれば、極低温 (100K 以下) に冷却された金属ミラー 19 によりレーザ光を反射する光化学反応装置 10 を用いて、オゾン (O_3) と CF_4 とを混合した混合ガ

スをプロセスガスとして光透過性反応用容器 21 の反応室 36 に供給し、その後、前記混合ガスにレーザ光を照射して、酸素同位体¹⁷Oまたは¹⁸Oを含むオゾンを選択的に光分解させることで、光化学反応におけるレーザ光の利用効率を高めた上で、酸素同位体¹⁷Oまたは¹⁸Oを濃縮させることができる。

[0077] (第2の実施の形態)

図4は、本発明の第2の実施の形態に係る光化学反応装置の概略構成を示す断面図である。図4において、図3に示す第1の実施の形態の光化学反応装置10と同一構成部分には同一符号を付す。

[0078] 図4に示される、第2の実施の形態の光化学反応装置40は、第1の実施の形態の光化学反応装置10の構成に、ガス供給管41を設けると共に、レーザ光導波部材25を第1の真空断熱空間23（光透過性反応用容器21と金属ミラー19との間）に配置し、さらに光化学反応装置10に設けられたヒータ線24を構成要素から除いた以外は、光化学反応装置10と同様に構成される。

[0079] ガス供給管41は、光透過性反応用容器21内に配置されている。ガス供給管41は、プロセスガスを供給するプロセスガス供給源（図示せず）と接続されている。ガス供給管41の先端41A（反応室36内にプロセスガスを供給する部分）は、反応室36の底部に近い場所に配置されている。

第2の実施の形態の光化学反応装置40では、ガス供給管41と管状部35との隙間からガスを排出する。これにより、第2の実施の形態では、プロセスガスを連続的に流通させることが可能であり、光化学反応の連続処理を行なうことができる。なお連続処理に限らず、一回毎に中身を入れ替える処理を行っても良い。また、プロセスガスの導入時の温度を設定することにより、反応室36の温度を制御できる。

[0080] 第2の実施の形態の光化学反応装置によれば、光透過性反応用容器21と金属ミラー19との間に設けられた第1の真空断熱空間23にレーザ光導波部材25を配置することで、プロセスガスがレーザ光導波部材25と接触す

ることがなくなるため、レーザ光導波部材 25 に起因するプロセスガスの汚染を防止できる。

[0081] また、第 2 の実施の形態の光化学反応装置 40 は、第 1 の実施の形態の光化学反応装置 10 と同様な効果を得ることができる。具体的には、金属ミラー 19 のレーザ光の反射率を高めることが可能となるので、光化学反応におけるレーザ光の利用効率を高めることができる。

[0082] また、第 2 の実施の形態の光化学反応装置 40 を用いた同位体濃縮方法は、第 1 の実施の形態で説明した光化学反応装置 10 を用いた同位体濃縮方法と同様な手法により行なうことができ、また、光化学反応装置 10 を用いた同位体濃縮方法と同様な効果を得ることができる。

なお、第 2 の実施の形態の光化学反応装置 40 において、図 1 に示すヒータ線 24 を設けてもよい。

[0083] (第 3 の実施の形態)

図 5 は、本発明の第 3 の実施の形態に係る光化学反応装置の概略構成を示す断面図である。図 5 において、図 4 に示す第 2 の実施の形態の光化学反応装置 40 と同一構成部分には同一符号を付す。

[0084] 図 5 に示される、第 3 の実施の形態の光化学反応装置 45 は、第 2 の実施の形態の光化学反応装置 40 に設けられた金属容器 16 に替えて、石英ガラス容器 46 を設けた以外は、光化学反応装置 40 と同様に構成される。

[0085] 石英ガラス容器 46 は、クライオスタット 11 に収容されると共に、光透過性反応用容器 21 を収容している。石英ガラス容器 46 は、レーザ光を透過し、かつ純度 99% 以上、かつ光透過損失 0.1 dB/m 以下の高純度の石英ガラスよりなる。石英ガラス容器 46 を構成する石英ガラスは、金属容器 16 を構成する金属（例えば、金、銀、銅、アルミニウム等）と比較して熱容量を小さくすることができる。

[0086] 金属ミラー 19 は、石英ガラス容器 46 の内面 46a を覆うように設けられている。本実施の形態の場合、金属ミラー 19 としては、コーティング法または蒸着法により形成された金属膜（例えば、純度が 99.9999% 以

上とされた金膜、銀膜、銅膜、アルミニウム膜等)を用いることができる。
前記金属膜の厚さは、例えば、 $0.02 \sim 10 \mu\text{m}$ とすることができる。

[0087] 第3の実施の形態の光化学反応装置によれば、金属容器16に替えて、光透過性反応用容器21を収容する石英ガラス容器46を設けることにより、石英ガラスは金属と比較して熱容量が小さいため、極低温液体12により金属ミラー19を効率よく冷却することができる。

また、石英ガラス容器46の内面46aに金属ミラー19を設けることにより、石英ガラス容器46と金属ミラー19との熱膨張係数の違いによる引張応力を小さくすることが可能となるので、金属ミラー19の反射率Rの低下を抑制できる。

[0088] なお、第3の実施の形態の光化学反応装置45を用いる同位体濃縮方法は、第1の実施の形態で説明した光化学反応装置10を用いた同位体濃縮方法と同様な手法により行なうことができる。

また、第3の実施の形態の光化学反応装置45において、図1に示すヒータ線24を設けてもよい。

[0089] 図6は、本発明の第3の実施の形態の変形例である、光化学反応装置の概略構成を示す断面図である。図6において、図5に示す第3の実施の形態の光化学反応装置45と同一構成部分には同一符号を付す。

