



(21)申請案號：106112011

(22)申請日：中華民國 106 (2017) 年 04 月 11 日

(51)Int. Cl. : C01B7/24 (2006.01)

(30)優先權：2016/04/11 日本

特願 2016-078601

2017/03/27 日本

特願 2017-060361

(71)申請人：中央硝子股份有限公司 (日本) CENTRAL GLASS COMPANY, LIMITED (JP)
日本(72)發明人：長友真聖 NAGATOMO, MASAKIYO (JP)；池田晋也 IKEDA, SHINYA (JP)；柴山
茂朗 SHIBAYAMA, TAKAAKI (JP)

(74)代理人：陳長文

申請實體審查：有 申請專利範圍項數：13 項 圖式數：3 共 48 頁

(54)名稱

氟化鹵素間化合物之純化方法

(57)摘要

本發明揭示一種第 1 氟化鹵素間化合物 XF_n 之純化方法。該方法具有：轉化步驟，其係使上述第 1 氟化鹵素間化合物所包含之氟原子之個數變化而生成第 2 氟化鹵素間化合物 $\text{XF}_{n\pm a}$ ；雜質去除步驟，其係自上述第 2 氟化鹵素間化合物去除雜質；及再轉化步驟，其係使上述第 2 氟化鹵素間化合物所包含之氟原子之個數變化而生成式(1)所表示之第 1 氟化鹵素間化合物。自氟化鹵素間化合物去除雜質，而可製造高純度之氟化鹵素間化合物。

指定代表圖：



X表示Cl、Br或I。 n 及 $n\pm a$ 表示鍵結於X之氟原子之個數。

具體而言， XF_n 及 $\text{XF}_{n\pm a}$ 係自 ClF 、 ClF_3 、 ClF_5 、 BrF_3 、 BrF_5 、 IF_5 、 IF_7 中進行選擇。

其中， $n \geq 1$ 、 $a \geq 1$ 、 $n\pm a \geq 1$ ， n 及 a 為自然數。

【圖1】



201738171

申請日: 106/04/11

IPC分類: **G01B 7/24** (2006.01)

【發明摘要】

【中文發明名稱】

氟化鹵素間化合物之純化方法

【中文】

本發明揭示一種第1氟化鹵素間化合物 XF_n 之純化方法。該方法具有：轉化步驟，其係使上述第1氟化鹵素間化合物所包含之氟原子之個數變化而生成第2氟化鹵素間化合物 $\text{XF}_{n\pm a}$ ；雜質去除步驟，其係自上述第2氟化鹵素間化合物去除雜質；及再轉化步驟，其係使上述第2氟化鹵素間化合物所包含之氟原子之個數變化而生成式(1)所表示之第1氟化鹵素間化合物。自氟化鹵素間化合物去除雜質，而可製造高純度之氟化鹵素間化合物。

【指定代表圖】

圖1

【代表圖之符號簡單說明】

無

【發明說明書】

【中文發明名稱】

氟化鹵素間化合物之純化方法

【技術領域】

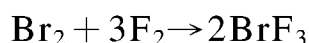
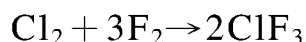
本發明係關於一種複數個不同之鹵素元素鍵結而成之化合物即鹵素間化合物之純化方法，且係關於一種氟原子與氟原子以外之鹵素元素即氯原子、溴原子或碘原子鍵結而成之化合物即氟化鹵素間化合物之純化方法。

【先前技術】

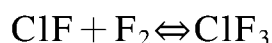
氟化鹵素間化合物係於有機合成領域、無機合成領域、原子力領域或半導體領域等中用作清洗氣體或氟化劑。例如，作為清洗氣體用於化學蒸鍍(CVD，chemical vapor deposition)等半導體製造裝置之內部洗淨等。氟化鹵素間化合物係由 XF_n (X為氟以外之鹵素原子(Cl、Br、I)，n為與1個鹵素原子鍵結之氟原子之個數)表示，且作為穩定之化合物，已知有 ClF 、 ClF_3 、 ClF_5 、 BrF_3 、 BrF_5 、 IF_5 及 IF_7 。

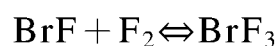
氟化鹵素間化合物係藉由不包括氟原子在內之鹵素分子或鹵素間化合物與氟分子進行反應而製造(非專利文獻1)。

例如，於專利文獻1中記載有藉由以下所示之反應而製造氟化鹵素間化合物之情況。

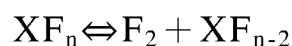


又，於專利文獻1中，記載有以下之平衡反應。



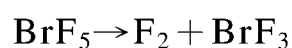
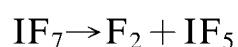


於專利文獻2中，用以下之通式表示使氟化鹵素間化合物分解而將氟分子分離，藉此生成氟原子之個數減少之氟化鹵素間化合物之情況。



(X為氯原子、溴原子或碘原子，n為3～7之整數)

又，於專利文獻2中，作為上述反應之具體例，記載有以下之分解反應。



氟化鹵素間化合物及鹵素分子之氧化性及腐蝕性較高。因此，於鹵素分子及氟化鹵素間化合物之反應步驟、純化步驟、儲存或輸送中，使用有耐受氧化及腐蝕之耐蝕性金屬製或陶瓷製之容器或導管等器具類。關於所使用之耐蝕性金屬或陶瓷，可列舉：鎳、以商品名莫內爾合金(Monel)、英高鎳(Inconel)及赫史特合金(Hastelloy)為代表之鎳基合金、不鏽鋼、錳鋼、鋁、鋁基合金、鈦、鈦基合金、鉑或氧化鋁、氧化銻。

然而，由於鹵素分子及氟化鹵素間化合物之較強氧化性及腐蝕性，故而即便使用耐蝕性金屬或陶瓷，亦有Al、As、Co、Cr、Cu、Fe、Mn、Mo、Ni、Pb、Zn或Zr之氧化物、鹵化物或鹽鹵化物等金屬化合物以雜質之形式自耐蝕性金屬或陶瓷混入至氟化鹵素間化合物中而污染氟化鹵素間化合物之情況。

例如，於不鏽鋼容器與氟化鹵素間化合物接觸之情形時，作為混入至氟化鹵素間化合物中之雜質，可例示：Al氧化物、Al鹵化物、Al鹽鹵化物、Co氧化物、Co鹵化物、Co鹽鹵化物、Cr氧化物、Cr鹵化物、Cr鹽

鹵化物、Cu氧化物、Cu鹵化物、Cu醴鹵化物、Fe氧化物、Fe鹵化物、Fe醴鹵化物、Mo氧化物、Mo鹵化物、Mo醴鹵化物、Ni氧化物、Ni鹵化物、Ni醴鹵化物、Mn氧化物、Mn鹵化物、Mn醴鹵化物、Ti氧化物、Ti鹵化物、Ti醴鹵化物、Zn氧化物、Zn鹵化物、Zn醴鹵化物。

又，氟化鹵素間化合物之製造中所使用之氟氣係以螢石(CaF_2)為原料進行工業性生產，氯係以日曬鹽或石鹽為原料進行工業性生產，溴及碘係以自海水或水溶性天然氣礦床等之地下水層獲得之咸水為原料進行工業性生產。有Ca、K、Mg、Na、P或Se之氧化物、鹵化物、醴鹵化物等金屬化合物以雜質之形式自該等原料混入至氟化鹵素間化合物中而污染氟化鹵素間化合物之情況。

例如，於使用以咸水為原料生產出之碘來合成 IF_5 或 IF_7 之情形時，作為會混入至 IF_5 或 IF_7 中之雜質，可例示Na氧化物、Na鹵化物、Na醴鹵化物、Ca氧化物、Ca鹵化物或Ca醴鹵化物。

進而，於製造氟化鹵素間化合物時，有 N_2 、Ar、He、 CO_2 、 O_2 、 CF_4 、氟碳、 OF_2 、 SiF_4 或HF等以來自製造時之環境之雜質之形式混入而污染氟化鹵素間化合物之情況。 CF_4 、 OF_2 、 SiF_4 、 SF_6 或HF等包含氟原子之化合物係藉由水分、烴化合物、石棉、潤滑劑或密封材料等與鹵素間化合物及氟氣(F_2)進行反應而生成。

氟化鹵素間化合物係用於要求純度之有機合成領域、無機合成領域、原子力領域或半導體領域等，因此，於氟化鹵素間化合物包含雜質而受到污染之情形時，有使相關製品之性能下降等不良影響之擔憂，而要求純度更高。

[先前技術文獻]

[專利文獻]

專利文獻1：國際公開第2010/055769號

專利文獻2：國際公開第2013/145955號

[非專利文獻]

非專利文獻1：J.H.Simons(編輯),「Fluorine Chemistry volume 1」, 1950, pp.191

【發明內容】

本發明之目的在於提供一種用以去除作為氟化鹵素間化合物所包含之雜質之上述雜質而獲得高純度之氟化鹵素間化合物的氟化鹵素間化合物之純化方法。

本發明者等人注意到因氟化鹵素間化合物所包含之氟原子之個數不同而氟化鹵素間化合物之熔點、沸點及蒸汽壓不同，發現藉由改變氟化鹵素間化合物所包含之氟原子之個數，而會容易地進行自包含雜質之氟化鹵素間化合物去除雜質之操作，從而簡便地獲得高純度之氟化鹵素間化合物之純化方法。

本發明之氟化鹵素間化合物之純化方法包括：轉化步驟，其係使氟化鹵素間化合物所包含之氟原子之個數變化；雜質去除步驟，其係自經轉化之氟化鹵素間化合物分離去除雜質；及再轉化步驟，其係再次使氟化鹵素間化合物所包含之氟原子之個數變化，而以高純度獲得原本之氟化鹵素間化合物。關於本發明之氟化鹵素間化合物之純化方法，可作為氟化鹵素間化合物之純化步驟，於在上述先前之氟化鹵素間化合物之製造方法中獲得氟化鹵素間化合物後之後段以純化步驟之形式添加。

本發明包含發明1～13。

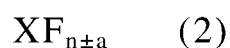
[發明1]

一種第1氟化鹵素間化合物之純化方法，其係式(1)所表示之第1氟化鹵素間化合物之純化方法，該方法具有：

轉化步驟，其係使上述第1氟化鹵素間化合物所包含之氟原子之個數變化而生成式(2)所表示之第2氟化鹵素間化合物；

雜質去除步驟，其係自上述第2氟化鹵素間化合物去除雜質；及

再轉化步驟，其係使上述第2氟化鹵素間化合物所包含之氟原子之個數變化而生成上述第1氟化鹵素間化合物，



(式中，X為氯原子、溴原子或碘原子，F為氟原子， n 、 a 、 $n\pm a$ 為 $n \geq 1$ 、 $a \geq 1$ 、 $7 \geq n\pm a \geq 1$ 之自然數)。

[發明2]

如發明1之氟化鹵素間化合物之純化方法，其中於上述轉化步驟之前進而包括自上述第1氟化鹵素間化合物去除雜質之雜質去除步驟。

[發明3]

如發明1或2之氟化鹵素間化合物之純化方法，其中上述第1氟化鹵素間化合物係選自由 ClF 、 ClF_3 、 ClF_5 、 BrF_3 、 BrF_5 、 IF_5 、 IF_7 所組成之群中之至少一種氟化鹵素間化合物。

[發明4]

如發明1~3之氟化鹵素間化合物之純化方法，其中

作為使上述第1氟化鹵素間化合物或上述第2氟化鹵素間化合物所包含之氟原子之個數改變之方法，

係使用使氟化鹵素間化合物與選自由 F_2 、 Cl_2 、 Br_2 、 I_2 、 ClF 、 ClF_3 、 ClF_5 、 BrF_3 、 BrF_5 、 IF_5 及 IF_7 所組成之群中之至少一種化合物進行反應之方法(但是，相同化合物彼此之組合除外)、

