



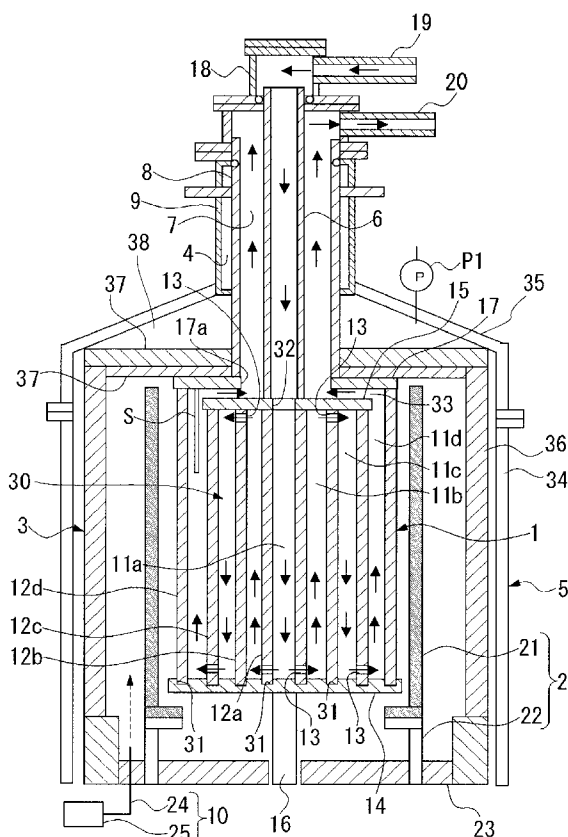
(43) 国際公開日
2008 年 5 月 8 日 (08.05.2008)

- | | |
|--|---|
| <p>(51) 国際特許分類:
C01B 33/107 (2006.01)</p> <p>(21) 国際出願番号: PCT/JP2007/070843</p> <p>(22) 国際出願日: 2007 年 10 月 25 日 (25.10.2007)</p> <p>(25) 国際出願の言語: 日本語</p> <p>(26) 国際公開の言語: 日本語</p> <p>(30) 優先権データ:
特願 2006-297033
2006 年 10 月 31 日 (31.10.2006) JP
特願 2007-268618
2007 年 10 月 16 日 (16.10.2007) JP</p> <p>(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 三菱マテリアル株式会社 (MITSUBISHI MATERIALS CORPORATION) [JP/JP]; 〒1008117 東京都千代田区大手町一丁目 5 番 1 号 Tokyo (JP).</p> | <p>(72) 発明者; および</p> <p>(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 石井 敏由記 (ISHII, Toshiyuki) [JP/JP]; 〒5100841 三重県四日市市三田町 5 番地 三菱マテリアル株式会社 四日市工場内 Mic (JP). 伊藤 秀男 (ITO, Hideo) [JP/JP]; 〒5100841 三重県四日市市三田町 5 番地 三菱マテリアル株式会社 四日市工場内 Mic (JP). 清水 祐司 (SHIMIZU, Yuji) [JP/JP]; 〒3110102 茨城県那珂市向山 1 0 0 2 番地 1 4 三菱マテリアル株式会社 中央研究所内 Ibaraki (JP).</p> <p>(74) 代理人: 志賀 正武, 外 (SHIGA, Masatake et al.); 〒1048453 東京都中央区八重洲 2 丁目 3 番 1 号 Tokyo (JP).</p> <p>(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, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, 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,</p> |
|--|---|

[続葉有]

(54) Title: TRICHLOROSILANE PRODUCTION APPARATUS

(54) 発明の名称: トリクロロシラン製造装置



(57) Abstract: Disclosed is a trichlorosilane production apparatus comprising: a reaction vessel into which a feed gas comprising tetrachlorosilane and hydrogen is supplied to generate a reaction product gas comprising trichlorosilane and hydrogen chloride; a heating mechanism for heating the inside of the reaction vessel; a housing for accommodating the reaction vessel and the heating mechanism therein; a gas supply inner cylinder for supplying the feed gas into the reaction vessel; a gas discharge outer cylinder which is arranged in the outside of the gas supply inner cylinder almost concentrically and has a discharge gas flow passage for the reaction product gas formed between the outer peripheral surface of the gas supply inner cylinder and the inner peripheral surface of the gas discharge outer cylinder; and a cooling cylinder for supporting the gas discharge outer cylinder on its inside surface and having, formed therein, a cooling medium passage through which a cooling medium is circulated.

(57) 要約: テトラクロロシランと水素とを含む供給ガスが内部に供給されてトリクロロシランと塩化水素とを含む反応生成ガスが生成される反応容器と、反応容器の内部を加熱する加熱機構と、反応容器及び加熱機構を収納する収納容器と、反応容器内に供給ガスを供給するガス供給内筒と、ガス供給内筒の外側にほぼ同軸で配されガス供給内筒の外周面と自己の内周面との間に反応生成ガスの排気流路が形成されたガス排気外筒と、ガス排気外筒を内側で支持し内部に冷媒を流通させる冷媒流路が形成された冷却筒とを備えているトリクロロシラン製造装置。



KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MT, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, 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, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY,

