

(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



(10) 国際公開番号

WO 2010/016133 A1

(43) 国際公開日
2010年2月11日(11.02.2010)

PCT

- (51) 国際特許分類:
C01B 33/107 (2006.01) C04B 41/87 (2006.01)
B01J 12/00 (2006.01) C23C 16/42 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2008/064237
- (22) 国際出願日: 2008年8月7日(07.08.2008)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 電気化学工業株式会社(DENKI KAGAKU KOGYO KABUSHIKI KAISHA) [JP/JP]; 〒1038338 東京都中央区日本橋室町二丁目1番1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): 湯舟 和之(YUBUNE, Kazuyuki) [JP/JP]; 〒9490393 新潟県糸魚川市大字青海2209番地 電気化学工業株式会社 青海工場内 Niigata (JP). 小林 峯登(KOBAYASHI, Mineto) [JP/JP]; 〒9490393 新潟県糸魚川市大字青海2209番地 電気化学工業株式会社 青海工場内 Niigata (JP). 竹内 孝夫

(TAKEUCHI, Takao) [JP/JP]; 〒9490393 新潟県糸魚川市大字青海2209番地 電気化学工業株式会社 青海工場内 Niigata (JP). 和久田 裕介(WAKUDA, Yusuke) [JP/JP]; 〒9490393 新潟県糸魚川市大字青海2209番地 電気化学工業株式会社 青海工場内 Niigata (JP).

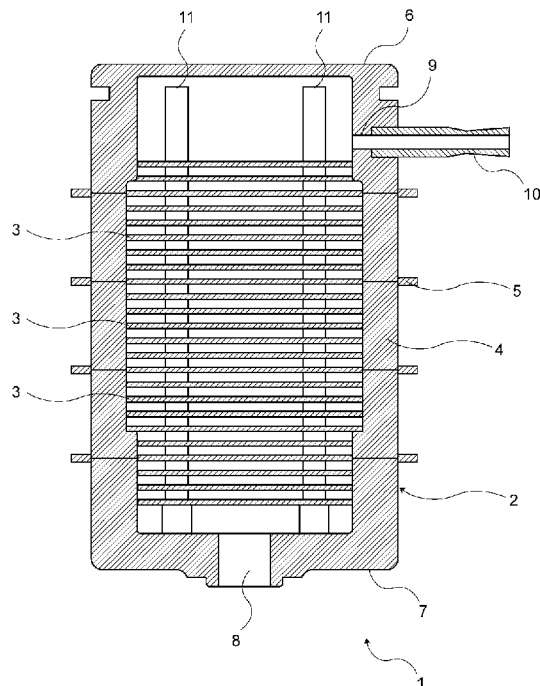
- (74) 代理人: 園田 吉隆, 外(SONODA, Yoshitaka et al.); 〒1630453 東京都新宿区西新宿二丁目1番1号 新宿三井ビル53階 園田・小林特許事務所 Tokyo (JP).
- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, 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, ST, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

[続葉有]

(54) Title: REACTOR MADE OF CARBON

(54) 発明の名称: カーボン製反応装置

[図1]



(57) Abstract: A reactor made of carbon which is to be used for conducting the vapor-phase reaction of chlorosilane with hydrogen at high temperatures. It is characterized by comprising a reaction vessel and, disposed in the vessel, a packing member which is made of carbon and forms a gas passage for disturbing a flow of a gas mixture of chlorosilane and hydrogen, the surface of the packing member made of carbon being coated with a silicon carbide film.

(57) 要約: 本発明は、クロロシランと水素とを高温下で気相反応させるためのカーボン製反応装置であって、当該反応装置の反応容器内部に、クロロシランと水素とからなる混合ガスの流れを乱すガス通路を形成するカーボン製充填部材が配設され、前記カーボン製充填部材の表面が炭化ケイ素被膜でコーティングされていることを特徴とするカーボン製反応装置に関する。

WO 2010/016133 A1



(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, 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, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MT, NL, NO,

PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

明 細 書

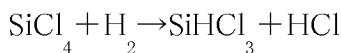
カーボン製反応装置

技術分野

- [0001] 本発明は、クロロシランと水素とを効率的に反応させるためのカーボン製反応装置並びに当該反応装置を用いてクロロシランと水素とを効率的かつ高い作業能率で反応させる方法に関する。

背景技術

- [0002] クロロシランは、半導体や太陽電池等の素子に使用される高純度シリコンの原料として益々需要の増加が見込まれており、従来からこれらを効率良く製造することが要望されている。
- [0003] その製法の一部として、例えば、テトラクロロシラン(SiCl_4)と水素(H_2)とを接触させることによるトリクロロシラン(SiHCl_3)の生成がある。



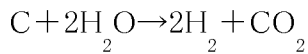
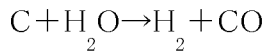
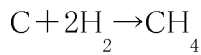
この反応は、ガス化したテトラクロロシランと水素との混合ガスを800℃～1300℃に加熱したカーボン製反応容器等において行われる(特許文献1)。

特許文献1:特開平9-157073

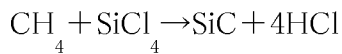
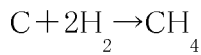
発明の開示

発明が解決しようとする課題

- [0004] 上記反応の転換効率を向上させるために、反応容器の内側に充填部材を配置した反応装置を用いることが考えられる。
- 充填部材は、反応装置内に供給された混合ガスに対する伝熱効率を高めると共に、混合ガスの直進を妨げることによってガス流に乱れを生じさせてガスを効果的に混合して反応させ、また反応装置におけるガスの滞留時間をより長く確保することを可能にする。
- [0005] しかしながら、充填部材を例えばカーボン製とすると、反応装置内に供給される水素や、水素の燃焼により生成する水によって、以下に示すように、カーボンを主材料とする充填部材の組織は減肉または脆化されてしまう。