或者使氟化鹵素間化合物分解之方法
之任一者。

[發明5]

如發明1~4之鹵素間化合物之純化方法，其中

作為自上述第2氟化鹵素間化合物去除雜質之方法，係使用選自由相變、蒸餾、吸附、膜分離、萃取及晶析所組成之群中之至少一種方法。

[發明6]

如發明2之鹵素間化合物之純化方法，其中

作為自上述第1氟化鹵素間化合物去除雜質之方法，係使用選自由相變、蒸餾、吸附、膜分離、萃取及晶析所組成之群中之至少一種方法。

[發明7]

如發明1之氟化鹵素間化合物之純化方法，其中

上述第1氟化鹵素間化合物為 IF_7 ，

上述第2氟化鹵素間化合物為 IF_5 ，

自上述第2氟化鹵素間化合物去除雜質之雜質去除步驟係藉由使一部分 IF_5 蒸發而主要去除沸點低於 IF_5 之雜質之步驟。

[發明8]

如發明7之氟化鹵素間化合物之純化方法，其中

於上述轉化步驟之前進而包括自上述第1氟化鹵素間化合物去除雜質之雜質去除步驟，

自上述第1氟化鹵素間化合物去除雜質之雜質去除步驟係藉由使 IF_7 蒸發後凝縮而主要去除沸點高於 IF_7 之雜質之步驟。

[發明9]

如發明1之氟化鹵素間化合物之純化方法，其中

上述第1氟化鹵素間化合物為 IF_5 ，

上述第2氟化鹵素間化合物為 IF_7 ，

自上述第2氟化鹵素間化合物去除雜質之雜質去除步驟係藉由使 IF_7 蒸發後凝縮而主要去除沸點高於 IF_7 之雜質之步驟。

[發明10]

如發明9之氟化鹵素間化合物之純化方法，其中

於上述轉化步驟之前進而包括自上述第1氟化鹵素間化合物去除雜質之雜質去除步驟，

自上述第1氟化鹵素間化合物去除雜質之雜質去除步驟係藉由使一部分 IF_5 蒸發而主要去除沸點低於 IF_5 之雜質之步驟。

[發明11]

如發明1之氟化鹵素間化合物之純化方法，其中上述第1氟化鹵素間化合物為 ClF_3 ，

上述第2氟化鹵素間化合物為 ClF ，

自上述第2氟化鹵素間化合物去除雜質之雜質去除步驟係藉由使 ClF 蒸發後凝固而主要去除沸點高於 ClF 之雜質的步驟。

[發明12]

如發明11之氟化鹵素間化合物之純化方法，其中於上述轉化步驟之前，進而包括自上述第1氟化鹵素間化合物去除雜質之雜質去除步驟，

自上述第1氟化鹵素間化合物去除雜質之雜質去除步驟係藉由使一部分 ClF_3 蒸發而主要去除沸點低於 ClF_3 之雜質之步驟。

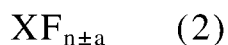
[發明13]

一種包括氟化鹵素間化合物之純化步驟之氟化鹵素間化合物之製造方法，其係式(1)所表示之第1氟化鹵素間化合物之製造方法，該方法具有：

轉化步驟，其係使上述第1氟化鹵素間化合物所包含之氟原子之個數變化而生成式(2)所表示之第2氟化鹵素間化合物；

雜質去除步驟，其係自上述第2氟化鹵素間化合物去除雜質；及

再轉化步驟，其係使上述第2氟化鹵素間化合物所包含之氟原子之個數變化而生成式(1)所表示之第1氟化鹵素間化合物，



(式中，X為氯原子、溴原子或碘原子，F為氟原子， n 、 a 、 $n\pm a$ 為 $n \geq 1$ 、 $a \geq 1$ 、 $7 \geq n\pm a \geq 1$ 之自然數)。

[發明之效果]

根據本發明之氟化鹵素間化合物之純化方法，可自包含雜質之氟化鹵素間化合物去除雜質而以高純度獲得氟化鹵素間化合物。

【圖式簡單說明】

圖1係表示實施形態之氟化鹵素間化合物之純化方法之圖。

圖2係表示實施形態之氟化鹵素間化合物之純化方法之圖。

圖3係表示實施例中之純化方法所使用之設備構成之圖。

【實施方式】

使用圖1對本發明之氟化鹵素間化合物之純化方法之實施形態詳細地進行說明。然而，本發明並不限定於以下所示之實施形態。

1. 氟化鹵素間化合物之純化方法

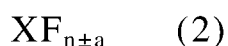
本發明之氟化鹵素間化合物之純化方法

係式(1)所表示之第1氟化鹵素間化合物之純化方法，該方法具有：

轉化步驟，其係使上述第1氟化鹵素間化合物所包含之氟原子之個數變化而生成式(2)所表示之第2氟化鹵素間化合物；

雜質去除步驟，其係自上述第2氟化鹵素間化合物去除雜質；及

再轉化步驟，其係使上述第2氟化鹵素間化合物所包含之氟原子之個數變化而生成式(1)所表示之第1氟化鹵素間化合物，



(式中，X為氯原子、溴原子或碘原子，F為氟原子， n 、 a 、 $n\pm a$ 為 $n \geq 1$ 、 $a \geq 1$ 、 $7 \geq n\pm a \geq 1$ 之自然數)。

藉由本發明之氟化鹵素間化合物之純化方法，使氟化鹵素間化合物所包含之氟原子之個數變化而將之轉化，製成容易去除雜質之沸點之氟化鹵素間化合物後，可容易地利用相變(蒸發、昇華、凝縮或凝固)、蒸餾或吸附去除雜質。

如圖1所示般，於本發明之氟化鹵素間化合物之純化方法中，

首先，進行使第1氟化鹵素間化合物(XF_n)所包含之氟原子之個數增加或減少之轉化，而獲得第2氟化鹵素間化合物($\text{XF}_{n\pm a}$)。

繼而，對於第2氟化鹵素間化合物($\text{XF}_{n\pm a}$)，去除雜質後，進行使第2氟化鹵素間化合物所包含之氟原子之個數恢復為原本個數之再轉化，而再

次獲得第1氟化鹵素間化合物(XF_n)。

於本發明之氟化鹵素間化合物之純化方法中，最初之氟化鹵素間化合物(XF_n)與經再轉化之氟化鹵素間化合物(XF_n)係相同之化合物。然而，與最初之氟化鹵素間化合物(XF_n)相比，經再轉化之氟化鹵素間化合物(XF_n)之雜質之含量得到減少，而獲得高純度之氟化鹵素間化合物(XF_n)。

作為最初之氟化鹵素間化合物及經再轉化之氟化鹵素間化合物(XF_n)、經轉化之氟化鹵素間化合物($\text{XF}_{n\pm a}$)，於X為氯原子(Cl)之情形時，可自 ClF 、 ClF_3 、 ClF_5 之組合進行選擇，於X為溴原子(Br)之情形時，可自 BrF_3 、 BrF_5 之組合進行選擇，於X為碘原子(I)之情形時，可自 IF_5 、 IF_7 之組合進行選擇。

亦可如圖2所示般，首先，於去除第1氟化鹵素間化合物(XF_n)之雜質後，進行使第1氟化鹵素間化合物(XF_n)所包含之氟原子之個數增加或減少之轉化，而獲得第2氟化鹵素間化合物($\text{XF}_{n\pm a}$)，繼而，對於第2氟化鹵素間化合物($\text{XF}_{n\pm a}$)，去除雜質之後，進行使氟化鹵素間化合物所包含之氟原子之個數恢復為原本個數之再轉化，而再次獲得第1氟化鹵素間化合物(XF_n)。

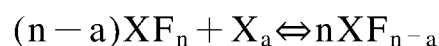
藉由於添加步驟之前設置去除第1氟化鹵素間化合物(XF_n)之雜質之雜質去除步驟，而可獲得進一步高純度之第1氟化鹵素間化合物(XF_n)。

[轉化及再轉化步驟]

針對將第1氟化鹵素間化合物進行轉化而獲得第2氟化鹵素間化合物之轉化步驟、將第2氟化鹵素間化合物進行再轉化而獲得第1氟化鹵素間化合物之再轉化步驟進行說明。

於轉化步驟及再轉化步驟中，可依據以下任一種之可逆反應式，而

使氟化鹵素間化合物所包含之氟原子之個數變化。



(X為氯原子、溴原子或碘原子，n及a為自然數，為 $n \geq 1$ 、 $a \geq 1$ 、 $7 \geq n \pm a \geq 1$ 之自然數。較佳為n為1~7之整數，a為2)。

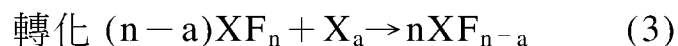


(X為氯原子、溴原子或碘原子，n及a為自然數，為 $n \geq 1$ 、 $a \geq 1$ 、 $7 \geq n \pm a \geq 1$ 之自然數。較佳為n為1~7之整數，a為2)。

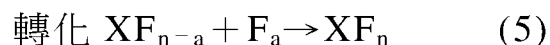
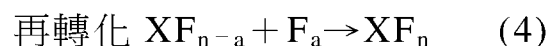
如上述反應式所示般，藉由使氟化鹵素間化合物與氟分子進行反應、使氟化鹵素間化合物與鹵素分子進行反應，而可使氟化鹵素間化合物所包含之氟原子之個數變化。亦可使相同化合物之組合以外之不同鹵素間化合物彼此進行反應。

又，藉由進行將氟化鹵素間化合物分解而分離氟分子之反應，而可使氟化鹵素間化合物所包含之氟原子之個數變化。該反應可使用公知之技術(例如，專利文獻1、專利文獻2及非專利文獻1)。具體而言，可例示將氟化鹵素間化合物加熱而進行熱分解之方法。

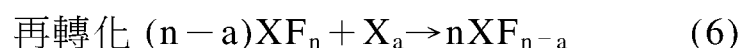
本發明之氟化鹵素間化合物之純化方法係例如依據以下之反應(3)~(4)或反應(5)~(7)而進行。

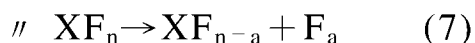


↓ 自 XF_{n-a} 去除雜質



↓ 自 XF_n 去除雜質





[IF₅、IF₇之轉化及再轉化步驟]

作為具體之例，分如下兩種情形進行說明，即上述第1氟化鹵素間化合物為IF₇且第2氟化鹵素間化合物為IF₅之情形；及上述第1氟化鹵素間化合物為IF₅且第2氟化鹵素間化合物為IF₇之情形。

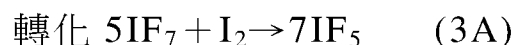
<第1氟化鹵素間化合物為IF₇且第2氟化鹵素間化合物為IF₅之情形>

首先，如式(3A)所示般，使作為第1氟化鹵素間化合物之IF₇與I₂反應而進行轉化，而獲得作為第2氟化鹵素間化合物之IF₅。

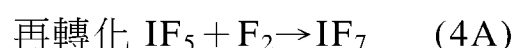
繼而，藉由蒸餾等操作，自IF₅將沸點低於IF₅之雜質分離後，

如式(4A)所示般，使IF₅與F₂反應而進行再轉化，而可以高純度獲得作為第1氟化鹵素間化合物之IF₇。

最後，於欲獲得進一步高純度之IF₇之情形時，式(3A)中所使用之最初之IF₇較佳為藉由蒸餾等操作而預先去除高沸點成分後之IF₇。



↓ 去除沸點低於IF₅之雜質



又，可如式(8)所示般，將式(4A)之反應中所獲得之IF₇分解而獲得高純度之IF₅。作為將IF₇分解之方法，可使用公知之方法。具體而言，可例示如下方法：藉由將IF₇於內部溫度250℃以上且400℃以下之Ni製反應器內中流通並進行加熱而將IF₇熱分解為IF₅與F₂。