添付公開書類:
— 国際調査報告書

明 細 書

トリクロロシラン製造装置

技術分野

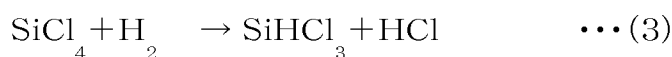
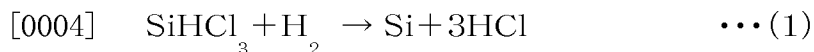
[0001] 本発明は、テトラクロロシランをトリクロロシランに転換するトリクロロシラン製造装置に関する。

本願は、2006年10月31日に、日本に出願された特願2006-297033号、および2007年10月16日に日本に出願された特願2007-268618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] 高純度のシリコン(Si:珪素)を製造するための原料として使用されるトリクロロシラン(SiHCl_3)は、テトラクロロシラン(SiCl_4 :四塩化珪素)を水素と反応させて転換することで製造することができる。

[0003] すなわち、シリコンは、以下の反応式(1)(2)によるトリクロロシランの還元反応と熱分解反応で生成され、トリクロロシランは、以下の反応式(3)による転換反応で生成される。



このトリクロロシランを製造する装置として、例えば特許文献1(特許第3781439号公報)には、発熱体に囲まれた反応室が、同心配置の2つの管によって形成された外室と内室をもった二重室設計とされ、この反応室の下部に設けられた熱交換器を介して反応室に下方から水素とテトラクロロシランとの供給ガスを供給すると共に反応室の下方から反応生成ガスを排出する反応器が提案されている。この反応器では、上記熱交換器において、反応室に供給される供給ガスが、反応室から排出される反応生成ガスから熱を伝達されて予熱されると共に、排出される反応生成ガスの冷却が行われるようになっている。

発明の開示

発明が解決しようとする課題

[0005] 上記従来技術には、以下の課題が残されている。

[0006] 上記従来技術のトリクロロシランの製造装置では、反応室の下部に設けられた熱交換器によって供給される供給ガスと熱交換することで、反応生成ガスの冷却が行われるが、上記反応式(3)によるテトラクロロシランのトリクロロシランへ転換反応は、排出される反応生成ガスを急冷しないと、元に戻る逆反応も生じてしまう。このため、従来のようなガス同士の熱交換による冷却では急冷効果が低く、トリクロロシランへの転換率が低くなってしまうという不都合があった。

[0007] 本発明は、前述の課題に鑑みてなされたもので、効率的に反応生成ガスを急冷し、転換効率を向上させることが可能なトリクロロシラン製造装置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

[0008] 本発明は、前記課題を解決するために以下の構成を採用した。

本発明のトリクロロシラン製造装置は、テトラクロロシランと水素とを含む供給ガスが内部に供給されてトリクロロシランと塩化水素とを含む反応生成ガスが生成される反応容器と、前記反応容器の内部を加熱する加熱機構と、前記反応容器及び前記加熱機構を収納する収納容器と、前記反応容器内に前記供給ガスを供給するガス供給内筒と、前記ガス供給内筒の外側にほぼ同軸で配され前記ガス供給内筒の外周面と自己の内周面との間に前記反応生成ガスの排気流路が形成されたガス排気外筒と、前記ガス排気外筒を内側で支持し内部に冷媒を流通させる冷媒路が形成された冷却筒とを備えているトリクロロシラン製造装置である。

[0009] このトリクロロシラン製造装置では、ガス供給内筒の外側に配されたガス排気外筒が、内部に冷媒路が形成された冷却筒の内側に支持されているので、反応容器から排出され高温状態の反応生成ガスがガス排気外筒の内側の排気流路を流れて排出する際に、外側の冷却筒によって急冷されると共に、内側のガス供給内筒を流れる供給ガスとの間でガス供給内筒の広い円筒表面を介して熱交換が行われてさらに冷却される。すなわち、冷却筒による冷却及び供給ガスとの熱交換による冷却の両効果によって、反応生成ガスが急激に冷却されて排出されるので、転換の逆反応が抑

制されて安定した転換反応が維持され、転換率を向上させることができる。

[0010] 上記トリクロロシラン製造装置は、前記収納容器内にアルゴンを供給するアルゴン供給機構を備えていてもよい。このトリクロロシラン製造装置では、アルゴン供給機構により収納容器内にアルゴンが供給されるので、反応容器周囲をアルゴンにより加圧状態にすることで、反応容器から供給ガスや反応生成ガスが漏洩することを防ぐことができる。これにより、反応容器から漏洩した供給ガスや反応生成ガスが反応容器外側の加熱機構等に使用されるカーボンと反応することを防ぐことができる。また、アルゴン供給機構によりガス排気外筒の周囲にもアルゴンを供給することにより、ガス排気外筒をより冷却することもでき、内側を流通する反応生成ガスの急冷をより促進することも可能である。

[0011] 上記トリクロロシラン製造装置は、前記反応容器の内部には、ほぼ同心配置された内径の異なる複数の反応筒壁によって仕切られた複数の小空間を、これら反応筒壁の下部と上部とに交互に形成した流通用貫通部によって内側から順に連通状態としてなる反応流路が形成され、該反応流路に前記ガス供給内筒及びガス排気外筒が接続されていてもよい。このトリクロロシラン製造装置では、反応筒壁内の反応流路に供給された供給ガスが加熱されながら流通用貫通部を介して反応筒壁を隔てた外側又は内側の小空間に順次流れつつ反応して反応生成ガスとなる。この際、上記各反応筒壁に、内側から順に下部と上部とに交互に流通用貫通部が形成されているので、ガスは外側又は内側の小空間に移動する度に下部から上部へ、上部から下部へと交互に流れ方向を繰り返し変える。したがって、反応容器内に長い反応流路が確保されると共に複数枚の反応筒壁で伝熱面積が増大されることで、供給ガスが反応するために必要な十分な保持時間及び加熱を確保することができ、転換率をより向上させることができる。また、反応流路が上下に折り返し連続して構成されることで、反応容器全体を小型化することができると共に、反応容器全体の熱放散を低くすることが可能になる。