[0006] さらに、メタンのような副産物は、供給されるクロロシランと反応して以下に示すように炭化ケイ素 (SiC) を生成し、生成された炭化ケイ素が充填部材の表面に付着して、混合ガスの通路である通気孔を閉塞することがある。



[0007] かくして、部材の腐食や通気孔の閉塞の問題を惹起させないで反応効率を高めることが求められていた。

[0008] 本発明は上記事情に鑑みてなされたものであり、部材の化学的劣化や通気孔の目詰まりによる作業能率の低下を招くことなく、高い反応効率を達成することができるカーボン製反応装置を提供することを目的としている。

課題を解決するための手段

[0009] 本発明者等は、前記課題を解決する方法を鋭意検討した結果、表面に炭化ケイ素被膜を施したカーボン製充填部材を反応領域に充填することにより、反応効率を向上させると共に、反応装置内に存在する反応性物質による化学的浸食を防止し、かくして、カーボン製充填部材に対する反応副産物の付着を防止できることを見出し本発明に至った。

[0010] すなわち本発明は、クロロシランと水素とを高温下で気相反応させるためのカーボン製反応装置であつて、当該反応装置の反応容器内部に、クロロシランと水素とからなる混合ガスの流れを乱すガス通路を形成するカーボン製充填部材が配設され、前記カーボン製充填部材の表面が炭化ケイ素被膜でコーティングされていることを特徴としている。

[0011] ここで、カーボン製充填部材とは、反応装置内のガス流の通路に配されてガス流に乱れを生じさせる部材を意味し、例えば、ラシヒリング、レシングリング等の成型充填物、多孔板、邪魔板等、如何なる構造のものでも構わない。配置方法も充填部材の種類によって様々な態様が可能であり、要は、クロロシランと水素ガスの流れに乱れ

を生じさせることができる配置であればよい。

かかるカーボン製反応装置によれば、高い反応効率を達成することができる上、炭化ケイ素被膜が水素や水等の反応物質による化学的分解に対して極めて高い耐性を有するため、カーボン組織の化学的浸食を防止できる。従って、反応装置内にメタン等の炭化水素系反応物質が生成されず、カーボン製充填部材の表面に付着し得る炭化ケイ素の発生を抑制することができ、作業能率を向上させることができる。

[0012] カーボン製充填部材としては、カーボン製反応装置の内部を複数の小室に区切る複数の仕切り板から構成され、該仕切り板には、該仕切り板を貫通する複数の通気孔が形成されていることが好ましい。

この場合に、通気孔を設ける位置、個数、大きさ等は、任意に設定可能であるが、確実にガス成分を混合し、かつ、滞留時間をより長く確保できるように設定することが好ましい。

[0013] また、カーボン製充填部材の炭化ケイ素被膜をCVD法により形成すること、並びに、被膜の厚みを10～500 μm とすることが好適である。

炭化ケイ素被膜は化学的分解に対して極めて高い耐性を有するため、カーボン組織の化学的浸食を防止できる。従って、かかるカーボン製反応装置によれば、カーボン製充填部材の表面を腐食から保護することができる。

[0014] さらに、耐熱衝撃性に優れていることから、カーボン製充填部材が黒鉛製であることが好適である。

[0015] また、カーボン製反応装置を構成する反応容器が、複数のカーボン製略円筒体が端部同士を突き合わせて略同軸に配され、突き合わせ端部が外周からカーボン製リングで締結されてなることが好ましい。

[0016] かかる反応容器によれば、連結部において一方のカーボン製略円筒体の端部が他方のカーボン製略円筒体の端部に嵌合していないため、仮に個々のカーボン製略円筒体の熱膨張係数が相違したとしても、高温環境下で使用した際に連結部に割れやひび割れを引き起こすことがないため、設備の修繕頻度を低減し、作業能率をさらに向上させることが可能である。

[0017] クロロシランと水素とを反応させるためのカーボン製反応装置として、本発明に係る

上記カーボン製反応装置を用いることにより、カーボン製充填部材の化学的浸食を防止でき、カーボン製充填部材に対する反応副産物の付着を防止することができる。そのため、カーボン製反応装置の部品を交換する頻度が低減され、反応炉の作業能率を改善することができる。

発明の効果

- [0018] 本発明によれば、カーボン製充填部材の化学的浸食を防止でき、カーボン製充填部材に対する反応副産物の付着を防止することができる。そのため、反応装置の構成部材を交換する頻度が低減され、反応炉の作業能率を改善することができる。

図面の簡単な説明

- [0019] [図1]本発明によるカーボン製反応装置の一実施態様を示す概略縦断面図である。
[図2]本発明に使用されるカーボン製充填部材の一実施態様を示す概略平面図である。
[図3]本発明に使用されるカーボン製略円筒体の一実施態様を示す概略斜視図である。
[図4]本発明に使用されるカーボン製リングの一実施態様を示す概略斜視図である。

符号の説明

- [0020] 1:反応装置
2:反応容器
3:充填部材
4:略円筒体
5:リング
6:反応容器天蓋部
7:反応容器底板部
8:導入口
9:拔出口
10:拔出管
11:支持棒
12:通気孔

