

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第5568142号
(P5568142)

(45) 発行日 平成26年8月6日(2014.8.6)

(24) 登録日 平成26年6月27日(2014.6.27)

(51) Int. Cl. F I
C O I F 7/50 (2006.01) C O I F 7/50

請求項の数 28 (全 16 頁)

(21) 出願番号	特願2012-546530 (P2012-546530)	(73) 特許権者	392026316
(86) (22) 出願日	平成22年12月18日 (2010.12.18)		エムイーエムシー・エレクトロニック・マ
(65) 公表番号	特表2013-516376 (P2013-516376A)		テリアルズ・インコーポレイテッド
(43) 公表日	平成25年5月13日 (2013.5.13)		MEMC ELECTRONIC MAT
(86) 国際出願番号	PCT/IB2010/055926		ERIALS, INCORPORATED
(87) 国際公開番号	W02011/080656		アメリカ合衆国63376ミズーリ州 セ
(87) 国際公開日	平成23年7月7日 (2011.7.7)		ント・ピーターズ、パール・ドライブ50
審査請求日	平成25年5月31日 (2013.5.31)		1番
(31) 優先権主張番号	61/291, 141	(74) 代理人	100100158
(32) 優先日	平成21年12月30日 (2009.12.30)		弁理士 鮫島 睦
(33) 優先権主張国	米国 (US)	(74) 代理人	100068526
			弁理士 田村 恭生
		(74) 代理人	100138863
			弁理士 言上 恵一

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 三フッ化アルミニウムを生成する方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

三フッ化アルミニウムを生成する方法であって、

少なくとも30質量%のアルカリ金属もしくはアルカリ土類金属とアルミニウムとのフッ化物塩を含むフルオロアルミン酸塩の供給物を酸に接触させ、三フッ化アルミニウムと少なくとも一種の副生成物とを生成する工程を備える方法。

【請求項 2】

上記供給物は、少なくとも70質量%の、アルカリ金属もしくはアルカリ土類金属とアルミニウムとのフッ化物塩を含む請求項1記載の方法。

【請求項 3】

上記酸は、塩酸、硫酸およびこれらの混合物から選択される請求項2記載の方法。

【請求項 4】

上記供給物をシリコンソースの不存在下酸と接触させる請求項1～3のいずれかに記載の方法。

【請求項 5】

上記のアルカリ金属もしくはアルカリ土類金属とアルミニウムとのフッ化物塩が、 NaAlF_4 、 $\text{Na}_5\text{Al}_3\text{F}_{14}$ 、 Na_3AlF_6 、およびこれらの混合物からなる群から選択される請求項1～4のいずれかに記載の方法。

【請求項 6】

フッ化水素と、アルカリ金属もしくはアルカリ土類金属の塩化物塩もしくは硫化物塩と

10

20

を副生成物として生成させる請求項 1 ~ 5 のいずれかに記載の方法。

【請求項 7】

上記フッ化水素をシリコンソースと接触させ四フッ化シリコンを生成する請求項 6 記載の方法。

【請求項 8】

上記フッ化物塩がシラン製造による副生成物である請求項 1 ~ 7 のいずれかに記載の方法。

【請求項 9】

上記のアルカリ金属もしくはアルカリ土類金属とアルミニウムとのフッ化物塩を水性の酸に接触させ、

上記のアルカリ金属もしくはアルカリ土類金属とアルミニウムとのフッ化物塩を反応容器に導入し、上記三フッ化アルミニウムと副生成物とを含むスラリーを生成する請求項 1 ~ 8 のいずれかに記載の方法。

【請求項 10】

上記スラリーを固液分離ユニットに導入し、上記三フッ化アルミニウムを含む固体部分と、少なくとも一種の副生成物を含む液体部分とを生成する請求項 9 記載の方法。

【請求項 11】

上記固体部分は、三フッ化アルミニウムおよびアルカリ金属もしくはアルカリ土類金属の塩化物塩もしくは硫化物塩を含み、

上記液体部分は、水、フッ化水素、未反応の酸、およびアルカリ金属もしくはアルカリ土類金属の塩化物塩もしくは硫化物塩を含む請求項 10 記載の方法。

【請求項 12】

上記のアルカリ金属もしくはアルカリ土類金属とアルミニウムとのフッ化物塩を実質的に無水の酸に接触させ、

流動ガスとして酸を含む流動層反応器に上記フッ化物塩を導入する請求項 1 ~ 11 のいずれかに記載の方法。

【請求項 13】

粒子の三フッ化アルミニウムと、アルカリ金属もしくはアルカリ土類金属の塩化物塩もしくは硫化物塩と、を上記流動層反応器内において生成させる請求項 12 記載の方法。

【請求項 14】

上記粒子の三フッ化アルミニウムおよび上記塩を洗浄ユニットに導入し、上記塩から上記三フッ化アルミニウムを分離する工程を備える請求項 13 記載の方法。

【請求項 15】

水素、フッ化水素、および未反応の酸を含む使用済みガスを生成する請求項 13 又は 14 に記載の方法。

【請求項 16】

蒸留塔において、水素、フッ化水素、および未反応の酸の少なくとも一種を分離する工程を備える請求項 15 記載の方法。

【請求項 17】

三フッ化アルミニウムの水和物を生成する請求項 1 ~ 16 のいずれかに記載の方法。

【請求項 18】

上記三フッ化アルミニウムの水和物を乾燥させ、三フッ化アルミニウムの半水和物を生成する請求項 17 記載の方法。

【請求項 19】

三フッ化アルミニウムを生成する方法であって、

アルカリ金属もしくはアルカリ土類金属とアルミニウムとのフッ化物塩を酸に接触させ、三フッ化アルミニウムと少なくとも一種の副生成物とを生成する工程と、

上記三フッ化アルミニウムを上記副生成物から分離する工程と、を備える方法。

【請求項 20】

上記酸は、塩酸、硫酸およびこれらの混合物から選択される請求項 19 記載の方法。

10

20

30

40

50

【請求項 2 1】

上記フッ化物塩をシリコンソースの不存在下酸と接触させる請求項 1 9 又は 2 0 に記載の方法。

【請求項 2 2】

シランと三フッ化アルミニウムとを生成する方法であって、

四フッ化シリコンと、四水素化アルミニウムのアルカリ金属もしくはアルカリ土類金属の塩とを接触させ、シランと、アルカリ金属もしくはアルカリ土類金属とアルミニウムとのフッ化物塩を含む廃液とを生成する工程と、

