



(12) SØKNAD

(19) NO

(21) 20120799

(13) A1

NORGE

(51) Int Cl.
C07F 7/00 (2006.01)

Patentstyret

(21)	Søknadsnr	20120799	(86)	Int.inng.dag og søknadsnr	2010.12.18 PCT/IB2010/055926
(22)	Inng.dag	2012.07.11	(85)	Videreføringsdag	2012.07.11
(24)	Løpedag	2010.12.18	(30)	Prioritet	2009.12.30, US, 61/291,141
(41)	Alm.tilgj	2012.07.11			
(73)	Innehaver	MEMC Electronic Materials Inc, 501 Pearl Drive, US-MO63376 ST. PETERS, USA			
(72)	Oppfinner	Puneet Gupta, c/o MEMC Electronic Materials, Inc., 501 Pearl Drive, US-MO63376 ST. PETERS, USA Satish Bhusarapu, c/o MEMC Electronic Materials, Inc., 501 Pearl Drive, US-MO63376 ST. PETERS, USA			
(74)	Fullmektig	Onsagers AS, Postboks 1813 Vika, 0123 OSLO, Norge			

(54)	Benevnelse	Fremgangsmåter for produksjon av aluminiumtrifluorid			
(57)	Sammendrag				

Fremgangsmåter for produksjon av aluminiumtrifluorid ved syrefordøying av fluoridsalter av alkalimetall eller jordalkalimetall og aluminium, eventuelt i nærvær av en kilde for silisium, fremgangsmåter for produksjon av silan som inkluderer syrefordøying av biprodukter av silanproduksjon for å produsere aluminiumtrifluorid.

Bakgrunn

Foreliggende beskrivelse vedrører fremgangsmåter for produksjon av fluoridforbindelse, spesielt fremgangsmåter for produksjon av aluminiumtrifluorid ved syrefordøying av fluoridsalter av alkalimetall eller jordalkalimetall og aluminium.

Silan er en allsidig forbindelse som har mange industrielle anvendelser. I halvlederindustrien kan silan bli benyttet til deponering av epiaksialt silisiumlag på halvlederlameller og til produksjon av polykrystallinsk silisium. Polykrystallinsk silisium er et vitalt råmateriale benyttet til å produsere mange kommersielle produkter inkludert for eksempel integrerte kretser og fotovoltaiske celler (dvs. solceller) som kan bli produsert ved termisk nedbrytning av silan på silisiumpartikler i en fluidisert seng-reaktor.

Silan kan bli produsert ved å reagere silisiumtetrafluorid med et alkali- eller jordalkalimetallaluminiumhydrid slik som natriumaluminiumtetrahydrid som tilkjennegitt i US patentskrift nr. 4,632,816 som er inkorporert her ved referanse for alle relevante og konsistente formål. Produksjon av silan kan føre til flere biprodukter slik som ulike fluoridsalter av alkalimetall eller jordalkalimetall og aluminium (for eksempel NaAlF_4 , $\text{Na}_5\text{Al}_3\text{F}_{14}$ og Na_3AlF_6). Konvensjonelt blir disse avfallsproduktene solgt til lave priser eller blir deponert på en landfylling.

Aluminiumtrifluorid er et allsidig materiale som kan bli benyttet som en komponent i en elektrolyttsmelte for produksjon av aluminium og kan bli benyttet i ulike fluorineringsreaksjoner. Aluminiumtrifluorid blir konvensjonelt produsert ved å reagere hydrogenfluorid med relativt kostbart alumina eller aluminatrihydrat. Silisiumtetrafluorid er også et allsidig materiale som kan bli benyttet for å produsere silan eller ulike halosilaner og kan bli benyttet til ionimplantering, plasmadeponering av fluorinert silisiumdioksid, produksjon av rent silisiumdioksid eller silisiumnitrid og kan bli benyttet som et metallsilisiumetsemiddel.

Det eksisterer et kontinuerlig behov for fremgangsmåter for å gjenbruke avfallsstoffene som produseres under silanproduksjon for å redusere mengden av materiale som må bli deponert i landfyllinger eller solgt billig og for å forbedre økonomien ved produksjon av silan og resulterende kommersielle produkter (for eksempel solceller). Det eksisterer også et behov for fremgangsmåter for produksjon av verdifulle råmaterialer slik som aluminiumtrifluorid og silisiumtetrafluorid.

40

Oppsummering

I ett aspekt av foreliggende beskrivelse inkluderer en fremgangsmåte for produksjon av aluminiumtrifluorid å kontakte en fluoraluminattilførsel med en syre for å
5 produsere aluminiumtrifluorid og minst ett biprodukt. Tilførselen inneholder minst omtrent 30 vekt% fluoridsalter av alkalimetall eller jordalkalimetall og aluminium.

I et annet aspekt inkluderer en fremgangsmåte for produksjon av aluminiumtrifluorid å kontakte et fluoridsalt av alkalimetall eller jordalkalimetall og
10 aluminium med en syre for å produsere aluminiumtrifluorid og minst ett biprodukt. Aluminiumtrifluoridet blir separert fra biproduktet.

Nok et ytterligere aspekt av foreliggende beskrivelse er rettet på en fremgangsmåte for produksjon av silan og aluminiumtrifluorid. Fremgangsmåten inkluderer å
15 kontakte silisiumtetrafluorid og et alkali- eller jordalkalimetallsalt av aluminiumtetrahydrid for å produsere silan og en effluent. Effluenten inneholder et fluoridsalt av alkalimetall eller jordalkalimetall og aluminium. Effluenten blir kontaktet med en syre for å produsere aluminiumtrifluorid og minst ett biprodukt. Aluminiumtrifluoridet blir separert fra biproduktet.

20 Ulike raffinementer eksisterer av trekkene som er bemerket i relasjon til de ovenfor nevnte aspektene av foreliggende beskrivelse. Ytterligere trekk kan også bli inkorporert i de ovenfor nevnte aspektene av foreliggende beskrivelse i tillegg. Disse raffinementene og ytterligere trekk kan eksistere individuelt eller i enhver
25 kombinasjon. For eksempel kan ulike trekk som er diskutert nedenfor i relasjon til enhver av de illustrerte utførelsesformene av foreliggende beskrivelse bli inkorporert i ethvert av de ovenfor beskrevne aspektene av foreliggende beskrivelse, alene eller i enhver kombinasjon.

30 Detaljert beskrivelse

Tilveiebringelser i foreliggende beskrivelse inkluderer fremgangsmåter for produksjon av fluorider (for eksempel aluminiumtrifluorid eller silisiumtetrafluorid) ved fordøyning av fluoridsalter av alkalimetall eller jordalkalimetall og aluminium.
35 Fordøyelsesreaksjonen kan foregå i vandig miljø eller i et vesentlig vannfritt miljø. Andre tilveiebringelser inkluderer fremgangsmåter for produksjon av silan og fluoraluminatbiprodukter og anvendelse av slike biprodukter til produksjon av et råmateriale som er valgt fra aluminiumtrifluorid og silisiumtetrafluorid.

40 Generelt fremskrider reaksjonen ved å kontakte et fluoridsalt av alkalimetall eller jordalkalimetall og aluminium med en syre valgt fra svovelsyre og saltsyre for å produsere en fluoridforbindelse (for eksempel aluminiumtrifluorid eller

silisiumtetrafluorid) og ulike biprodukter slik som hydrogenfluorid og et klorid- eller sulfatsalt av et alkali- eller jordalkalimetall. Reaksjonen kan fremskride i nærværet av en kilde for silisium, og i dette tilfellet produseres silisiumtetrafluorid. Dersom reaksjonen foregår i fraværet av en kilde for silisium blir

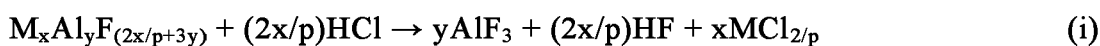
5 aluminiumtrifluorid produsert.

For formål med foreliggende beskrivelse inkluderer "fluoridsalter av alkalimetall eller jordalkalimetall og aluminium" forbindelser med den generelle formel $M_xAl_yF_z$, der x, y og z er hele tall fra 1 til 20 eller til og med fra 1 til 10 og M er et

10 alkalimetall eller jordalkalimetall. Fluoridsaltene kan også generelt bli referert til som "fluoridaluminiumsalter", "fluoraluminater" eller ganske enkelt "salter" uten å fjerne seg fra omfanget av foreliggende beskrivelse. Generelt er ikke strukturen til saltet essensielt for foreliggende beskrivelse og ethvert salt som inneholder et fluoratom, aluminiumatom og et atom av alkali- eller jordalkalimetall kan bli

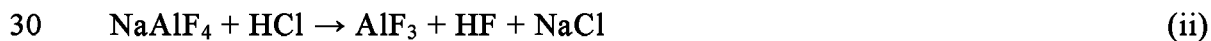
15 benyttet uten begrensning. I noen utførelsesformer inkluderer fluoridsaltet som benyttes i overensstemmelse med foreliggende beskrivelse forbindelser med den generelle formelen $M_xAl_yF_{(2x/p+3y)}$, der M er et alkali- eller jordalkalimetall og p er 2 når M er et alkalimetall og p er 1 når M er et jordalkalimetall.