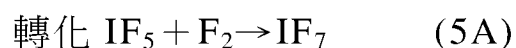
<第1氟化鹵素間化合物為IF₅且第2氟化鹵素間化合物為IF₇之情形>

首先，如式(5A)所示般，使作為第1氟化鹵素間化合物之IF₅與F₂反應

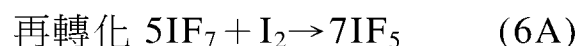
而進行轉化，而獲得作為第2氟化鹵素間化合物之 IF_7 。

繼而，藉由蒸餾等操作，自 IF_7 將沸點高於 IF_7 之雜質分離後，

如式(6A)所示般，使 IF_7 與 I_2 反應而進行再轉化，而可獲得作為第1氟化鹵素間化合物之 IF_5 ，或者如式(7A)所示般，將 IF_7 熱分解而進行再轉化，而可以高純度獲得作為第1氟化鹵素間化合物之 IF_5 。將 IF_7 熱分解為 IF_5 與 F_2 之方法係如上所述。最後，於欲獲得進一步高純度之 IF_5 之情形時，式(5A)所使用之最初之 IF_5 較佳為藉由蒸餾等操作而預先去除低沸點成分後之 IF_5 。



↓ 去除沸點高於 IF_7 之雜質



[轉化、再轉化之產率]

關於上述 IF_5 或 IF_7 ，對於反應式(3A)及(5A)所示之轉化反應及(4A)、(6A)、(7A)所示之再轉化反應之原料化合物之目標化合物之產率較佳為80%以上且未達99.9%。於產率未達80%之情形時，有將雜質分離時之產率下降之虞。於產率為99.9%以上之情形時，有用以達成產率之裝置之規模變大而製造成本增加之虞。

[ClF 、 ClF_3 之轉化及再轉化步驟]

作為具體之例，對上述第1氟化鹵素間化合物為 ClF_3 且第2氟化鹵素間化合物為 ClF 之情形進行說明。

<第1氟化鹵素間化合物為 ClF_3 且第2氟化鹵素間化合物為 ClF 之情形>

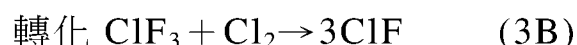
首先，如式(3B)所示般，使作為第1氟化鹵素間化合物之 ClF_3 與 Cl_2

反應而進行轉化，而獲得作為第2氟化鹵素間化合物之 ClF 。

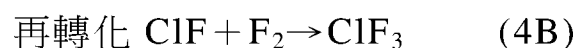
繼而，藉由蒸餾等操作，自 ClF 將沸點高於 ClF 之雜質分離後，

如式(4B)所示般，使 ClF 與 F_2 反應而進行再轉化，而可以高純度獲得作為第1氟化鹵素間化合物之 ClF_3 。

最後，於欲獲得進一步高純度之 ClF_3 之情形時，較佳為式(3B)所使用之最初之 ClF_3 為藉由蒸餾等操作而預先去除低沸點成分後之 ClF_3 。



↓ 去除沸點高於 ClF 之雜質



[轉化、經再轉化之產率]

關於上述 ClF 或 ClF_3 ，對於反應式(3B)所示之轉化反應及(4B)所示之再轉化反應之原料化合物之目標化合物之產率較佳為80%以上且未達99.9%。於產率未達80%之情形時，有將雜質分離時之產率下降之虞。於產率為99.9%以上之情形時，有用以達成產率之裝置之規模變大而製造成本增加之虞。

[裝置之材質]

作為本發明之氟化鹵素間化合物之純化方法所使用之裝置的材質，較佳為對於氟化鹵素間化合物、 F_2 、 Cl_2 、 Br_2 及 I_2 有耐蝕性而不會被侵蝕，從而不會以雜質之形式混入至氟化鹵素間化合物中之材質。

具體而言，較佳為於將第1氟化鹵素間化合物進行轉化而獲得第2氟化鹵素間化合物之轉化步驟、將第2氟化鹵素間化合物進行再轉化而獲得第1氟化鹵素間化合物之再轉化步驟、自第1或第2氟化鹵素間化合物去除雜質之雜質去除步驟中不會被侵蝕之材質。作為此種材質，可較佳地列

舉：不鏽鋼、鎳、鎳基合金、氧化鋁。鎳及不鏽鋼製裝置廉價且容易操作，故而於本發明之氟化鹵素間化合物之純化方法中，較佳為使用鎳及不鏽鋼製裝置。

[溫度及壓力之條件]

於將氟化鹵素間化合物進行純化時，作為不會自裝置混入雜質之溫度條件，於裝置之材質為鎳之情形時，較佳為 -200°C 以上且 400°C 以下，於裝置之材質為不鏽鋼之情形時，較佳為 -200°C 以上且 200°C 以下。於未達 -200°C 時將氟化鹵素間化合物進行純化之情形時，有雜質與氟化鹵素間化合物凝固而難以分離之虞。於裝置之材質為鎳之情形時，於在超過 400°C 之溫度下將氟化鹵素間化合物進行純化之情形時，有來自裝置材質之雜質增加之虞，於裝置之材質為不鏽鋼之情形時，於在超過 200°C 之溫度下將氟化鹵素間化合物進行純化之情形時，有來自裝置材質之雜質增加之虞。

作為將氟化鹵素間化合物進行純化時之裝置內之壓力，以絕對壓力表示，較佳為 0.001 MPa 以上且 1 MPa 以下。於在未達 0.001 MPa 之壓力下進行純化之情形時，由於氟化鹵素間化合物之純化量較少故而效率較低，而變得需要用以減壓之裝置，故而經濟性較差。於在超過 1 MPa 之壓力下進行純化之情形時，會產生氟化鹵素間化合物自裝置之連接部位例如墊片洩漏之虞。

[藉由本發明進行純化之氟化鹵素間化合物之物性]

表1係表示氟化鹵素間化合物之物性之表。

[表1]

氟化鹵素間化合物之物性				
氟化鹵素間化合物	CAS編號	分子量(g/mol)	熔點(°C)	沸點(°C)
ClF	7790-89-8	54.45	-100.1	-155.6
ClF ₃	7790-91-2	92.45	11.75	-76.3
ClF ₅	13637-63-3	130.45	-13.1	-103
BrF ₃	7787-71-5	136.9	8.8	125.7
BrF ₅	7789-30-2	174.9	-60.6	40.9
IF ₅	1783-66-6	221.9	8.5	102
IF ₇	16921-96-3	259.9	4.5	5.5

如表1所示，氟化鹵素間化合物根據氟化鹵素間化合物中之氟原子之個數，而熔點及沸點存在較大差異。

於本發明之氟化鹵素間化合物之純化方法中，其中作為第1氟化鹵素間化合物與第2氟化鹵素間化合物之組合，較佳為ClF(沸點-155.6°C)與ClF₃(沸點-76.3°C)之組合、BrF₃(沸點125.7°C)與BrF₅(沸點40.9°C)之組合、或者IF₅(沸點102°C)與IF₇(沸點5.5°C)之組合，特佳為IF₅與IF₇之組合。

[雜質]

關於成為使用本發明之氟化鹵素間化合物之純化方法自氟化鹵素間化合物去除之對象之雜質，可列舉Al、As、Ca、Co、Cr、Cu、Fe、K、Mg、Mn、Mo、Na、Ni、P、Pb、Se、Si、Ti、Zn或Zr之氟化物、氯化物、溴化物、碘化物、氟氧化物、氯氧化物、溴氧化物或碘氧化物、進而N₂、Ar、He、CO₂、O₂、CF₄、OF₂、HF或氟碳。

關於上述金屬成分，推測封入有氟化鹵素間化合物之儲氣瓶、製造步驟中之反應器或配管等所使用之金屬或構件、或者該等與氟化鹵素間化合物進行反應等而混入至氟化鹵素間化合物中。

[將雜質進行分離之方法]

作為將轉化後之氟化鹵素間化合物所包含之雜質自氟化鹵素間化合

物進行分離之方法，並無特別限定，可列舉：於伴隨著氟化鹵素間化合物之相變之蒸發昇華、或凝縮凝固時進行分離之方法(以下，有時稱為相變法)；利用蒸餾、吸附、吸收、膜分離、萃取或晶析之方法。該等方法之中，更佳為相變法或蒸餾。於藉由吸附、膜分離或萃取將雜質進行分離時，通常必須使用吸附劑、膜分離劑或萃取劑。然而，若使用該等，則有氟化鹵素間化合物之雜質增加之虞。於藉由晶析進行分離之情形時，若氟化鹵素間化合物包含複數種雜質，則將該等去除之晶析操作變得困難。

<相變法>

所謂相變法，係指藉由改變氟化鹵素間化合物之溫度，而使氟化鹵素間化合物發生相變，從而除去雜質之方法。

具體而言，係於自液相向氣相進行相變而進行蒸發時、自氣相向液相進行相變而進行凝縮時、自氣相向固相進行相變而進行凝固時、自液相向固相進行相變而進行凝固時、或者自固相向氣相進行相變而進行昇華時，除去雜質之方法。

於氟化鹵素間化合物包含低沸點之雜質之情形時，較佳為於轉化為包含成為高沸點之氟原子數之氟化鹵素間化合物後使之凝縮或凝固，而去除低沸點之雜質。另一方面，於氟化鹵素間化合物包含高沸點之雜質之情形時，較佳為於轉化為包含成為低沸點之氟原子數之氟化鹵素間化合物後使之凝縮或凝固，而去除高沸點之雜質。自轉化後之第2氟化鹵素間化合物去除雜質後，使其與氟分子進行反應或使其熱分解，藉此進行再轉化，而恢復為包含最初之氟原子數之氟化鹵素間化合物，藉此可以高純度獲得包含最初之氟原子數之氟化鹵素間化合物。

例如，於本說明書之實施例中，使用圖3所示之構成之純化裝置，於

裝有 IF_5 、 IF_7 、 ClF_3 或 ClF 之鎳製容器11、12內，進行該等氟化鹵素間化合物之轉化及相變。藉由溫度調整而使該等氟化鹵素間化合物自液相向氣相進行相變(蒸發)、自氣相向液相進行相變(凝縮)、自氣相向固相進行相變(凝固)、自液相向固相進行相變(凝固)及自固相向氣相進行相變(昇華)，且一邊將間隔閥13進行開啟及關閉以使該等氟化鹵素間化合物於氣相狀態下在容器11、12間往返，一邊進行轉化($\text{IF}_5 \rightleftharpoons \text{IF}_7$ 或 $\text{ClF} \rightleftharpoons \text{ClF}_3$)後，進行凝縮或凝固，於此時去除雜質，從而進行 IF_5 、 IF_7 、 ClF_3 之純化。

< 蒸餾 >

蒸餾可藉由一般之方法進行。即，於自包含雜質之氟化鹵素間化合物去除沸點高於氟化鹵素間化合物之雜質之情形時，只要將高沸點之雜質濃縮為底部殘留物並去除即可。於自包含雜質之氟化鹵素間化合物去除沸點低於氟化鹵素間化合物之雜質之情形時，只要將低沸點之雜質濃縮為餾液並去除即可。