上記廃液に酸を接触させ、三フッ化アルミニウムと、少なくとも一種の副生成物とを生成する工程と、

上記三フッ化アルミニウムを上記副生成物から分離する工程と、を備える方法。

【請求項 2 3】

上記四フッ化シリコンが、上記四水素化アルミニウムを含む反応溶液中においてバブリングされる請求項 2 2 記載の方法。

【請求項 2 4】

上記四フッ化シリコンと上記四水素化アルミニウムとを、30 ~ 80 に維持されている反応媒体内で接触させる請求項 2 2 または請求項 2 3 に記載の方法。

【請求項 2 5】

上記フッ化物塩を固液分離ユニットにおいて上記反応媒体から分離する請求項 2 4 記載の方法。

【請求項 2 6】

上記廃液は、30 質量% ~ 95 質量% の、アルカリ金属もしくはアルカリ土類金属とアルミニウムとのフッ化物塩を含む請求項 2 2 ~ 2 5 のいずれかに記載の方法。

【請求項 2 7】

上記酸は、塩酸、硫酸およびこれらの混合物から選択される請求項 2 2 ~ 2 6 のいずれかに記載の方法。

【請求項 2 8】

上記廃液をシリコンソース不存在下酸と接触させる請求項 2 2 ~ 2 7 のいずれかに記載の方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本開示内容は、フッ化物化合物を生成するための方法に関し、より詳細には、アルカリ金属もしくはアルカリ土類金属とアルミニウムとのフッ化物塩の酸分解法により三フッ化アルミニウムを生成するための方法に関する。

【背景技術】

【0002】

シランは、多くの工業的使用が可能な多用途の化合物である。半導体産業において、シランは、半導体ウエハ上にエピタキシャルシリコン層を析出させるため、また多結晶シリコンを生産するために用いられる。多結晶シリコンは、例えば集積回路、太陽電池（すなわちソーラーセル）を含む多くの市販品を製造するために使用される必須の原料である。これらは、流動層反応器においてシリコン粒子上においてシランを熱分解することにより生産される。

【0003】

シランは、米国特許第 4,632,816 号に開示されているように、四フッ化シリコンを四水素化アルミニウムナトリウム等のアルカリ金属もしくはアルカリ土類金属水素化アルミニウムに反応させることにより生成される。米国特許第 4,632,816 号は、全て関連付け一貫させるため本明細書に引用して援用する。シランを製造することにより、アルカリ金属もしくはアルカリ土類金属とアルミニウムとの様々なフッ化物塩（具体的には、 NaAlF_4 、 $\text{Na}_5\text{Al}_3\text{F}_{14}$ 、及び Na_3AlF_6 ）などのいくつかの副生成物

10

20

30

40

50

が生成される。従来、これらの廃棄物は低価格で販売されるかもしくはごみ廃棄場に廃棄されていた。

【0004】

三フッ化アルミニウムは、アルミニウム生成のための電解溶液における成分として用いられ様々なフッ素化反応において用いられる、多用途の材料である。従来、三フッ化アルミニウムは、フッ化水素を比較的高価なアルミナもしくはアルミナ三水和物と反応させることにより生成されていた。シリコン三フッ化物は、シランもしくは様々なハロシランを生成するために用いられ、イオンインプランテーション、フッ素化されたシリカのプラズマ析出、純粋シリカもしくは窒化珪素の生成に用いられ、そして金属シリサイドエッチングに使用される多用途の材料である。

10

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0005】

廃棄もしくは安価に販売される材料の量を低減するため、またシラン及びそれにより得られる市販の製品（例えば、太陽電池）を生産する際の経済性を改善させるため、シラン生成の間に生成される廃棄物を再利用する方法に対するニーズが引き続き存在している。また、三フッ化アルミニウムや四フッ化シリコン等の価値ある原材料を生産する方法についてもニーズが存在している。

【課題を解決するための手段】

【0006】

本開示の第1発明では、三フッ化アルミニウムを生成するための方法には、三フッ化アルミニウム及び少なくとも一種の副生成物を生成するため、フルオロアルミン酸塩供給物を酸と接触させることが含まれる。当該供給物は、少なくとも30質量%のアルカリ金属もしくはアルカリ土類金属とアルミニウムとのフッ化物塩を含む。

20

【0007】

第2発明では、三フッ化アルミニウムを生成するための方法には、三フッ化アルミニウムおよび少なくとも一種の副生成物を生成するため、アルカリ金属もしくはアルカリ土類金属とアルミニウムとのフッ化物塩を酸に接触させることが含まれる。三フッ化アルミニウムは、副生成物から分離される。

【0008】

本開示の第3発明は、シランと三フッ化アルミニウムとを生成するための方法に関する。当該方法は、シランと廃棄物とを生成するため、四フッ化シリコンと、四水素化アルミニウムのアルカリ金属塩もしくはアルカリ土類金属塩とを接触させることが含まれる。当該廃棄物は、アルカリ金属もしくはアルカリ土類金属とアルミニウムとのフッ化物塩を含んでいる。当該廃棄物は、三フッ化アルミニウムと少なくとも一種の副生成物とを生成させるため酸と接触させる。三フッ化アルミニウムは、上記副生成物から分離される。

30

【0009】

本開示の上記発明に関して述べた特徴について様々な限定が存在する。同様に、さらなる特徴を、上述された本開示の発明に導入してもよい。これらの限定および付加的特徴は、個々に、または任意に組み合わせて存在してもよい。例えば、本開示の実施の形態に関連して以下に議論された様々な特徴は、単独でもしくは任意に組み合わせて本開示の上述した発明のいずれかに導入してもよい。

40

【発明を実施するための形態】

【0010】

本開示内容の提供には、アルカリ金属もしくはアルカリ土類金属とアルミニウムとのフッ化物塩の酸分解法によりフッ化物（具体的には三フッ化アルミニウムもしくは四フッ化シリコン）を生成する方法が含まれる。酸分解反応は、水性の環境もしくは実質的に無水の環境において起こりうる。他の提供には、シランおよびフルオロアルミン酸塩の副生成物を生成する方法、および三フッ化アルミニウムおよび四フッ化シリコンから選択された原材料を生成するための副生成物の使用が含まれる。

50

【 0 0 1 1 】

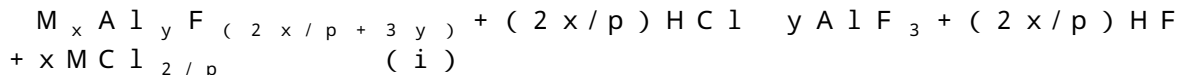
一般的に、アルカリ金属もしくはアルカリ土類金属とアルミニウムとのフッ化物塩を、硫酸、塩酸から選択された酸と接触させることにより反応は進行し、フッ化物化合物（具体的には三フッ化アルミニウムもしくは四フッ化シリコン）と、塩化水素、アルカリ金属もしくはアルカリ土類金属の塩化物塩もしくは硫化物塩等の様々な副生成物とが生成される。シリコンソースの存在下では、四フッ化シリコンが生成される反応が進行しうる。反応がシリコンソースの不存在下で進行する場合、三フッ化アルミニウムが生成される。