[0012] この場合、流通用貫通部としては、後述の実施形態における反応筒壁に形成した貫通孔の他、反応筒壁の上端部又は下端部に形成した切欠き等が含まれる。

[0013] 上記トリクロロシラン製造装置は、前記複数の小空間のうち最も内側の小空間に前

記ガス供給内筒が連通されていると共に、最も外側の小空間に前記排気流路が接続されている。このトリクロロシラン製造装置では、反応流路のうちの最も内側の小空間にガス供給内筒が連通されていると共に、最も外側の小空間に排気流路が接続されているので、加熱機構により最も高温状態とされた反応生成ガスが最も外側の小空間からガス排気外筒内の排気流路へと導かれる。したがって、最も高温状態とされた反応生成ガスが、ガス排気外筒内で急冷されることで、より急激な冷却作用が得られ、安定した転換反応を得ることができる。

[0014] 上記トリクロロシラン製造装置において、前記ガス供給内筒及び前記ガス排気外筒は、前記反応容器の上方に配置されるとともに、前記反応容器の底板の中央部が、前記収納容器内に上向きに突出する支持柱によって支持されている。

[0015] このような構成とすることにより、反応容器の底板が支持柱部材によって収納容器の内底面から浮かされた状態に支持されるため、その間が断熱空間とされるとともに、反応容器の壁の熱膨張をこの底板の撓みによって吸収することができる。前記反応容器の底板は、後述の実施形態に記載する下部支持円板であってもよい。

[0016] また、上記トリクロロシラン製造装置は、反応容器を構成する部材が、カーボンで形成されている。

[0017] さらに上記トリクロロシラン製造装置は、前記カーボンの表面が、炭化珪素でコーティングされている。このトリクロロシラン製造装置では、炭化珪素(SiC)でコーティングされたカーボンで反応容器が構成されているので、カーボンと供給ガス及び反応生成ガス中の水素、クロロシラン及び塩化水素(HCl)とが反応してメタン、メチルクロロシラン、炭化珪素等が生成されて不純物となることを防ぎ、純度の高いトリクロロシランを得ることができる。

発明の効果

[0018] 本発明によれば、以下の効果を奏する。

[0019] 本発明に係るトリクロロシラン製造装置によれば、ガス供給内筒の外側に配されたガス排気外筒が、内部に冷媒路が形成された冷却筒の内側に支持されているので、冷却筒による冷却及び供給ガスとの熱交換による冷却の両効果によって、反応生成ガスが急激に冷却され、転換の逆反応が抑制されて高い転換率でトリクロロシランを

得ることができる。

図面の簡単な説明

[0020] [図1]本発明に係るトリクロロシラン製造装置の一実施形態を示す簡略的な断面図である。

発明を実施するための最良の形態

[0021] 以下、本発明に係るトリクロロシラン製造装置の一実施形態を、図1を参照しながら説明する。

[0022] 本実施形態のトリクロロシラン製造装置は、図1に示すように、テトラクロロシランと水素との供給ガスが内部に供給されて転換反応によりトリクロロシランと塩化水素との反応生成ガスが生成される反応容器1と、反応容器1の周囲に配され該反応容器1を加熱する加熱機構2と、反応容器1及び加熱機構2の周囲を覆うように配された断熱材3と、反応容器1、加熱機構2及び断熱材3を収納する収納容器5と、反応容器1上に設けられ該反応容器1内に上部から供給ガスを供給するガス供給内筒6と、ガス供給内筒6の外側に同一中心軸で配されガス供給内筒6の外周面と自己の内周面との間に反応容器1から排出された反応生成ガスの排気流路7が形成されたガス排気外筒8と、ガス排気外筒8を内側で支持し内部に水(冷媒)を流通させる冷媒路4が形成された冷却筒9と、収納容器5内にアルゴン(Ar)を供給するアルゴン供給機構10とを備えている。

[0023] 上記反応容器1は、その内部空間を複数の小空間11a～11dに区画するための内径の異なる円筒状の第1～第4反応筒壁12a～12dを備えている。すなわち、反応容器1内の空間(最も外側の第4反応筒壁12dより内側の空間)は、3つの第1～第3反応筒壁12a～12cにより、中央に1つの円柱状の小空間11aと、その外側に3つの円筒状の小空間11b～11dとに仕切られている。また、最も内側の第1反応筒壁12aの内側空間である円柱状の小空間11aの上部にガス供給内筒6が連通されていると共に、最も外側の小空間11dに排気流路7が接続されている。

[0024] また、これら第1～第3反応筒壁12a～12cには、内側から順に下部と上部とに交互に流通用貫通孔13が形成されている。すなわち、第1反応筒壁12aには、下部に複数の流通用貫通孔13が周方向に形成され、第2反応筒壁12bには、上部に複数の

流通用貫通孔13が周方向に形成されている。また、第3反応筒壁12cには、下部に複数の流通用貫通孔13が形成されている。そして、これら流通用貫通孔13によって各小空間11a～11dを内側から順次連通状態とした反応流路30が構成される。