作為蒸餾之種類，有批次蒸餾、連續蒸餾、簡單蒸餾、閃速蒸餾等，並無特別限定，可選擇用以獲得作為目標物之氟化鹵素間化合物所需之純度之各種蒸餾。

於氟化鹵素間化合物包含低沸點之雜質之情形時，較佳為轉化為包含成為高沸點之氟原子數之氟化鹵素間化合物後去除低沸點之雜質。另一方面，於氟化鹵素間化合物包含高沸點之雜質之情形時，較佳為轉化為包含成為低沸點之氟原子數之氟化鹵素間化合物後去除高沸點之雜質。藉由蒸餾自轉化後之第2氟化鹵素間化合物去除雜質後，使其與氟分子進行反應或使其熱分解，藉此進行再轉化，而恢復為包含最初之氟原子數之氟化鹵素間化合物，而可以高純度獲得包含最初之氟原子數之氟化鹵素間化合物。

物。

< 吸附 >

所謂吸附，係指自包含雜質之氣體或液體狀態之對象，將雜質物理性或化學性地吸附至固體吸附劑之方法。於藉由吸附去除雜質之情形時，較佳為自包含雜質之氣體狀態之氟化鹵素間化合物去除雜質。藉由將氟化鹵素間化合物轉化為低沸點之氟化鹵素間化合物，而可容易地利用吸附自包含雜質之氣體狀之氟化鹵素間化合物去除雜質。

< 膜分離、晶析 >

於藉由膜分離去除雜質之情形時，較佳為以液體之形態透過分離膜。即，較佳為轉化為沸點較高之氟化鹵素間化合物後添加至液狀之氟化鹵素間化合物中，之後進行膜分離。於將雜質進行萃取或晶析之情形時，較佳為根據將去除之雜質之溶解度等，轉化為更容易分離之氟化鹵素間化合物，之後進行萃取或晶析。

[實施例]

藉由具體之實施例表示本發明之氟化鹵素間化合物之純化方法。然而，本發明之氟化鹵素間化合物之純化方法並不受以下之實施例限定。

使用圖3所示之構成之純化裝置，將另外合成之 IF_5 、 IF_7 、 ClF_3 純化。於裝有 IF_5 、 IF_7 、 ClF_3 或 ClF 之鎳製容器11、12內，進行該等氟化鹵素間化合物之轉化反應及相變。具體而言，使該等氟化鹵素間化合物自液相向氣相進行相變(蒸發)、自氣相向液相進行相變(凝縮)及自氣相向固相進行相變(凝固)，且一邊將間隔閥13進行開啟及關閉以使該等氟化鹵素間化合物於氣相狀態下在容器11、12間往返，一邊進行轉化($\text{IF}_5 \rightleftharpoons \text{IF}_7$ 或 $\text{ClF} \rightleftharpoons \text{ClF}_3$)，藉此進行純化。使用感應耦合電漿質譜儀對純化前及純化後

之 IF_5 、 IF_7 、 ClF_3 所包含之雜質量進行測定。感應耦合電漿質譜儀係使用Agilent Technologies股份有限公司製造之Agilent7000系列、Triple四極GC/M系統，對使超純水吸收氣相及液相之 IF_5 、 IF_7 、 ClF_3 及雜質後所得之水溶液進行分析，將其含有率換算為Si、Mo、Na後進行測定。

對上述 IF_5 、 IF_7 或 ClF_3 進行分析，結果為，含有被認為是在製造時混入之雜質 SiF_4 、 MoF_6 、 NaF 。推測： IF_5 、 IF_7 或 ClF_3 之雜質即 SiF_4 係用作製造設備之保溫材之石英棉於製造設備之組裝時混入，與 F_2 、 IF_5 、 IF_7 或 ClF_3 進行反應而生成並混入所得者； MoF_6 係容器材質所包含之Mo混入所得者； NaF 係自用作原料之碘混入所得者。

1. IF_7 或 IF_5 之純化

1-1. 實施例1～4

於實施例1～4中，藉由本發明之氟化鹵素間化合物之純化方法而進行 IF_7 或 IF_5 之純化。

如圖3所示，純化裝置包含容積1 L之鎳製容器11、12、間隔閥13、碘氣(I_2)供給器14、氟氣(F_2)供給器15、真空脫氣裝置16，且各者由不鏽鋼製管所連結。容器11、12包括未圖示之溫度計、壓力計及調溫裝置，且與用以對氣相進行分析之排出口17、用以對液相進行分析之排出口18相鄰接。

實施例1

藉由本發明之氟化鹵素間化合物之純化方法而進行 IF_5 之純化。具體而言，於自 IF_7 向 IF_5 轉化之前，使 IF_7 蒸發後凝縮，而主要去除沸點高於 IF_7 之雜質，之後將 IF_7 轉化而製成 IF_5 ，使一部分 IF_5 蒸發，藉此主要去除沸點低於 IF_5 之雜質，自 IF_5 向 IF_7 進行再轉化，藉此將 IF_7 純化(對應於發明

8)。

[1]雜質去除步驟(第1次)

首先，使真空脫氣裝置16運轉而將容器11、12內脫氣。於脫氣後之容器11內填充259.9 g之作為純化物質之液狀IF₇(1.00 mol)，利用調溫裝置將容器11之內部溫度保持為30℃(蒸發溫度)。此時，容器11之內壓以絕對壓力計為233 kPa。

對純化前之液相(液狀)之IF₇之雜質進行測定，結果為，以換算值計，Si為100 wt.ppb，Mo為750 wt.ppb，Na為1000 wt.ppb以上。對純化前之氣相(氣體)之IF₇之雜質進行測定，結果為，以換算值計Si為200 wt.ppb，Mo為400 wt.ppb，Na未達10 wt.ppb。

將設置於主容器11與利用調溫裝置將內部溫度保持為10℃(捕集溫度)之容器12之間之分隔閥13打開，使於容器11內蒸發而氯化之IF₇之蒸氣自容器11移動至容器12並凝縮，將其捕集並回收(容器12中之回收量為0.98莫耳，產率為98%)。關閉分隔閥13，利用真空脫氣裝置16將容器11進行脫氣，藉此去除容器11內之包含雜質(主要為沸點高於IF₇之雜質)之殘渣。

[2]轉化步驟： $(5/7)IF_7 + (1/7)I_2 \rightarrow IF_5$

繼而，利用調溫裝置將裝有IF₇之容器12之內部溫度保持為10℃(反應溫度)。此時，容器12之內壓以絕對壓力計為119 kPa。自碘氣(I₂)供給器14向容器12內平穩地供給碘氣(I₂)，藉由以下之式(3A)所示之反應，將IF₇轉化為IF₅(回收量為1.37莫耳，產率為99.5%)。



[3]雜質去除步驟(第2次)

利用調溫裝置將裝有液狀之IF₅之容器12之內部溫度保持為50℃(蒸發

溫度)。容器12之內壓以絕對壓力計為13 kPa。將容器12與利用調溫裝置將內部溫度保持為25°C (捕集溫度)之容器11間之分隔閥13打開，使IF₅之蒸氣之一部分自容器12移動至容器11並凝縮，將其捕集並回收(容器12中之回收量為1.34莫耳，產率為98.0%)。關閉分隔閥13，利用真空脫氣裝置16將容器11進行脫氣，藉此去除容器11內之包含雜質(主要為沸點低於IF₅之雜質)之殘渣。

[4]再轉化步驟(IF₅ + F₂ → IF₇)

利用調溫裝置將裝有IF₅之容器12之內部溫度保持為60°C (反應溫度)。此時，容器11之內壓以絕對壓力計為20 kPa。向容器11內平穩地供給氟氣(F₂)，藉由以下之式(4A)所示之反應，將IF₅再轉化為IF₇(回收量為1.33莫耳，產率為99.5%)。



[1]~[4]之一連串步驟中之碘基準之IF₇之總產率為95.6%。將容器12內之氣體之IF₇自「用以對氣相進行分析之排出口17」排出，將液體之IF₇自「用以對液相進行分析之排出口18」排出，使超純水吸收各自後，利用上述感應耦合電漿質譜儀，將雜質SiF₄、MoF₆、NaF之含有率分別換算為Si、Mo、Na後進行測定。液相之測定結果為：Si未達10 wt.ppb，Mo未達50 wt.ppb，Na為10 wt.ppb。氣相之測定結果為：Si未達10 wt.ppb，Mo為20 wt.ppb，Na未達10 wt.ppb。

實施例2

藉由本發明之氟化鹵素間化合物之純化方法進行IF₅之純化。具體而言，於自IF₅向IF₇轉化之前，使一部分IF₅蒸發，藉此主要去除沸點低於IF₅之雜質，之後將IF₅轉化而製成IF₇，使IF₇蒸發後凝縮，而主要去除沸

點高於IF₇之雜質，自IF₇向IF₅進行再轉化，藉此將IF₅純化(對應於發明10)。純化裝置係使用與實施例1相同之裝置。

[1]雜質去除步驟(第1次)

首先，使真空脫氣裝置16運轉而將容器11、12內脫氣。

於脫氣後之容器11內填充221.9 g之作為純化物質之液狀IF₅(1 mol)，利用調溫裝置將容器11之內部溫度保持為50°C(蒸發溫度)。此時，容器11之內壓以絕對壓力計為13 kPa。

對純化前之液相之IF₅之雜質進行測定，結果為，以換算值計，Si為20 wt.ppb，Mo為60 wt.ppb，Na為1000 wt.ppb以上。對純化前之氣相(氣體)之IF₅之雜質進行測定，結果，以換算值計，Si為50 wt.ppb，Mo為150 wt.ppb，Na未達10 wt.ppb。

將設置於主容器11與利用調溫裝置將內部溫度保持為25°C(捕集溫度)之容器12之間之分隔閥13打開，使IF₅之蒸氣之一部分自容器11移動至容器12並凝縮，將其捕集並回收(容器11中之回收量為1.96莫耳，產率為98%)。關閉分隔閥13，利用真空脫氣裝置16將容器12進行脫氣，藉此去除容器12內之包含雜質(主要為沸點低於IF₅之雜質)之殘渣。

[2]轉化步驟(IF₅ + F₂ → IF₇)

繼而，利用調溫裝置將裝有IF₅之容器11之內部溫度保持為60°C(反應溫度)。此時，容器11之內壓以絕對壓力計為20 kPa。自氟氣(F₂)供給器15向容器11內平穩地供給氟氣(F₂)，藉由以下之式(5A)所示之反應，將IF₅轉化為IF₇(回收量為0.98莫耳，產率為99.5%)。



[3]雜質去除步驟(第2次)

利用調溫裝置將裝有液狀之 IF_7 之容器11之內部溫度保持為 30°C (蒸發溫度)。容器11之內壓以絕對壓力計為233 kPa。將容器11與利用調溫裝置將內部溫度保持為 10°C (捕集溫度)之容器12間之分隔閥13打開，使 IF_7 之蒸氣自容器11移動至容器12並凝縮，將其捕集並回收(容器12中之回收量為0.96莫耳，產率為98.0%)。關閉分隔閥13，利用真空脫氣裝置16將容器11進行脫氣，藉此去除容器11內之包含雜質(主要為沸點高於 IF_7 之雜質)之殘渣。

[4]再轉化步驟($5/7\text{IF}_7 + 1/7\text{I}_2 \rightarrow \text{IF}_5$)

利用調溫裝置將裝有 IF_7 之容器12之內部溫度保持為 10°C (反應溫度)。此時，容器12之內壓以絕對壓力計為119 kPa。向容器12平穩地供給碘氣(I_2)14，藉由以下之式(6A)所示之反應，將 IF_7 再轉化為 IF_5 (回收量為0.98莫耳，產率為99.5%)。