【 0 0 1 2 】

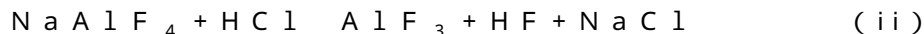
本開示において、“アルカリ金属もしくはアルカリ土類金属とアルミニウムとのフッ化物塩”には、一般式 $M_x Al_y F_z$ （ここで、 x 、 y 、 z は、1～20の整数、もしくはは 1～10の整数であり、 M はアルカリ金属もしくはアルカリ土類金属である）の化合物が含まれる。当該フッ化物塩は、一般的に、本開示の範囲から逸脱しない限り、“フッ化物アルミニウム塩”、“フルオロアルミン酸塩”、もしくは単に“塩”と称することもある。一般的に、当該塩の構造は、本開示において必須ではなく、フッ素原子、アルミニウム原子、アルカリ金属もしくはアルカリ土類金属の原子を含む塩を制限されることなく使用してもよい。いくつかの実施の形態では、本開示内容にしたがって使用されるフッ化物塩には、一般式 $M_x Al_y F_{(2x/p + 3y)}$ （ここで M はアルカリ金属もしくはアルカリ土類金属であり、 M がアルカリ金属である場合 p は 2 であり、 M がアルカリ土類金属である場合 p は 1 である）の化合物が含まれる。

【 0 0 1 3 】

任意の特定の理論に拘束されることなく、フルオロアルミン酸塩と塩酸とがシリコンの不存在下で接触する場合に起こる反応は、以下の一般式により表される

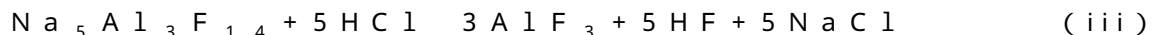


ここで、 M はアルカリ金属もしくはアルカリ土類金属であり、 M がアルカリ金属である場合 p は 2 であり、 M がアルカリ土類金属である場合 p は 1 である。例えば、アルミニウムのフッ化物塩が、 $NaAlF_4$ である場合、反応は以下のように進行する



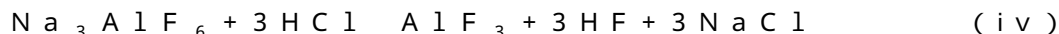
【 0 0 1 4 】

当該塩が $Na_5Al_3F_{14}$ （チオライトとしても知られている）である場合、反応は、反応式 (iii) にしたがって進行する



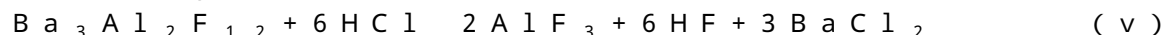
【 0 0 1 5 】

当該塩が Na_3AlF_6 （クリオライトとしても知られている）である場合、反応は、反応式 (iv) にしたがって進行する



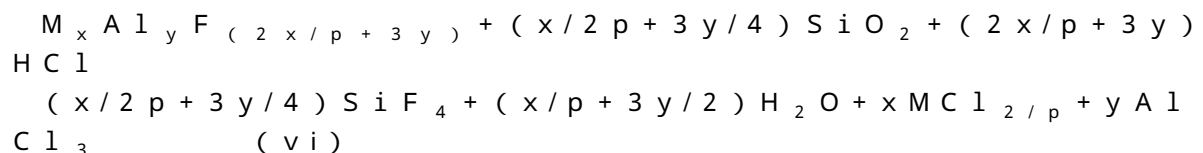
【 0 0 1 6 】

当該塩が $Ba_3Al_2F_{12}$ である場合、反応は、反応式 (v) にしたがって進行する

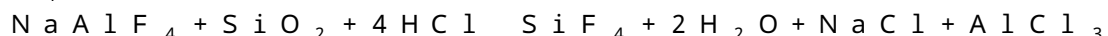


【 0 0 1 7 】

フルオロアルミン酸塩をシリコン（例えば SiO_2 等）のソースの存在下で酸と接触させた場合、反応は以下のように進行すると考えられる



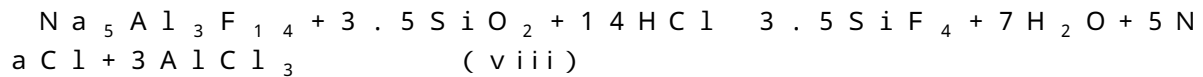
ここで、 M および p は上記定義されている。例えば、アルミニウムのフッ化物塩が $NaAlF_4$ である場合、反応は、反応式 (vii) にしたがって進行する



(vii)

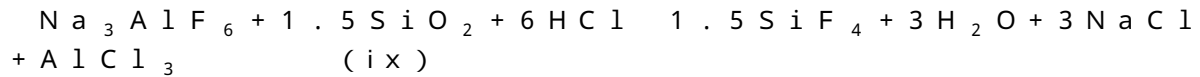
【0018】

当該塩が $\text{Na}_5\text{Al}_3\text{F}_{14}$ である場合、反応は、反応式(viii)にしたがって進行する



【0019】

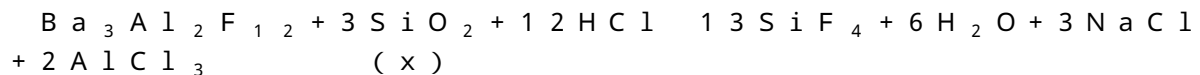
当該塩が Na_3AlF_6 である場合、反応は、反応式(ix)にしたがって進行する



10

【0020】

当該塩が $\text{Ba}_3\text{Al}_2\text{F}_{12}$ である場合、反応は、反応式(x)にしたがって進行する



【0021】

上記反応式は、出発材料としてHClを用いた場合について示されているが、制限されることなく、硫酸等の他の酸を使用してもよいことは理解されよう。これに関して、上記反応は例示のためだけに示され、限定の意味ではないことに留意すべきである。

【0022】

本開示内容に係る方法の実施の形態には、任意としてシリコンソースがあってもなくてもよいが、フルオロアルミン酸塩と酸(具体的にはHClもしくは硫酸)とを反応容器に導入することが含まれる。三フッ化アルミニウム塩(AlF_3)もしくは四フッ化シリコン(SiF_4)等のフッ化物生成物といくつかの副生成物とが生成される。フッ化物生成物、副生成物および任意の未反応の開始材料を浄化システムに導入し、フッ化物生成物を分離し、および/または副生成物を浄化および単離してもよい。