20 Uten å være bundet av noen spesiell teori så er det antatt at reaksjonen som finner sted når et fluoraluminat og saltsyre blir kontaktet i fraværet av silisium kan bli representert ved den følgende generelle formelen,

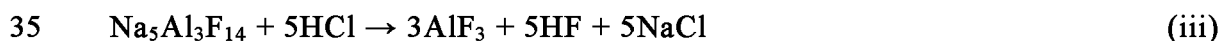


25

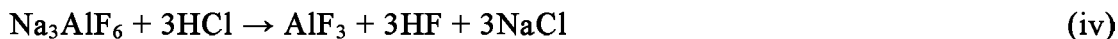
der M er et alkali- eller jordalkalimetall og p er 2 når M er et alkalimetall og p er 1 når M er et jordalkalimetall. Når fluoridsaltet av aluminium er $NaAlF_4$ fremskrider for eksempel reaksjonen på følgende måte,



Når saltet er $Na_5Al_3F_{14}$ (også kjent som kiolitt) fremskrider reaksjonen ifølge reaksjon (iii),



Når saltet er Na_3AlF_6 (også kjent som kryolitt) fremskrider reaksjonen ifølge reaksjon (iv),

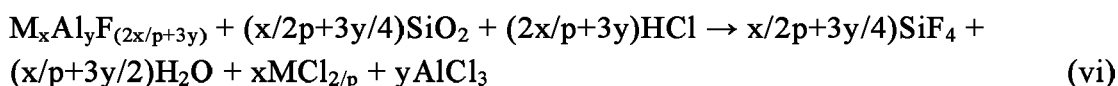


5

Når saltet er $\text{Ba}_3\text{Al}_2\text{F}_{12}$ fremskrider reaksjonen ifølge reaksjon (v),

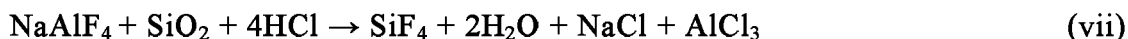


10 Når fluoraluminatet blir kontaktet med syren i nærvær av en kilde for silisium (slik som SiO_2) er det antatt at reaksjonen fremskrider som følger,



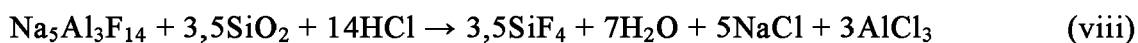
15

der M og p er som definert ovenfor. Når fluoridsaltet av aluminium er NaAlF_4 fremskrider for eksempel reaksjonen ifølge reaksjon (vii),

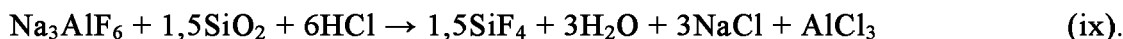


20

Når saltet er $\text{Na}_5\text{Al}_3\text{F}_{14}$ fremskrider reaksjonen ifølge reaksjonen (viii)

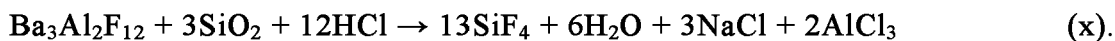


25 Når saltet er Na_3AlF_6 fremskrider reaksjonen ifølge reaksjon (ix),



Når saltet er $\text{Ba}_3\text{Al}_2\text{F}_{12}$ fremskrider reaksjonen ifølge reaksjon (x),

30



Mens reaksjonene ovenfor er vist ved å benytte HCl som et utgangsmateriale er det på det rene at andre syrer slik som svovelsyre kan bli benyttet uten begrensing. I så henseende må det bemerkes at reaksjonene ovenfor er laget kun for formål med illustrasjon og bør ikke ses på en begrensende måte.

- 5 En eksempelmessig utførelsesform av fremgangsmåtene ifølge foreliggende beskrivelse inkluderer å introdusere et fluoraluminat og en syre (for eksempel HCl eller svovelsyre) i en reaksjonsbeholder eventuelt med eller uten en kilde for silisium. Et fluoridprodukt slik som aluminiumtrifluorid (AlF_3) eller silisiumtetrafluorid (SiF_4) og flere biprodukter blir produsert. Fluoridproduktet og biproduktene og ethvert ureagert utgangsmateriale kan bli introdusert inn i et rensesystem for å separere fluoridproduktet og/eller rense og isolere biprodukter.

Reaksjonsstartmaterialer

- 15 I ulike utførelsesformer inkluderer det tilsatte fluoraluminatmaterialet (synonymt med "fluoraluminattilsetning", "fluoraluminateffluent" eller ganske enkelt "effluent") et alkalimetall- eller jordalkalimetallfluoraluminat. Passende alkalimetall- eller jordalkalimetallfluoraluminater inkluderer litiumfluoraluminater, natriumfluoraluminater, kaliumfluoraluminater, magnesiumfluoraluminater, bariumfluoraluminater, kalsiumfluoraluminater og blandinger derav. I lys av den store tilgjengeligheten av natriumråmaterialer, slik som kaustisk soda og kaliumkarbonat, som kan reageres økonomisk for å produsere natriumaluminiumhydrid, som kan bli reagert med silisiumtetrafluorid for å produsere silan, så kan fluoraluminatet være et natriumfluoraluminat produsert som et biprodukt av silanproduksjon. Mer enn ett fluoraluminat kan bli inkludert i det tilsatte fluoraluminatet uten å fjerne seg fra omfanget av foreliggende beskrivelse.
- 25 Det tilsatte fluoraluminatet kan inkludere minst én av NaAlF_4 , $\text{Na}_5\text{Al}_3\text{F}_{14}$ og Na_3AlF_6 , og inkluderer i noen utførelsesformer en blanding av NaAlF_4 , $\text{Na}_5\text{Al}_3\text{F}_{14}$ og Na_3AlF_6 .

- 30 Renheten av det tilsatte fluoraluminatet er ikke avgjørende viktig fordi ureagerte urenheter i det tilsatte kan bli fjernet under påfølgende prosessering. Det tilsatte fluoraluminatet kan inkludere en mengde silisiumtrifluorid, alkali- eller jordalkalimetallfluorid og/eller kloridsalter av alkali- eller jordalkalimetaller og/eller aluminium eller andre urenheter. I ulike utførelsesformer inneholder det tilsatte fluoridaluminatet mindre enn omtrent 15 vekt% urenheter på en tørr basis eller til og med mindre enn 10 vekt% urenheter. For formål med foreliggende beskrivelse refererer uttrykket "urenheter" til forbindelser forskjellig fra fluoraluminater slik som for eksempel aluminiumtrifluorid og fluoridsalt (for eksempel NaF).

- 40 Mengden fuktighet i det tilsatte fluoraluminatet er ikke avgjørende. Generelt kan det tilsatte fluoraluminatet være fast stoff og/eller tørt (dvs. generelt flytbart), men i

- noen utførelsesformer er likevel det tilsatte fluoraluminatet løst i et løsningsmiddel. Dersom et løsningsmiddel blir benyttet er generelt et løsningsmiddel forskjellig fra vann foretrukket på grunn av lav løselighet av fluoraluminater i vann. Passende løsningsmidler kan være ikke-polare og for eksempel inkludere dimetoksyetan
- 5 (DME) og toluen. Fast fluoraluminat kan inneholde mindre enn omtrent 5 vekt%, mindre enn 1 vekt% eller til og med mindre enn 0,1 vekt% vann. Partikkelstørrelsen på det tilsatte fluoraluminatet kan være relativt liten for å fremme reaktivitet av faststoffer, men det tilsatte materialet bør likevel være tilstrekkelig stort til å tillate materialet å bli håndtert uten vesentlige vanskeligheter. I én eller flere
- 10 utførelsesformer kan partikkelstørrelsen på det tilsatte fluoraluminatet være mindre enn omtrent 500 μm , og i andre utførelsesformer mindre enn omtrent 300 μm , fra omtrent 100 μm til omtrent 500 μm eller fra omtrent 200 μm til omtrent 300 μm . I noen utførelsesformer er fluoraluminater inkludert i en vandig løsning for transport av materialet til reaksjonsbeholderen (dvs. et slusetypesystem kan bli benyttet).
- 15 Det tilsatte fluoraluminatet kan bli produsert ved enhver av de kjente fremgangsmåtene for produksjon av et fluoraluminat (eller fluoraluminater dersom flere enn ett blir benyttet) inkludert prosesser der et fluoraluminat blir produsert som biprodukt. I noen utførelsesformer er fluoraluminatet et biprodukt av silanproduksjon. Silan kan bli produsert ved å reagere et aluminiumhydrid (for
- 20 eksempel litium- eller natriumaluminiumtetrahydrid) med silisiumtetrafluorid som beskrevet nedenfor under overskriften "Produksjon av silan og fluoridprodukt" og i US patentskrift nr. 4,632,816, som her er inkorporert ved referanse for alle relevante og konsistente formål. Generelt produserer slike prosesser et flytende reaksjonsmedium med biprodukter i fastform (oppløst eller fordelt) inkludert i
- 25 reaksjonsmediet. Biproduktene i fastform inkluderer typisk en stor mengde fluoraluminater og kan bli benyttet som det tilsatte fluoraluminatet ifølge foreliggende beskrivelse.
- Mengden fluoraluminater i det tilsatte fluoraluminatet kan være minst omtrent 30 vekt% av det tilsatte fluoraluminatet på en tørr basis og i andre utførelsesformer er
- 30 den minst omtrent 50 vekt%, minst omtrent 70 vekt%, minst omtrent 80 vekt%, minst omtrent 90 vekt%, fra omtrent 30 vekt% til omtrent 95 vekt% eller fra omtrent 70 vekt% til omtrent 95 vekt% fluoraluminater etter vekt av det tilsatte på tørr basis.
- Generelt blir det tilsatte fluoraluminatet reagert med en syre som er til stede i en
- 35 syretilførselsstrøm som mer inngående beskrevet nedenfor. Passende syrer inkluderer HCl, svovelsyre eller en blanding derav. I visse utførelsesformer inneholder syretilførselsstrømmen HCl, og kan inneholde HCl som den eneste tilstedeværende syren i syretilførselsstrømmen. I utførelsesformer der HCl er inkludert i vandig løsning kan konsentrasjonen av HCl på en vektbasis være minst
- 40 omtrent 2,5 %, minst omtrent 7,5 %, minst omtrent 9 %, fra omtrent 3 % til omtrent 20 % eller fra omtrent 3 % til omtrent 15 % av den vandige løsningen. I