[0090] 図6に示される、第3の実施の形態の変形例である光化学反応装置50は、第3の実施の形態の光化学反応装置45に設けられた金属ミラー19を、内面ではなく、石英ガラス容器46（外部容器：第1の石英ガラス容器）の外表面46bを覆うように設けた以外は、光化学反応装置45と同様に構成される。

[0091] このような構成とされた第3の実施の形態の変形例である光化学反応装置50は、光透過性反応用容器21を収容する石英ガラス容器46を有することにより、極低温液体12により金属ミラー19を効率よく冷却することができる。

[0092] なお、第3の実施の形態の変形例に係る光化学反応装置50を用いた同位

体濃縮方法は、第１の実施の形態で説明した光化学反応装置１０を用いた同位体濃縮方法と同様な手法により行なうことができる。

また、第３の実施の形態の変形例に係る光化学反応装置５０において、図１に示すヒータ線２４を設けてもよい。

[0093] （第４の実施の形態）

図７は、本発明の第４の実施の形態に係る光化学反応装置の概略構成を示す断面図である。図７において、図４に示す第２の実施の形態の光化学反応装置４０と同一構成部分には同一符号を付す。

[0094] 図７に示される、第４の実施の形態の光化学反応装置５５は、第２の実施の形態の光化学反応装置４０の構成に石英ガラス容器５７を設け、レーザ光導波部材２５の一部を金属容器６１の側面の穴から出すことで空間３１Ａ内に配置しかつ蓋体１３に設けた貫通穴から外部に通じさせ、光化学反応装置４０に設けられた金属容器１６に替えて前記容器と異なる金属容器６１を設け、さらに、光化学反応装置４０に設けられた環状部材１５及びフランジ１７を構成要素から除いた以外は、光化学反応装置４０と同様に構成される。

[0095] 石英ガラス容器５７は、光透過性反応用容器２１と金属ミラー１９との間に設けられている。石英ガラス容器５７は、光透過性反応用容器２１を囲むように配置されている。石英ガラス容器５７は、レーザ光を透過させる。石英ガラス容器５７は、純度９９％以上、かつ光透過損失０．１ｄＢ／ｍ以下の高純度の石英ガラスにより構成されている。

[0096] 第４の実施の形態の光化学反応装置５５では、光透過性反応用容器２１と石英ガラス容器５７との間に、第１の真空断熱空間２３が設けられている。

なお光透過性反応用容器２１と石英ガラス容器５７との間に位置するかぎり、第１の真空断熱空間２３の範囲や形状や位置は、任意に選択できる。光透過性反応用容器２１と石英ガラス容器５７は任意の箇所で結合して第１の真空断熱空間２３を形成してもよい。

また、石英ガラス容器５７と金属ミラー１９との間の空間は、真空とされていない。

金属容器 6 1 は、石英ガラス容器 5 7 を囲むように第 1 の容器 3 1 に任意の方法で固定されている（固定方法については図示せず）。金属容器 6 1 には、石英ガラス容器 5 7 と金属ミラー 1 9 との間に設けられた空間に、レーザ光導波部材 2 5 の先端 2 5 A を、金属容器 6 1 の外側から配置するための貫通部 6 2 が設けられている。レーザ光導波部材 2 5 は、石英ガラス容器 5 7 の外側に配置されている。金属容器 6 1 の材料としては、第 2 の実施の形態で説明した金属容器 1 6 と同じ金属を用いることができる。

[0097] 第 4 の実施の形態の光化学反応装置によれば、光透過性反応用容器 2 1 を囲む石英ガラス容器 5 7 を設けると共に、光透過性反応用容器 2 1 と石英ガラス容器 5 7 との間に第 1 の真空断熱空間 2 3 を配置することにより、金属容器 6 1 内を真空にする必要がなくなる。言い換えれば、金属容器 6 1 内を気密する必要がない。

これにより、複数の分割された部材を組み立てることで、金属容器 6 1 を構成することができる。

[0098] なお、図 7 には、図示していないが、本発明では、レーザ光導波部材 2 5 である光ファイバを一定の温度で使用するための断熱ジャケットを配置する空間を十分に確保することができる。

また、光ファイバを用いることなく、直接レーザ照射装置（図示せず）からのレーザ光を光透過性反応用容器 2 1 に照射することも可能である。この場合、金属容器 6 1 及びクライオスタット 1 1 に、レーザ光を照射するための窓（レーザ光を透過可能な窓）及びレーザ光を反射するミラー等を適宜設ける。

また、第 4 の実施の形態の光化学反応装置 5 5 において、図 1 に示すヒータ線 2 4 を設けてもよい。

[0099] 以上、本発明の好ましい実施の形態について詳述したが、本発明はかかる特定の実施の形態に限定されるものではなく、特許請求の範囲内に記載された本発明の要旨の範囲内において、種々の変形・変更が可能である。また第 1 ～第 4 の実施の形態の間では、問題がない限り、互いに好ましい例を交換

や追加をしても良い。

[0100] 例えば、第1～第4の実施の形態で説明した光化学反応装置10、40、45、50、及び55では、レーザ光導波部材25として1つの光ファイバを用いる場合を例に挙げて説明したが、複数本の光ファイバを設けてもよい。

[0101] (実施例)

第4の実施の形態の光化学反応装置55（連続的に光化学反応を起こさせる装置）を用いると共に、プロセスガスとしてオゾン（ O_3 ）と CF_4 とを混合した混合ガスを用いて、オゾン分子中の酸素同位体 ^{17}O を濃縮する際の、プロセス計算例を表1に示す。

なお、表1に記載のプロセス計算例は、先に説明した特許文献2（特開2006-272090号公報）における酸素同位体濃縮プロセスについてのものである。

表1には、高純度酸素を原料として（ ^{16}O 、 ^{17}O 、及び ^{18}O は天然存在比の濃度）、2度のレーザ光の照射により光化学反応を行う2段濃縮を行ったときの、1段目、2段目、及び総合結果を示す。