20

【0023】

反応開始材料

様々な実施の形態において、フルオロアルミン酸塩供給材料(同義的に"フルオロアルミン酸塩供給物"、"フルオロアルミン酸塩廃棄物"、もしくは単に"廃棄物")には、アルカリ金属もしくはアルカリ土類金属のフルオロアルミン酸塩が含まれる。適切なアルカリ金属あるいはアルカリ土類金属のフルオロアルミン酸塩には、リチウムフルオロアルミン酸塩、ナトリウムフルオロアルミン酸塩、カリウムフルオロアルミン酸塩、マグネシウムフルオロアルミン酸塩、バリウムフルオロアルミン酸塩、カルシウムフルオロアルミン酸塩、およびこれらの混合物が含まれる。苛性ソーダ、苛性カリ等のナトリウムフィードストックの幅広い利用可能性の観点から、フルオロアルミン酸塩は、シラン生成物の副生成物として生成されたフルオロアルミン酸ナトリウムであってもよい。当該フィードストックは反応して、水素化アルミニウムナトリウムが生成される。水素化アルミニウムナトリウムは、四フッ化シリコンと反応してシランが生成される。1以上のフルオロアルミン酸塩には、本開示の技術的範囲を逸脱しない限り、フルオロアルミン酸塩供給物に含まれる。当該フルオロアルミン酸塩供給物には、 NaAlF_4 、 $\text{Na}_5\text{Al}_3\text{F}_{14}$ 、および Na_3AlF_6 の少なくとも1つが含まれていてもよく、いくつかの実施の形態では、 NaAlF_4 、 $\text{Na}_5\text{Al}_3\text{F}_{14}$ 、および Na_3AlF_6 の混合物が含まれる。

30

40

【0024】

フルオロアルミン酸塩供給物の純度は、当該供給物中の未反応の不純物が後のプロセスにおいて除去されうるため、それ程重要というわけではない。当該フルオロアルミン酸塩供給物には、所定量のシリコン三フッ化物、アルカリ金属もしくはアルカリ土類金属のフッ化物及び/又はアルカリ金属もしくはアルカリ土類金属とアルミニウムとの塩化物塩もしくは他の不純物が含まれていてもよい。様々な実施の形態において、フルオロアルミン酸塩供給物は、乾燥ベースで、約15質量%未満の不純物、もしくは10質量%未満の不純物を含む。本開示において、"不純物"なる用語は、例えば三フッ化アルミニウム及び

50

フッ化物およびフッ化物塩（具体的にはNaF）等のフルオロアルミン酸塩以外の化合物を意味する。

【0025】

フルオロアルミン酸塩供給物中の水分の量は重要ではない。一般的に、フルオロアルミン酸塩供給物は、固体および/または乾燥物（すなわち一般的に流動可能）であってもよいが、しかしながら、いくつかの実施の形態では、フルオロアルミン酸塩供給物は、溶媒に溶解されている。一般的に、溶媒が用いられる場合、水以外の溶媒は、水中におけるフルオロアルミン酸塩の溶解度が低いため好ましい。適切な溶媒は、非極性であって、例えば、ジメトキシエタン（DME）およびトルエンが含まれる。固体のフルオロアルミン酸塩供給物は、約5質量%未満、約1質量%未満、約0.1質量%未満の水を含んでいてもよい。フルオロアルミン酸塩供給物の粒子サイズは、固体反応を容易にするため相対的に小さくてもよいが、しかしながら、当該供給物材料は、それ程困難なく、当該材料を吸収することができる程度に十分大きくなくてはならない。1以上の実施の形態において、フルオロアルミン酸塩の供給物の粒子サイズは、約500μmであってもよく、他の実施の形態では、約300μm未満、約100μm～約500μm、約200μm～約300μmである。いくつかの実施の形態では、フルオロアルミン酸塩は、材料が反応炉まで輸送されるため、水溶液中に含まれている（すなわち、排水路タイプのシステムが用いられる）。

10

【0026】

フルオロアルミン酸塩供給物は、一のフルオロアルミン酸塩（または1以上用いられる場合は複数のフルオロアルミン酸塩）を生成する既知の方法のいずれかにより生成されてもよい。当該方法にはフルオロアルミン酸塩が副生成物として生成されるプロセスが含まれる。いくつかの実施の形態では、フルオロアルミン酸塩供給物は、シラン生成物の副生成物である。シランは、水素化アルミニウム（具体的には、四水素化アルミニウムリチウムもしくは四水素化ナトリウム）を、以下“シランおよびフッ化物生成物の生成”の表題が付けられたセクションに記載され米国特許第4,632,816号に開示されているように、四フッ化シリコンに反応させることにより生成させてもよい。これは、全て関連付け一貫させるため本明細書において引用して援用する。一般的に、そのようなプロセスにより、液体の反応媒体が生成され、（溶解もしくは懸濁された）副生成物の固体が当該反応媒体に含まれる。副生成物の固体は、典型的には多量のフルオロアルミン酸塩を含み、本開示のフルオロアルミン酸塩供給物として使用してもよい。

20

30

【0027】

フルオロアルミン酸塩供給物におけるフルオロアルミン酸塩の量は、乾燥ベースで、フルオロアルミン酸塩供給物に対して少なくとも約30質量%であってもよいし、他の実施の形態では、乾燥ベースで、供給物の少なくとも約50質量%、少なくとも約70質量%、少なくとも約80質量%、少なくとも約90質量%、約30質量%～約95質量%、約70質量%～約95質量%のフルオロアルミン酸塩である。

【0028】

以下、より詳細に説明するように、一般的に、フルオロアルミン酸塩供給物を、酸供給ストリームに存在する酸と反応させる。適当な酸には、HCl、硫酸、もしくはこれらの混合物が含まれる。ある実施の形態では、酸供給ストリームにはHClが含まれ、当該酸供給ストリームに存在する唯一の酸としてHClを含んでいてもよい。HClが水溶液中に含まれる実施の形態において、HClの濃度は、質量ベースで、水溶液の少なくとも約2.5%、少なくとも約7.5%、少なくとも約9%、約3%～約20%、もしくは約3%～約15%であってもよい。硫酸が水溶液に加えらる実施の形態において、硫酸の濃度は、質量ベースで、水溶液の少なくとも約50%、少なくとも約75%、少なくとも約90%、もしくは約75%～約99%であってもよい。

40

【0029】

硫酸およびHClとの混合物を酸供給ストリームにおいて使用してもよい。当該混合物は、乾燥ベースで少なくとも約10質量%のHClを含んでいてもよく、乾燥ベースで少

50

なくとも約25%、少なくとも約50%、少なくとも約75%もしくは少なくとも約90%のHClを含んでいてもよい。ある実施の形態では、酸供給物にはHClが含まれ、硫酸は含まれていなくてもよいし、もしくは、硫酸が含まれ、HClは含まれていなくてもよい。

【0030】

他の実施の形態では、酸は、実質的に無水のガストリームである。本開示において、概して、“実質的に無水の”とは、約5質量%未満の水を含むプロセスストリームを意味する。いくつかの実施の形態では、当該酸供給物は、約1質量%未満の水を含み、もしくは約0.1質量%未満の水を含む。

【0031】

上述したように、シリコンソースは、任意ではあるが、反応混合物に含まれていてもよい。シリコンの存在は、フッ化物の生成物を決定する(すなわち、シリコンの存在下ではSiF₄が生成され、シリコンが存在しない場合はAlF₃が生成される)。シリコンソースには、砂(すなわちSiO₂)、水晶、フリット、珪藻岩、ケイ酸金属塩、冶金グレードのシリコン(すなわち多結晶シリコン)、ヒュームドシリカ、フルオロケイ酸、およびこれらの混合物が含まれる。所定量のシリコン不純物は、フルオロアルミン酸塩供給物中に存在してもよい(具体的には、フルオロアルミン酸塩供給物がシラン生成物の副生成物である場合)。