13:固定孔

14:雄ネジ部

15:雌ネジ部

発明を実施するための最良の形態

[0021] 以下、本発明の実施の形態について、図面を用いて説明する。尚、すべての図面において、同様な構成要素には同一の符号を付し、適宜説明を省略する。

[0022] 図1は、本実施形態のカーボン製反応装置1を概略的に示したものである。

図示実施形態のカーボン製反応装置1は、主に、カーボン製反応装置1の外囲部を形成する反応容器2と、その内部に配置されるカーボン製充填部材3から構成される。

反応容器2は、複数の略円筒体4を互いに結合して構成されている。略円筒体4はカーボン製、さらに好適には黒鉛製であり、その内周面および／または外周面が炭化ケイ素被膜処理されていることが好ましい。略円筒体4同士の結合方法としては、ネジ結合や接着等があるが、略円筒体4同士の間には気密性を維持するためにシーリング材(図示せず)が配置される。本実施形態では、設備の修繕頻度を低減し、作業能率をさらに向上させる観点から、肩部や突出部を有しない略円筒状のカーボン製略円筒体4を用い、当該複数のカーボン製略円筒体4の端部同士を突き合わせて略同軸に上下に配し、このカーボン製略円筒体4同士の連結部を外周側からカーボン製リング5を用いて締結する構成としている。このような構成とすることにより、連結部において一方のカーボン製略円筒体4の端部が他方のカーボン製略円筒体4の端部に嵌合していないため、仮に個々のカーボン製略円筒体4の熱膨張係数が相違したとしても連結部に割れやひび割れが発生しにくくなる。

[0023] 上端に配された略円筒体4は、上端側が閉塞されて反応容器2の天蓋部6とされ、下端に配された略円筒体4は、下端側が閉塞されて反応容器2の底板部7が構成されている。また、その底板部7の中央部に原料ガスの導入口8が形成されると共に、該導入口8から遠い上方側の略円筒体4の側壁には、反応後のガスの抜出口9が形成され、該抜出口9に抜出管10が接続されている。

反応容器2の内部には、複数枚のカーボン製充填部材3が支持棒11に固定された

状態で配置されている。支持棒11は、特に限定されるものではないが、供給される混合ガスとの反応を避けるために、カーボン製充填部材3および反応容器2と同一の材質からなることが好ましく、特に、表面に炭化ケイ素被膜が処理されたカーボン製、さらに好適には黒鉛製であることが好ましい。

[0024] このカーボン製反応装置1を、上下方向に延びる複数の長尺のヒータを内部に備える外筒内に配置し、ヒータで反応装置1の外壁を加熱することにより、導入口から導入されるテトラクロロシランおよび水素ガスが約800℃から約1300℃の高温で反応させられ、反応抜出口9からトリクロロシランを含む反応生成物ガスの形態で抜き出される構成とされている。

[0025] <カーボン製充填部材>

本実施形態のカーボン製充填部材3は、図2に示すように円盤状であり、この円盤の任意の位置に複数の通気孔12を設けたものを用いる。各カーボン製充填部材3には、対応する位置に当該カーボン製充填部材3を支持棒11に固定するための固定孔13が設けられている。

[0026] カーボン製充填部材3の外径寸法は、それを装填する反応容器2の内部寸法に依存する。すなわち、カーボン製充填部材3の外径は反応容器2を構成する略円筒体4の内径よりも小さいことはもちろんであるが、カーボン製充填部材3の外周部と略円筒体4の内壁との間を混合ガスが容易に直進してしまわないよう、カーボン製充填部材3と反応容器2の内壁との間に大きな隙間ができないように設計することが好ましい。具体的には、装填したカーボン製充填部材3と反応容器2の内壁との間の隙間が、反応容器2の内径の7/1000以下となることが好ましい。

[0027] カーボン製充填部材3の厚みは、カーボン製充填部材3の強度を保持するため、並びに、その表面に施す後記の炭化ケイ素被膜の剥離を避けるために、典型的には、0.5～20cm、好ましくは1.5cm～15cmとする。

[0028] カーボン製充填部材3を構成する材質としては、耐熱衝撃性に優れている点から黒鉛材、特に、微粒子構造のため強度が高く、熱膨張等の特性がどの方向に対しても同一であることから耐熱性および耐食性にも優れている等方性高純度黒鉛を用いることが好ましい。

[0029] カーボン製充填部材3には、混合ガスの流れを乱すための通気孔12が設けられている。通気孔12の大きさは、混合ガスが通ることができれば特に限定されないが、炭化ケイ素等の副生物が多少付着したとしても直ちに閉塞されないよう、反応容器2の内径の15/1000以上とすることが好ましい。また、混合ガスの流れを効果的に制御できるよう、反応容器2の内径の30/1000以下とすることが好ましい。

[0030] 通気孔12を設ける位置は、特に制限されるものではないが、カーボン製充填部材3を反応容器2内に装填した際に、ガスの直進を妨げるように配置されていることが好ましい。このように配置することによって、反応装置1内においてクロロシランと水素とが適宜混ぜ合わせられると共に、混合ガスが反応装置1内に滞留する時間を十分に確保することができる。

[0031] <表面処理>

カーボン製充填部材3の表面に形成される炭化ケイ素被膜は、特に制限はないが、典型的にはCVD法により形成することができる。

[0032] CVD法によりカーボン製充填部材3の表面に炭化ケイ素被膜を形成するには、例えば、テトラクロロシラン又はトリクロロシランのようなハロゲン化ケイ素化合物とメタンやプロパンなどの炭化水素化合物との混合ガスを用いる方法、またはメチルトリクロロシラン、トリフェニルクロロシラン、メチルジクロロシラン、ジメチルジクロロシラン、トリメチルクロロシランのような炭化水素基を有するハロゲン化ケイ素化合物を水素で熱分解しながら、加熱されたカーボン製充填部材3の表面に炭化ケイ素を堆積させる方法を用いることができる。