utførelsesformer der svovelsyre er inkludert i en vandig løsning kan konsentrasjonen av svovelsyre på en vektbasis være minst omtrent 50 %, minst omtrent 75 %, minst omtrent 90 % eller fra omtrent 75 % til omtrent 99 % av den vandige løsningen.

- 5 En blanding av svovelsyre og HCl kan bli benyttet i syretilførselsstrømmen. Blandingen kan inneholde minst omtrent 10 vekt% HCl på en tørr basis, minst omtrent 25 vekt%, minst omtrent 50 vekt%, minst omtrent 75 vekt% eller til og med minst omtrent 90 vekt% HCl på en tørr basis. I visse utførelsesformer inneholder syretilførselen HCl og ikke svovelsyre eller kan inneholde svovelsyre og ikke HCl.
- 10 I andre utførelsesformer er syren i det vesentlige en vannfri gasstrøm. "I det vesentlige vannfri" refererer for formål med foreliggende beskrivelse generelt til prosessstrømmer som inneholder mindre enn omtrent 5 vekt% vann. I noen utførelsesformer inneholder syretilførselen mindre enn omtrent 1 vekt% vann eller til og med mindre enn 0,1 vekt% vann.
- 15 Som bemerkt ovenfor kan en kilde for silisium eventuelt være inkludert i reaksjonsblandingen. Tilstedeværelsen av silisium bestemmer fluoridproduktet (dvs. SiF_4 dannes i nærværet av silisium mens AlF_3 dannes i dets fravær). Kilder for silisium inkluderer sand (dvs. SiO_2), kvarts, flint, diatomitt, mineralsilikater, silisium av metallurgisk grad (dvs. polykrystallinsk silisium), pyrogent
- 20 silisiumdioksid, fluorsilikater og blandinger derav. Noe silisiumurenheter kan være til stede i det tilsatte fluoraluminatet (for eksempel når det tilsatte fluoraluminatet er et biprodukt av silanproduksjon).

Reaksjonsbetingelser

- 25 Generelt finner reaksjonene ifølge foreliggende beskrivelse sted når det tilsatte fluoraluminatet kontaktes med syretilførselen i en reaksjonsbeholder for slik å hensiktsmessig danne en reaksjonsblanding. Reaksjonene kan foregå i vandig eller vannfritt miljø som mer inngående beskrevet nedenfor.
- 30 Det molare forholdet mellom syre og fluoraluminater som tilsettes i reaksjonsbeholderen kan være omtrent det støkiometriske forholdet som er avhengig av fluoraluminatutgangsmaterialet og som kan bli bestemt fra reaksjonene i til x (for eksempel 5 mol syre tilsatt per mol med kiolitt som i reaksjon iii). Alternativt kan et molart overskudd av syre bli benyttet (for eksempel minst omtrent et molart overskudd på 5 %, minst omtrent 10 %, minst omtrent 25 %, minst omtrent 50 %, 35 minst omtrent 100 %, minst omtrent 250 % eller til og med et molart overskudd av syre på minst omtrent 500 %). I ulike utførelsesformer (og avhengig av fluoraluminatutgangsmaterialene som er benyttet) kan det molare forholdet mellom syre (for eksempel HCl eller svovelsyre) tilført reaksjonsbeholderen og mengden fluoraluminater tilført reaksjonsbeholderen (eller forholdet mellom tilførselsratene

som i et kontinuerlig system) være minst omtrent 1:1, minst omtrent 2:1, minst omtrent 3:1, minst omtrent 10:1, minst omtrent 25:1, minst omtrent 50:1 eller til og med minst omtrent 100:1. I noen utførelsesformer er forholdet fra omtrent 1:1 til omtrent 100:1, fra omtrent 1:1 til omtrent 50:1 eller fra omtrent 1:1 til omtrent 25:1.

- 5 Kilden for silisium (for eksempel sand) kan bli tilsatt til reaksjonsbeholderen i et forhold med hensyn på fluoraluminatene som ligger nært det støkiometriske forholdet. Som vist ovenfor i reaksjonene i til x kan for eksempel forholdet mellom silisiumatomer og fluoratomer som tilsettes reaksjonsblandingen være omtrent 1:4. Alternativt kan silisium bli tilsatt i et molart overskudd. For eksempel kan det
- 10 molare forholdet mellom silisium- og fluoratomer som tilsettes til reaksjonsbeholderen være høyere enn omtrent 1:3,5, høyere enn omtrent 1:3, høyere enn omtrent 1:2 eller til og med minst omtrent 1:1. Alternativt eller i tillegg kan det molare overskuddet av silisium være omtrent 5 %, minst omtrent 10 %, minst omtrent 25 %, minst omtrent 50 %, minst omtrent 100 %, minst omtrent 250 % eller
- 15 til og med minst omtrent 500 %. I så henseende bør det bemerkes at kilden for silisium kan bli tilsatt i en mengde forskjellig fra det som er nevnt ovenfor. Silisium kan bli tilsatt i et forhold som er mindre enn omtrent støkiometrisk mengde slik at reaksjonsproduktet inneholder både silisiumtetrafluorid og aluminiumtrifluorid (dvs. reaksjonen fører til silisiumtetrafluorid når silisium er til stede og fører til
- 20 aluminiumtrifluorid når silisium blir konsumert og ikke til stede). Silisium kan bli tilsatt reaksjonsbeholderen separat eller kan bli blandet med det tilsatte fluoraluminatet før introduksjon i reaksjonsbeholderen.

i. Vandige reaksjonssystemer

- 25 I visse utførelsesformer blir en vandig løsning av syre benyttet i reaktorsystemet. Syren kan foreligge i en reaksjonsbeholder som er tilsatt fluoraluminatet. Syren kan bli kontinuerlig tilsatt reaksjonsbeholderen som i en kontinuerlig prosess eller en diskret mengde syre kan være til stede som i en ladningsprosess. Syren kan bli tilført som en vandig løsning av syre eller som en gass som er løst i en vandig
- 30 løsning til stede i reaksjonsbeholderen.

- I vandige reaksjonssystemer kan innholdet i reaksjonsbeholderen bli blandet kontinuerlig ved for eksempel mekanisk omrøring (for eksempel ved impeller eller gjennombobling). I visse utførelsesformer som benytter et vandig reaksjonssystem er temperaturen i reaksjonsbeholderen som i omgivelsene (omtrent 20 °C til omtrent
- 35 25 °C) og alternativt eller i tillegg så trenger ikke temperaturen å bli kontrollert under reaksjonen, dvs. i noen utførelsesformer blir ikke ekstern varme eller avkjøling benyttet. I andre utførelsesformer blir temperaturen i reaktoren opprettholdt ved en temperatur på minst omtrent 100 °C, minst omtrent 150 °C, minst omtrent 200 °C, fra omkringliggende til omtrent 300 °C, fra omkringliggende
- 40 til omtrent 250 °C eller fra omtrent 100 °C til omtrent 250 °C. Ettersom

konsentrasjonen av syre øker så minsker generelt temperaturen som reaksjonsbeholderen bør opprettholdes ved for å fullføre reaksjonen.

Designet på reaksjonsbeholderen i vandige systemer ligger generelt innefor evnene til en med ordinær kunnskap på fagområdet og kan være avhengig av de ønskede produksjonsratene, konverteringer, operasjonstemperaturer og liknende. I visse utførelsesformer er reaksjonsbeholderen en omrørt tank, i andre utførelsesformer er den en oppslemmings-boblekolonne som beskrevet på side 23-49 i Perry's Chemical Engineers' Handbook, 7. utgave, ed. (1997) som her er inkorporert ved referanse for alle relevante og konsistente formål. Oppslemmings-boblekolonnen kan opereres ved kontinuerlig å tilsette ved topp- eller sideinjeksjon fluoraluminatmaterialet (enten som et pulver eller en oppslemming) inn i en vandig reaksjonsblanding i kolonnen og boble inn syren (for eksempel via en sprinkler). Reaksjonsvellingen kan bli fjernet fra bunnen av kolonna. Alternativt kan oppslemmings-boblekolonna bli operert i ladnings/batch-modus der hver strøm blir tilsatt reaktoren fra toppen eller siden der den sure gassen blir tilsatt med bunnspinkler. Reaksjonen kan foregå i en ønsket oppholdstid og reaksjonsinnholdet kan deretter bli fjernet fra reaktoren.

