

【公報種別】特許法第 17 条の 2 の規定による補正の掲載

【部門区分】第 3 部門第 1 区分

【発行日】平成20年12月4日(2008.12.4)

【公開番号】特開2007-119294(P2007-119294A)

【公開日】平成19年5月17日(2007.5.17)

【年通号数】公開・登録公報2007-018

【出願番号】特願2005-313361(P2005-313361)

【国際特許分類】

C 0 1 B 21/083 (2006.01)

【F I】

C 0 1 B 21/083

【手続補正書】

【提出日】平成20年10月22日(2008.10.22)

【手続補正 1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

フッ素ガスとアンモニアガスとを管状反応器に供給して、希釈ガスの存在下、気相中、無触媒条件で反応させて、主として三フッ化窒素からなるガス生成物と主としてフッ化アンモニウムおよび／または酸性フッ化アンモニウムからなる固形生成物とを生成させる三フッ化窒素の製造方法であって、前記管状反応器および／または配管の内壁に付着した前記固形生成物を不活性ガスの存在下で加熱処理して除去することを特徴とする三フッ化窒素の製造方法。

【請求項 2】

前記管状反応器を 2 つ以上使用し、かつ、これら 2 つ以上の管状反応器を切り替えながら上記反応を行なうことを特徴とする請求項 1 に記載の三フッ化窒素の製造方法。

【請求項 3】

前記管状反応器が、その長さ方向が鉛直方向となるように設置されていることを特徴とする請求項 1 または 2 に記載の三フッ化窒素の製造方法。

【請求項 4】

前記管状反応器内部のガスの流れが、鉛直下向きであることを特徴とする請求項 1 ～ 3 のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【請求項 5】

長さ方向が鉛直方向となるように設置された管状反応器の上部からフッ素ガスとアンモニアガスとを供給して、希釈ガスの存在下、気相中、無触媒条件で反応させて、主として三フッ化窒素からなるガス生成物と主としてフッ化アンモニウムおよび／または酸性フッ化アンモニウムからなる固形生成物とを生成させる三フッ化窒素の製造方法であって、前記管状反応器を 2 つ以上使用し、かつ、これら 2 つ以上の管状反応器を切り替えながら上記反応を行い、

前記管状反応器に装着された、振動発生装置および／または掻き取り機により、前記管状反応器の内壁に付着した前記固形生成物の一部を除去し、かつ、前記管状反応器の内壁に残存した前記固形生成物および／または配管の内壁に付着した前記固形生成物を不活性ガスの存在下で加熱処理して除去することを特徴とする三フッ化窒素の製造方法。

【請求項 6】

前記振動発生装置が前記反応器の外部に装着されたエアノッカーおよび／またはエア

式ピストンバイブレ - タであり、該振動発生装置により前記固形生成物を払い落として除去することを特徴とする請求項 5 に記載の三フッ化窒素の製造方法。

【請求項 7】

前記掻き取り機を、前記管状反応器内部を鉛直上下方向に自在に駆動させて前記固形生成物を掻き取り除去することを特徴とする請求項 5 に記載の三フッ化窒素の製造方法。

【請求項 8】

前記掻き取り機を、前記管状反応器の半径方向断面の中心を通る鉛直軸を中心軸として該反応器内部を自在に回転させて前記固形生成物を掻き取り除去することを特徴とする請求項 5 または 7 に記載の三フッ化窒素の製造方法。

【請求項 9】

前記フッ素ガスが、酸素および酸素含有化合物の合計含有量が 0 . 1 v o l % 以下ならびにテトラフルオロメタンの含有量が 5 0 v o l p p m 以下の高純度フッ素ガスであることを特徴とする請求項 1 ~ 8 のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【請求項 10】

前記アンモニアガスが、酸素および酸素含有化合物の合計含有量が 1 0 v o l p p m 以下ならびに油分の含有量が 2 質量 p p m 以下の高純度アンモニアガスであることを特徴とする請求項 1 ~ 9 のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【請求項 11】

前記高純度フッ素ガス中に含まれる酸素含有化合物が、 NO 、 NO_2 、 N_2O 、 CO 、 CO_2 、 H_2O 、 OF_2 および O_2F_2 からなる群より選ばれる少なくとも 1 種の化合物であることを特徴とする請求項 9 に記載の三フッ化窒素の製造方法。

【請求項 12】

前記高純度アンモニアガス中に含まれる酸素含有化合物が、 NO 、 NO_2 、 N_2O 、 CO 、 CO_2 および H_2O からなる群より選ばれる少なくとも 1 種の化合物であることを特徴とする請求項 10 に記載の三フッ化窒素の製造方法。