[0025] したがって、第1反応筒壁12aの内側の小空間11aに供給された供給ガスが加熱されながら複数の流通用貫通孔13を介して外側の小空間11b～11dに順次流れつつ反応して反応生成ガスとなるように設定されている。また、内側から順に反応筒壁12a～12cの上部と下部とで交互に配された流通用貫通孔13間をガスが流れることで、上方向と下方向とにガスの流れ方向が繰り返し変わるように設定されている。なお、図中において、ガスの流れ方向を矢印で示している。

[0026] 上記第1～第3反応筒壁12a～12cは、下部が下部支持円板14のリング状溝31にはめ込まれて支持されていると共に、上部が上部支持円板15で固定されている。該上部支持円板15の上部には、ガス供給内筒6の下端が固定されている。また、上部支持円板15には、中心孔32が形成され、該中心孔32を介して第1反応筒壁12aの内側の小空間11aとガス供給内筒6とが連通されている。上記下部支持円板14は、その中央が支持柱部材16に支持されている。この支持柱部材16は、収納容器5の底板を構成している底部支持部材23の中央から上向きに突出しており、その上端に上記下部支持円板14の中央部が支持されていることから、この下部支持円板14は、底部支持部材23から浮かされた状態とされている。

[0027] 上記第4反応筒壁12dは、第1～第3反応筒壁12a～12cよりも若干高く形成されており、その下部が下部支持円板14のリング状溝31にはめ込まれて支持されていると共に、上部が円環状の上部円環板17に固定されている。該上部円環板17は、上部支持円板15の上方に所定間隔を空けて配されており、上部支持円板15との間に扁平な連絡流路33が水平に形成されている。さらに、上部円環板17上には、ガス排気外筒8の下端が固定されている。なお、ガス排気外筒8の下端開口部と上部円環板17の中央開口部17aとは、内径が同一に設定されており、互いの開口部が一致するように配されている。したがって、上部支持円板15と上部円環板17との間の連絡流路33は、上部円環板17の中央開口部17aを介して排気流路7に接続されている。

- [0028] 上記ガス供給内筒6は、冷却筒9の上部に設けられた供給ガス導入部18内に上端部が開口されている。この供給ガス導入部18内には、供給ガス導入管19が接続され、供給ガスの供給源(図示略)からの供給ガスが供給ガス導入管19から供給ガス導入部18を介してガス供給内筒6内に供給されるようになっている。
- [0029] 上記ガス排気外筒8は、その上端開口部が冷却筒9の上端部から所定間隔を空けて配されており、その上部にはガス排気管20が接続され、ガス排気外筒8の上端開口部からの反応生成ガスは、冷却筒9の上部を介してガス排気管20から外部に排出されるようになっている。
- [0030] 反応容器1を構成する部材、この実施形態の場合は第1～第4反応筒壁12a～12d、下部支持円板14、上部支持円板15及び上部円環板17と、ガス供給内筒6と、ガス排気外筒8とは、それぞれカーボンで形成されていると共に、該カーボンの表面に炭化珪素がコーティングされている。
- [0031] 上記収納容器5は、断熱材3の半径方向外側に配置される筒状壁34と、その筒状壁34の上端に一体に設けられたテーパ部35とを備え、その内側の断熱材3とともに上記反応容器1を囲うものであり、上記冷却筒9はテーパ部35の上端に一体に設けられている。上記収納容器5及び上記冷却筒9は、ステンレス製である。
- [0032] 上記加熱機構2は、反応容器1の周囲に反応容器1を囲うように配された発熱体であるヒータ部21と、該ヒータ部21の下部に接続されヒータ部21に電流を流すための電極部22とを備えている。この電極部22は、図示しない電源に接続されている。上記ヒータ部21は、カーボンで形成されている。また、加熱機構2は、反応容器1内が800℃～1400℃の範囲内の温度になるように加熱制御を行う。なお、反応容器1内を1200℃以上に設定すれば、転換率が向上する。また、ジシラン類を導入し、シラン類を取り出してもよい。
- [0033] 上記断熱材3は、例えばカーボンで形成され、上記収納容器5の筒状壁34の内側に配置される筒状壁36と、この筒状壁36の上端と上記ガス排気外筒8との間を閉塞する天板部37とを備えており、下部を円板状の底部支持部材23に支持されている。この底部支持部材23は断熱材3によって囲まれた空間の底部を構成するとともに、収納容器5の底部も兼ねているものである。この場合、断熱材3の筒状壁36は収納

容器5の筒状壁34に若干の隙間を空けてほぼ内貼りされたように配置されるが、断熱材3の天板部37は、上記収納容器5のテーパ部35及びガス排気外筒8との間に円錐環状の空間38を形成している。この断熱材3は、この断熱材3によって囲まれた空間に対して厳密な気密構造を有するものではない。

[0034] なお、上記上部円環板17の下面には、反応流路30のうちの最も外側の小空間11d内に突出した温度センサSが固定されている。この温度センサSで温度を測定しながら、加熱機構2により温度制御を行う。