[0033] 炭化ケイ素被膜の厚みは、10～500 μm とすることが好ましく、30～300 μm であればさらに好ましい。炭化ケイ素被膜の厚みが10 μm 以上であれば、反応装置1内に存在する水素、水、メタン等によるカーボン製充填部材3の腐食を十分に抑制でき、また、500 μm 以下であれば、炭化ケイ素被膜のひび割れやカーボン製充填部材3の割れが助長されることもない。

[0034] 形成された炭化ケイ素被膜は、緻密均質なピンホールのない被膜であり、化学安定性に優れているため、炭化ケイ素被膜を施したカーボン製充填部材3を装填した反応装置1中でクロロシランと水素との反応を行っても、表面が腐食されることがない。

。また、従来、カーボン製充填部材3等の表面が化学的浸食を受けることによって発生していたメタン等の炭化水素系反応物質が反応装置1内に生成されないため、炭化水素系反応物質とクロロシランとの反応により生じる炭化ケイ素がカーボン製充填部材3の表面に付着することによって生じていた通気孔12の目詰まりを抑制することができる。従って、本発明に係るカーボン製反応装置1を用いてクロロシランと水素との反応を行えば、設備の修繕頻度を低減でき、作業能率をさらに向上させることができる。

[0035] <カーボン製略円筒体>

本実施形態のカーボン製略円筒体4は、図3に示すように、上下の端部外周に雄ネジ部14が形成された略円筒状であり、従来のカーボン製反応装置1に用いられていた円筒体のように上端もしくは下端に肩部や突出部が形成されていない。そのため、大きな凹凸のない極めて単純な形状であるとともに、肉厚をその長さ方向全体にわたってほぼ均一とすることができることから、物理的衝撃や熱的衝撃に対して優れた耐性を有する。また、連結部において一方のカーボン製略円筒体の端部を他方のカーボン製略円筒体の端部に嵌合させる構成となっていないため、仮に個々のカーボン製略円筒体4の熱膨張係数が相違したとしても連結部に割れやひび割れが発生しにくい。従って、このようなカーボン製略円筒体4を、腐食耐性に優れた上記カーボン製充填部材3と組み合わせて使用することにより、設備の修繕頻度を格段に低減し、作業能率を顕著に向上させることが可能である。

[0036] カーボン製略円筒体4の厚みは、強度を保持するため、並びに、その表面に施す後記の炭化ケイ素被膜の剥離を避けるために、典型的には、0.5～20cm、好ましくは1.5cm～15cmとするのが好ましい。

[0037] カーボン製略円筒体4の上端外周面および下端外周面には、それぞれカーボン製略円筒体4をカーボン製リング5に螺合させるための雄ネジ部14が形成されている。

上端外周面および下端外周面における雄ネジ部14の形成幅は、特に限定されるものではないが、カーボン製リング5との螺合締結を確実なものとするために、カーボン製略円筒体4の円筒高さの8/100以上、さらには9/100以上とするのが好ましい。

形成する雄ネジ部14の巻きの方向、条数、ネジ山の形状、径およびピッチは、特に限定されるものではない。

[0038] また、カーボン製略円筒体4を構成する材質としては、気密性に優れた黒鉛材が好ましく、特に、微粒子構造のため強度が高く、熱膨張等の特性がどの方向に対しても同一であることから耐熱性および耐食性にも優れている等方性高純度黒鉛を用いることが好ましい。

[0039] カーボン製略円筒体4は、カーボン組織の化学的浸食を防ぐため、その表面に炭化ケイ素被膜を形成することが好ましい。特に、上記カーボン製充填部材3と同様に、炭化ケイ素被膜をCVD法により形成すること、並びに、被膜の厚みを10～500 μ mとすることが好適である。

[0040] <カーボン製リング>

本実施形態のカーボン製リング5は、図4に示すように、内周面に雌ネジ部15が形成された略円筒状のリングである。上記カーボン製略円筒体4と同様に、大きな凹凸のない極めて単純な形状であるとともに、肉厚もその幅方向にわたってほぼ均一であることから、物理的衝撃や熱衝撃に対して優れた耐性を有する。

[0041] カーボン製リング5は、その内周面に形成した雌ネジ部15により上記カーボン製略円筒体4の上端外周面または下端外周面の雄ネジ部14に螺合する必要性から、その内径はカーボン製略円筒体4の外径とほぼ同一とされる。

[0042] カーボン製リング5の径方向の厚みは、強度を保持するため、並びに、その表面に施す後記の炭化ケイ素被膜の剥離を避けるために、典型的には、0.5～20cm、好ましくは1.5cm～15cmとするのが好ましい。

[0043] カーボン製リング5の上下方向の幅は、連結される一方のカーボン製略円筒体4の上端および他方のカーボン製略円筒体4の下端に確実に螺合するものでなければならない。典型的には、カーボン製略円筒体4とカーボン製リング5とを螺合させた場合に、一方のカーボン製略円筒体4がカーボン製リング5の幅の半分までしか螺入できないことを考慮して、カーボン製リング5の上下方向の幅は、カーボン製略円筒体4の円筒高さの10/100以上かつ1/2以下、さらには12/100以上かつ1/2以下とすることが好ましい。

[0044] カーボン製リング5の内周面に形成される雌ネジ部15の巻きの方向、条数、ネジ溝の形状、径およびピッチは、連結される両カーボン製略円筒体4の突き合わせ端部の各外周面に形成されたネジ山に対応するものでなければならない。