【請求項 13】

フッ素ガスとアンモニアガスとを 6 0 以下の温度で反応させることを特徴とする請求項 1 ~ 12 のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【請求項 14】

前記管状反応器が冷却構造を有することを特徴とする請求項 1 ~ 13 のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【請求項 15】

フッ素ガスとアンモニアガスとを、モル比（フッ素ガス：アンモニアガス）が 1 : 1 ~ 1 : 2 の範囲で供給することを特徴とする請求項 1 ~ 14 のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【請求項 16】

前記希釈ガスが、窒素、ヘリウム、アルゴン、六弗化硫黄、ヘキサフルオロエタン、オクタフルオロプロパンおよび三フッ化窒素からなる群より選ばれる少なくとも 1 種のガスであることを特徴とする請求項 1 ~ 15 のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【請求項 17】

希釈ガスを循環使用することを特徴とする請求項 1 ~ 16 のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【請求項 18】

前記反応後、未反応のフッ素ガスをアルカリ水溶液および / またはアルミナで処理することを特徴とする請求項 1 ~ 17 のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【請求項 19】

前記不活性ガスが、窒素、ヘリウム、アルゴンからなる群より選ばれる少なくとも 1 種のガスであることを特徴とする請求項 1 ~ 18 のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【請求項 20】

前記加熱処理を 1 3 5 以上で実施することを特徴とする請求項 1 ~ 1 9 のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【請求項 2 1】

前記フッ素ガスの供給濃度が 3 モル % 以下であることを特徴とする請求項 1 ~ 2 0 のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【請求項 2 2】

前記アンモニアガスの供給濃度が 6 モル % 以下であることを特徴とする請求項 1 ~ 2 1 のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【請求項 2 3】

フッ素ガスとアンモニアガスとを 0 . 0 5 ~ 1 . 0 M P a の圧力で反応させることを特徴とする請求項 1 ~ 2 2 のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【請求項 2 4】

前記 2 つ以上の管状反応器のうちの少なくとも 1 つを用いてフッ素ガスとアンモニアガスとを反応させ、該反応に使用していない残りの管状反応器の内壁に残存した前記固形生成物および / または配管の内壁に付着した前記固形生成物を不活性ガスの存在下で加熱処理して除去することを特徴とする請求項 2 および 5 ~ 2 3 のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【手続補正 2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0 0 1 5

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0 0 1 5】

[5] 長さ方向が鉛直方向となるように設置された管状反応器の上部からフッ素ガスとアンモニアガスとを供給して、希釈ガスの存在下、気相中、無触媒条件で反応させて、主として三フッ化窒素からなるガス生成物と主としてフッ化アンモニウムおよび / または酸性フッ化アンモニウムからなる固形生成物とを生成させる三フッ化窒素の製造方法であって、前記管状反応器を 2 つ以上使用し、かつ、これら 2 つ以上の管状反応器を切り替えながら上記反応を行い、

前記管状反応器に装着された、振動発生装置および / または掻き取り機により、前記管状反応器の内壁に付着した前記固形生成物の一部を除去し、かつ、前記管状反応器の内壁に残存した前記固形生成物および / または配管の内壁に付着した前記固形生成物を不活性ガスの存在下で加熱処理して除去することを特徴とする三フッ化窒素の製造方法。

【手続補正 3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0 0 1 6

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0 0 1 6】

[6] 前記振動発生装置が前記反応器の外部に装着されたエアノッカーおよび / またはエア式ピストンバイブレタであり、該振動発生装置により前記固形生成物を払い落として除去することを特徴とする [5] に記載の三フッ化窒素の製造方法。

【手続補正 4】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0 0 1 7

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0 0 1 7】

[7] 前記掻き取り機を、前記管状反応器内部を鉛直上下方向に自在に駆動させて前記固形生成物を掻き取り除去することを特徴とする [5] に記載の三フッ化窒素の製造方法

°

【手続補正 5】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0018

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0018】

〔 8 〕前記掻き取り機を、前記管状反応器の半径方向断面の中心を通る鉛直軸を中心軸として該反応器内部を自在に回転させて前記固形生成物を掻き取り除去することを特徴とする〔 5 〕または〔 7 〕に記載の三フッ化窒素の製造方法。

【手続補正 6】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0019

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0019】

〔 9 〕前記フッ素ガスが、酸素および酸素含有化合物の合計含有量が 0.1 vol % 以下ならびにテトラフルオロメタンの含有量が 50 vol ppm 以下の高純度フッ素ガスであることを特徴とする〔 1 〕～〔 8 〕のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【手続補正 7】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0020

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0020】

〔 10 〕前記アンモニアガスが、酸素および酸素含有化合物の合計含有量が 10 vol ppm 以下ならびに油分の含有量が 2 質量 ppm 以下の高純度アンモニアガスであることを特徴とする〔 1 〕～〔 9 〕のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【手続補正 8】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0021