[0035] 上記アルゴン供給機構10は、底部支持部材23を貫通して収納容器5内(図1の例では断熱材3に囲まれた空間内)に先端が突出したアルゴン供給管24と、アルゴン供給管24に接続されたアルゴン供給源25とを備えている。なお、このアルゴン供給機構10は、収納容器5内が所定の加圧状態となるようにアルゴンの供給制御を行っている。また、収納容器5内に供給されるアルゴンは、収納容器5の上部から内部に突出したガス排気外筒8の下部周囲(上記円錐環状の空間38)にも供給されるようになっている。なお、収納容器5の上部には、内部雰囲気置換やアルゴンの排気を行うための容器用ポンプP1が接続されている。

[0036] このように本実施形態では、反応容器1上のガス供給内筒6の外側に配されたガス排気外筒8が、水冷の冷却筒9の内側に支持されているので、反応容器1から排出される高温状態の反応生成ガスがガス排気外筒8の内側の排気流路7を流れて排出する際に、外側の冷却筒9によって急冷されると共に、内側のガス供給内筒6を流れる供給ガスとの間でガス供給内筒6の広い円筒表面を介して熱交換が行われてさらに冷却される。

[0037] すなわち、冷却筒9による冷却及び供給ガスとの熱交換による冷却の両効果によって、反応生成ガスが急激に冷却されて排出されるので、転換の逆反応が抑制されて安定した転換反応が維持され、転換率を向上させることができる。また、本実施形態のトリクロシラン製造装置では、ガス同士の熱交換機構が反応容器1の上部に一体化して設けられることになり、全体を小型化することができる。

[0038] また、アルゴン供給機構10により収納容器5内にアルゴンが供給されるので、反応容器1周囲をアルゴンにより加圧状態にすることで、反応容器1から供給ガスや反応

生成ガスが漏洩することを防ぐことができる。これにより、反応容器1から漏洩した供給ガスや反応生成ガスが反応容器1外側の加熱機構2等に使用されるカーボンと反応することを防ぐことができる。さらに、アルゴン供給機構10によりガス排気外筒8の周囲にもアルゴンを供給することにより、ガス排気外筒8をより冷却することもでき、内側を流通する反応生成ガスの急冷をより促進することも可能である。

[0039] なお、アルゴンをパージガスとして供給する場合には、アルゴン供給機構10では、収納容器5の下部からアルゴンを供給するので、ヒータ部21による加熱で自然対流が上向きに生じる。そして、収納容器5上部に接続された容器用ポンプP1から吸引することで、パージガスが下から上へとスムーズに流れて抜けることで、高いパージ効果を得ることができる。

[0040] また、第1～第3反応筒壁12a～12cに、内側から順に下部と上部とに交互に流通用貫通孔13が形成されているので、ガスは反応流路30の外側に移動する度に下部から上部へ、上部から下部へと交互に流れ方向を変える。したがって、反応容器1内に長い反応流路30が確保されると共に複数枚の第1～第4反応筒壁12a～12dで伝熱面積が増大されることで、供給ガスが反応するために必要な十分な保持時間及び加熱を確保することができ、転換率をより向上させることができる。また、反応流路30が上下に折り返し連続して構成されることで、反応容器1全体を小型化できると共に、反応容器1全体の熱放散を低くすることが可能になる。

[0041] さらに、第1反応筒壁12aの上部にガス供給内筒6が連通されていると共に、反応流路30の最も外側の小空間11dに排気流路7が接続されているので、加熱機構2により最も高温状態とされた反応生成ガスが最も外側の小空間11dからガス排気外筒8内の排気流路7へと導かれる。したがって、最も高温状態とされた反応生成ガスが、ガス排気外筒8内で急冷されることで、より急激な冷却作用が得られ、安定した転換反応を得ることができる。

[0042] ところで、各反応筒壁12a～12dは、加熱機構2からの熱によって熱膨張が生じ、特に、最も加熱機構2に近い外側の第4反応筒壁12dの熱膨張が大きくなる。この場合、これら反応筒壁12a～12dを下方から支持している下部支持円板14は、その中央部が支持柱部材16に支持され、その支持部分の周囲は底部支持部材23から浮

かされた状態となっているため、支持柱部材16を中心とする撓み変形が容易な状態とされている。したがって、反応筒壁12a～12dの熱膨張に対して下部支持円板14が撓み変形することにより、その応力を吸収することができる。

[0043] 一方、反応筒壁12a～12dの上端は、第1反応筒壁12aから第3反応筒壁12cまでが上部支持円板15に当接し、第4反応筒壁12dは上部円環板17に当接しており、各反応筒壁12a～12dの熱膨張を上部支持円板15と上部円環板17との二か所に分散して受けることになる。そのうち、上部支持円板15は、下部支持円板14と同様、中央部が支持された状態で外周部はフリーな状態とされていることから、撓み変形が容易である。上部円環板17は断熱材3の表面に固定されているから、第4反応筒壁12dの熱膨張は主として下部支持円板14の撓み変形によって吸収することになるが、断熱材3としてクッション性を有するものを使用すれば、下部支持円板14の撓み変形とともに断熱材3の変形によっても熱膨張を吸収することができる。

[0044] このように反応筒壁12a～12dの熱膨張を上下の支持円板14、15の撓み変形等によって効率よく吸収することができるとともに、上部支持円板15と上部円環板17とは応力を分散して受けることになり、割れ等の発生を防止することができる。また、反応筒壁12a～12dの熱膨張に伴い、これら反応筒壁12a～12dと上下の支持円板14、15及び上部円環板17との密接力がより強められることになり、セルフシーリング効果が高まって各小空間12a～12d間でのガスのリークが防止され、長い反応流路30としての信頼性が高められる。