Trykket i reaksjonsbeholderen kan være omtrent atmosfærisk trykk eller bli opprettholdt ved et trykk på minst omtrent 5 bar, minst omtrent 10 bar, minst omtrent 15 bar, fra omtrent atmosfærisk trykk til omtrent 20 bar, fra omtrent atmosfærisk trykk til omtrent 15 bar eller fra omtrent atmosfærisk trykk til omtrent 10 bar.

I batch-systemer blir generelt reaksjonen tillatt å fremskride i minst omtrent 10 minutter, minst omtrent 30 minutter, minst omtrent 60 minutter, minst omtrent 90 minutter, fra omtrent 10 minutter til omtrent 120 minutter eller fra omtrent 15 minutter til omtrent 60 minutter. I kontinuerlige systemer kan oppholdstiden i reaksjonsbeholderen være fra omtrent 1 minutt til omtrent 60 minutter eller til og med fra 5 minutter til omtrent 30 minutter.

ii. Vannfrie reaksjonssystemer

I noen utførelsesformer er syren som kontaktes med fluoraluminatet en vesentlig vannfri gasstrøm. For eksempel kan vesentlig vannfri syre (for eksempel vesentlig vannfri HCl eller svovelsyre) bli tilført en reaksjonsbeholder i hvilken fluoraluminatet og eventuelt en kilde for silisium er suspendert, slik som for eksempel en fluidisert seng-reaktor.

Design av reaksjonsbeholderen i vannfrie systemer ligger generelt innefor evnen til en med ordinær erfaring på fagområdet og er avhengig av de ønskede produksjonsratene, konverteringer, operasjonstemperaturer og liknende. Reaksjonssystemet kan være batch-system, kontinuerlig system eller semi-batch system uten å fjerne seg fra omfanget av foreliggende beskrivelse. I

utførelsesformer der en fluidisert seng-reaktor blir benyttet som reaksjonsbeholderen kan fluidisert seng-reaktoren generelt være en sylindrisk vertikal beholder, men likevel kan enhver konfigurasjon som er akseptabel for fluidisert seng-operasjoner bli benyttet. De spesifikke dimensjonene på beholderen vil primært være avhengig av systemdesignfaktorer som kan variere fra system til system slik som det ønskede systemutbytte, varmeoverføringseffektiviteter og systemfluiddynamikk, uten å fjerne seg fra omfanget av foreliggende beskrivelse.

Under operasjon av reaksjonssystemet blir den fluidiserende gasshastigheten gjennom reaksjonssonen i fluidisert seng-reaktoren opprettholdt over den minimale fluidiseringshastigheten for fluoraluminatet og eventuelt kilden for silisium. Gasshastigheten gjennom fluidisert seng-reaktoren blir generelt opprettholdt ved en hastighet på fra omtrent én til omtrent åtte ganger den minimale fluidiseringshastigheten som er nødvendig for å fluidisere partiklene i den fluidiserte sengen. I noen utførelsesformer er gasshastigheten fra omtrent to til omtrent fem ganger og kan til og med være omtrent fire ganger den minimale fluidiseringshastigheten som er nødvendig for å fluidisere partiklene i den fluidiserte sengen. Den minimale fluidiseringshastigheten varierer avhengig av egenskapene til gassen og partiklene som er involvert. Den minimale fluidiseringshastigheten kan bli bestemt på konvensjonelle måter (se side 17-4 i Perrys' Chemical Engineers' Handbook, 7. utgave, ed., inkorporert her ved referanse for alle relevante og konsistente formål). Selv om foreliggende beskrivelse ikke er begrenset til spesifikke minimale fluidiseringshastigheter så ligger minimale fluidiseringshastigheter som er nyttige i foreliggende beskrivelse i området fra omtrent 0,7 cm/sek til omtrent 350 cm/sek eller til og med fra omtrent 6 cm/sek til omtrent 150 cm/sek.

Gasshastigheter som er høyere enn den minimale fluidiseringsstrømningsraten er ofte ønskelige for å oppnå høyere produktiviteter. Ettersom gasshastigheten øker ut over den minimale fluidiseringshastigheten danner overskuddet av gass bobler og øker seng-porøsiteten. Sengen kan bli sett på som å bestå av bobler og "emulsjon" inneholdende gass i kontakt med silisiumpartikler. Kvaliteten på emulsjonen er ganske lik kvaliteten på sengen ved den minimale fluidiseringsbetingelsen. Den lokale porøsiteten i emulsjonen ligger nærme den minimale fluidiserings-sengporøsiteten. Dermed blir bobler generert av gassen som er introdusert i overskudd av det som er nødvendig for å oppnå den minimale fluidiseringen. Ettersom forholdet mellom faktisk gasshastighet og den minimale fluidiseringshastigheten øker intensiveres bobledannelsen. Ved et svært høyt forhold blir store plugger med gass dannet i sengen. Ettersom sengporøsiteten øker med den totale gasstrømningsraten blir kontakten mellom faste stoffer og gasser mindre effektiv. For et gitt volum av sengen minsker overflatearealet for faste stoffer i kontakt med reagerende gasser med økende sengporøsitet, noe som fører til

reduisert konvertering til fluoridproduktet. Dermed bør gasshastigheten bli kontrollert for å opprettholde konverteringen innenfor akseptable nivåer.

- Temperaturen i reaksjonsbeholderen (inkludert utførelsesformer der en reaksjonsbeholder forskjellig fra en fluidisert seng-reaktor blir benyttet) kan bli opprettholdt ved en temperatur på minst omtrent 75 °C, minst omtrent 150 °C, minst omtrent 200 °C, fra omtrent 75 °C til omtrent 300 °C eller fra omtrent 75 °C til omtrent 200 °C. Varmen som blir benyttet for å opprettholde reaksjonssonen ved slike temperaturer kan bli tilveiebrakt ved konvensjonelle oppvarmingssystemer slik som elektriske resistensvarmere anbrakt på utsiden av reaktorbeholderveggen.
- Reaksjonsbeholderen kan operere ved trykk fra omtrent 1 bar til omtrent 20 bar eller fra omtrent 1 bar til omtrent 10 bar. Oppholdstiden i reaktoren kan være mindre enn omtrent 10 minutter, mindre enn omtrent 5 minutter eller til og med mindre enn omtrent 1 time.
- I både vandige og vannfrie systemer for produksjon av fluoridproduktet kan generelt konvertering av fluoraluminatet til fluoridproduktet være minst omtrent 50 %, og i andre utførelsesformer minst omtrent 60 %, minst omtrent 75 %, minst omtrent 90 %, eller til og med minst omtrent 95 % (for eksempel fra omtrent 50 % til omtrent 98 %, fra omtrent 60 % til omtrent 98 % eller fra omtrent 75 % til omtrent 98 %).
- Det bør bemerkes at enhver reaktor som er i stand til å utføre de ovenfor beskrevne reaksjonene kan bli benyttet uten å fjerne seg fra omfanget av foreliggende beskrivelse. Prosessen i utførelsesformer ifølge foreliggende beskrivelse kan ytterligere bli utført i kontinuerlige systemer eller batch-systemer og kan bli utført i en enkelt reaksjonsbeholder eller kan inkorporere én eller flere reaksjonsbeholdere konfigurert i serie eller i parallell.

Gjenvinning av fluoridprodukt og biproduktbehandling

- Fremgangsmåtene ifølge foreliggende oppfinnelse involverer generelt fremstilling av et fluoridprodukt (for eksempel aluminiumtrifluorid og/eller silisiumtetrafluorid) med ett eller flere biprodukter. De ulike produktene og biproduktene av reaksjonene beskrevet ovenfor er illustrert i tabell 1 og beskrevet mer inngående nedenfor.
- Utstyret og fremgangsmåtene for å separere og rense fluoridproduktet (for eksempel aluminiumtrifluorid eller silisiumtetrafluorid) kan generelt bli valgt fra ethvert av utstyret og fremgangsmåtene som er kjente og tilgjengelige for én som har ordinær erfaring på fagområdet uten begrensning. Vannfrie systemer er generelt enklere å operere enn vandige systemer fordi vannfrie systemer ikke involverer oppslemmings-behandlingsoperasjoner, men likevel kan vannfrie systemer involvere en kontrollert partikkelstørrelsesfordeling av det tilsatte fluoraluminatet

(og kilden for silisium hvis noen) og kan involvere høyere prosesseringstemperaturer.

5

	Vandig; ingen silisium til stede	Vandig; silisium til stede	Vannfri; ingen silisium til stede	Vannfri; silisium til stede
Fluoridprodukt	AlF_3 (oppslemmet)	SiF_4 (g)	AlF_3 (s)	SiF_4 (g)
Faste eller oppslemmede biprodukter	Salt	Salt	Salt	Salt
Flytende biprodukter	HF (oppløst) Salt (oppløst)	HF (oppløst) Salt (oppløst)	-	-
Gassforeliggende biprodukter	HF H_2	HF $\text{F}_3\text{SiOSiF}_3$	HF H_2	HF

Tabell 1: Produkter og biprodukter produsert i vannfrie og vandige systemer og i nærvær og fravær av silisium.