[0102]

[表1]

	第1段	第2段	総合	
プロセス圧力	13	13		kPa (absolute)
反射あたり平均光路長	1	1		m
反射率	0.9999	0.9999		[-]
全光路長	10000	10000		m
プロセスガス組成				
オゾン	10	10		mol%
CF ₄	90	90		mol%
酸素同位体組成				
¹⁶ O	99.759	99.05	88.3	atom%
¹⁷ O	0.037	0.75	11.6	atom%
¹⁸ O	0.204	0.20	0.1	atom%
ターゲット ¹⁶ O ¹⁶ O ¹⁷ O分子密度	2.6E+14	5.2E+15		molecules/cm ³
ターゲット ¹⁶ O ¹⁶ O ¹⁷ O吸収波長	998	998		nm
光吸収断面積	3.0E-23	3.0E-23		cm ² /molecule
光吸収係数	3.9E-09	1.6E-07		cm ⁻¹
プロセスガス流量	3.1E-03	8.6E-05		mol/s
レーザ出力	100	4.8	104.8	W
光反応の量子収率	1.2	1.2		[-]
¹⁷ O収率	0.56	0.55	0.30	[-]
濃縮した ¹⁷ O濃度	0.75	11.6	11.6	atom%
¹⁷ O濃縮率	20.3	17.5		[-]
製品H ₂ ¹⁷ O生産量			3.0E-06	mol/s
製品H ₂ ¹⁷ O生産量 (年産量)			3.5	kg/y

[0103] なお、原料酸素は、オゾナイザーにより、オゾン-酸素系ガスに変換し、CF₄を導入した蒸留塔へ導入させた後、前記蒸留塔の底から、オゾン-CF₄系ガスとして導出し、このオゾン-CF₄系ガスを、本発明のプロセスガスとして使用した。

光透過性反応用容器21では、¹⁷Oが濃縮され、最終的に製品となる酸素中の¹⁷Oは、10atom%以上に濃縮された。

[0104] なお、¹⁷Oを含むオゾンアイソトポログ¹⁶O¹⁶O¹⁷Oのターゲット吸収

波長は約 1 0 0 0 n m にあり、レーザ光導波部材 2 5 である光ファイバが低損失で利用できる波長領域にある。これは使用する光ファイバが容易に入手可能であり、レーザ光の損失を極力小さくして光化学反応を行うことができる点で重要である。

[0105] また、第 2 及び第 3 の実施の形態で説明した光化学反応装置 4 0, 4 5, 及び 5 0 (連続的に光化学反応を起こさせる装置) を用いて、プロセスガスとしてオゾン (O_3) と CF_4 とを混合した混合ガスを用いてオゾン分子中の酸素同位体 ^{17}O を濃縮した場合も、表 1 に示すような結果となる。

産業上の利用可能性

[0106] 本発明は、レーザ光を用いた光化学反応装置、及び光化学反応装置を用いた同位体濃縮方法に適用可能である。本発明は、光化学反応におけるレーザ光の利用効率を高めることが可能な光化学反応装置、及び同位体濃縮方法を提供する。

符号の説明

[0107] 1 0, 4 0, 4 5, 5 0, 5 5 光化学反応装置

1 1 クライオスタット

1 2 極低温液体

1 3 蓋体

1 3 A, 1 5 A, 6 2 貫通部

1 5 環状部材

1 6, 6 1 金属容器

1 6 a, 4 6 a, 6 1 a 内面

1 7 フランジ

1 9 金属ミラー

2 1 光透過性反応用容器

2 3 第 1 の真空断熱空間

2 4 ヒータ線

2 5 レーザ光導波部材

2 5 a レーザ照射面

2 5 A, 4 1 A 先端

2 6 再液化装置

2 7 管路

3 1 第 1 の容器

3 1 A 空間

3 2 第 2 の容器

3 3 第 2 の真空断熱空間

3 5 管状部

3 6 反応室

3 6 a 外壁

4 1 ガス供給管

4 6 石英ガラス容器（外部容器：第 1 の石英ガラス容器）

4 6 b 外面

5 7 石英ガラス容器（内部容器：第 2 の石英ガラス容器）

請求の範囲

- [請求項1] 内部に供給されたプロセスガスを、レーザ光により光化学反応させる光透過性反応用容器と、
- 前記光透過性反応用容器の外側に、前記光透過性反応用容器を囲むように配置され、前記レーザ光を反射する金属ミラーと、
- 前記光透過性反応用容器、前記金属ミラー、及び極低温液体を収容する構成であって、前記極低温液体により、前記金属ミラーの温度を極低温に保持するクライオスタットと、
- を有する光化学反応装置。
- [請求項2] 前記金属ミラーの温度が、100K以下であることを特徴とする請求項1記載の光化学反応装置。
- [請求項3] 前記光透過性反応用容器と前記金属ミラーとの間に、真空断熱空間を有することを特徴とする請求項1記載の光化学反応装置。
- [請求項4] 前記金属ミラーを構成する金属が、金、銀、銅、アルミニウムのうちのいずれか1つであることを特徴とする請求項1に記載の光化学反応装置。
- [請求項5] 前記金属の純度が、99.9999以上であることを特徴とする請求項4記載の光化学反応装置。
- [請求項6] 前記金属ミラーが、金属膜であることを特徴とする請求項1に記載の光化学反応装置。
- [請求項7] 前記光透過性反応用容器は、石英ガラスまたはアクリル樹脂よりなることを特徴とする請求項1に記載の光化学反応装置。
- [請求項8] 前記プロセスガスに、前記レーザ光を照射する、レーザ光導波部材を有することを特徴とする請求項1に記載の光化学反応装置。
- [請求項9] 前記金属ミラーを構成する金属と同じ種類で、かつ前記金属ミラーを構成する金属よりも純度の低い金属よりなり、前記クライオスタットに収容されると共に、前記光透過性反応用容器を収容する金属容器を有し、