【0032】

反応条件

一般的に、本開示の反応は、反応容器中でフルオロアルミン酸塩供給物を酸供給物に接触させ適当な反応混合物が生成される際に起きる。当該反応は、以下、より詳細に説明するが、水性の環境もしくは無水の環境において起こりうる。

【0033】

当該反応容器に加えられたフルオロアルミン酸塩に対する酸のモル比は、フルオロアルミン酸塩開始材料に依存し、反応式i~xから決定されうるおよそ化学量論比であってもよい(反応式iiiに示したように、5モルの酸が1モルのチオライトに対して加えられる)。これに代えて、モル過剰の酸(具体的には、少なくとも約5%の過剰モルの酸、少なくとも約10%、少なくとも約25%、少なくとも約50%、少なくとも約100%、少なくとも約250%、もしくは少なくとも500%の過剰モルの酸)を使用してもよい。様々な実施の形態において(使用されるフルオロアルミン酸塩開始材料に依存して)、反応容器に供給された酸(具体的にはHClもしくは硫酸)の、反応容器に供給されたフルオロアルミン酸塩の量に対するモル比(もしくは、連続システムにおける付加物の速度の比率)は、少なくとも約1:1、少なくとも約2:1、少なくとも約3:1、少なくとも約10:1、少なくとも約25:1、少なくとも約50:1もしくは少なくとも約100:1であってもよい。いくつかの実施の形態では、当該比率は、約1:1~約100:1、約1:1~約50:1、もしくは約1:1~約25:1である。

【0034】

シリコン(すなわち砂)のソースを、化学量論比に近いフルオロアルミン酸塩に係る比率で反応容器に加えてもよい。例えば、上記のように、反応式vi~xに示すように反応混合物に加えられたフッ素原子に対する、シリコン原子の比率は約1:4であってもよい。これに代えて、シリコンを過剰モルで加えてもよい。例えば、反応容器に加えられたフッ素原子に対する、シリコンのモル比は、約1:3.5より大きくてもよいし、約1:3より大きくてもよいし、約1:2より大きくてもよいし、もしくは少なくとも約1:1であってもよい。これに代えて、もしくはこれに加えて、過剰モルのシリコンは、少なくとも約5%、少なくとも約10%、少なくとも約25%、少なくとも約50%、少なくとも約100%、少なくとも約250%もしくは少なくとも約500%であってもよい。これに関して、シリコンソースを、上記列挙した以外の量で加えてもよいことに留意すべきである。シリコンは、反応生成物が、四フッ化シリコンおよび三フッ化アルミニウムの両方を含むように、およそ化学量論比未満の比率で加えてもよい(すなわち、シリコンが存在

10

20

30

40

50

する場合、当該反応により、四フッ化シリコンになり、シリコンが消費され存在しない場合、三フッ化アルミニウムとなる)。シリコンは、反応容器に分離して加えてもよいし、もしくは反応容器に導入する前にフルオロアルミン酸塩供給物と混合してもよい。

【0035】

i 水性反応系

ある実施の形態では、酸の水溶液が当該反応系において使用される。酸は、フルオロアルミン酸塩が供給される反応容器に存在する。酸は、連続的なプロセスにおいて、反応容器に連続的に供給してもよいし、極微量の酸を、バッチプロセスにおいて存在させてもよい。当該酸は、酸の水溶液として供給してもよいし、もしくは反応容器に存在する水溶液に溶解するガスとして供給してもよい。

10

【0036】

水性反応系(aqueous reaction systems)において、反応容器の含有量は、例えば、機械的攪拌(具体的にはインペラーもしくはバブリング作用)により連続的に混合してもよい。水性反応系を用いるある実施の形態において、反応容器の温度は、常温(約20 ~ 約25)であり、これに代えて、もしくはこれに加えて、当該温度は、反応の間制御される必要はなく、いくつかの実施の形態において過剰の熱もしくは冷却が用いられない。他の実施の形態において、反応炉の温度は、少なくとも約100、少なくとも約150、少なくとも約200、常温~約250、もしくは100 ~ 約250に維持される。一般的に、酸の濃度が上昇している場合、反応容器が当該反応を完了させるために維持されるべき温度は減少する。

20

【0037】

水性系における反応容器の設計は、当該技術の一の当業者の能力の範囲内に含まれ、これは、所望の生成速度、変換効率、オペレーション温度等に依存する。ある実施の形態において、反応容器は、攪拌タンクであり、他の実施の形態では、ペリーのケミカルエンジニアハンドブック第7巻(1997)の第23頁~第49頁に記載されているスラリーバブルカラムである。これは、全て関連付け一貫させるため本明細書に引用して援用する。スラリーバブルカラムは、トップもしくはサイドインジェクションによりフルオロアルミン酸塩材料を(粉末もしくはスラリーとして)カラム内の水溶性の反応混合物に連続的に加え、酸に(具体的にはスパージャーにより)バブリングを行うことにより稼働させる。当該反応スラリーは、カラムの底部から取り除いてもよい。これに代えて、スラリーバブルカラムは、酸性ガスを底部のスパージャーで加えつつ、各ストリームが反応炉に上部もしくはサイドから加えられるバッチモードで稼働させてもよい。反応は、所望の滞留時間起こってもよく、反応の内容物は、反応炉からその後取り除かれてもよい。

30

【0038】

反応容器の圧力は、およそ大気圧であってもよいし、もしくは少なくとも約5バール、少なくとも約10バール、少なくとも約15バール、およそ大気圧~約20バール、およそ大気圧~約15バール、もしくはおよそ大気圧~約10バールの圧力に維持してもよい。

【0039】

一般的に、バッチシステムにおいて、当該反応により、少なくとも約10分、少なくとも約30分、少なくとも約60分、少なくとも約90分、約10分~約120分、もしくは約15分~約60分の間処理される。連続的なシステムにおいて、当該反応容器における滞留時間は、約1分~約60分、もしくは約5分~約30分であってもよい。

40

【0040】

ii. 無水反応系

いくつかの実施の形態において、フルオロアルミン酸塩に接触させる酸は、実質的に無水のガストリームである。例えば、実質的に無水の酸(具体的には、実質的に無水のHClもしくは硫酸)は、フルオロアルミン酸塩および任意ではあるがシリコンソースが懸濁されている反応容器、例えば流動層反応炉に供給されてもよい。