I vandige systemer som ikke inneholder en kilde for silisium, etter fullstendig reaksjon, så inneholder reaksjonsblandingen en mengde aluminiumtrifluoridprodukt som er oppslemmet i reaksjonsblandingen. Et salt av syren (for eksempel alkali- eller jordalkalimetallklorid eller -sulfat) er typisk også til stede som et oppslemmet faststoff og/eller er løst i den vandige reaksjonsblandingen. Reaksjonen kan også produsere en mengde hydrogenfluorid som kan bli løst i reaksjonsblandingen eller kan bli dratt ut av reaksjonsblandingen i en effluentgass. Denne effluentgassen kan også inneholde en mengde hydrogengass og ureagert og fordampet syre.

Den flytende reaksjonsblandingen inneholdende oppslemmet fluoridprodukt kan bli introdusert i en faststoff-væske separasjonsenhet for å produsere en fastfraksjon inneholdende aluminiumtrifluoridproduktet og et salt av syren (for eksempel klorid- og/eller sulfatsalt) og en flytende fraksjon inneholdende hydrogenfluorid, et salt av syren og en mengde ureagert syre. Faststoff-væske separasjonsenheter er generelt kjent på fagområdet og inkluderer for eksempel sentrifuger, dekanteringsinnretninger, filtre (for eksempel siktesåld) og liknende.

For å separere det faste aluminiumtrifluoridproduktet fra saltet kan faststoffraksjonen bli introdusert i én eller flere vaskeenheter. Generelt er saltet mer løselig i vann enn aluminiumtrifluoridproduktet. Vaskeenheten opererer generelt ved å kontakte fluorid/salt-faststoffraksjonen med vann i en tilstrekkelig tidsperiode

- for å tillate saltet å løses opp i den vandige fasen. Det saltanrikede vannet kan deretter bli separert fra det oppslemmende aluminiumtrifluoridproduktet med en andre faststoff-væske separasjonsenhet for produktgjenvinning. Denne andre faststoff-væske separasjonsenheten danner en del av vaskeenheten selv. Et antall
- 5 vaskeenheter kan bli benyttet og vaskeenhetene kan bli anordnet i serie eller parallell uten begrensning. Det brukte vaskevannet kan bli prosessert (for eksempel ved tørking slik som flash-tørking) for å gjenvinne saltet som kan bli solgt kommersielt eller prosessert ytterligere som beskrevet nedenfor.
- Aluminiumtrifluoridproduktet kan bli tørket for å fjerne alt gjenværende vann ved
- 10 tilføring av ekstern varme og/eller reduksjon av trykk for å fjerne ytterligere vann og/eller syre fra produktet. Passende tørketemperaturer er minst omtrent 50 °C, minst omtrent 100 °C, minst omtrent 130 °C, fra omtrent 50 °C til omtrent 150 °C eller fra omtrent 100 °C til omtrent 150 °C.
- I så henseende bør det bemerkes at når aluminiumtrifluorid blir produsert som et
- 15 fluoridprodukt så kan aluminiumtrifluoridet foreligge i et antall hydrerte former. Uten å være bundet av noen spesifikk teori er det antatt at fast aluminiumtrifluorid (for eksempel filteroppsamlet) som har fått vann fjernet i faststoff-væske separasjonsinnretningen foreligger i trihydratformen $\text{AlF}_3 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$. Videre er det antatt at tørking fører til dehydrering av produktet og dannelse av minst én av
- 20 monohydrat, semihydrat eller til og med vannfrie former av aluminiumtrifluorid.
- Væskefraksjonen som er separert fra faststofffraksjonen i faststoff-væske separasjonsinnretningen og effluentgassen som er fjernet fra reaksjonsbeholderen kan bli introdusert i en destillasjonskolonne for å fjerne og separere én eller flere av
- 25 den ubrukte syren, hydrogenfluoridet og hydrogengassen. Designet og operasjonen av destillasjonsfremgangsmåter ligger generelt innenfor kunnskapen for én som er ordinært erfaren på fagområdet og er avhengig av ulike faktorer inkludert sammensetningen av det som tilsettes, de/de ønskede gjenvinningsproduktet/produktene, den ønskede gjenvinningen og liknende.
- Ureagert syre kan bli resirkulert tilbake til reaksjonsbeholderen i kontinuerlige
- 30 systemer.
- I vannfrie systemer der silisium ikke er til stede slik som for eksempel i en fluidisert seng operasjon der en vannfri gass bobles gjennom en fluidisert seng med fluoraluminatmateriale så produserer reaksjonen fast aluminiumtrifluoridprodukt som kan bli trukket ut av reaktoren. Det partikkelforeliggende materialet kan
- 35 inkludere en mengde med fast biproduktsalt (for eksempel NaCl , NaHSO_4 eller Na_2SO_4) som kan bli separert ut som beskrevet nedenfor. Hydrogenfluorid og hydrogengass kan bli generert som biprodukter i gassform som blir tatt ut av reaksjonsbeholderen sammen med ureagert syre.
- I slike vannfrie systemer der silisium ikke er til stede kan partiklene som typisk
- 40 inkluderer aluminiumtrifluoridprodukt og salt bli introdusert i én eller flere

- vaskeenheter for å separere saltet fra aluminiumtrifluoridproduktet. Vaskeenhetene kan være liknende vaskeenhetene som er beskrevet ovenfor for vandige systemer. Etter vasking kan de faste produktene bli tørket til i det minste delvis dehydrerte fluoridprodukter som beskrevet ovenfor. Den brukte gassen som blir fjernet fra reaksjonsbeholderen kan bli utsatt for destillasjon for å gjenvinne i det minste én av ureagert syre, hydrogenfluorid og hydrogengass.
- I både vandige og vannfrie systemer, når silisium er til stede i reaksjonsbeholderen og er tilgjengelig for reaksjon. Så blir silisiumtetrafluoridgass produsert som et produkt. I vandige systemer kan et salt av syren bli oppslemmet i reaksjonsblandingen som et biprodukt. I slike vandige systemer kan reaksjonen også produsere en mengde hydrogenfluorid som kan bli løst i reaksjonsblandingen og/eller kan bli fjernet fra reaksjonsblandingen sammen med produktgassen. Denne produktgassen kan også inneholde en mengde fordampet syre og/eller $F_3SiOSiF_3$ -biprodukt.
- I vannfrie systemer som inneholder en kilde for silisium dekomponerer det faste fluoraluminatet til salt i partikkelform (for eksempel $NaCl$, $NaHSO_4$ eller Na_2SO_4) under reaksjonen. Hydrogenfluorid kan bli generert som et gassforeliggende biprodukt som blir fjernet fra reaksjonsbeholderen sammen med enhver ureagert syre og silisiumtetrafluorid. I både vandige og vannfrie systemer som produserer silisiumtetrafluoridproduktgass kan silisiumtetrafluoridgassen bli separert fra de andre gassene ved destillasjon, syrebad (for eksempel svovelsyrebad for å fjerne ureagert HF) og/eller adsorpsjonsheter (for eksempel sinkbasert adsorberer for å fjerne syre) som kan bli operert i enhver kombinasjon og antall og kan bli operert i serie eller parallell uten begrensning. Silisiumtetrafluoridproduktgass kan bli kondensert for lagring som et flytende produkt og/eller kan bli ytterligere prosessert ved for eksempel reaksjon med et alkali- eller jordalkalimetallaluminiumtetrahydrid for produksjon av silan.
- I visse utførelsesformer og uavhengig av hvorvidt vandig eller vannfri syre blir benyttet og uavhengig av hvorvidt reaksjonen foregår i nærvær av silisium så kan hydrogenfluoridbiprodukt hensiktsmessig bli reagert med en kilde for silisium for å produsere tetrafluoridgass. Hydrogenfluorid kan bli separert fra andre gasser i en destillasjonskolonne. I så henseende bør det bemerkes at det ikke er nødvendig å fjerne den ureagerte syren fra hydrogenfluoridet fordi syren ikke påvirker produksjon av silisiumtetrafluorid. Hydrogenfluoridet kan bli introdusert i en reaksjonsbeholder i hvilken en kilde for silisium (for eksempel sand) er til stede slik som en pakket seng eller fluidisert seng for å produsere silisiumtetrafluorid. Silisiumtetrafluoridgassen kan bli vasket med svovelsyre for å fjerne ytterligere biproduktgasser og kan bli introdusert i en adsorberer, fortrinnsvis med sinkmedium, for å fjerne eventuell ureagert syre.