前記金属ミラーを、前記金属容器の内面を覆うように配置したことを特徴とする請求項 1 に記載の光化学反応装置。

[請求項10] 前記クライオスタットに收容され、前記光透過性反应用容器を收容すると共に、前記レーザ光を透過する石英ガラス容器を有し、

前記金属ミラーを、前記石英ガラス容器の内面、または前記石英ガラス容器の外面を覆うように配置したことを特徴とする請求項 1 に記載の光化学反応装置。

[請求項11] 前記石英ガラス容器は、純度 99%以上、かつ光透過損失 0.1 dB/m以下の高純度の石英ガラスよりなることを特徴とする請求項 10に記載の光化学反応装置。

[請求項12] 前記レーザ光導波部材を、前記光透過性反应用容器内に配置したことを特徴とする請求項 8 に記載の光化学反応装置。

[請求項13] 前記光透過性反应用容器と前記金属ミラーとの間に、真空断熱空間を有し、前記レーザ光導波部材を、前記真空断熱空間に配置したことを特徴とする請求項 8 に記載の光化学反応装置。

[請求項14] 前記レーザ光導波部材は、光ファイバであることを特徴とする請求項 8 に記載の光化学反応装置。

[請求項15] 前記光透過性反应用容器の外壁に、ヒータ線を巻きつけたことを特徴とする請求項 1 に記載の光化学反応装置。

[請求項16] 前記光透過性反应用容器と前記金属ミラーとの間に、前記レーザ光を透過させ、かつ前記光透過性反应用容器を囲む石英ガラス容器を設け、

前記光透過性反应用容器と前記石英ガラス容器との間に、真空断熱空間を配置したことを特徴とする請求項 9 に記載の光化学反応装置。

[請求項17] 前記レーザ光導波部材を、前記石英ガラス容器の外側に配置することを特徴とする請求項 16 に記載の光化学反応装置。

[請求項18] 前記石英ガラス容器は、純度 99%以上、かつ光透過損失 0.1 dB/m以下の高純度の石英ガラスよりなることを特徴とする請求項 1

6に記載の光化学反応装置。

[請求項19] 前記光透過性反応用容器は、純度99%以上、かつ光透過損失0.1 dB/m以下の高純度の石英ガラスよりなることを特徴とする請求項1に記載の光化学反応装置。

[請求項20] 前記クライオスタットは、前記極低温液体を収容する第1の容器と、前記第1の容器を収容する第2の容器と、前記第1の容器と第2の容器との間に設けられた真空断熱空間と、を有することを特徴とする請求項1に記載の光化学反応装置。

[請求項21] 前記第1の容器と接続され、前記極低温液体から形成された気体を再液化させる再液化装置を有することを特徴とする請求項20記載の光化学反応装置。

[請求項22] 前記極低温液体が、液体ヘリウムであることを特徴とする請求項1に記載の光化学反応装置。

[請求項23] 請求項1の記載の前記光化学反応装置を用いた同位体濃縮方法であって、

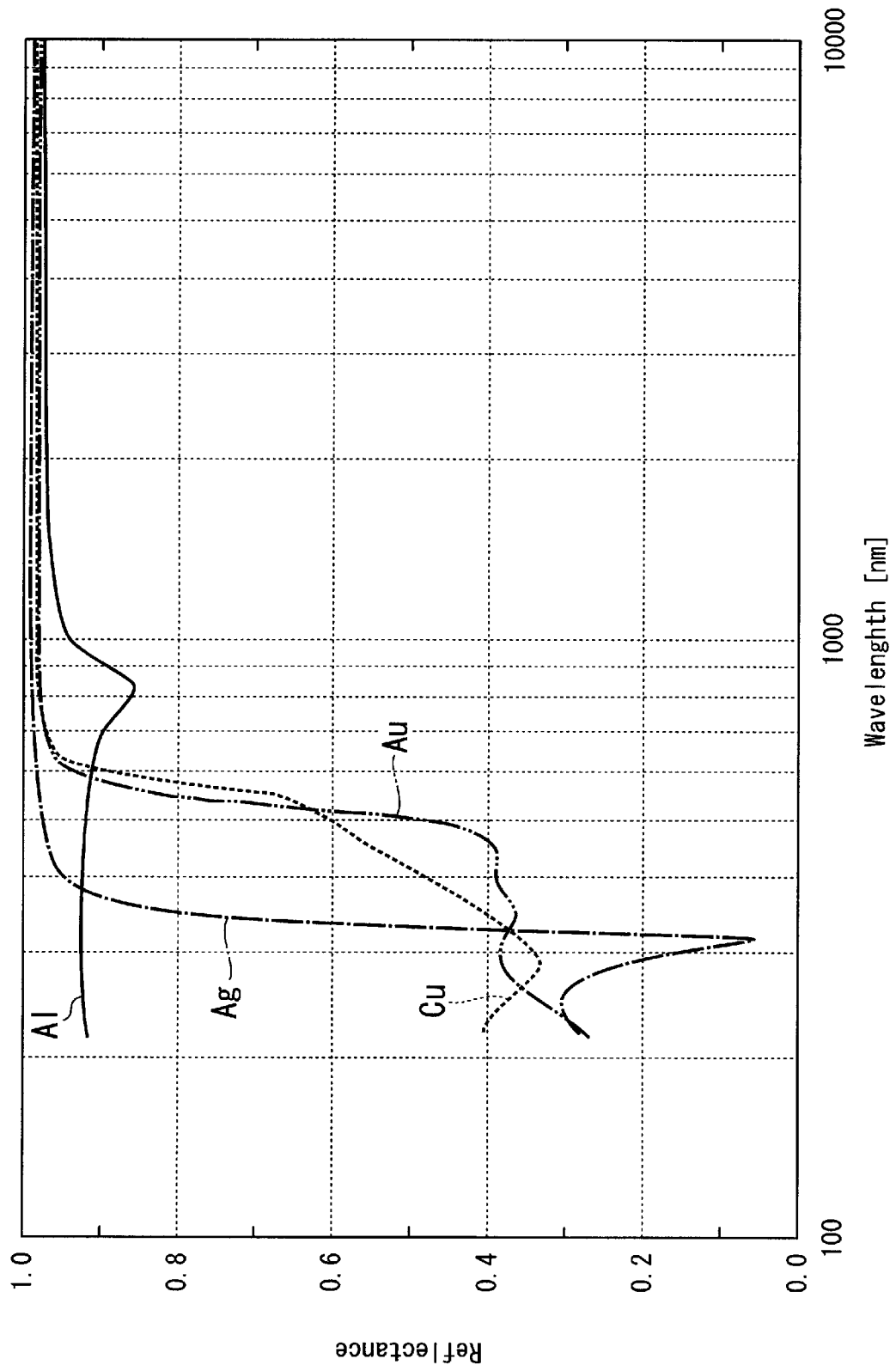
前記プロセスガスとして O_3 と CF_4 との混合ガスを、前記光透過性反応用容器内に供給する工程と、