【0041】

無水系における反応容器の設計は、一般的に、当該技術の当業者の能力の範囲内に含ま

50

れ、所望の生産速度、変換効率、オペレーション温度等に依存する。当該反応系は、本開示内容の技術的範囲から逸脱しない限り、バッチ、または連続的もしくはセミバッチであってもよい。流動層反応炉が反応容器として用いられる実施の形態において、概して、流動層反応炉は、円柱状の垂直容器であってもよいが、しかしながら、流動層オペレーションに受け入れられる任意の構成を用いることができる。容器の特定の寸法は、主に、システムデザインファクターに依存するであろう。当該ファクターは、本開示内容の技術的範囲から逸脱することなく、所望のシステムアウトプット、熱伝達係数、システム流体動力学等、システム毎に異なる。

【0042】

反応系のオペレーションの間、流動層反応炉の反応ゾーンを通る流動層ガス速度が、フルオロアルミン酸塩および任意ではあるがシリコンソースの最小流動化速度を超えて維持される。上記流動層反応炉を通過するガスの速度は、一般的に、流動層内において粒子を流動化させるために必要とされる最小流動化速度の約1～8倍の速度で実行される。実施の形態において、最小流動化速度は、含まれるガスおよび粒子の特性に依存して変動する。最小流動化速度は、従来手法（ペリーのケミカルエンジニアリングハンドブック第7巻の第17行目～4行目参照。これは、全て関連付け一貫させるため本明細書に引用して援用する。）により決定してもよい。本開示内容は、特定の最小流動化速度に限定されず、本開示に使用される最小流動層に有益な最小流動化速度は、約0.7cm/秒～約350cm/秒、もしくは約6cm/秒～約150cm/秒に亘る。

【0043】

より高い生産性を達成するために、通常、最小流動化速度より高いガス速度が望まれるが、ガス速度が最小流動化速度を超えて増加すると、過剰なガスによりバブルが形成され、流動層空隙率が増加する。当該流動層は、シリコン粒子に接触したガスを含むバブル及び“エマルジョン”からなると見ることができる。エマルジョンの質は、最小流動化条件における流動層の質と全く同じである。エマルジョンにおける局所的な空隙率は、最小流動層空隙率に近い。その上、最小流動化を達成するために必要とされるものを超えてガスが導入されるとバブルが形成される。実効ガス速度の、最小流動化速度に対する比率が増加すると、バブルの形成が増加する。当該比率が非常に高い場合、当該流動層に大きな塊のガスが形成される。流動層の空隙率が全ガス流速とともに増加すると、固体と気体との接触は効率的でなくなる。所定体積の流動層について、反応するガスと接触している固体の表面積が、流動層空隙率の増加とともに減少し、結果として、フッ化物生成物への変換が減少する。したがって、ガス速度は、変換が受け入れ可能なレベル内に維持されるように制御されるべきである。

【0044】

反応容器（流動層反応炉以外の反応容器が使用される実施の形態を含む）の温度は、少なくとも約75℃、少なくとも約150℃、少なくとも約200℃、約75℃～約300℃、約75℃～約200℃の温度に維持してもよい。このような温度に反応領域を維持するために使用される熱は、反応炉の管状壁の外部に配置された電気抵抗ヒータ等の従来の加熱システムにより与えられてもよい。当該反応炉の管は、約1パール～約20パールもしくは約1パール～約10パールの圧力で操作してもよい。反応炉における滞留時間は、約10分未満、約5分未満、もしくは約1分未満であってもよい。

【0045】

一般的に、フッ化物生成物を生成する水性系および無水系の両方において、フッ化物生成物へのフルオロアルミン酸塩の変換は、少なくとも約50%であってもよく、他の実施の形態では、少なくとも約60%、少なくとも約75%、少なくとも約90%もしくは少なくとも約95%（具体的には、約50%～約98%、約60%～約98%、約75%～約98%）である。

【0046】

本開示の技術的範囲から逸脱しない限り、上述の反応を実行することができる任意の炉を使用してもよいことに留意すべきである。さらに、本開示の実施の形態に係るプロセス

10

20

30

40

50

は、連続的なもしくはバッチのシステムにおいて行ってもよいし、単一の反応容器において行ってもよいし、直列的にもしくは並列的に構成された1以上の反応容器を組み込んでよい。

【0047】

フッ化物生成物の回収および副生成物の処理

本開示の方法は、概して、フッ化物生成物（具体的には、三フッ化アルミニウムおよび/または四フッ化シリコン）と1以上の副生成物とを調製することが含まれる。様々な生成物および上述の反応の副生成物が、表1に例示され、以下、より詳細に記載されている。フッ化物生成物（具体的には、三フッ化アルミニウムもしくは四フッ化シリコン）を分離および浄化させるための装置および方法は、概して制限されることなく、当該技術分野における当業者に知られ利用されている装置および方法のいずれかから選択してもよい。無水系は、スラリー処理オペレーションを含まないため、オペレーションが水性系より容易である。しかしながら、無水系は、フルオロアルミン酸塩供給物（およびもし含まれていればシリコンソース）の制御された粒径分布を含んでいてもよく、より高い処理温度を含んでいてもよい。

【表1】

	水性系； シリコン不 存在	水性系； シリコン存在	無水系； シリコン不存 在	無水系； シリコン存在
フッ化物生成物	AlF_3 （懸濁されている）	SiF_4 （g）	AlF_3 （s）	SiF_4 （g）
固体もしくは懸濁された副生成物	塩	塩	塩	塩
液体の副生成物	HF（溶解されている） 塩（溶解されている）	HF（溶解されている） 塩（溶解されている）	—	—
気体の副生成物	HF H_2	HF F_3SiOSi F_3	HF H_2	HF

表1：シリコンの存在下および不存在下において、無水系および水性系で生成された生成物および副生成物

【0048】

シリコンソースを含まない水性系において、反応完了後、反応混合物は、所定量の三フッ化アルミニウム生成物を含んでいる。当該三フッ化アルミニウム生成物は、反応混合物の中で懸濁されている。酸塩（具体的には、アルカリ金属もしくはアルカリ土類金属の塩化物もしくは硫化物）は、典型的には、懸濁された固体として存在しているか、および/または水溶性の反応混合物中に溶解されている。当該反応により、所定量のフッ化水素が生成されてもよい。当該フッ化水素は、反応混合物に溶解されていてもよいし、もしくは廃棄ガスにおいて反応混合物から抽出されてもよい。当該廃棄ガスは、所定量の水素ガスと、未反応のまま揮発した酸とを含んでいてもよい。

【0049】

懸濁されたフッ化物生成物を含む液体反応混合物を固液分離ユニットに導入し、三フッ化アルミニウム生成物および酸塩（具体的には、塩化物塩および/または硫化物塩）を含む固体部分と、塩化水素、酸塩、および所定量の未反応の酸を含む液体部分と、を生成する。固液分離ユニットは、当該技術分野において一般的に知られており、例えば、遠心分離、デカンター、フィルター（具体的にはふるいスクリーン）等が含まれる。