[1]~[4]之一連串步驟中之碘基準之 IF_5 之總產率為96.3%。將容器11內之氣體之 IF_5 自「用以對氣相進行分析之排出口17」排出，將液體之 IF_5 自「用以對液相進行分析之排出口18」排出，使超純水吸收各自後，利用上述感應耦合電漿質譜儀，將作為雜質之 SiF_4 、 MoF_6 、 NaF 之含有率分別換算為Si、Mo、Na後進行測定。液相、氣相測定結果均為：Si未達10 wt.ppb，Mo未達10 wt.ppb，Na未達10 wt.ppb。

實施例3

藉由本發明之氟化鹵素間化合物之純化方法進行 IF_7 之純化。具體而言，將 IF_7 轉化而製成 IF_5 ，使一部分 IF_5 蒸發，藉此主要去除沸點低於 IF_5 之雜質，自 IF_5 向 IF_7 進行再轉化，藉此將 IF_7 純化(對應於發明7)。

純化裝置係使用與實施例1相同之裝置，IF₇係使用與實施例1中所使用之IF₇相同之IF₇。

[1]轉化步驟(5/7IF₇ + 1/7I₂ → IF₅)

首先，使真空脫氣裝置16運轉而將容器11、12內脫氣。

於脫氣後之容器11內填充259.9 g之液狀IF₇(1.00 mol)，利用調溫裝置將容器12之內部溫度保持為10°C(反應溫度)。此時，容器12之內壓以絕對壓力計為119 kPa。自碘氣(I₂)供給器14向容器12內平穩地供給碘氣(I₂)，藉由以下之式(3A)所示之反應，將IF₇轉化為IF₅(回收量為1.39莫耳，產率為99.5%)。



[2]雜質去除步驟

利用調溫裝置將裝有液狀之IF₅之容器11之內部溫度保持為50°C(蒸發溫度)。容器11之內壓以絕對壓力計為13 kPa。將容器11與利用調溫裝置將內部溫度保持為25°C(捕集溫度)之容器12間之分隔閥13打開，使IF₅之蒸氣之一部分自容器11移動至容器12並凝縮，將其捕集並回收(容器11中之回收量為1.37莫耳，產率為98.0%)。關閉分隔閥13，利用真空脫氣裝置16將容器12進行脫氣，藉此去除容器12內之包含雜質(主要為沸點低於IF₅之雜質)之殘渣。

[3]再轉化步驟(IF₅ + F₂ → IF₇)

利用調溫裝置將裝有IF₅之容器11之內部溫度保持為60°C(反應溫度)。此時，容器11之內壓以絕對壓力計為20 kPa。向容器11內平穩地供給氟氣(F₂)，藉由以下之式(3A)所示之反應，將IF₅再轉化為IF₇(回收量為1.36莫耳，產率為99.5%)。



[1]~[3]之一連串步驟中之碘基準之 IF_7 之總產率為97.0%。將容器12內之氣體之 IF_7 自「用以對氣相進行分析之排出口17」排出，將液體之 IF_7 自「用以對液相進行分析之排出口18」排出，使超純水吸收各自後，利用上述感應耦合電漿質譜儀，將雜質 SiF_4 、 MoF_6 、 NaF 之含有率分別換算為Si、Mo、Na後進行測定。液相之測定結果為：Si未達10 wt.ppb，Mo為200 wt.ppb，Na為1000 wt.ppb以上。氣相之測定結果為：Si未達10 wt.ppb，Mo為100 wt.ppb，Na未達10 wt.ppb。

實施例4

藉由本發明之氟化鹵素間化合物之純化方法進行 IF_5 之純化。具體而言，將 IF_5 轉化而製成 IF_7 ，使 IF_7 蒸發後凝縮，而主要去除沸點高於 IF_7 之雜質，自 IF_7 向 IF_5 進行再轉化，藉此將 IF_5 純化(對應於發明9)。純化裝置係使用與實施例1相同之裝置， IF_5 係使用與實施例2中所使用之 IF_5 相同之 IF_5 。

[1]轉化步驟($\text{IF}_5 + \text{F}_2 \rightarrow \text{IF}_7$)

首先，使真空脫氣裝置16運轉而將容器11、12內脫氣。

於脫氣後之容器11內填充221.9 g之作為純化物質之液狀 IF_5 (1.00 mol)，利用調溫裝置將容器11之內部溫度保持為60°C(反應溫度)。此時，容器11之內壓以絕對壓力計為20 kPa。自氟氣(F_2)供給器15向容器11內平穩地供給氟氣(F_2)，藉由以下之式(5A)所示之反應，將 IF_5 轉化為 IF_7 (回收量為0.98莫耳，產率為99.5%)。



[2]雜質去除步驟

利用調溫裝置將裝有液狀之 IF_7 之容器11之內部溫度保持為 30°C (捕集溫度)。容器11之內壓以絕對壓力計為233 kPa。將容器11與利用調溫裝置將內部溫度保持為 10°C 之容器12間之分隔閥13打開，使 IF_7 之蒸氣自容器11移動至容器12並凝縮，將其捕集並回收(容器12中之回收量為0.96莫耳，產率為98.0%)。關閉分隔閥13，利用真空脫氣裝置16對容器11進行脫氣，藉此去除容器11內之包含雜質(主要為沸點高於 IF_7 之雜質)之殘渣。
[3]再轉化步驟($5/7\text{IF}_7 + 1/7\text{I}_2 \rightarrow \text{IF}_5$)

利用調溫裝置將裝有 IF_7 之容器12之內部溫度保持為 10°C (反應溫度)。此時，容器12之內壓以絕對壓力計為119 kPa。向容器12平穩地供給碘氣(I_2)14，藉由以下之式(6A)所示之反應，將 IF_7 再轉化為 IF_5 (回收量為1.36莫耳，產率為99.5%)。



[1]~[3]之一連串步驟中之碘基準之 IF_5 之總產率為97.7%。將容器11內之氣體之 IF_5 自「用以對氣相進行分析之排出口17」排出，將液體之 IF_5 自「用以對液相進行分析之排出口18」排出，使超純水吸收各自後，利用上述感應耦合電漿質譜儀，將作為雜質之 SiF_4 、 MoF_6 、 NaF 之含有率分別換算為Si、Mo、Na後進行測定。液相之測定結果為：Si為30 wt.ppb，Mo為40 wt.ppb，Na未達10 wt.ppb。氣相之測定結果為：Si為60 wt.ppb，Mo為100 wt.ppb，Na未達10 wt.ppb。

表2中表示實施例1~4之純化條件及產率。

[表2]

	純化物質	起始量(mol)	[1]雜質去除步驟(第1次)					[2]轉化步驟			
			蒸發溫度(°C)	捕集溫度(°C)	回收成分	產率(%)	回收量(mol)	反應式	反應溫度(°C)	產率(%)	回收量(mol)
實施例1	IF ₇	1	30	10	餾液	98.0	0.98	(5/7)IF ₇ + (1/7)I ₂ →IF ₅	10	99.5	1.37
實施例2	IF ₅	1	50	25	底部殘留物	98.0	0.98	IF ₅ + F ₂ →IF ₇	60	99.5	0.98
								[1]轉化步驟			
實施例3	IF ₇	1						(5/7)IF ₇ + (1/7)I ₂ →IF ₅	10	99.5	1.39
實施例4	IF ₅	1						IF ₅ + F ₂ →IF ₇	60	99.5	0.98

[3]雜質去除步驟(第2次)					[4]再轉化步驟				總產率(%)
蒸發溫度(°C)	捕集溫度(°C)	回收成分	產率(%)	回收(mol)	反應式	反應溫度(°C)	產率(%)	回收量(mol)	
50	25	底部殘留物	98.0	1.34	IF ₅ + F ₂ →IF ₇	60	99.5	1.33	95.6
30	10	餾液	98.0	0.96	(5/7)IF ₇ + (1/7)I ₂ →IF ₅	10	99.5	0.98	96.3
[2]雜質去除(第1次)					[3]再轉化步驟				
50	25	底部殘留物	98.0	1.37	IF ₅ + F ₂ →IF ₇	60	99.5	1.36	97.0
30	10	餾液	98.0	0.96	(5/7)IF ₇ + (1/7)I ₂ →IF ₅	10	99.5	1.36	97.7

1-2.比較例1～4

繼而，於比較例1～4中，藉由不在本發明之範疇內之純化方法進行IF₇或IF₅之純化。

比較例1

針對與實施例1中所使用之IF₇相同之IF₇，使用與實施例1相同之裝置，不進行本發明之氟化鹵素間化合物之純化方法中之[轉化步驟][再轉化步驟]，而僅藉由先前之氟化鹵素間化合物之純化中所使用之[雜質去除步驟]進行純化。

[1]雜質去除步驟(第1次)

首先，使真空脫氣裝置16運轉而將容器11、12內脫氣。

於脫氣後之容器11內填充358.6 g之作為純化物質之液體之 IF_7 (1.39 mol)，利用調溫裝置將容器11之內部溫度保持為 30°C (蒸發溫度)。將設置於主容器11與利用調溫裝置將內部溫度保持為 10°C (捕集溫度)之容器12之間之分隔閥13打開，使 IF_7 之蒸氣自容器11移動至容器12並凝縮，將其捕集並回收(容器12中之回收量為1.36莫耳，產率為97.8%)。關閉分隔閥13，利用真空脫氣裝置16將容器11進行脫氣，藉此去除容器11內之包含雜質之殘渣。

[2]雜質去除步驟(第2次)

利用調溫裝置將裝有 IF_7 之容器12之內部溫度保持為 30°C (蒸發溫度)。將設置於主容器12與利用調溫裝置將內部溫度保持為 10°C (捕集溫度)之容器11之間之分隔閥13打開，使 IF_7 之蒸氣之一部分自容器12移動至容器11並凝縮，將其捕集並回收(容器12中之回收量為1.33莫耳，產率為97.8%)。關閉分隔閥13，利用真空脫氣裝置16對容器11進行脫氣，藉此，去除容器11內之包含雜質之殘渣。

[1]~[2]之一連串步驟中之碘基準之 IF_7 之總產率為95.6%。藉由與實施例2相同之方法，將容器11內之氣體之 IF_7 自「用以對氣相進行分析之排出口17」排出，將液體之 IF_7 自「用以對液相進行分析之排出口18」排出，使超純水吸收各自後，利用上述感應耦合電漿質譜儀，將雜質 SiF_4 、 MoF_6 、 NaF 之含有率分別換算為Si、Mo、Na後進行測定。對容器12之 IF_7 之雜質進行分析。液相之測定結果為：Si未達10 wt.ppb，Mo為250 wt.ppb，Na未達10 wt.ppb。氣相之測定結果為：Si未達10 wt.ppb，Mo為100 wt.ppb，Na未達10 wt.ppb。

比較例2

針對與實施例2中所使用之 IF_5 相同之 IF_5 ，使用與實施例1相同之裝置，不進行本發明之氟化鹵素間化合物之純化方法中之[轉化步驟][再轉化步驟]，而僅藉由先前之氟化鹵素間化合物之純化中所使用之[雜質去除步驟]進行純化。

[1]雜質去除步驟(第1次)