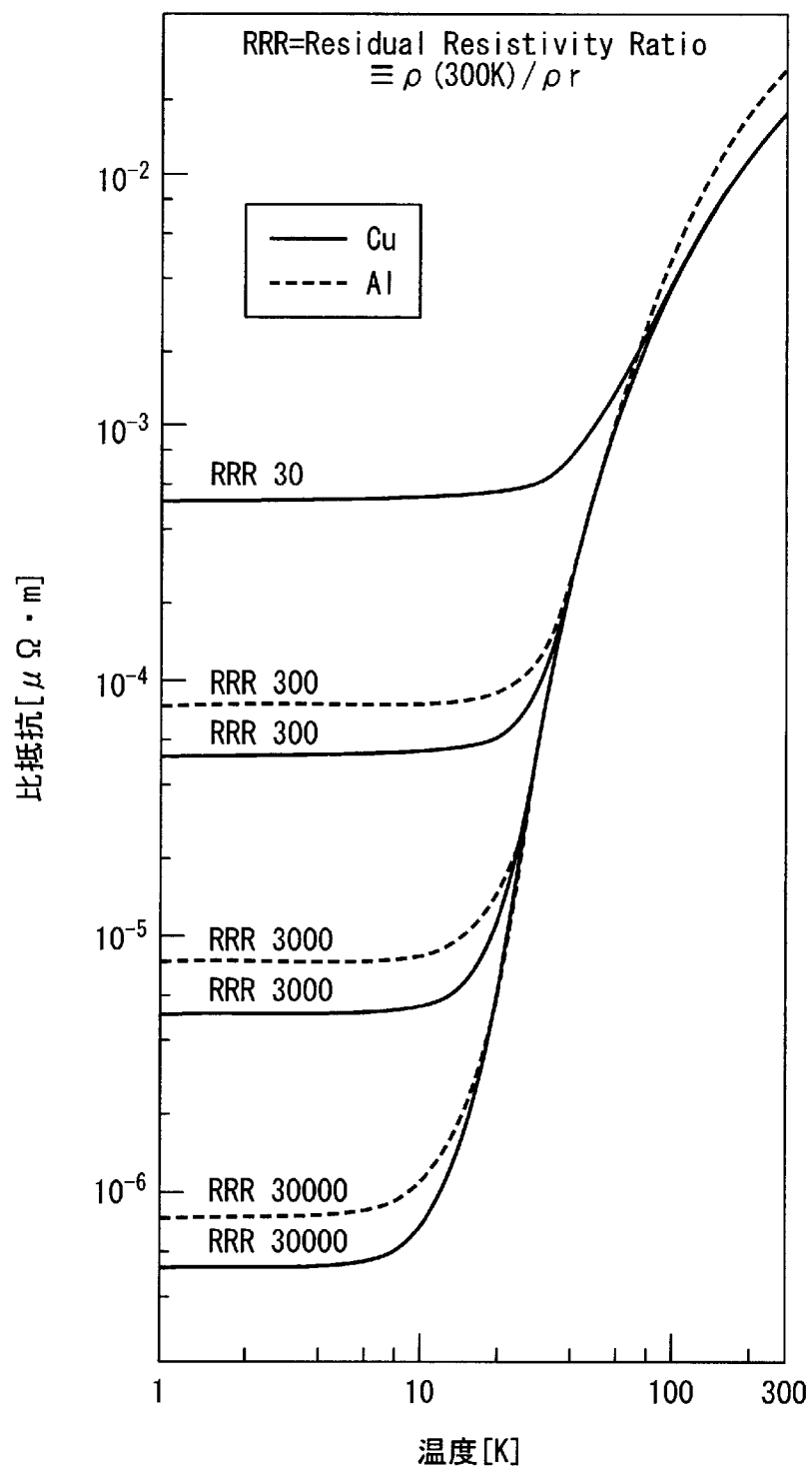
その後、前記混合ガスに前記レーザ光を照射して光化学反応させることで、酸素同位体 ^{17}O または ^{18}O を含む前記 O_3 を選択的に光分解させる工程と、を有することを特徴とする光化学反応装置を用いた同位体濃縮方法。