[0045] 下部支持円板14が底部支持部材23から浮かされていることから、その間の空間による断熱作用も加わって、高い断熱性を発揮することができる。

[0046] また、炭化珪素でコーティングされたカーボンで反応容器1の構成部材(第1～第4反応筒壁12a～12d、下部支持円板14、上部支持円板15、上部円環板17、ガス供給内筒6及びガス排気外筒8)が構成されているので、カーボンと供給ガス及び反応生成ガス中の水素、クロロシラン及び塩化水素(HCl)とが反応してメタン、メチルクロロシラン、炭化珪素等が生成されて不純物となることを防ぎ、純度の高いトリクロロシランを得ることができる。

[0047] 本発明の技術範囲は上記実施形態に限定されるものではなく、本発明の趣旨を逸

脱しない範囲において種々の変更を加えることが可能である。

- [0048] 例えば、上記実施形態では、4つの第1～第4反応筒壁12a～12dを用いたが、3又は5以上の反応筒壁を採用しても構わない。なお、反応筒壁の枚数が多いと、伝熱面積が増えてエネルギー効率が上がる反面、加熱機構2による輻射熱が内側に伝わり難くなって加熱効果が低下するため、反応筒壁は、ガス流量及び装置全体の大きさに応じて適切な枚数に設定される。
- [0049] また、収納容器5の壁内部に水等の冷媒を流通させる冷媒路を形成し、冷却機構を付加してもよい。
- [0050] さらに、互いの周面間に流路を形成する両反応筒壁の流通用貫通孔13は、上下位置だけでなく互いに周方向にずれて形成されていてもよい。この場合、流通用貫通孔13間の流路をより長くすることができる。また、貫通孔でなくともよく、反応筒壁の上端部又は下端部に形成した切欠による構成としてもよい。本発明の流通用貫通部は貫通孔、切欠のいずれをも含むものである。
- [0051] また、下部支持円板14のリング状溝31に反応筒壁12a～12dをはめ込む構成としたが、そのリング状溝は図1に示される断面矩形のものだけでなく、反応筒壁の端面を断面半円形にして、リング状溝も断面半円形のものとするにより、若干の回転が可能ないようにしてもよく、下部支持円板の撓み変形を円滑にすることができる。
- [0052] また、このリング状溝は各反応筒壁を同心状に位置合わせして配置する機能を有するものであるが、このリング状溝を形成するのではなく、下部支持円板の上面は平坦面として反応筒壁を載置し、各反応筒壁の間に相互位置関係を拘束するためのリング状のスペーサを介在させる構成としてもよい。
- [0053] さらに、上記実施形態では、反応容器の上方にガス供給内筒とガス排気外筒とを設けて、反応容器の上部に供給ガスを供給し、反応生成ガスも反応容器の上部から排出するように構成したが、反応容器の下方にガス供給内筒とガス排気外筒とを設けて、反応容器の下部に供給ガスを供給し、反応容器の下部から反応生成ガスを排出するように構成してもよい。

実施例

- [0054] 図1に示すトリクロシラン製造装置を使用して、以下の実験条件の下に転換率を

測定した。比較例としては、図1に示すトリクロロシラン製造装置における供給ガスの入り口と出口とを逆にし、ガス排気管20から供給ガスを供給し、反応生成ガスが供給ガス導入管19から排出されるようにしたものを用いた。

[0055] 実験条件としては、供給ガス中のテトラクロロシラン及び水素の各投入流量、加熱機構におけるヒータ部の加熱温度を変えた表1に示す実験条件1～3の3通りとした。

[0056] [表1]

	実験条件 1	実験条件 2	実験条件 3
テトラクロロシラン投入流量 (L/min)	6	8	4
水素投入流量 (L/min)	2 4 0 0	2 8 0 0	2 0 0 0
ヒータ部の加熱温度 (°C)	1 2 0 0	1 2 0 0	1 1 0 0

[0057] これら3条件において、供給ガスの投入流量はマスフローコントローラーを用いて一定流量を確保し、反応生成ガスの組成をガスクロマトグラフを用いて測定した。反応時間は流量・温度が安定した時点を基準として48時間とした。転換率は、その反応時間中に投入された総テトラクロロシランがトリクロロシランに転換された比率 (mol%) とした。結果は表2の通りであり、本発明の実施例の構成の場合、比較例に比べて約40%転換率が向上している。

[0058] [表2]

実験条件	対象	転換率 (mol / %)
実験条件 1	実施例	2 6
	比較例	1 9
実験条件 2	実施例	2 4
	比較例	1 7
実験条件 3	実施例	2 1
	比較例	1 5

産業上の利用可能性

[0059] 本発明に係るトリクロロシラン製造装置によれば、冷却筒による冷却及び供給ガスとの熱交換による冷却の両効果によって、反応生成ガスが急激に冷却され、転換の逆反応が抑制されて高い転換率でトリクロロシランを得ることができる。