首先，使真空脫氣裝置16運轉而將容器11、12內脫氣。

於脫氣後之容器11內填充306.2 g之作為純化物質之液體之 IF_5 (1.38 mol)，利用調溫裝置將容器11之內部溫度保持為 50°C (蒸發溫度)。將設置於主容器11與利用調溫裝置使內部溫度保持為 25°C (捕集溫度)之容器12之間之分隔閥13打開，使 IF_5 之蒸氣之一部分自容器11移動至容器12並凝縮，將其捕集並回收(容器11中之回收量為1.36莫耳，產率為98.1%)。關閉分隔閥13，利用真空脫氣裝置16將容器12脫氣，藉此去除容器12內之包含雜質之殘渣。

[2]雜質去除步驟(第2次)

利用調溫裝置將裝有 IF_5 之容器11之內部溫度保持為 50°C (蒸發溫度)。將設置於主容器11與利用調溫裝置將內部溫度保持為 25°C (捕集溫度)之容器12之間之分隔閥13打開，使 IF_5 之蒸氣自容器11移動至容器12並凝縮，將其捕集並回收(容器12中之回收量為1.33莫耳，產率為98.1%)。關閉分隔閥13，利用真空脫氣裝置16將容器11進行脫氣，藉此去除容器11內之包含雜質之殘渣。

[1]~[2]之一連串步驟中之碘基準之 IF_5 之總產率為96.3%。將容器11內之氣體之 IF_5 自「用以對氣相進行分析之排出口17」排出，將液體之 IF_5

自「用以對液相進行分析之排出口18」排出，使超純水吸收各自後，利用上述感應耦合電漿質譜儀，將雜質 SiF_4 、 MoF_6 、 NaF 之含有率分別換算為 Si 、 Mo 、 Na 後進行測定。液相之測定結果為： Si 未達10 wt.ppb， Mo 未達10 wt.ppb， Na 為20 wt.ppb。氣相之測定結果為： Si 、 Mo 、 Na 之任一者均未達10 wt.ppb。

比較例3

針對與實施例1中所使用之 IF_7 相同之 IF_7 ，使用與實施例1相同之裝置，不進行本發明之氟化鹵素間化合物之純化方法中之[轉化步驟][再轉化步驟]，而僅藉由先前之氟化鹵素間化合物之純化中所使用之[雜質去除步驟]進行純化。

[1]雜質去除步驟

首先，使真空脫氣裝置16運轉而將容器11、12內脫氣。

於脫氣後之容器11內填充363.9 g之作為純化物質之液體之 IF_7 (1.40 mol)，利用調溫裝置將容器11之內部溫度保持為 30°C (蒸發溫度)。將設置於主容器11與利用調溫裝置將內部溫度保持為 10°C (捕集溫度)之容器12之間之分隔閥13打開，使 IF_7 之蒸氣之一部分自容器11移動至容器12並凝縮，將其捕集並回收(容器11中之回收量為1.36莫耳，產率為97.0%)。關閉分隔閥13，利用真空脫氣裝置16將容器12進行脫氣，藉此去除容器12內之包含雜質之殘渣。

碘基準之 IF_7 之總產率為97.0%。藉由與實施例2相同之方法，將容器11內之氣體之 IF_7 自「用以對氣相進行分析之排出口17」排出，將液體之 IF_7 自「用以對液相進行分析之排出口18」排出，使超純水吸收各自後，利用上述感應耦合電漿質譜儀，將雜質 SiF_4 、 MoF_6 、 NaF 之含有率分別換

算為Si、Mo、Na後進行測定。對容器11之IF₇之雜質進行分析。液相之測定結果為：Si為30 wt.ppb，Mo為760 wt.ppb，Na為1000 wt.ppb以上。

氣相之測定結果為：Si為70 wt.ppb，Mo為420 wt.ppb，Na為40 wt.ppb。

比較例4

針對與實施例2中所使用之IF₅相同之IF₅，使用與實施例1相同之裝置，不進行本發明之氟化鹵素間化合物之純化方法中之[轉化步驟][再轉化步驟]，而僅藉由先前之氟化鹵素間化合物之純化中所使用之[雜質去除步驟]進行純化。

[1]雜質去除步驟

首先，使真空脫氣裝置16運轉而將容器11、12內脫氣。

於脫氣後之容器11內填充308.4 g之作為純化物質之液體之IF₅(1.39 mol)，利用調溫裝置將容器11之內部溫度保持為50°C(蒸發溫度)。將設置於主容器11與利用調溫裝置將內部溫度保持為25°C(捕集溫度)之容器12之間之分隔閥13打開，使IF₅之蒸氣自容器11移動至容器12並凝縮，將其捕集(容器12中之回收量為1.36莫耳，產率為97.7%)。關閉分隔閥13，利用真空脫氣裝置16將容器11進行脫氣，藉此去除容器11內之包含雜質之殘渣。

碘基準之IF₅之總產率為97.0%。將容器12內之氣體之IF₅自「用以對氣相進行分析之排出口17」排出，將液體之IF₅自「用以對液相進行分析之排出口18」排出，使超純水吸收各自後，利用上述感應耦合電漿質譜儀，將雜質SiF₄、MoF₆、NaF之含有率分別換算為Si、Mo、Na後進行測定。液相之測定結果為：Si為40 wt.ppb，Mo為70 wt.ppb，Na為20 wt.ppb。氣相之測定結果為：Si為70 wt.ppb，Mo為170 wt.ppb，Na未達

10 wt.ppb。

表3中表示比較例1～4之純化條件及產率。

[表3]

	純化物質	起始量(mol)	[1]雜質去除步驟(第1次)					[2]雜質去除步驟(第2次)					總產率(%)
			蒸發溫度(℃)	捕集溫度(℃)	回收成分	產率(%)	回收量(mol)	蒸發溫度(℃)	捕集溫度(℃)	回收成分	產率	回收量(mol)	
比較例1	IF ₇	1.39	30	10	餾液	97.8	1.36	30	10	底部殘留物	97.8	1.33	95.6
比較例2	IF ₅	1.38	50	25	底部殘留物	98.1	1.36	50	25	餾液	98.1	1.33	96.3
比較例3	IF ₇	1.40	30	10	底部殘留物	97.0	1.36						97.0
比較例4	IF ₅	1.39	50	25	餾液	97.7	1.36						97.0

繼而，於表4中表示實施例1～4及比較例1～4中之在IF₇及IF₅之純化前後所測得之雜質量。

[表4]

實施例 比較例	純化物質	液相中之雜質濃度			氣相中之雜質濃度		
		SiF ₄	MoF ₆	NaF	SiF ₄	MoF ₆	NaF
		wt.ppb	wt.ppb	wt.ppb	wt.ppb	wt.ppb	wt.ppb
		(換算為Si)	(換算為Mo)	(換算為Na)	(換算為Si)	(換算為Mo)	(換算為Na)
純化前	IF ₇	100	750	≥1000	200	400	< 10
	IF ₅	20	60	≥1000	50	150	< 10
實施例1	IF ₇	< 10	50	< 10	< 10	20	< 10
比較例1		< 10	250	< 10	< 10	100	< 10
實施例2	IF ₅	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10	< 10
比較例2		< 10	< 10	20	< 10	< 10	< 10
實施例3	IF ₇	< 10	200	≥1000	< 10	100	< 10
比較例3		30	760	≥1000	70	420	40
實施例4	IF ₅	30	40	< 10	60	100	< 10
比較例4		40	70	20	70	170	< 10

IF₅之沸點：98℃、IF₇之沸點：5℃、SiF₄之沸點：-95℃、MoF₆之沸點：34℃
NaF之沸點：1700℃

若對將純化物質設為IF₇之利用本發明之氟化鹵素間化合物之純化方法之實施例1及3、與利用不在本發明之範疇內之先前之氟化鹵素間化合物之純化方法之比較例1及3進行比較，則比較例1於液相、氣相時沸點高於

IF₇之雜質即MoF均多於實施例1，且比較例3於液相、氣相時沸點高於IF₇之雜質即MoF均多於實施例3。

又，若對將純化物質設為IF₅之利用本發明之氟化鹵素間化合物之純化方法之實施例2及4、與利用不在本發明之範疇內之先前之氟化鹵素間化合物之純化方法之比較例2、4進行比較，則比較例2於液相時沸點高於IF₅之雜質即NaF多於實施例2，比較例4於液相時沸點高於IF₅之雜質即NaF多於實施例4。

2. ClF₃之純化

繼而，於以下之實施例5～6中，藉由本發明之氟化鹵素間化合物之純化方法進行ClF₃之純化。

2-1. 實施例5～6

實施例5

藉由本發明之氟化鹵素間化合物之純化方法進行ClF₃之純化。具體而言，於自ClF₃向ClF轉化之前，使一部分之ClF₃蒸發，藉此主要去除沸點低於ClF₃之雜質，之後將ClF₃轉化而製成ClF，輸送ClF並使其凝固，藉此主要去除沸點高於ClF之雜質，自ClF向ClF₃進行再轉化，藉此將ClF₃純化(對應於發明12)。純化裝置係使用與實施例1相同之裝置。

[1]雜質去除步驟(第1次)

首先，使真空脫氣裝置16運轉而將容器11、12內脫氣。

於脫氣後之容器11內填充185.0 g之作為純化物質之液體狀之ClF₃(2 mol)，利用調溫裝置將容器11之內部溫度保持為25℃(蒸發溫度)。此時，容器11之內壓以絕對壓力計為172 kPa。

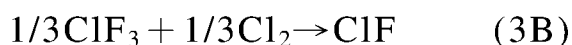
對純化前之液相之ClF₃之雜質進行測定，結果為，以換算值計，Si

為20 wt.ppb，Mo為400 wt.ppb，Na未達10 wt.ppb。對純化前之氣相(氣體)之 ClF_3 之雜質進行測定，結果為，以換算值計，Si為300 wt.ppb，Mo為350 wt.ppb，Na未達10 wt.ppb。

將設置於主容器11與利用調溫裝置將內部溫度保持為 0°C (捕集溫度)之容器12之間之分隔閥13打開，使 ClF_3 之蒸氣之一部分自容器11移動至容器12並凝縮，將其捕集並回收(容器11中之回收量為1.96莫耳，產率為98%)。關閉分隔閥13，藉由真空脫氣裝置16將容器12進行脫氣，藉此去除容器12內之包含雜質(主要為沸點低於 ClF_3 之雜質)之殘渣。

[2]轉化步驟($1/3\text{ClF}_3 + 1/3\text{Cl}_2 \rightarrow \text{ClF}$)

繼而，利用調溫裝置將裝有 ClF_3 之容器11之內部溫度保持為 10°C (反應溫度)。此時，容器11之內壓以絕對壓力計為94 kPa。自氯氣(Cl_2)供給器14向容器11內平穩地供給氯氣(Cl_2)，藉由以下之式(3B)所示之反應，將 ClF_3 轉化為 ClF (回收量為2.73莫耳，產率為99.5%)。



[3]雜質去除步驟(第2次)

利用調溫裝置將裝有液體狀之 ClF 之容器11之內部溫度保持為 10°C (蒸發溫度)。容器11之內壓以絕對壓力計為677 kPa。將容器11與利用冷媒將內部溫度保持為 -186°C (捕集溫度)之容器12間之分隔閥13打開，使 ClF 之蒸氣自容器11移動至容器12並將之凝固，將其捕集並回收(容器12中之回收量為2.73莫耳，產率為98.0%)。關閉分隔閥13，利用真空脫氣裝置16將容器11進行脫氣，藉此去除容器11內之包含雜質(主要為沸點高於 ClF 之雜質)之殘渣。

[4]再轉化步驟($\text{ClF} + \text{F}_2 \rightarrow \text{ClF}_3$)

利用調溫裝置將裝有ClF之容器12之內部溫度保持為25℃(反應溫度)。此時，容器12之內壓以絕對壓力計為676 kPa。向容器12平穩地供給氟氣(F₂)15，藉由以下之式(4B)所示之反應，將ClF再轉化為ClF₃(回收量為2.66莫耳，產率為99.5%)。