[請求項24] 前記光分解させる際の前記レーザ光の波長領域が、500 nm以上であることを特徴とする請求項23記載の光化学反応装置を用いた同位体濃縮方法。

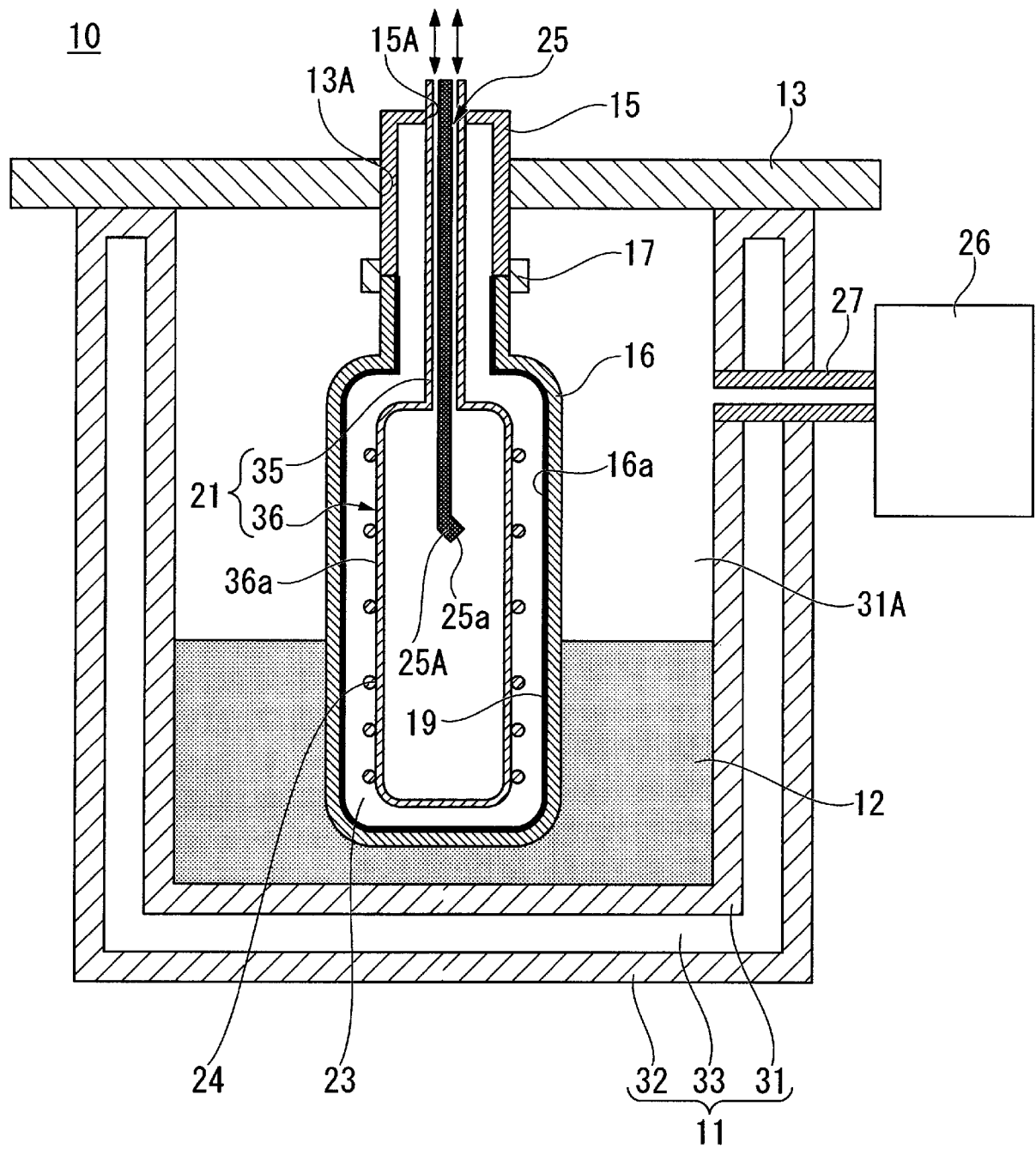
[請求項25] 前記光分解させる際の前記レーザ光の波長領域が、700～1500 nmであることを特徴とする請求項23記載の光化学反応装置を用いた同位体濃縮方法。

[図1]