[0045] また、カーボン製リング5を構成する材質は、熱膨張率において上記カーボン製略円筒体4と極端に相違しないよう、カーボン製略円筒体4を構成する材質と同一であることが好ましい。

[0046] カーボン製リング5は、カーボン組織の化学的浸食を防ぐため、その表面に炭化ケイ素被膜を形成することが好ましい。特に、上記カーボン製充填部材3と同様に、炭化ケイ素被膜をCVD法により形成すること、並びに、被膜の厚みを10～500 μ mとすることが好適である。

[0047] <反応容器の組み立て>

上記カーボン製略円筒体4をカーボン製リング5を用いて連結するには、第一のカーボン製略円筒体4の上端にカーボン製リング5を嵌め合わせ、第一のカーボン製略円筒体4の上端がカーボン製リング5の幅の半分に達するまで螺入させ、さらに当該カーボン製リング5の開放端側に第二のカーボン製略円筒体4の下端を嵌め合わせ、当該第二のカーボン製略円筒体4の下端が前記第一のカーボン製略円筒体4の上端に当接するまで当該第二のカーボン製略円筒体4を前記カーボン製リング5に螺入させる。以上の作業を、所望の大きさの反応容器2が得られるまで、順次繰り返す。

[0048] このとき、カーボン製略円筒体4を気密に連結するために、予めカーボン製略円筒体4の上端外周面および下端外周面またはカーボン製リング5の内周面に、セメント材等の適切なシール材を塗布しておくことが好ましい。あるいは、カーボン製略円筒体4とカーボン製リング5とを螺合させた後に、両部材の目地をシール材で塞いでもよい。

[0049] 以上、図面を参照して本発明の実施形態について述べたが、これらは本発明の例示であり、上記以外の様々な構成を採用することもできる。

例えば、上記実施の形態ではカーボン製充填部材の形状を平板状としたが、混合ガスへの伝熱効率がよく、混合ガスのカーボン製反応容器内における直進を妨げる

ものであれば、どのような形状であってもよい。例えば、カーボン製充填部材がチップ状またはブロック状等の(小塊状)であっても、ガスの流れを制限するのに十分量のカーボン製充填部材を反応容器内に装填することにより、上記実施形態と同様の作用効果が得られる。

実施例

[0050] 以下、本発明を実施例によりさらに説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

[0051] 実施例1

等方性黒鉛からなる直径24.7cm、厚さ1.3cmの円盤であって、中心から12.5cmの位置に当該円盤を支持棒に固定するための5つの固定孔が形成され、さらに、この円盤の任意の位置に径が0.5cmの通気孔が複数形成されているカーボン製充填部材を複数枚製造した。

[0052] 次いで、これらのカーボン製充填部材の表面に炭化ケイ素被膜を形成するために、カーボン製充填部材を、それぞれCVD反応装置内に設置し、内部をアルゴンガスで置換したのち、1200℃に加熱した。CVD反応装置内にトリクロロメチルシランと水素の混合ガス(モル比1:5)を導入し、CVD法により、通気孔の内側表面を含むカーボン製充填部材の全表面に200 μ mの厚みの炭化ケイ素被膜を形成した。

[0053] 次に、上記と同様に炭化ケイ素被膜を施した長さ160cmの等方性黒鉛からなる5本の支持棒を準備し、当該支持棒にカーボン製充填部材を2.5cmの間隔を空けて固定した。

[0054] 一方、内径25cm、厚さ2.7cm、高さ28cmの等方性黒鉛からなる直円筒状のカーボン製略円筒体であって、上端から9cmにわたる外周面および下端から9cmにわたる外周面に雄ネジ部が設けられ、全表面に200 μ mの厚みの炭化ケイ素被膜が形成されているカーボン製略円筒体を複数準備した。また、反応容器の天蓋部を構成する上端側略円筒体、並びに反応容器の底板部を構成する下端側略円筒体についても同様に、連結側の端部外周面に雄ネジ部を設け、表面全体に炭化ケイ素被膜を形成した。

[0055] 次に、内径30.4cm、上下方向(軸線方向)の幅20cm、径方向の厚み10cmの等

方性黒鉛からなるカーボン製リングであって、内周面に前記カーボン製略円筒体に形成された雄ネジ部と螺合する雌ネジ部が形成されたカーボン製リングを複数準備し、上記カーボン製充填部材と同様にその全表面に炭化ケイ素被膜を施した。

[0056] これらのカーボン製充填部材、カーボン製略円筒体およびカーボン製リングを用いて高さ160cmの反応装置を構成し、この反応装置に配管及び加熱装置等をセットして反応炉として整えた。

[0057] この反応炉にテトラクロロシランと水素(モル=1:1)の混合ガスを供給し、常圧、反応温度1100℃で反応を行い、トリクロロシランを生成した。

[0058] 反応炉を連続的に2000時間運転した後、反応装置を解体してカーボン製充填部材の表面を観察した。本実施例では、カーボン製充填部材の表面に顕著な腐食及び通気孔の目詰まりは観察されなかった。

[0059] 比較例1

実施例1において、CVD法によりカーボン製充填部材の表面に炭化ケイ素被膜を形成しないこと以外は、同様にカーボン製反応装置を製造・使用し、反応装置を解体してカーボン製充填部材の表面を観察したところ、表面の腐食がひどく、通気孔の閉塞が認められた。