[1]~[4]之一連串步驟中之氯基準之ClF₃之總產率為95.6%。將容器12內之氣體之ClF₃自「用以對氣相進行分析之排出口17」排出，將液體之ClF₃自「用以對液相進行分析之排出口18」排出，使超純水吸收各自後，利用上述感應耦合電漿質譜儀，將作為雜質之SiF₄、MoF₆、NaF之含有率分別換算為Si、Mo、Na後進行測定。液相之測定結果為：Si未達10 wt.ppb，Mo為20 wt.ppb，Na未達10 wt.ppb。氣相之測定結果為：Si為20 wt.ppb，Mo未達10 wt.ppb，Na未達10 wt.ppb。

實施例6

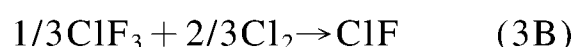
藉由本發明之氟化鹵素間化合物之純化方法進行ClF₃之純化。具體而言，將ClF₃轉化而製成ClF，輸送ClF並使其凝固，藉此主要去除沸點高於ClF之雜質，自ClF向ClF₃進行再轉化，藉此將ClF₃純化(對應於發明11)。純化裝置係使用與實施例1相同之裝置，ClF₃係使用與實施例5中所使用之ClF₃相同ClF₃。

[1]轉化步驟(1/3ClF₃ + 2/3Cl₂ → ClF)

首先，使真空脫氣裝置16運轉而將容器11、12內脫氣。

於脫氣後之容器11內填充185.0 g之作為純化物質之液狀之ClF₃(2.00 mol)，利用調溫裝置將容器11之內部溫度保持為10℃(反應溫度)。此時，容器11之內壓以絕對壓力計為94 kPa。自氯氣(Cl₂)供給器14向容器11內

平穩地供給氯氣(Cl_2)，藉由以下之式(3B)所示之反應，將 ClF_3 轉化為 ClF (回收量為2.79莫耳，產率為99.5%)。



[2]雜質去除步驟

利用調溫裝置將裝有液狀之 ClF 之容器11之內部溫度保持為 10°C (蒸發溫度)。容器11之內壓以絕對壓力計為692 kPa。將容器11與利用冷媒將內部溫度保持為 -186°C (捕集溫度)之容器12間之分隔閥13打開，使 ClF 之蒸氣自容器11移動至容器12並將之凝固，將其回收(容器12中之回收量為2.73莫耳，產率為98.0%)。關閉分隔閥13，利用真空脫氣裝置16將容器11進行脫氣，藉此去除容器11內之包含雜質(主要為沸點高於 ClF 之雜質)之殘渣。

[3]再轉化步驟($\text{ClF} + \text{F}_2 \rightarrow \text{ClF}_3$)

利用調溫裝置將裝有 ClF 之容器12之內部溫度保持為 10°C (捕集溫度)。此時，容器12之內壓以絕對壓力計為640 kPa。向容器12平穩地供給氟氣(F_2)15，藉由以下之式(4B)所示之反應，將 ClF 再轉化為 ClF_3 (回收量為2.72莫耳，產率為99.5%)。



[1]~[3]之一連串步驟中之氯基準之 ClF_3 之總產率為97.0%。將容器11內之氣體之 ClF_3 自「用以對氣相進行分析之排出口17」排出，將液體之 ClF_3 自「用以對液相進行分析之排出口18」排出，使超純水吸收各自後，利用上述感應耦合電漿質譜儀，將作為雜質之 SiF_4 、 MoF_6 、 NaF 之含有率分別換算為Si、Mo、Na後進行測定。液相之測定結果為：Si未達10 wt.ppb，Mo為30 wt.ppb，Na未達10 wt.ppb。氣相之測定結果為：Si為

20 wt.ppb，Mo為20 wt.ppb，Na未達10 wt.ppb。

表5中表示實施例5、6中之純化之條件及產率。

[表5]

	純化物質	起始量(mol)	[1]雜質去除步驟(第1次)					[2]轉化步驟			
			蒸發溫度(°C)	捕集溫度(°C)	回收成分	產率(%)	回收量(mol)	反應式	反應溫度(°C)	產率(%)	回收量(mol)
實施例5	ClF ₃	2	25	0	底部殘留物	98.0	1.96	(1/3)ClF ₃ + (1/3)Cl ₂ →ClF	10	99.5	2.73
			[1]轉化步驟								
實施例6	ClF ₃	2						(1/3)ClF ₃ + (2/3)Cl ₂ →ClF	10	99.5	2.79

[3]雜質去除步驟(第2次)					[4]再轉化步驟				總產率(%)
蒸發溫度(°C)	捕集溫度(°C)	回收成分	產率(mol)	回收量(%)	反應式	反應溫度(°C)	產率(%)	回收量(mol)	
10	-186	餾液	98.0	2.68	ClF + F ₂ →ClF ₃	25	99.5	2.66	95.6
[2]雜質去除(第1次)					[3]再轉化步驟				
10	-186	底部殘留物	98.0	2.73	ClF + F ₂ →ClF ₃	10	99.5	2.72	97.0

2-2.比較例5～6

繼而，於比較例5～6中，藉由不在本發明之範疇內之純化方法進行ClF₃之純化。

比較例5

針對與實施例5所使用之ClF₃相同ClF₃，使用與實施例1相同之裝置，不進行本發明之氟化鹵素間化合物之純化方法中之[轉化步驟][再轉化步驟]，而僅藉由先前之氟化鹵素間化合物之純化中所使用之[雜質去除步驟]進行純化。

[1]雜質去除步驟(第1次)

首先，使真空脫氣裝置16運轉而將容器11、12內脫氣。

於脫氣後之容器11內填充257.2 g之作為純化物質之液體狀之 ClF_3 (2.78 mol)，利用調溫裝置將容器11之內部溫度保持為 25°C (蒸發溫度)。將設置於主容器11與利用調溫裝置將內部溫度保持為 0°C (捕集溫度)之容器12之間之分隔閥13打開，使 ClF_3 之蒸氣自容器11移動至容器12並凝縮，將其捕集並回收(容器12中之回收量為2.72莫耳，產率為97.8%)。關閉分隔閥13，利用真空脫氣裝置16將容器11進行脫氣，藉此去除容器11內之包含雜質之殘渣。

[2]雜質去除步驟(第2次)

利用調溫裝置將裝有 ClF_3 之容器12之內部溫度保持為 25°C (蒸發溫度)。將設置於主容器12與利用調溫裝置將內部溫度保持為 0°C (捕集溫度)之容器11之間之分隔閥13打開，使 ClF_3 之蒸氣之一部分自容器12移動至容器11並凝縮，將其捕集並回收(容器12中之回收量為2.66莫耳，產率為97.8%)。關閉分隔閥13，利用真空脫氣裝置16將容器11進行脫氣，藉此去除容器11內之包含雜質之殘渣。

[1]~[2]之一連串步驟中之氯基準之 ClF_3 之總產率為95.6%。藉由與實施例5相同之方法，將容器11內之氣體之 ClF_3 自「用以對氣相進行分析之排出口17」排出，將液體之 ClF_3 自「用以對液相進行分析之排出口18」排出，使超純水吸收各自後，利用上述感應耦合電漿質譜儀，將雜質 SiF_4 、 MoF_6 、 NaF 之含有率分別換算為Si、Mo、Na後進行測定。對容器12之 ClF_3 之雜質進行分析。液相之測定結果為：Si未達10 wt.ppb，Mo為230 wt.ppb，Na未達10 wt.ppb。氣相之測定結果為：Si未達10 wt.ppb，Mo為100 wt.ppb，Na未達10 wt.ppb。

比較例6

針對與實施例5所使用之 ClF_3 相同 ClF_3 ，使用與實施例1相同之裝置，不進行本發明之氟化鹵素間化合物之純化方法中之[轉化步驟][再轉化步驟]，而僅藉由先前之氟化鹵素間化合物之純化中所使用之[雜質去除步驟]進行純化。

[1]雜質去除步驟

首先，使真空脫氣裝置16運轉而將容器11、12內脫氣。

於脫氣後之容器11內填充259.0 g之液體之 ClF_3 (2.80 mol)，利用調溫裝置將容器11之內部溫度保持為 25°C (蒸發溫度)。將設置於主容器11與利用調溫裝置將內部溫度保持為 0°C (捕集溫度)之容器12之間之分隔閥13打開，使 ClF_3 之蒸氣之一部分自容器11移動至容器12並凝縮，將其捕集並回收(容器11中之回收量為2.72莫耳，產率為97.0%)。關閉分隔閥13，利用真空脫氣裝置16將容器12進行脫氣，藉此去除容器12內之包含雜質之殘渣。

氯基準之 ClF_3 之總產率為97.0%。藉由與實施例2相同之方法，將容器11內之氣體之 ClF_3 自「用以對氣相進行分析之排出口17」排出，將液體之 ClF_3 自「用以對液相進行分析之排出口18」排出，使超純水吸收各自後，利用上述感應耦合電漿質譜儀，將雜質 SiF_4 、 MoF_6 、 NaF 之含有率分別換算為Si、Mo、Na後進行測定。對容器11之 ClF_3 之雜質進行分析。液相之測定結果為：Si為10 wt.ppb以下，Mo為300 wt.ppb，Na為10 wt.ppb以下。氣相之測定結果為：Si為70 wt.ppb，Mo為420 wt.ppb，Na為10 wt.ppb以下。

表6中表示比較例5、6中之純化之條件及產率。

[表6]

	純化物質	起始量(mol)	[1]雜質去除步驟(第1次)					[2]雜質去除步驟(第2次)					總產率(%)
			蒸發溫度(°C)	捕集溫度(°C)	回收成分	產率(%)	回收量(mol)	蒸發溫度(°C)	捕集溫度(°C)	回收成分	產率(%)	回收量(moi)	
比較例5	ClF ₃	1.78	25	0	底部殘留物	97.8	2.72	25	0	餾液	97.8	2.66	95.6
比較例6	ClF ₃	2.80	25	0	餾液	97.0	2.72						97.0

◎2-3.實施例5～6及比較例5～6中之在ClF₃之純化前後所測得之雜質量

表7中表示實施例5～6及比較例5～6中之在ClF₃之純化前後所測得之雜質量。

[表7]

		液相中之雜質濃度			氣相中之雜質濃度		
		SiF ₄	MoF ₆	NaF	SiF ₄	MoF ₆	NaF
實施例	純化	wt.ppb	wt.ppb	wt.ppb	wt.ppb	wt.ppb	wt.ppb
比較例	物質	(換算為Si)	(換算為Mo)	(換算為Na)	(換算為Si)	(換算為Mo)	(換算為Na)
純化前	ClF ₃	20	400	<10	300	350	<10
實施例5	ClF ₃	<10	20	<10	<10	<10	<10
比較例5		<10	230	<10	<10	<10	<10
實施例6		<10	30	<10	<10	100	<10
比較例6		<10	300	<10	70	420	<10

ClF之沸點：-100℃、ClF₃之沸點：11℃、SiF₄之沸點：-95℃、MoF₆之沸點：34℃
NaF之沸點：1700℃

若對將純化物質設為ClF₃之利用本發明之氟化鹵素間化合物之純化方法之實施例5及6、與利用不在本發明之範疇內之先前之氟化鹵素間化合物之純化方法之比較例5及6進行比較，則比較例6於液相、氣相時沸點接近ClF₃之雜質即MoF₆均多於實施例5，且比較例6於液相、氣相時沸點接近ClF₃之雜質即MoF₆均多於實施例6。