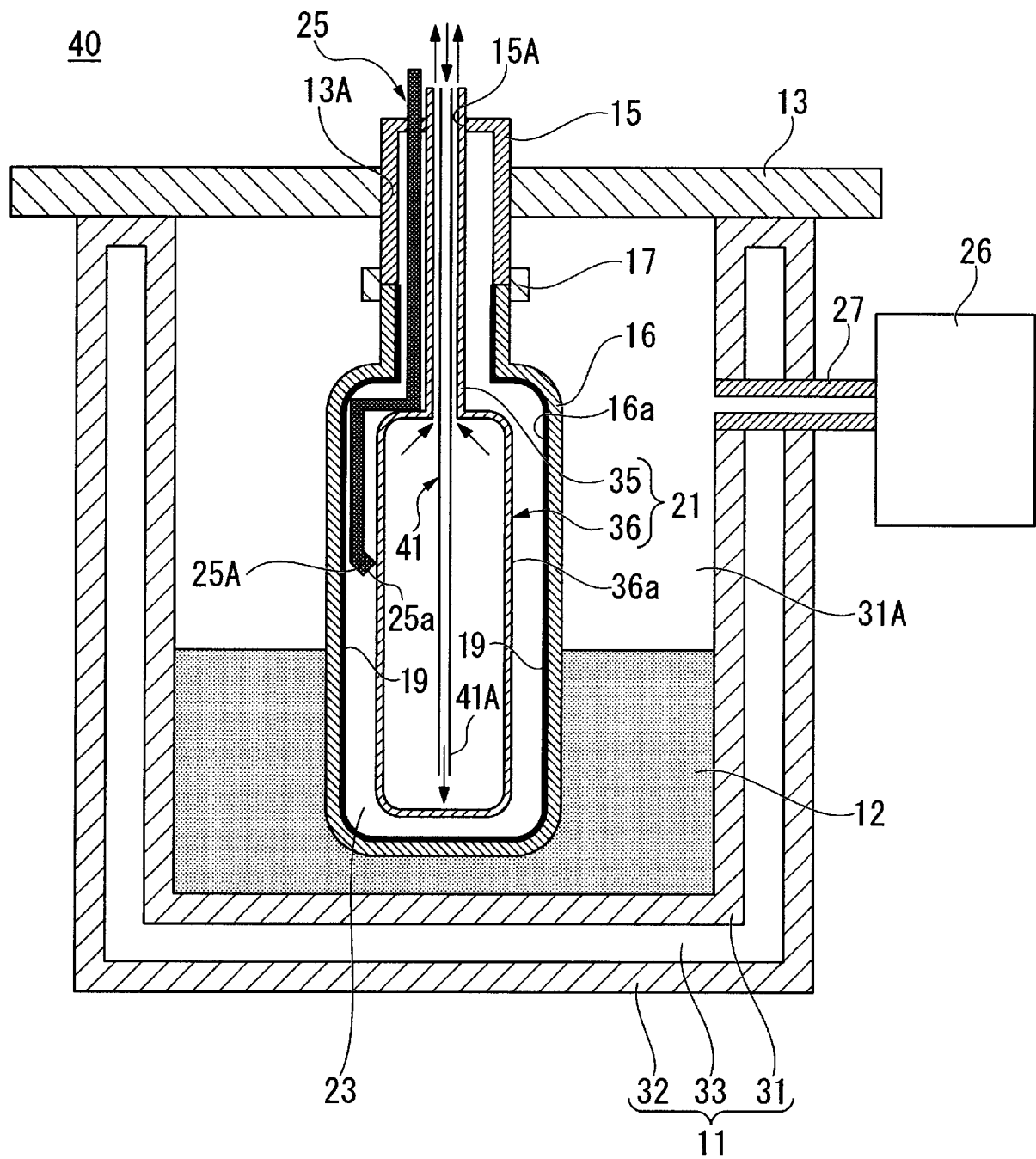




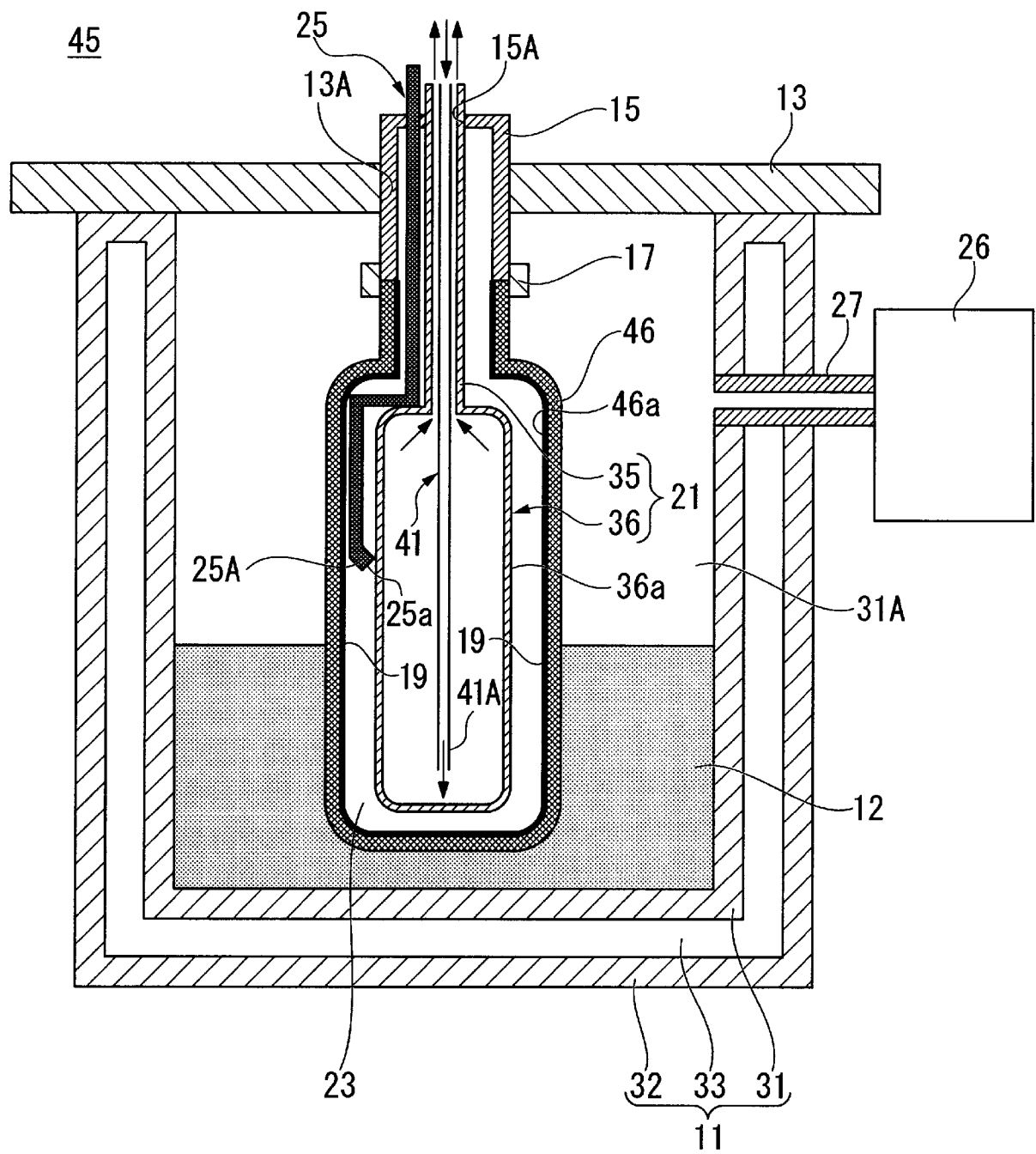
[図3]