[0060] <実験の考察>

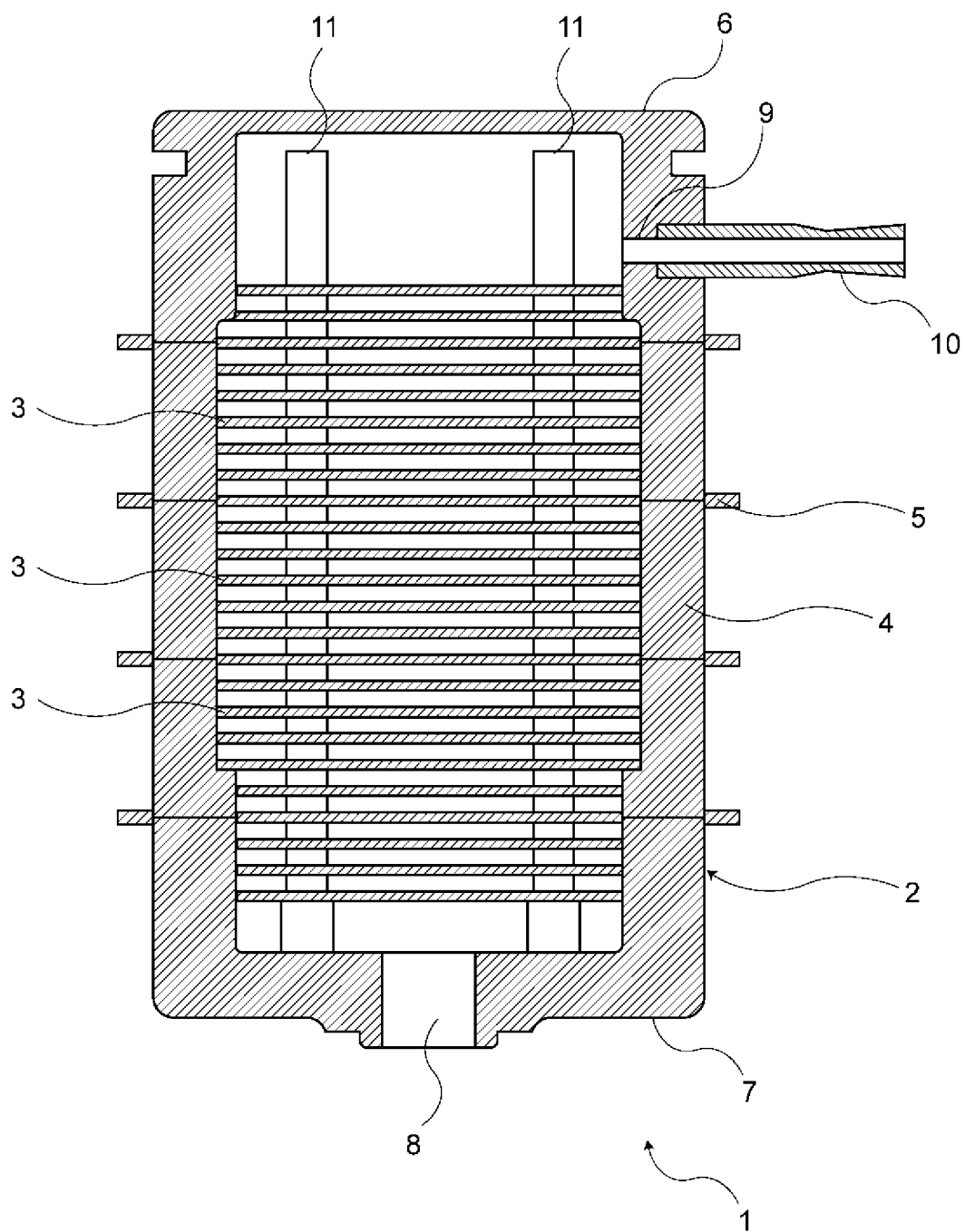
以上の比較実験から明らかなように、炭化ケイ素被膜処理によりカーボン製充填剤の表面腐食が抑制され、通気孔の目詰まりを防止することが可能である。

[0061] 以上、本発明を実施例に基づいて説明した。この実施例はあくまで例示であり、種々の変形例が可能なこと、またそうした変形例も本発明の範囲にあることは当業者に理解されるところである。