請求の範囲

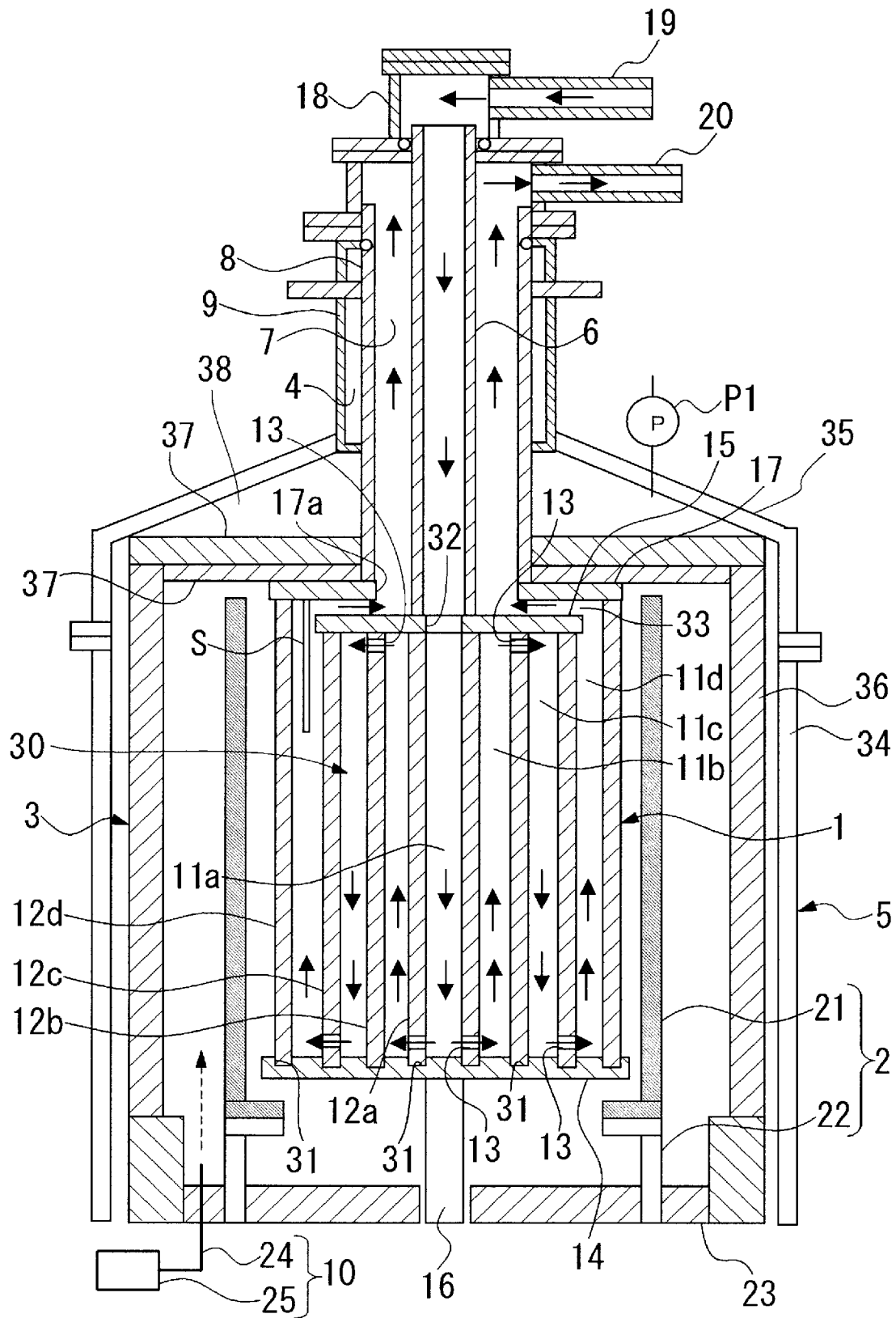
- [1] トリクロロシラン製造装置であって、
テトラクロロシランと水素とを含む供給ガスが内部に供給されてトリクロロシランと塩化水素とを含む反応生成ガスが生成される反応容器と、
前記反応容器の内部を加熱する加熱機構と、
前記反応容器及び前記加熱機構を収納する収納容器と、
前記反応容器内に前記供給ガスを供給するガス供給内筒と、
前記ガス供給内筒の外側にほぼ同軸で配され前記ガス供給内筒の外周面と自己の内周面との間に前記反応生成ガスの排気流路が形成されたガス排気外筒と、
前記ガス排気外筒を内側で支持し内部に冷媒を流通させる冷媒路が形成された冷却筒とを備えているトリクロロシラン製造装置。
- [2] 請求項1に記載のトリクロロシラン製造装置において、
前記収納容器内にアルゴンを供給するアルゴン供給機構を備えているトリクロロシラン製造装置。
- [3] 請求項1に記載のトリクロロシラン製造装置において、
前記反応容器の内部には、ほぼ同心配置された内径の異なる複数の反応筒壁によって仕切られた複数の小空間を、これら反応筒壁の下部と上部とに交互に形成した流通用貫通部によって内側から順に連通状態としてなる反応流路が形成され、
該反応流路に前記ガス供給内筒及びガス排気外筒が接続されているトリクロロシラン製造装置。
- [4] 請求項3に記載のトリクロロシラン製造装置において、
前記複数の小空間のうち最も内側の小空間に前記ガス供給内筒が連通されていると共に、最も外側の小空間に前記排気流路が接続されているトリクロロシラン製造装置。
- [5] 請求項1から4のいずれか一項に記載のトリクロロシラン製造装置において、
前記ガス供給内筒及び前記ガス排気外筒は、前記反応容器の上方に配置されるとともに、
前記反応容器の底板の中央部が、前記収納容器内に上向きに突出する支持柱部