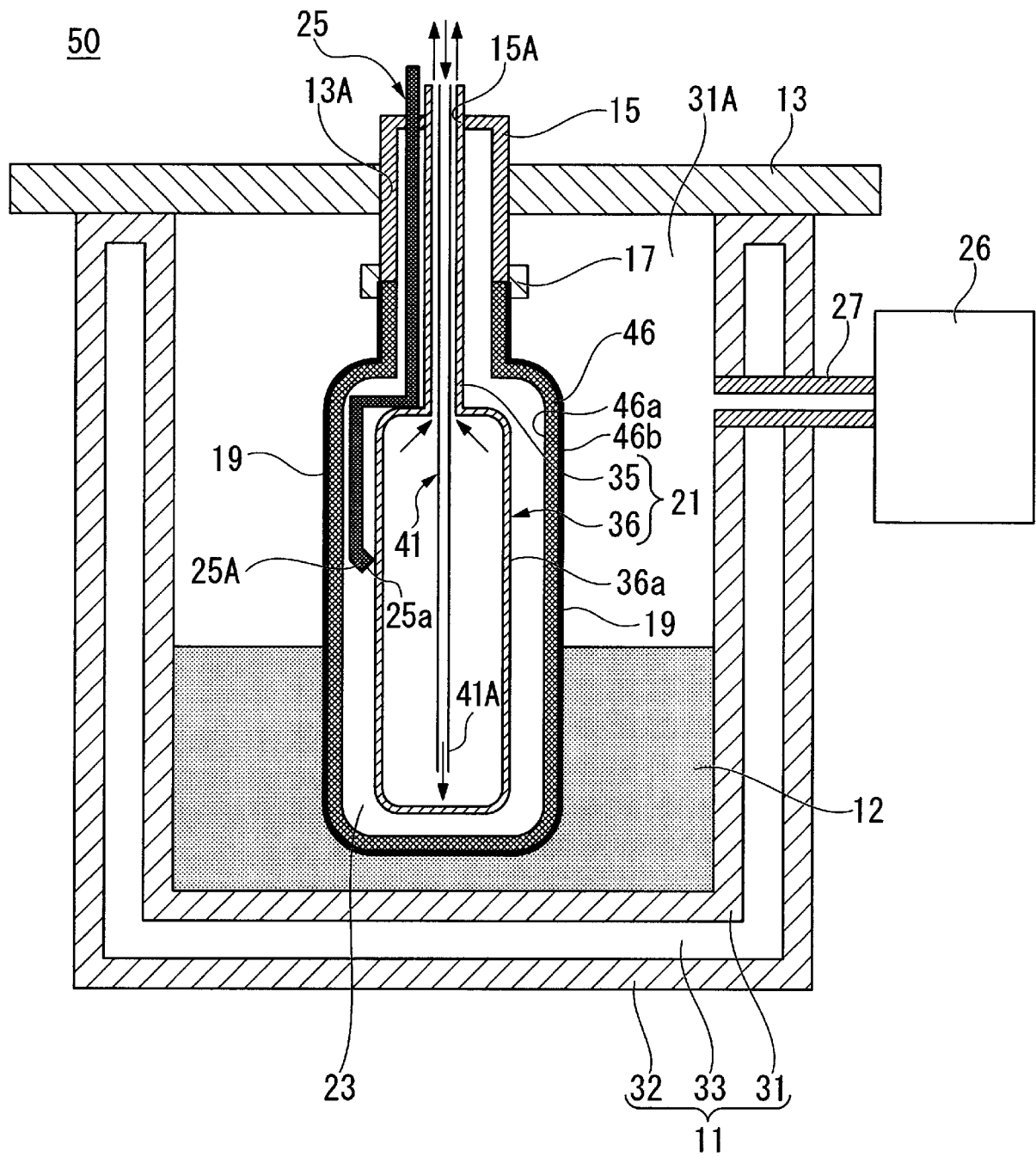
[図4]



[図5]



[図6]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/051319

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

B01J19/12 (2006.01) i, B01D59/34 (2006.01) i, G02B5/08 (2006.01) i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

B01J19/12, B01D59/34, G02B5/08

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2012
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2012	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2012

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 63-166431 A (Ishikawajima-Harima Heavy Industries Co., Ltd.), 09 July 1988 (09.07.1988), entire text; all drawings (Family: none)	1-25
A	JP 2009-233492 A (Taiyo Nippon Sanso Corp.), 15 October 2009 (15.10.2009), entire text; all drawings (Family: none)	1-25



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date

“L” document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

“T” later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

“X” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

“Y” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

“&” document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
24 February, 2012 (24.02.12)

Date of mailing of the international search report
06 March, 2012 (06.03.12)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. B01J19/12 (2006.01)i, B01D59/34 (2006.01)i, G02B5/08 (2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. B01J19/12, B01D59/34, G02B5/08

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 2 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 2 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 2 年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 63-166431 A (石川島播磨重工業株式会社) 1988.07.09, 全文, 全図 (ファミリーなし)	1-25
A	JP 2009-233492 A (太陽日酸株式会社) 2009.10.15, 全文, 全図 (ファミリーなし)	1-25

C 欄の続きにも文献が列挙されている。

パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

2 4 . 0 2 . 2 0 1 2

国際調査報告の発送日

0 6 . 0 3 . 2 0 1 2

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (I S A / J P)
郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5
東京都千代田区霞が関三丁目 4 番 3 号

特許庁審査官 (権限のある職員)

山本 吾一

4 Q

3 1 2 8

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 6 8