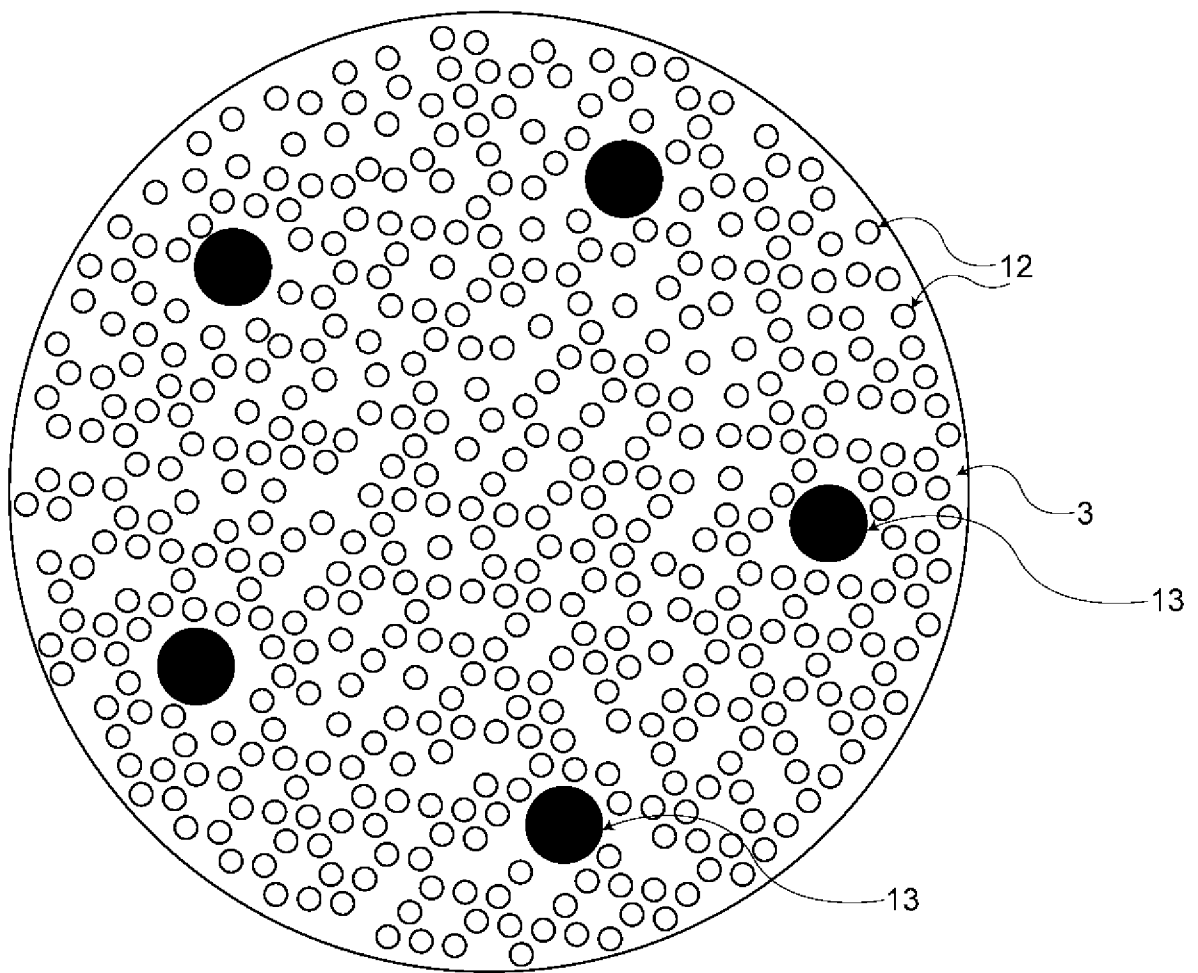
請求の範囲

- [1] クロロシランと水素とを高温下で気相反応させるためのカーボン製反応装置であつて、
- 当該反応装置の反応容器内部に、クロロシランと水素とからなる混合ガスの流れを乱すガス通路を形成するカーボン製充填部材が配設され、
- 前記カーボン製充填部材の表面が炭化ケイ素被膜でコーティングされていることを特徴とするカーボン製反応装置。
- [2] 前記カーボン製充填部材が、カーボン製反応装置の内部を複数の小室に区切る複数の仕切り板から構成され、該仕切り板には、該仕切り板を貫通する複数の通気孔が形成されていることを特徴とする、請求項1記載のカーボン製反応装置。
- [3] 前記カーボン製充填部材の炭化ケイ素被膜がCVD法により形成されたことを特徴とする、請求項1記載のカーボン製反応装置。
- [4] 前記カーボン製充填部材の炭化ケイ素被膜が10～500 μ mの厚みを有することを特徴とする、請求項1記載のカーボン製反応装置。
- [5] 前記カーボン製充填部材が黒鉛製であることを特徴とする、請求項1記載のカーボン製反応装置。
- [6] 前記反応容器が、複数のカーボン製略円筒体が端部同士を突き合わせて略同軸に配され、突き合わせ端部が外周からカーボン製リングで締結されてなることを特徴とする、請求項1記載のカーボン製反応装置。
- [7] 請求項1記載のカーボン製反応装置を用いることを特徴とする、クロロシランと水素とを反応させる方法。

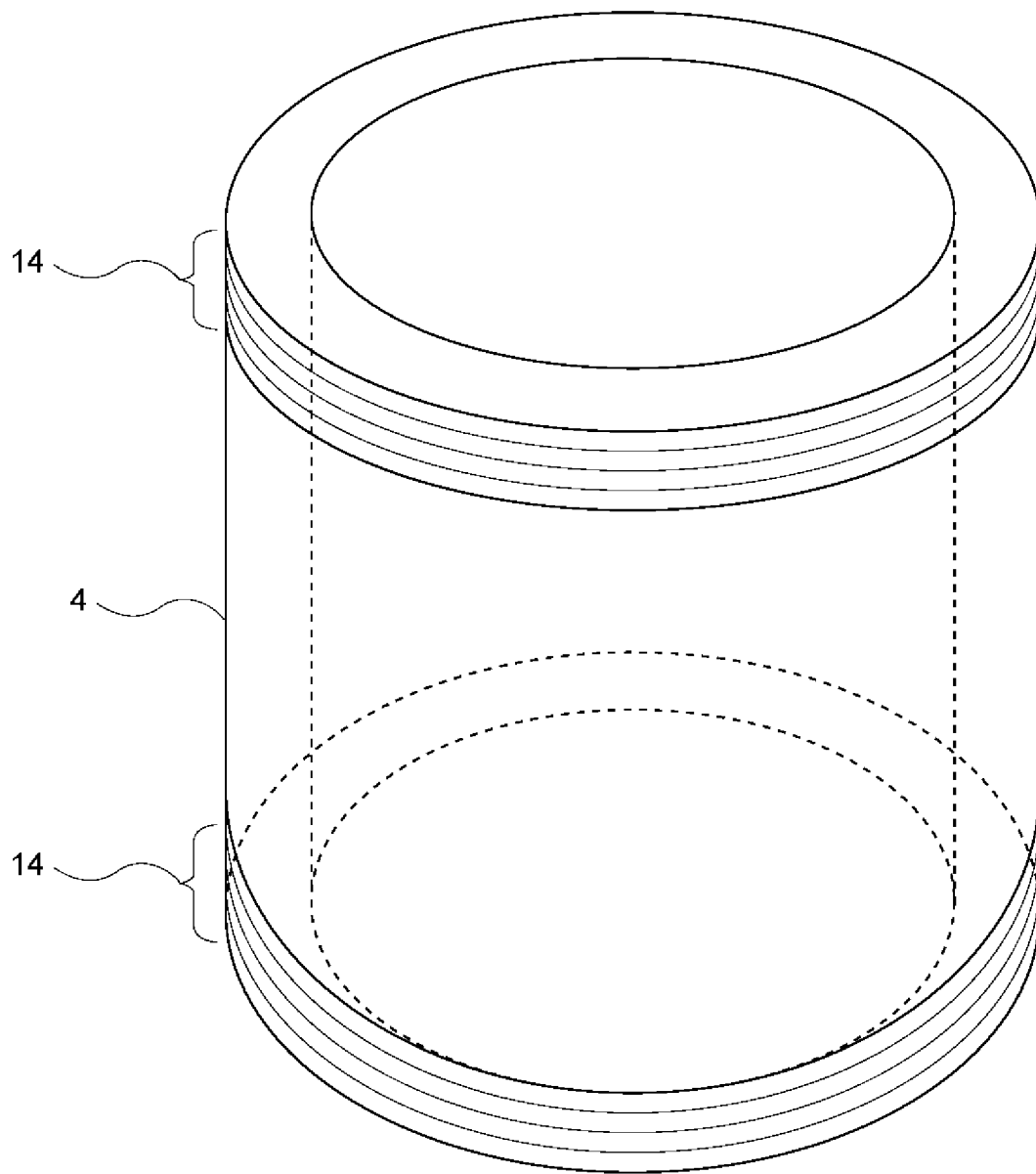
[図1]