【0050】

固体の三フッ化アルミニウム生成物を塩から分離するため、固体部分を1以上の洗浄ユ

ニットに導入してもよい。一般的に、当該塩は、三フッ化アルミニウム生成物中よりも水中に溶けやすい。当該洗浄ユニットは、一般的に、十分な時間、フッ化物/塩の固体部分を水に接触させ当該塩を水相に溶解させることによりオペレートされる。その後、塩リッチな水を、生成物回収のための第2の固液分離ユニットにより、懸濁された三フッ化アルミニウム生成物から分離してもよい。当該第2の固液分離ユニットは、洗浄ユニット自体の一部として構成されていてもよい。制限されるわけではないが、数多くの洗浄ユニットを使用してもよいし、複数の洗浄ユニットを直列にもしくは並列に配置してもよい。使用される洗浄水を、(具体的には、気流乾燥等の乾燥により)処理して塩を回収してもよい。当該塩は市販してもよいし、もしくは下記のようにさらに処理してもよい。

【0051】

三フッ化アルミニウム生成物を乾燥させ、過剰の熱を付加することおよび/または圧力を減少させることにより残存する水を除去し、付加的な水および/または酸を当該生成物から除去してもよい。適切な乾燥温度は、少なくとも約50、少なくとも約100、少なくとも約130、約50～約150もしくは約100～約150である。

【0052】

これに関し、三フッ化アルミニウムがフッ化物生成物として生成される場合、三フッ化アルミニウムは数多くの水和物の形態で存在していてもよい。任意の特定の理論に拘束されることなく、固液分離装置において脱水された三フッ化アルミニウムの固体(具体的にはフィルターケーキ)は、三水和物の形態($AlF_3 \cdot 3H_2O$)で存在すると考えられる。さらに、乾燥により、生成物が脱水され、一水和物、半水和物、もしくは無水物の形態の三フッ化アルミニウムが生成される。

【0053】

固液分離装置において固体部分から分離された液体部分および反応容器から除去された廃棄ガスを蒸留塔に導入し、未使用の酸、フッ化水素および水素ガスの1以上を除去および分離してもよい。蒸留法の設計およびオペレーションは、概して当該技術分野における当業者のスキルの範囲に含まれ、供給物の組成、所望の回収された生成物、所望の回収等を含む様々なファクターに依存する。未反応の酸は、連続システムにおいて、反応容器に再循環させてもよい。

【0054】

シリコンが存在しない無水系、例えば無水酸性ガスをフルオロアルミン酸塩材料の流動層にバブリングする流動層操作において、当該反応により、固体の三フッ化アルミニウム生成物が生成され、これを反応炉から取り出しても良い。生成物の粒子は、所定量の固体の副生成物の塩(具体的には、 $NaCl$ 、 $NaHSO_4$ もしくは Na_2SO_4)を含んでもよい。当該副生成物の塩は、以下に説明するように分離してもよい。フッ化水素および水素ガスを気体の副生成物として発生させてもよい。これらの気体の副生成物は、未反応の酸を含む反応炉から回収される。

【0055】

シリコンが存在しない無水系において、典型的に三フッ化アルミニウム生成物と塩とを含む粒子を1以上の洗浄ユニットに導入し、三フッ化アルミニウム生成物から塩を分離してもよい。当該洗浄ユニットは、水性系について上述した洗浄ユニットと同様であってもよい。洗浄後、固体の生成物を乾燥させ、上記したように少なくとも部分的にフッ化物生成物を脱水してもよい。反応容器から除去された使用済みガスを蒸留に供し、未反応の酸、フッ化水素、水素ガスの少なくとも一種を回収してもよい。

【0056】

水性系および無水系の両方において、シリコンが反応容器に存在し反応に利用されるとき、四フッ化シリコンガスは生成物として生成される。水性系において、酸塩は、副生成物として反応混合物中において懸濁させてもよい。このような水性系において、当該反応により所定量の塩化水素が生成される。これは、反応混合物において溶解していてもよいし、および/または生成物ガスを含む反応混合物から回収してもよい。この生成ガスは、所定量の揮発された酸および/または $F_3SiOSiF_3$ 副生成物を含んでもよい。

10

20

30

40

50

【 0 0 5 7 】

シリコンソースを含む無水系において、反応の間、固体のフルオロアルミン酸塩は分解され、微粒子の塩（具体的には、 NaCl 、 NaHSO_4 、もしくは Na_2SO_4 ）とされる。気体の副生成物として塩化水素を発生させてもよく、当該塩化水素は、未反応の酸及び四フッ化シリコンの何れかとともに反応容器から回収される。四フッ化シリコン生成ガスを生成する水性系および無水系の両方において、四フッ化シリコンガスを蒸留により他のガスから分離してもよい。酸のバス（具体的には、未反応のHFを除去するための硫酸バス）および/または吸着ユニット（具体的には、酸を除去するための亜鉛ベースの吸着装置）が、制限されることなく、任意の組み合わせ任意の数でオペレートされ、直列もしくは並列でオペレートされる。四フッ化シリコン生成ガスは、液体生成物として保存するために濃縮してもよいし、および/または、シランの生成のため、アルカリ金属もしくはアルカリ土類金属のアルミニウム四フッ化物との反応によりさらに処理してもよい。

10

【 0 0 5 8 】

ある実施の形態において、水性の酸もしくは無水の酸が用いられるかに拘わらず、反応がシリコンの存在下起こるか否かに拘わらず、塩化水素の副生成物を適切にシリコンソースと反応させ四フッ化シリコンガスを生成させてもよい。フッ化水素は、蒸留塔において他のガスから分離してもよい。これに関連して、酸は四フッ化シリコンの生成を妨げないため、未反応の酸をフッ化水素から除去する必要はないことに留意すべきである。フッ化水素を、シリコン（具体的には砂）のソースが存在する反応容器（例えば、充填層もしくは流動層）に導入し四フッ化シリコンを生成させてもよい。四フッ化シリコンガスは、硫酸により洗浄され、さらなる副生成物ガスを除去してもよいし、また、好ましくは亜鉛媒体を有する吸着装置に導入して未反応の酸を除去してもよい。

20

【 0 0 5 9 】

溶解された塩化物塩もしくは硫化物塩（具体的には、反応溶液に存在する、および/または洗浄オペレーションの間溶解される）は、乾燥により回収してもよい。典型的には、このような乾燥オペレーションにより溶液中に存在する任意の未反応の酸を蒸発させる。これにより、再利用のため酸を回収することができる。回収された副生成物である塩化物塩もしくは硫化物塩は市販してもよいし、フルオロケイ酸と反応させ開始材料である酸（ HCl もしくは硫酸）を再生成させ、フルオロシリケートを生成させてもよい。フルオロシリケートは、本開示に係るフッ化物生成物の生成ための開始材料（具体的には、四フッ化シリコン）として使用されうる。例えば、フルオロシリケートは、シリコンソースとして用いられ四フッ化シリコンが生成される。