【符號說明】

11 鎳製容器

- 12 鎳製容器
- 13 分隔閥
- 14 碘氣(I₂)供給器或氯氣(Cl₂)供給器
- 15 氟氣(F₂)供給器
- 16 真空脫氣裝置
- 17 用以對氣相進行分析之排出口
- 18 用以對液相進行分析之排出口

【發明申請專利範圍】

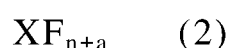
【第1項】

一種氟化鹵素間化合物之純化方法，其係式(1)所表示之第1氟化鹵素間化合物之純化方法，該方法具有：

轉化步驟，其係使上述第1氟化鹵素間化合物所包含之氟原子之個數變化而生成式(2)所表示之第2氟化鹵素間化合物；

雜質去除步驟，其係自上述第2氟化鹵素間化合物去除雜質；及

再轉化步驟，其係使上述第2氟化鹵素間化合物所包含之氟原子之個數變化而生成式(1)所表示之第1氟化鹵素間化合物，



(式中，X為氯原子、溴原子或碘原子，F為氟原子， n 、 $n\pm a$ 為 $n \geq 1$ 、 $a \geq 1$ 、 $7 \geq n\pm a \geq 1$ 之自然數)。

【第2項】

如請求項1之氟化鹵素間化合物之純化方法，其中於上述轉化步驟之前進而包括自上述第1氟化鹵素間化合物去除雜質之雜質去除步驟。

【第3項】

如請求項1或2之氟化鹵素間化合物之純化方法，其中上述第1氟化鹵素間化合物為選自由 ClF 、 ClF_3 、 ClF_5 、 BrF_3 、 BrF_5 、 IF_5 、 IF_7 所組成之群中之至少一種氟化鹵素間化合物。

【第4項】

如請求項1至3中任一項之氟化鹵素間化合物之純化方法，其中

作為使上述第1氟化鹵素間化合物或上述第2氟化鹵素間化合物所包

含之氟原子之個數變化之方法，係使用使氟化鹵素間化合物、與選自由 F_2 、 Cl_2 、 Br_2 、 I_2 、 ClF 、 ClF_3 、 ClF_5 、 BrF_3 、 BrF_5 、 IF_5 及 IF_7 所組成之群中之至少一種化合物進行反應之方法(但是，相同化合物彼此之組合除外)、

或者使氟化鹵素間化合物分解之方法之任一者。

【第5項】

如請求項1至4中任一項之鹵素間化合物之純化方法，其中

作為自上述第2氟化鹵素間化合物去除雜質之方法，係使用選自由相變、蒸餾、吸附、膜分離、萃取及晶析所組成之群中之至少一種方法。

【第6項】

如請求項2之鹵素間化合物之純化方法，其中

作為自上述第1氟化鹵素間化合物去除雜質之方法，係使用選自由相變、蒸餾、吸附、膜分離、萃取及晶析所組成之群中之至少一種方法。

【第7項】

如請求項1之氟化鹵素間化合物之純化方法，其中

上述第1氟化鹵素間化合物為 IF_7 ，

上述第2氟化鹵素間化合物為 IF_5 ，

自上述第2氟化鹵素間化合物去除雜質之雜質去除步驟係藉由使一部分 IF_5 蒸發而主要去除沸點低於 IF_5 之雜質之步驟。

【第8項】

如請求項7之氟化鹵素間化合物之純化方法，其中

於上述轉化步驟之前進而包括自上述第1氟化鹵素間化合物去除雜質之雜質去除步驟，

自上述第1氟化鹵素間化合物去除雜質之雜質去除步驟係藉由使 IF_7 蒸發後凝縮而主要去除沸點高於 IF_7 之雜質之步驟。

【第9項】

如請求項1之氟化鹵素間化合物之純化方法，其中

上述第1氟化鹵素間化合物為 IF_5 ，

上述第2氟化鹵素間化合物為 IF_7 ，

自上述第2氟化鹵素間化合物去除雜質之雜質去除步驟係藉由使 IF_7 蒸發後凝縮而主要去除沸點高於 IF_7 之雜質之步驟。

【第10項】

如請求項9之氟化鹵素間化合物之純化方法，其中

於上述轉化步驟之前進而包括自上述第1氟化鹵素間化合物去除雜質之雜質去除步驟，

自上述第1氟化鹵素間化合物去除雜質之雜質去除步驟係藉由使一部分 IF_5 蒸發而主要去除沸點低於 IF_5 之雜質之步驟。

【第11項】

如請求項1之氟化鹵素間化合物之純化方法，其中

上述第1氟化鹵素間化合物為 ClF_3 ，

上述第2氟化鹵素間化合物為 ClF ，

自上述第2氟化鹵素間化合物去除雜質之雜質去除步驟係藉由使 ClF 蒸發後凝固而主要去除沸點高於 ClF 之雜質。

【第12項】

如請求項11之氟化鹵素間化合物之純化方法，其中

於上述轉化步驟之前進而包括自上述第1氟化鹵素間化合物去除雜質

之雜質去除步驟，

自上述第1氟化鹵素間化合物去除雜質之雜質去除步驟係藉由使一部分 ClF_3 蒸發而主要去除沸點低於 ClF_3 之雜質之步驟。

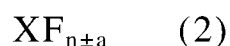
【第13項】

一種包括氟化鹵素間化合物之純化步驟之氟化鹵素間化合物之製造方法，其係式(1)所表示之第1氟化鹵素間化合物之製造方法，該方法具有：

轉化步驟，其係使上述第1氟化鹵素間化合物所包含之氟原子之個數變化而生成式(2)所表示之第2氟化鹵素間化合物；

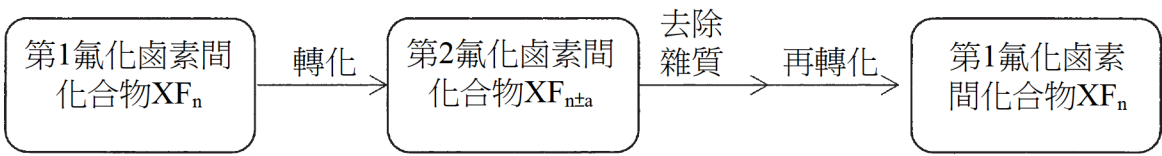
雜質去除步驟，其係自上述第2氟化鹵素間化合物去除雜質；及

再轉化步驟，其係使上述第2氟化鹵素間化合物所包含之氟原子之個數變化而生成式(1)所表示之第1氟化鹵素間化合物，



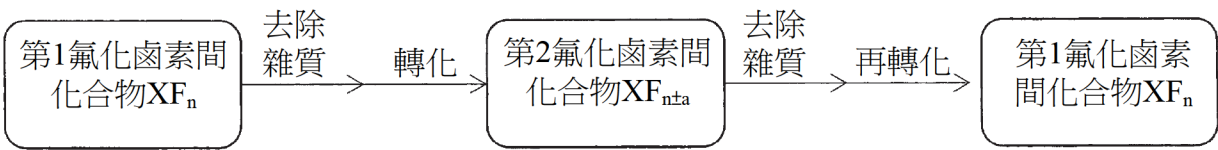
(式中，X為氯原子、溴原子或碘原子，F為氟原子， n 、 $n\pm a$ 為 $n \geq 1$ 、 $a \geq 1$ 、 $7 \geq n\pm a \geq 1$ 之自然數)。

【發明圖式】



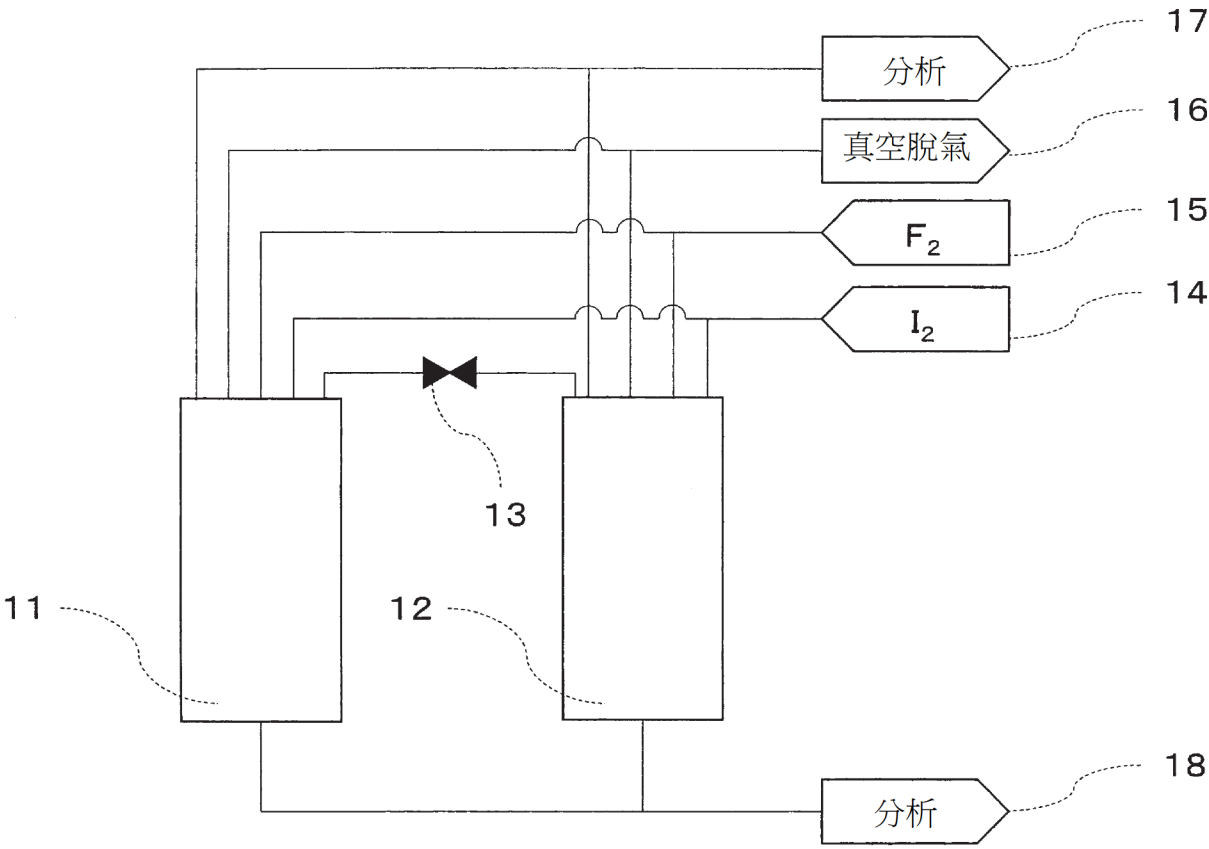
X表示Cl、Br或I。 n 及 $n\pm a$ 表示鍵結於X之氟原子之個數。
具體而言， XF_n 及 $XF_{n\pm a}$ 係自ClF、ClF₃、ClF₅、BrF₃、BrF₅、IF₅、IF₇中進行選擇。
其中， $n\geq 1$ 、 $a\geq 1$ 、 $n\pm a\geq 1$ ， n 及 a 為自然數。

【圖1】



X表示Cl、Br或I。 n 及 $n\pm a$ 表示鍵結於X之氟原子之個數。
具體而言， XF_n 及 $XF_{n\pm a}$ 係自ClF、ClF₃、ClF₅、BrF₃、BrF₅、IF₅、IF₇中進行選擇。
其中， $n\geq 1$ 、 $a\geq 1$ 、 $n\pm a\geq 1$ ， n 及 a 為自然數。

【圖2】



【圖3】