Oppløste klorid- eller sulfatsalter (for eksempel som er til stede i reaksjonsløsningen og/eller løst i vaskeoperasjoner) kan bli gjenvunnet ved tørking. Slike tørkeoperasjoner fordampes typisk all ureagert syre som er til stede i løsningen som tillater syrene å bli gjenvunnet for gjenbruk. Gjenvunne

5 biproduktkloridsalter og -sulfatsalter kan bli solgt kommersielt eller kan bli reagert med fluorkiselsyre for å generere utgangssyrene (HCl eller svovelsyre) og produsere fluorsilikater som kan bli benyttet som utgangsmaterialer for produksjonen av fluoridproduktene ifølge foreliggende beskrivelse (for eksempel

10 silisiumtetrafluorid). Fluorsilikatene kan for eksempel bli benyttet som kilden for silisium for å produsere silisiumtetrafluorid.

Produksjon av silan- og fluoridprodukt

Fluoridproduksjonsfremgangsmåtene beskrevet ovenfor kan generelt bli inkorporert i en prosess for produksjon av silan slik at biproduktene av silanproduksjon kan bli

15 benyttet for å generere produkter med høyere verdi. I én eller flere eksempelmessige utførelsesformer blir silisiumtetrafluorid kontaktet med et alkali- eller jordalkalimetallsalt av aluminiumtetrahydrid for å produsere silan og en effluent som inneholder ett eller flere fluoraluminater. Som beskrevet ovenfor kan fluoraluminatet bli kontaktet med en syre for å produsere aluminiumtrifluorid (i

20 fravær av silisium) eller silisiumtetrafluorid (i nærvær av silisium) og minst ett biprodukt som kan bli separert fra fluoridproduktet.

Silisiumtetrafluoridutgangsmateriale kan bli produsert ved å fordampe løsninger av fluorkiselsyre. Alternativt eller i tillegg kan en del av silisiumtetrafluoridet som blir reagert med aluminiumtetrahydrid for å produsere silan bli generert fra

25 fremgangsmåtene beskrevet ovenfor. Alkali- eller jordalkalimetallsalter av aluminiumtetrahydrid kan bli produsert ved å reagere deres elementforløpere (Na, Al og H) under høyt trykk og temperatur.

Produksjon av silan er generelt beskrevet i US patentskrift nr. 4,632,816 som her er inkorporert ved referanse for alle relevante og konsistente formål.

30 Silisiumtetrafluorid i gassform kan bli introdusert i et rørt flytende reaksjonsmedium inneholdende aluminiumtetrahydridsalt. Det flytende reaksjonsmediet kan inkludere løsningsmidler valgt fra polyetere (for eksempel diglym, monoglym eller dioksan), hydrokarboner (for eksempel toluen eller pentan) og blandinger derav. Reaksjonsblandingen kan bli opprettholdt ved omtrent 30 °C til

35 omtrent 80 °C og atmosfærisk trykk kan bli benyttet. Reaksjonsblandingen kan også bli opprettholdt ved høyere trykk slik som trykk opp til omtrent 100 atm. I noen utførelsesformer blir reaksjonsmediet opprettholdt ved et trykk fra omtrent 1 til omtrent 10 atm.

Støkiometriske mengder med silisiumtetrafluorid og aluminiumtetrahydrid kan bli benyttet for å produsere silan, men, i noen utførelsesformer blir likevel et molart overskudd av tetrahydrid benyttet for å undertrykke dannelse av biprodukter.

- Reaksjonen kan bli utført ladning for ladning eller kontinuerlig som i en
5 kontinuerlig tilbakeblandet reaktor eller i en oppslemmingsboblekolonne.

- Reaksjonen genererer silangass og oppslemmet fluoraluminatsalt. Fluoraluminatene kan bli separert fra reaksjonsmediet ved hjelp av midler som generelt er kjent på fagområdet slik som ved anvendelse av faststoff-væske separasjonsenheter (sentrifuger, dekanterere, filtre og liknende). Ved separasjon kan fluoraluminatene
10 bli introdusert i en reaksjonsbeholder med syre for å produsere fluoridproduktet (aluminiumtrifluorid eller silisiumtetrafluorid) som beskrevet ovenfor.

EKSEMPLER

- Eksempel 1: Produksjon av aluminiumtrifluorid ved saltsyrefordøyning av fluoraluminater med kontinuerlig uttømming av generert gass**
15

- En fast blanding (15,7 g) av natriumaluminiumfluorid (NaAlF_4), kiolitt ($\text{Na}_5\text{Al}_3\text{F}_{14}$) og kryolitt (Na_3AlF_6) ("fluoraluminatblanding") ble blandet med silisium (8 g). Blandingen av de faste stoffene ble deretter blandet i en TEFLON-beger inneholdende vandig saltsyre (243 g ved 36 vekt%). Det molare utgangsforholdet
20 mellom saltsyre og fluoraluminatblanding var 20:1. En magnetrører ble plassert på bunnen av begeret for mekanisk omrøring av blandingen. Begeret forelå ved et omkringliggende trykk på 1 bar og ved en omkringliggende temperatur på 20 °C. Fluoraluminatpulveret reagerte kraftig med vandig saltsyre og produserte damp (SiF_4) som kontinuerlig ble sluppet ut. Blandingen ble omrørt i 45 minutter når den
25 gråaktige oppslemmingen av fluoraluminatblanding og vandig saltsyre fullstendig overgikk i en hvitaktig oppslemming. Væsken i oppslemmingen ble dekantert og den resulterende faststoffblanding ble tørket under en lampe for å gi 27,3 g faste stoffer. Analyse av faste stoffer indikerte at tapet av molene av fluor var 11 %, noe som på vektbasis var ekvivalent med gevinsten i molene av klor. Basert på
30 støkiometri ble konverteringen fra fluoraluminater til aluminiumtrifluorid-semihydrat og hydrogenfluorid estimert til omtrent 60 %.

Eksempel 2: Produksjon av aluminiumtrifluorid ved saltsyrefordøyning av fluoraluminater i en lukket beholder.

- 35 En fluoraluminatblanding (24,7 g) ble blandet med 36 vekt% saltsyre i en lukket fordøyingsbeholder laget av TEFLON. Beholderen og innholdet ble varmet til 150 °C og sikkerhetsventilen på beholderen ble satt til å åpnes ved 100 psig. Etter 30 minutter med oppvarming ble innholdet i beholderen avkjølt til omkringliggende temperatur og sikkerhetsventilen ble åpnet. Tapet i vekten av beholderen eller

gassen som var frigjort var 0,11 g. Væsken i beholderen ble dekantert og blandingen av de faste stoffene ble tørket under en lampe. Utbyttet av de faste stoffene etter tørking var 28 %. De resulterende faste stoffene ble vasket med vann og tørket på nytt. Utbyttet av de faste stoffene etter den andre tørkingen var 64 %. Basert på støkiometri var konverteringen av fluoraluminat til aluminiumtrifluorid-semihydrat på 93 %.

Når elementer introduseres i foreliggende beskrivelse eller i de foretrukne utførelsesformene derav er det ment at artiklene "en", "ei", "et", "den", "det", "de" og "nevnte" skal bety at én eller flere av elementene. Uttrykkene "omfatter", "inkluderer" og "som har" er ment å skulle være inkluderende og bety at det kan være ytterligere elementer i tillegg til de opplistede elementene.

Fordi ulike endringer kan bli gjort på apparatet og i fremgangsmåtene ovenfor uten å fjerne seg fra omfanget av beskrivelsen er det ment at alle gjenstander inneholdt i beskrivelsen ovenfor og som vist i de tilhørende figurene skal bli tolket som illustrerende og ikke på en begrensende måte.

PATENTKRAV

1. Fremgangsmåte for produksjon av aluminiumtrifluorid, der fremgangsmåten omfatter:
 - 5 å kontakte en fluoraluminattilsetning som omfatter minst omtrent 30 vekt% fluoridsalter av alkalimetall eller jordalkalimetall og aluminium med en syre for å produsere aluminiumtrifluorid og minst ett biprodukt.
2. Fremgangsmåte ifølge krav 1 der tilsetningen omfatter minst omtrent 50

10 vekt%, minst omtrent 70 vekt%, minst omtrent 80 vekt%, minst omtrent 90 vekt%, fra omtrent 30 vekt% til omtrent 95 vekt% eller fra omtrent 70 vekt% til omtrent 95 vekt% fluoridsalter av alkalimetall eller jordalkalimetall og aluminium.
3. Fremgangsmåte ifølge krav 1 eller krav 2 der syren er valgt fra saltsyre,

15 svovelsyre eller blandinger derav.
4. Fremgangsmåte ifølge krav 1 eller krav 2 der syren er saltsyre.
5. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 1 til 4 der tilsetningen blir

20 kontaktet med syre i fraværet av en silisiumkilde.
6. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 1 til 5 der alkali- eller

jordalkalimetallet er valgt fra litium, natrium, kalium, magnesium, barium, kalsium og blandinger derav.

25
7. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 1 til 5 der fluoridsaltet av

alkalimetall eller jordalkalimetall og aluminium er valgt fra gruppen som består av NaAlF_4 , $\text{Na}_5\text{Al}_3\text{F}_{14}$, Na_3AlF_6 og blandinger derav.
8. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 1 til 5 der tilsetningen omfatter

30 NaAlF_4 , $\text{Na}_5\text{Al}_3\text{F}_{14}$ og Na_3AlF_6 .
9. Fremgangsmåte ifølge krav 8 der tilsetningen omfatter aluminiumfluorid

og/eller natriumfluorid.