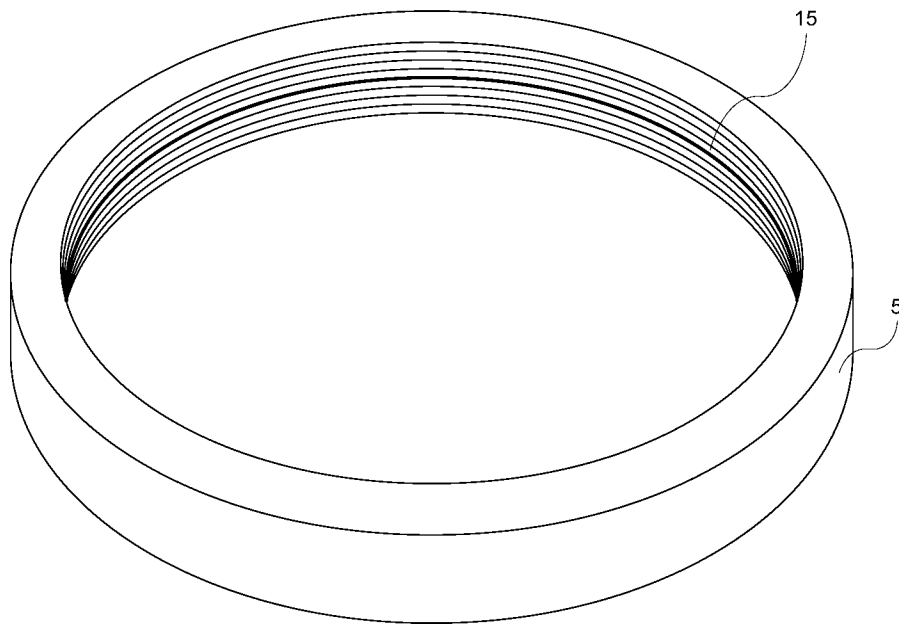
[図2]



[図3]



[図4]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2008/064237

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C01B33/107(2006.01)i, B01J12/00(2006.01)i, C04B41/87(2006.01)i, C23C16/42(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)

C01B33/00-39/54, B01J10/00-12/00, B01J14/00-19/32, C04B41/87, C23C16/42

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.
Y	JP 9-157073 A (Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha), 17 June, 1997 (17.06.97), Claims; Par. Nos. [0005] to [0014] (Family: none)	1-7
Y	WO 2005/016820 A1 (Tokuyama Corp.), 24 February, 2005 (24.02.05), Abstract; Claims; Par. Nos. [0001], [0018] to [0104]; examples; Figs. 1 to 16 & US 2006/0219161 A1 & EP 1661857 A1	1-7

☐ 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
03 September, 2008 (03.09.08)

Date of mailing of the international search report
16 September, 2008 (16.09.08)

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. C01B33/107 (2006.01) i, B01J12/00 (2006.01) i, C04B41/87 (2006.01) i, C23C16/42 (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. C01B33/00-39/54, B01J10/00-12/00, B01J14/00-19/32, C04B41/87, C23C16/42

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
Y	JP 9-157073 A (電気化学工業株式会社) 1997.06.17, 特許請求の範囲、【0005】～【0014】 (ファミリーなし)	1 - 7
Y	WO 2005/016820 A1 (株式会社トクヤマ) 2005.02.24, 【要約】、特許請求の範囲、【0001】、【0018】～【0104】、実施例、図1～16 & US 2006/0219161 A1 & EP 1661857 A1	1 - 7

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

0 3 . 0 9 . 2 0 0 8

国際調査報告の発送日

1 6 . 0 9 . 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)

廣野 知子

4 G

9 2 6 6

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