30

【 0 0 6 0 】

シランおよびフッ化物生成物の生成

シラン生成物の副生成物を使用して付加価値生成物が生成されるように、上述したフッ化物製造方法をシラン生成プロセスに組み込んでもよい。1以上の実施の形態において、四フッ化シリコンを、アルミニウムの四水素化物のアルカリ金属もしくはアルカリ土類金属の塩と接触させ、シランと、1以上のフルオロアルミン酸塩を含む廃液と、を生成する。上述のように、フルオロアルミン酸を酸と接触させ三フッ化アルミニウム（シリコンが存在しない場合）もしくは四フッ化シリコン（シリコンが存在する場合）および上記フッ化物生成物から分離された少なくとも一種の副生成物を生成させてもよい。

40

【 0 0 6 1 】

四フッ化シリコンの開始材料を、フルオロケイ酸の溶液を蒸発させることにより生成させてもよい。これに代えてもしくはこれに加えて、四水素化アルミニウムと反応してシランを生成しうる四フッ化シリコンの一部を上述の方法により発生させてもよい。四水素化アルミニウムのアルカリ金属もしくはアルカリ土類金属の塩を、高圧高温下、それらの元素の前駆物質（ Na 、 Al および H ）を反応させることにより生成してもよい。

【 0 0 6 2 】

シランの生成は、概して米国特許第4,632,816号に記載されている。これは、全て関連付け一貫させるために本明細書に引用して援用する。気体の四フッ化シリコンを、

50

四水素化アルミニウム塩を含む攪拌された液体反応媒体に加えてもよい。上記液体反応媒体には、ポリエーテル（具体的には、ジグリム、モノグリム、もしくはジオキサン）、炭化水素（具体的には、トルエンもしくはペンタン）、およびそれらの混合物が含まれていてもよい。反応混合物は、約30 ~ 約80 に維持してもよく、大気圧を用いてもよい。上記反応混合物は、約100気圧以下の圧力等、より高い圧力に維持してもよい。いくつかの実施の形態では、上記反応媒体は、約1気圧~約10気圧の圧力に維持される。

【0063】

化学量論量の四フッ化シリコンおよび三フッ化アルミニウムを用いてシランを生成してもよいが、しかしながら、いくつかの実施の形態において、過剰モルの四水素化物を用いて副生成物の生成が抑制される。当該反応は、連続逆混合反応器(continuous back-mixed reactor)もしくはスラリーバブルカラム等において、バッチ方式でもしくは連続的に実行してもよい。

10

【0064】

当該反応は、シランガスおよび懸濁されたフルオロアルミン酸塩を生成する。当該フルオロアルミン酸塩を、固液分離ユニット（遠心分離器、デカンター、フィルター等）などの当該技術分野において一般的に知られた手段により、反応媒体から分離してもよい。分離時、フルオロアルミン酸塩を、酸を含む反応容器に導入し、上述のように、フッ化物生成物（三フッ化アルミニウムもしくは四フッ化シリコン）を生成してもよい。

【実施例】

【0065】

20

実施例1：発生したガスを連続的に消費しながら、フルオロアルミン酸塩の塩酸分解により三フッ化アルミニウムを生成すること

ナトリウムフッ化アルミニウム (NaAlF_4)、チオライト ($\text{Na}_5\text{Al}_3\text{F}_{14}$) およびクリオライト (Na_3AlF_6) の固体混合物 (15.7 g) ("フルオロアルミン酸塩混合物") をシリカ (8 g) と混合した。その後、当該固体の混合物を水溶性の塩酸 (36質量%で243 g) を含むテフロンビーカー内で混合した。塩酸の、フルオロアルミン酸塩混合物に対する当初モル比は、20:1であった。磁気攪拌機を混合物の機械的攪拌のためのビーカーの底面に置いた。当該ビーカーは、1パールの大気圧、20の外気温度下にあった。当該フルオロアルミン酸塩粉末は、水溶性の塩酸と激しく反応し、連続的に消費されるフューム (SiF_4) が生成された。混合物を45分攪拌させると、フルオロアルミン酸塩混合物と水溶性の塩酸との灰色のスラリーが完全に白色のスラリーに変わった。スラリーにおける液体を排出し、その結果として得られた固体混合物をランプにより乾燥させ、27.3 gの固体を生成させた。乾燥固体の分析により、フッ素分子の損失は11%であることが示された。これは、質量換算で、フッ素分子における増加量に相当する。化学量論に基づいて、フルオロアルミン酸塩から三フッ化アルミニウム半水和物およびフッ化水素への変換は、およそ60%であると概算した。

30

【0066】

実施例2：密閉された容器においてフルオロアルミン酸塩の塩酸分解により三フッ化アルミニウムを生成すること

テフロンから構成される密閉された分解容器において、フルオロアルミン酸混合物 (24.7 g) を36質量%の塩酸と反応させた。当該容器と内容物とを150に加熱し、当該容器の開放バルブを100psigで開放した。30分加熱後、容器の内容物を大気温度まで冷却し、開放バルブを開いた。当該容器の重さの損失もしくは開放されたガスは、0.11gであった。当該分解容器における液体を排出し、固体混合物をランプにより乾燥させた。乾燥時の固体発生量は28%であった。結果として得られた固体を水で洗浄し、再度乾燥させた。第2乾燥時の固体の発生量は64%であった。化学量論に基づいて、フルオロアルミン酸塩の三フッ化アルミニウム半水和物への変換は93%であった。

40

【0067】

本開示内容もしくはその好ましい実施の形態の構成要素を導入する際、冠詞 "a"、"an"、"the" および "said" は、1以上の構成要素が存在することを意味しよ

50

うとしている。”含む (c o m p r i s i n g) ”、”含有する (i n c l u d i n g) ”、および”有する (h a v i n g) ”なる用語は、包括的であることを意図しており、列挙された構成要素以外に付加的な構成要素が存在してもよいことを意味しようとしている。

【 0 0 6 8 】

本開示の技術的範囲から逸脱しない限り、上述の装置および方法において様々変更することが可能である。上記記載に含まれ添付の図面に示された全ての事項は、例示であって、限定ではないと解釈されるべきである。

フロントページの続き

(72)発明者 ブニート・グプタ

アメリカ合衆国63376ミズーリ州セント・ピーターズ、パール・ドライブ501番、エムイー
エムシー・エレクトロニック・マテリアルズ・インコーポレイテッド内

(72)発明者 サティシュ・ブサラブ

アメリカ合衆国63376ミズーリ州セント・ピーターズ、パール・ドライブ501番、エムイー
エムシー・エレクトロニック・マテリアルズ・インコーポレイテッド内

審査官 森坂 英昭

(56)参考文献 特公昭49-025840(JP, B1)

特表昭58-502201(JP, A)

特表平06-510739(JP, A)

特開昭55-051719(JP, A)

特開昭60-071514(JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C01F 7/00 - 7/76