材によって下方から支持されているトリクロロシラン製造装置。

- [6] 請求項1から4のいずれか一項に記載のトリクロロシラン製造装置において、
前記反応容器を構成する部材が、カーボンで形成されているトリクロロシラン製造装置。
- [7] 請求項6に記載のトリクロロシラン製造装置において、
前記カーボンの表面が、炭化珪素でコーティングされているトリクロロシラン製造装置。
- [8] 請求項5に記載のトリクロロシラン製造装置において、
前記反応容器を構成する部材が、カーボンで形成されているトリクロロシラン製造装置。
- [9] 請求項8に記載のトリクロロシラン製造装置において、
前記カーボンの表面が、炭化珪素でコーティングされているトリクロロシラン製造装置。
- [10] 請求項2に記載のトリクロロシラン製造装置において、
前記反応容器の内部には、ほぼ同心配置された内径の異なる複数の反応筒壁によって仕切られた複数の小空間を、これら反応筒壁の下部と上部とに交互に形成した流通用貫通部によって内側から順に連通状態としてなる反応流路が形成され、
該反応流路に前記ガス供給内筒及びガス排気外筒が接続されているトリクロロシラン製造装置。
- [11] 請求項10に記載のトリクロロシラン製造装置において、
前記複数の小空間のうち最も内側の小空間に前記ガス供給内筒が連通されていると共に、最も外側の小空間に前記排気流路が接続されているトリクロロシラン製造装置。
- [12] 請求項10または11に記載のトリクロロシラン製造装置において、
前記ガス供給内筒及び前記ガス排気外筒は、前記反応容器の上方に配置されるとともに、
前記反応容器の底板の中央部が、前記収納容器内に上向きに突出する支持柱部材によって下方から支持されているトリクロロシラン製造装置。

- [13] 請求項10または11に記載のトリクロロシラン製造装置において、
前記反応容器を構成する部材が、カーボンで形成されているトリクロロシラン製造装置。
- [14] 請求項13に記載のトリクロロシラン製造装置において、
前記カーボンの表面が、炭化珪素でコーティングされているトリクロロシラン製造装置。
- [15] 請求項12に記載のトリクロロシラン製造装置において、
前記反応容器を構成する部材が、カーボンで形成されているトリクロロシラン製造装置。
- [16] 請求項15に記載のトリクロロシラン製造装置において、
前記カーボンの表面が、炭化珪素でコーティングされているトリクロロシラン製造装置。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2007/070843

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C01B33/107(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)

C01B33/00-33/193

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	1996-2008
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2008	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2008

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 57-12826 A (Wacker-Chemitronic Gesellschaft fur Elektronik-Grundstoffe mbH), 22 January, 1982 (22.01.82), Page 2, upper left column, lines 3 to 8; page 3, upper left column, lines 12 to 16; page 4, upper left column, line 3 to upper right column, line 8; Fig. 4 & US 4536642 A	1-16
A	JP 62-21706 A (Nippon Steel Corp.), 30 January, 1987 (30.01.87), Page 5, upper left column, lines 3 to 10; page 5, upper right column, lines 3 to 4; page 5, upper right column, lines 6 to 8 (Family: none)	1-16

☒ 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
15 January, 2008 (15.01.08)

Date of mailing of the international search report
29 January, 2008 (29.01.08)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2007/070843

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 62-123011 A (Kojundo Shirikon Kabushiki Kaisha), 04 June, 1987 (04.06.87), Claim 1; page 3, lower right column, line 5 to page 4, upper left column, line 14; Fig. 2 (Family: none)	1-16
A	JP 57-156318 A (Kojundo Shirikon Kabushiki Kaisha), 27 September, 1982 (27.09.82), Page 3, lower left column, lines 2 to 15; Fig. 3 (Family: none)	1-16
A	JP 9-157073 A (Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha), 17 June, 1997 (17.06.97), Claims 1, 4; Par. No. [0002] (Family: none)	1-16

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. C01B33/107 (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. C01B33/00-33/193

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 0 8 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 0 8 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 0 8 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 請求の範囲の番号
A	JP 57-12826 A(ワツーカー・ヘミトロン・ゲゼルシャフト・フュア・ エレクトロニク・グルントシユトツフエ・ミツト・ベシユレンクテル・ハフツン グ)1982. 01. 22, 第2頁左上欄第3行-第8行, 第3頁左上欄第12行 -第16行, 第4頁左上欄第3行-右上欄第8行, 第4図 &US 4536642 A	1-16
A	JP 62-21706 A(新日本製鐵株式会社)1987. 01. 30, 第5頁左上 欄第3行-第10行, 第5頁右上欄第3行-第4行, 第5頁右上欄第6行 -第8行(ファミリーなし)	1-16

☒ 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

1 5 . 0 1 . 2 0 0 8

国際調査報告の発送日

2 9 . 0 1 . 2 0 0 8

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)

西山 義之

4 G

3 1 2 9

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

C (続き) . 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 請求の範囲の番号
A	JP 62-123011 A(高純度シリコン株式会社)1987. 06. 04, 請求項1, 第3頁右下欄第5行-第4頁左上欄第14行, 第2図(ファミリーなし)	1-16
A	JP 57-156318 A(高純度シリコン株式会社)1982. 09. 27, 第3頁左下欄第2行-第15行, 第3図(ファミリーなし)	1-16
A	JP 9-157073 A(電気化学工業株式会社)1997. 06. 17, 請求項1, 4, 【0002】(ファミリーなし)	1-16