35
10. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 1 til 9 der hydrogenfluorid og et

klorid- eller sulfatsalt av alkali- eller jordalkalimetall blir produsert som biprodukter.

11. Fremgangsmåte ifølge krav 10 der et kloridsalt blir produsert som et biprodukt, der kloridsaltet er valgt fra gruppen som består av LiCl, NaCl, KCl, MgCl₂, BaCl₂, CaCl₂ og blandinger derav.
- 5 12. Fremgangsmåte ifølge krav 11 der kloridsaltet er NaCl.
13. Fremgangsmåte ifølge krav 10 der hydrogenfluoridet blir kontaktet med en kilde for silisium for å produsere silisiumtetrafluorid.
- 10 14. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 1 til 13 der fluoridsaltet er et biprodukt av silanproduksjon.
- 15 15. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 1 til 14 der fluoridsaltet av alkalimetall eller jordalkalimetall og aluminium blir kontaktet med vandig syre.
16. Fremgangsmåte ifølge krav 15 der fluoridsaltet av alkalimetall eller jordalkalimetall og aluminium blir introdusert til en reaksjonsbeholder for å produsere en oppslemming inneholdende aluminiumtrifluoridet og biprodukt.
- 20 17. Fremgangsmåte ifølge krav 16 der fluoridsaltet av alkalimetall eller jordalkalimetall og aluminium kontinuerlig blir tilført reaksjonsbeholderen og der oppslemmingen kontinuerlig blir fjernet fra reaksjonsbeholderen.
- 25 18. Fremgangsmåte ifølge krav 16 eller krav 17 der oppslemmingen blir introdusert i en faststoff-væske separasjonsenhet for å produsere en fast fraksjon inneholdende aluminiumtrifluoridet og en flytende fraksjon inneholdende minst ett biprodukt.
- 30 19. Fremgangsmåte ifølge krav 18 der den faste fraksjonen inneholder aluminiumtrifluorid og et klorid- eller sulfatsalt av et alkalimetall eller jordalkalimetall og der den flytende fraksjonen inneholder vann, hydrogenfluorid, ureagert syre og et klorid- eller sulfatsalt av et alkalimetall eller jordalkalimetall.
- 35 20. Fremgangsmåte ifølge krav 19 som omfatter å introdusere den faste fraksjonen i en vaskeenhet for å separere aluminiumtrifluoridet fra saltet.
21. Fremgangsmåte ifølge krav 19 eller krav 20 som omfatter å separere minst én av vann, hydrogenfluorid og ureagert syre i en destillasjonskolonne.
- 40 2. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 1 til 14 der fluoridsaltet av alkalimetall eller jordalkalimetall og aluminium blir kontaktet med vesentlig vannfri syre.

23. Fremgangsmåte ifølge krav 22 der fluoridsaltet blir introdusert til en fluidisert seng-reaktor som inneholder syre som en fluidiserende gass.

5 24. Fremgangsmåte ifølge krav 23 der partikulært aluminiumtrifluorid og et klorid- eller sulfatsalt av alkali- eller jordalkalimetall blir produsert i fluidisert seng-reaktoren.

10 25. Fremgangsmåte ifølge krav 24 som omfatter å introdusere det partikulære aluminiumtrifluoridet og saltet i en vaskeenhet for å separere aluminiumtrifluoridet fra saltet.

15 26. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 23 til 25 der en brukt gass blir produsert, der den brukte gassen omfatter hydrogen, hydrogenfluorid og ureagert syre.

20 27. Fremgangsmåte ifølge krav 26 som omfatter å separere minst én av hydrogen, hydrogenfluorid og ureagert syre i en destillasjonskolonne.

25 28. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 1 til 27 der aluminiumtrifluoridhydrat blir produsert.

30 29. Fremgangsmåte ifølge krav 28 der aluminiumtrifluoridhydratet er aluminiumtrifluoridtrihydrat.

35 30. Fremgangsmåte ifølge krav 28 eller krav 29 der aluminiumtrifluoridhydratet blir tørket for å danne aluminiumtrifluorid-semihydrat.

30 31. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 1 til 30 der fluoridsaltet er et partiklulat med en gjennomsnittlig nominell diameter på mindre enn omtrent 500 µm.

35 32. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 1 til 30 der fluoridsaltet er t partikulat med en gjennomsnittlig nominell diameter på mindre enn omtrent 300 µm.

40 33. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 1 til 32 der syren og fluoridsaltet blir tilsatt en reaksjonsbeholder i et molart forhold på omtrent 1:1, minst omtrent 2:1, minst omtrent 3:1, minst omtrent 10:1 eller fra omtrent 1:1 til omtrent 25:1.

34. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 1 til 33 der syren blir tilsatt en reaksjonsbeholder i et molart overskudd på minst omtrent 5 %, minst omtrent 25 %,

minst omtrent 50 %, minst omtrent 100 %, minst omtrent 250 % eller minst omtrent 500 % relativt til fluoridsaltet som er tilsatt reaksjonsbeholderen.

35. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 1 til 34 der konverteringen fra fluoridsaltet til aluminiumtrifluorid er minst omtrent 50 %, minst omtrent 75 %, minst omtrent 90 %, fra omtrent 50 % til omtrent 98 %, fra omtrent 60 % til omtrent 98 % eller fra omtrent 75 % til omtrent 98 %.
36. Fremgangsmåte for produksjon av aluminiumtrifluorid, der fremgangsmåten omfatter:
å kontakte et fluoridsalt av alkalimetall eller jordalkalimetall og aluminium med en syre for å produsere aluminiumtrifluorid og minst ett biprodukt, og separere aluminiumtrifluoridet fra biproduktet.
37. Fremgangsmåte ifølge krav 36 der syren er valgt fra saltsyre, svovelsyre og blandinger derav.
38. Fremgangsmåte ifølge krav 36 der syren er saltsyre.
39. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 36 til 38 der fluoridsaltet blir kontaktet med syre i fraværet av en kilde for silisium.
40. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 36 til 39 der alkali- eller jordalkalimetallet er valgt fra litium, natrium, kalium, magnesium, barium, kalsium og blandinger derav.
41. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 36 til 39 der fluoridsaltet av alkalimetall eller jordalkalimetall og aluminium er valgt fra gruppen som består av NaAlF_4 , $\text{Na}_5\text{Al}_3\text{F}_{14}$, Na_3AlF_6 og blandinger derav.
42. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 36 til 39 der en blanding av NaAlF_4 , $\text{Na}_5\text{Al}_3\text{F}_{14}$ og Na_3AlF_6 blir kontaktet med syre.
43. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 36 til 42 der hydrogenfluorid og et klorid- eller sulfatsalt av alkali- eller jordalkalimetall blir produsert som biprodukter.
44. Fremgangsmåte ifølge krav 43 der hydrogenfluoridet blir kontaktet med en kilde for silisium for å produsere silisiumtetrafluorid.
45. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 36 til 44 der fluoridsaltet er et biprodukt av silanproduksjon.

46. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 36 til 45 der fluoridsaltet av alkalimetall eller jordalkalimetall og aluminium blir kontaktet med vandig syre.
- 5 47. Fremgangsmåte ifølge krav 46 der fluoridsaltet av alkalimetall eller jordalkalimetall blir introdusert i en reaksjonsbeholder for å produsere en oppslemming inneholdende aluminiumtrifluoridet og biprodukt.
- 10 48. Fremgangsmåte ifølge krav 47 der fluoridsaltet av alkalimetall eller jordalkalimetall og aluminium kontinuerlig blir tilført reaksjonsbeholderen og der oppslemmingen kontinuerlig blir fjernet fra reaksjonsbeholderen.
- 15 49. Fremgangsmåte ifølge krav 47 eller krav 48 der oppslemmingen blir introdusert i en faststoff-væske separasjonsenhet for å produsere en fast fraksjon inneholdende aluminiumtrifluoridet og en flytende fraksjon inneholdende minst ett biprodukt.
- 20 50. Fremgangsmåte ifølge krav 49 der den faste fraksjonen inneholder aluminiumtrifluorid og et klorid- eller sulfatsalt av et alkalimetall eller jordalkalimetall og der den flytende fraksjonen inneholder vann, hydrogenfluorid, ureagert syre og et klorid- eller sulfatsalt av et alkalimetall eller jordalkalimetall.
- 25 51. Fremgangsmåte ifølge krav 50 som omfatter å introdusere den faste fraksjonen i en vaskeenhet for å separere aluminiumtrifluoridet fra saltet.
- 30 52. Fremgangsmåte ifølge krav 50 eller krav 51 som omfatter å separere minst én av vann, hydrogenfluorid og ureagert syre i en destillasjonskolonne.
- 35 53. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 36 til 45 der fluoridsaltet av alkalimetall eller jordalkalimetall og aluminium blir kontaktet med vesentlig vannfri syre.
- 40 54. Fremgangsmåte ifølge krav 53 der fluoridsaltet blir introdusert til en fluidisert seng-reaktor som inneholder syre som en fluidiserende gass.
55. Fremgangsmåte ifølge krav 54 der partikulært aluminiumtrifluorid og et klorid- eller sulfatsalt av alkali- eller jordalkalimetall blir produsert i fluidisert seng-reaktoren.
56. Fremgangsmåte ifølge krav 55 som omfatter å introdusere det partikulære aluminiumtrifluoridet og saltet i en vaskeenhet for å separere aluminiumtrifluoridet fra saltet.

57. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 53 til 56 der en brukt gass blir produsert, der den brukte gassen omfatter hydrogen, hydrogenfluorid og ureagert syre.
58. Fremgangsmåte ifølge krav 57 som omfatter å separere minst én av hydrogen, hydrogenfluorid og ureagert syre i en destillasjonskolonne.
59. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 36 til 58 der aluminiumtrifluoridhydrat blir produsert.
60. Fremgangsmåte ifølge krav 59 der aluminiumtrifluoridhydratet er aluminiumtrifluoridtrihydrat.
61. Fremgangsmåte ifølge krav 59 eller krav 60 der aluminiumtrifluoridhydratet blir tørket for å danne aluminiumtrifluorid-semihydrat.
62. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 36 til 61 der fluoridsaltet er partikulært med en gjennomsnittlig nominell diameter på mindre enn omtrent 500 μm .
63. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 36 til 61 der fluoridsaltet er partikulært med en gjennomsnittlig nominell diameter på mindre enn omtrent 300 μm .
64. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 36 til 63 der syren og fluoridsaltet blir tilsatt i en reaksjonsbeholder i et molart forhold på omtrent 1:1, minst omtrent 2:1, minst omtrent 3:1, minst omtrent 10:1 eller fra omtrent 1:1 til omtrent 25:1.
65. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 36 til 64 der syren blir tilsatt reaksjonsbeholderen i et molart overskudd på minst omtrent 5 %, minst omtrent 25 %, minst omtrent 50 %, minst omtrent 100 %, minst omtrent 250 % eller minst omtrent 500 % relativt til fluoridsaltet som er tilsatt reaksjonsbeholderen.
66. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 36 til 65 der konverteringen fra fluoridsaltet til aluminiumtrifluorid er på minst omtrent 50 %, minst omtrent 75 %, minst omtrent 90 %, fra omtrent 50 % til omtrent 98 %, fra omtrent 60 % til omtrent 98 % eller fra omtrent 75 % til omtrent 98 %.
67. Fremgangsmåte for produksjon av silan og aluminiumtrifluorid, der fremgangsmåten omfatter:

å kontakte silisiumtetrafluorid og et alkali- eller jordalkalimetallsalt av aluminiumtetrahydrid for å produsere silan og en effluent som omfatter et fluoridsalt av alkalimetall eller jordalkalimetall og aluminium.

- 5 kontakte effluenten med en syre for å produsere aluminiumtrifluorid og minst ett biprodukt, og separere aluminiumtrifluoridet fra biproduktet.

10 68. Fremgangsmåte ifølge krav 67 der silisiumtetrafluoridet blir boblet gjennom en reaksjonsløsning som inneholder aluminiumtetrahydridet.

69. Fremgangsmåte ifølge krav 67 eller krav 68 der silisiumtetrafluoridet og aluminiumtetrahydridet blir kontaktet i et reaksjonsmedium som blir opprettholdt fra omtrent 30 °C til omtrent 80 °C.

15 70. Fremgangsmåte ifølge krav 69 der fluoridsaltet blir separert fra reaksjonsmediet i en faststoff-væske separasjonsenhet.

20 71. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 67 til 70 der effluenten omfatter fra omtrent 30 vekt% til omtrent 95 vekt% fluoridsalter av alkalimetall eller jordalkalimetall og aluminium.

72. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 67 til 71 der syren er valgt fra saltsyre, svovelsyre og blandinger derav.

25 73. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 67 til 71 der syren er saltsyre.

74. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 67 til 73 der effluenten blir kontaktet med syre i fravær av en kilde for silisium.

30 75. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 67 til 74 der alkali- eller jordalkalimetallet er valgt fra litium, natrium, kalium, magnesium, barium, kalsium og blandinger derav.

35 76. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 67 til 74 der fluoridsaltet av alkalimetall eller jordalkalimetall og aluminium er valgt fra gruppen som består av NaAlF_4 , $\text{Na}_5\text{Al}_3\text{F}_{14}$, Na_3AlF_6 og blandinger derav.

77. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 67 til 74 der effluenten omfatter NaAlF_4 , $\text{Na}_5\text{Al}_3\text{F}_{14}$ og Na_3AlF_6 .

78. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 67 til 77 der hydrogenfluorid og et klorid- eller sulfatsalt av alkali- eller jordalkalimetall blir produsert som biprodukter.
- 5 79. Fremgangsmåte ifølge krav 78 der hydrogenfluoridet blir kontaktet med en kilde for silisium for å produsere silisiumtetrafluorid.
80. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 67 til 79 der fluoridsaltet av alkalimetall eller jordalkalimetall og aluminium blir kontaktet med vandig syre.
- 10 81. Fremgangsmåte ifølge krav 80 der fluoridsaltet av alkalimetall eller jordalkalimetall og aluminium blir introdusert i en reaksjonsbeholder for å produsere en oppslemming inneholdende aluminiumtrifluoridet og biprodukt.
- 15 82. Fremgangsmåte ifølge krav 81 der fluoridsaltet av alkalimetall eller jordalkalimetall og aluminium kontinuerlig blir tilført reaksjonsbeholderen og oppslemmingen kontinuerlig blir fjernet fra reaksjonsbeholderen.
- 20 83. Fremgangsmåte ifølge krav 81 eller krav 82 der oppslemmingen blir introdusert i en faststoff-væske separasjonsenhet for å produsere en fast fraksjon inneholdende aluminiumtrifluoridet og en flytende fraksjon inneholdende minst ett biprodukt.
- 25 84. Fremgangsmåte ifølge krav 83 der den faste fraksjonen inneholder aluminiumtrifluorid og et klorid- eller sulfatsalt av et alkalimetall eller jordalkalimetall og der den flytende fraksjonen inneholder vann, hydrogenfluorid, ureagert syre og et klorid- eller sulfatsalt av et alkalimetall eller jordalkalimetall.
- 30 85. Fremgangsmåte ifølge krav 84 som omfatter å introdusere den faste fraksjonen i en vaskeenhet for å separere aluminiumtrifluoridet fra saltet.
86. Fremgangsmåte ifølge krav 84 eller krav 85 som omfatter å separere minst én av vann, hydrogenfluorid og ureagert syre i en destillasjonskolonne.
- 35 87. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 67 til 79 der fluoridsaltet av alkalimetall eller jordalkalimetall og aluminium blir kontaktet med vesentlig vannfri syre.
- 40 88. Fremgangsmåte ifølge krav 87 der fluoridsaltet blir introdusert i en fluidisert seng-reaktor som inneholder syre som en fluidiserende gass.

89. Fremgangsmåte ifølge krav 88 der partikulært aluminiumtrifluorid og et klorid- eller sulfatsalt av alkali- eller jordalkalimetall blir produsert i fluidisert seng-reaktoren.
- 5 90. Fremgangsmåte ifølge krav 89 som omfatter å introdusere det partikulære aluminiumtrifluoridet og saltet i en vaskeenhet for å separere aluminiumtrifluoridet fra saltet.
- 10 91. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 87 til 90 der en brukt gass blir produsert, der den brukte gassen omfatter hydrogen, hydrogenfluorid og ureagert gass.
- 15 92. Fremgangsmåte ifølge krav 91 som omfatter å separere minst én av hydrogen, hydrogenfluorid og ureagert syre i en destillasjonskolonne.
93. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 67 til 92 der aluminiumtrifluoridhydrat blir produsert.
- 20 94. Fremgangsmåte ifølge krav 93 der aluminiumtrifluoridhydratet er aluminiumtrifluoridtrihydrat.
95. Fremgangsmåte ifølge krav 93 eller krav 94 der aluminiumtrifluoridhydratet blir tørket for å danne aluminiumtrifluorid-semihydrat.
- 25 96. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 67 til 95 der fluoridsaltet er partikulært med en gjennomsnittlig nominell diameter på mindre enn omtrent 500 μm .
- 30 97. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 67 til 95 der fluoridsaltet er partikulært med en gjennomsnittlig nominell diameter på mindre enn omtrent 300 μm .
- 35 98. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 67 til 97 der syren og fluoridsaltet blir tilsatt i en reaksjonsbeholder i et molart forhold på omtrent 1:1, minst omtrent 2:1, minst omtrent 3:1, minst omtrent 10:1 eller fra omtrent 1:1 til omtrent 25:1.
- 40 99. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 67 til 98 der syren blir tilsatt reaksjonsbeholderen i et molart overskudd på minst omtrent 5 %, minst omtrent 25 %, minst omtrent 50 %, minst omtrent 100 %, minst omtrent 250 % eller minst omtrent 500 % relativt til fluoridsaltet som er tilsatt reaksjonsbeholderen.

100. Fremgangsmåte ifølge ethvert av kravene 67 til 99 der konverteringen fra fluoridsaltet til aluminiumtrifluorid er på minst omtrent 50 %, minst omtrent 75 %, minst omtrent 90 %, fra omtrent 50 % til omtrent 98 %, fra omtrent 60 % til omtrent 98 % eller fra omtrent 75 % til omtrent 98 %.