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0021】

〔 11 〕前記高純度フッ素ガス中に含まれる酸素含有化合物が、NO、NO₂、N₂O、CO、CO₂、H₂O、OF₂およびO₂F₂からなる群より選ばれる少なくとも 1 種の化合物であることを特徴とする〔 9 〕に記載の三フッ化窒素の製造方法。

【手続補正 9】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0022

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0022】

〔 12 〕前記高純度アンモニアガス中に含まれる酸素含有化合物が、NO、NO₂、N₂O、CO、CO₂およびH₂Oからなる群より選ばれる少なくとも 1 種の化合物であることを特徴とする〔 10 〕に記載の三フッ化窒素の製造方法。

【手続補正 10】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0023

【補正方法】変更

【補正の内容】

【 0 0 2 3 】

【 1 3 】 フッ素ガスとアンモニアガスを 6 0 以下の温度で反応させることを特徴とする【 1 】～【 1 2 】のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【手続補正 1 1 】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0 0 2 4

【補正方法】変更

【補正の内容】

【 0 0 2 4 】

【 1 4 】 前記管状反応器が冷却構造を有することを特徴とする【 1 】～【 1 3 】のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【手続補正 1 2 】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0 0 2 5

【補正方法】変更

【補正の内容】

【 0 0 2 5 】

【 1 5 】 フッ素ガスとアンモニアガスを、モル比（フッ素ガス：アンモニアガス）が 1：1～1：2 の範囲で供給することを特徴とする【 1 】～【 1 4 】のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【手続補正 1 3 】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0 0 2 6

【補正方法】変更

【補正の内容】

【 0 0 2 6 】

【 1 6 】 前記希釈ガスが、窒素、ヘリウム、アルゴン、六弗化硫黄、ヘキサフルオロエタン、オクタフルオロプロパンおよび三フッ化窒素からなる群より選ばれる少なくとも 1 種のガスであることを特徴とする【 1 】～【 1 5 】のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【手続補正 1 4 】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0 0 2 7

【補正方法】変更

【補正の内容】

【 0 0 2 7 】

【 1 7 】 希釈ガスを循環使用することを特徴とする【 1 】～【 1 6 】のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【手続補正 1 5 】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0 0 2 8

【補正方法】変更

【補正の内容】

【 0 0 2 8 】

【 1 8 】 前記反応後、未反応のフッ素ガスをアルカリ水溶液および／またはアルミナで処理することを特徴とする【 1 】～【 1 7 】のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【手続補正 1 6 】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】 0 0 2 9

【補正方法】 変更

【補正の内容】

【 0 0 2 9 】

〔 1 9 〕 前記不活性ガスが、窒素、ヘリウム、アルゴンからなる群より選ばれる少なくとも 1 種のガスであることを特徴とする〔 1 〕～〔 1 8 〕のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【手続補正 1 7】

【補正対象書類名】 明細書

【補正対象項目名】 0 0 3 0

【補正方法】 変更

【補正の内容】

【 0 0 3 0 】

〔 2 0 〕 前記加熱処理を 1 3 5 以上で実施することを特徴とする〔 1 〕～〔 1 9 〕のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【手続補正 1 8】

【補正対象書類名】 明細書

【補正対象項目名】 0 0 3 1

【補正方法】 変更

【補正の内容】

【 0 0 3 1 】

〔 2 1 〕 前記フッ素ガスの供給濃度が 3 モル % 以下であることを特徴とする〔 1 〕～〔 2 0 〕のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【手続補正 1 9】

【補正対象書類名】 明細書

【補正対象項目名】 0 0 3 2

【補正方法】 変更

【補正の内容】

【 0 0 3 2 】

〔 2 2 〕 前記アンモニアガスの供給濃度が 6 モル % 以下であることを特徴とする〔 1 〕～〔 2 1 〕のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【手続補正 2 0】

【補正対象書類名】 明細書

【補正対象項目名】 0 0 3 3

【補正方法】 変更

【補正の内容】

【 0 0 3 3 】

〔 2 3 〕 フッ素ガスとアンモニアガスとを 0 . 0 5 ～ 1 . 0 M P a の圧力で反応させることを特徴とする〔 1 〕～〔 2 2 〕のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

〔 2 4 〕 前記 2 つ以上の管状反応器のうちの少なくとも 1 つを用いてフッ素ガスとアンモニアガスとを反応させ、該反応に使用していない残りの管状反応器の内壁に残存した前記固形生成物および / または配管の内壁に付着した前記固形生成物を不活性ガスの存在下で加熱処理して除去することを特徴とする〔 2 〕および〔 5 〕～〔 2 3 〕のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。