



(12) 发明专利申请

(10) 申请公布号 CN 103153855 A

(43) 申请公布日 2013.06.12

(21) 申请号 201180049322.X

C01B 33/03 (2006.01)

(22) 申请日 2011.09.22

C01B 33/039 (2006.01)

(30) 优先权数据

12/910,553 2010.10.22 US

12/910,540 2010.10.22 US

(85) PCT申请进入国家阶段日

2013.04.12

(86) PCT申请的申请数据

PCT/US2011/052691 2011.09.22

(87) PCT申请的公布数据

W02012/054170 EN 2012.04.26

(71) 申请人 MEMC 电子材料有限公司

地址 美国密苏里州

(72) 发明人 S·布萨拉普 Y·黄 P·古普塔

(74) 专利代理机构 北京市中咨律师事务所

11247

代理人 肖威 刘金辉

(51) Int. Cl.

C01B 33/027 (2006.01)

权利要求书5页 说明书9页 附图5页

(54) 发明名称

在基本闭环的方法和系统中制备多晶硅

(57) 摘要

公开了在基本闭环的方法中制备多晶硅。所述方法通常包括分解由冶金级硅所制备的三氯硅烷。

1. 一种制备多晶硅的基本闭环的方法,所述方法包括:
将三氯硅烷和氢气引入流化床反应器中以形成多晶硅和包含四氯化硅、氢气和未反应的三氯硅烷的排出气体;
将一定量的来自所述排出气体的四氯化硅和氢气引入氯化反应器中以形成三氯硅烷和氯化氢;
使氯化氢与硅接触以形成三氯硅烷和四氯化硅;和
将通过使氯化氢和硅接触而形成的所述三氯硅烷引入所述流化床反应器中以制备多晶硅。
2. 根据权利要求1的方法,其中将氯化氢和硅引入氯化反应器中以形成包含三氯硅烷和四氯化硅的经氯化的产物气体,所述方法包括将所述经氯化的产物气体引入纯化系统中以形成纯化的三氯硅烷料流和纯化的四氯化硅料流,其中将所述纯化的三氯硅烷料流引入所述流化床反应器中。
3. 根据权利要求2的方法,其中将所述排出气体引入排出气体分离器中以将氢气与三氯硅烷和四氯化硅分离,将所述三氯硅烷和四氯化硅引入所述经氯化的产物气体纯化系统中,将所述纯化的四氯化硅料流引入氯化反应器中。
4. 根据权利要求3的方法,其中所述排出气体分离器为气-液分离器。
5. 根据权利要求2-4中任一项的方法,其中将四氯化硅和氢气引入所述氯化反应器中以形成包含三氯硅烷、氯化氢、未反应的氢气和未反应的四氯化硅的经氢化的气体,将氢化的气体引入氯化气体分离器中以将三氯硅烷和未反应的四氯化硅与氢气和未反应的氯化氢分离,将所述三氯硅烷和未反应的四氯化硅引入氯化气体纯化系统中。
6. 根据权利要求5的方法,其中所述氯化气体分离器为气-液分离器。
7. 根据权利要求5或6的方法,其中将所述氢气和氯化氢气体引入分离系统中以分离氢气和氯化氢,将分离的氯化氢引入所述氯化反应器中,将分离的氢气引入所述流化床反应器和氯化反应器的至少一个中。
8. 根据权利要求2-7中任一项的方法,其中所述经氯化的产物气体包含三氯硅烷、四氯化硅、氢气和未反应的氯化氢,且其中所述纯化系统包括氯化气体分离器、四氯化硅分离器和三氯硅烷净化器,其中:
将所述经氯化的产物气体引入所述氯化气体分离器中以将三氯硅烷和四氯化硅与氢气和未反应的氯化氢分离;
将分离的三氯硅烷和四氯化硅引入所述四氯化硅分离器中以将四氯化硅与三氯硅烷分离并形成三氯硅烷进料气;
将所述三氯硅烷进料气引入三氯硅烷净化器中以从所述进料气中移除杂质;和
将纯化的三氯硅烷进料气引入所述流化床反应器中以制备多晶硅。
9. 根据权利要求8的方法,其中所述氯化气体分离器为气-液分离器,所述四氯化硅分离器为蒸馏塔,所述三氯硅烷净化器为蒸馏塔。
10. 根据权利要求8或9的方法,其中将分离的氢气和未反应的氯化氢引入分离系统中以分离氢气和氯化氢,将分离的氯化氢引入所述氯化反应器中,将分离的氢气引入所述流化床反应器和氯化反应器的至少一个中。
11. 根据权利要求7或10的方法,其中所述分离系统包括氢气分离器、氢气净化器和氯

化氢净化器,其中:

将所述氢气和氯化氢引入所述氢气分离器中以形成氢气再循环气体和氯化氢再循环气体;

将所述氢气再循环气体引入氢气净化器以从所述氢气再循环气体中移除杂质;

将所述氯化氢再循环气体引入氯化氢净化器中以从所述氯化氢气体中移除杂质;和

将纯化的氢气再循环气体引入所述流化床反应器和氯化反应器的至少一个中;和

将所述纯化的氯化氢再循环气体引入所述氯化反应器中。

12. 根据权利要求 11 的方法,其中所述氢气分离器为起泡器,所述氢气净化器为吸附器,所述氯化氢净化器为蒸馏塔。

13. 根据权利要求 1-12 中任一项的方法,其中作为补充所添加的氯与所制备的多晶硅产物的摩尔比小于约 2:1,小于约 1:1,小于约 1:1.2,小于约 1:1.5,小于约 1:2,小于约 1:2.5,约 2:1-1:5 或约 1:1-约 1:5。

14. 根据权利要求 1-13 中任一项的方法,其中作为补充所添加的氢与所制备的多晶硅产物的摩尔比小于约 1:1,小于约 1:2,小于约 1:3,小于约 1:5,小于约 1:10,约 1:1-1:20 或约 1:2-约 1:10。

15. 根据权利要求 1-13 中任一项的方法,其中不将氢气添加至所述方法中以作为补充料流。

16. 一种制备多晶硅的基本闭环的方法,所述方法包括:

将三氯硅烷和氢气引入第一流化床反应器以形成多晶硅和包含四氯化硅、氢气和未反应的三氯硅烷的第一排出气体;

将硅和一定量的来自所述排出气体的四氯化硅和氢气引入第二流化床反应器中以形成包含三氯硅烷和未反应的氢气和未反应的四氯化硅的第二排出气体;

使氯化氢与硅接触以形成三氯硅烷和四氯化硅;和

将通过使氯化氢与硅接触而形成的所述三氯硅烷引入所述第一流化床反应器中以制备多晶硅。

17. 根据权利要求 16 的方法,其中将氯化氢和硅引入氯化反应器中以形成包含三氯硅烷和四氯化硅的经氯化的产物气体,所述方法包括将所述经氯化的产物气体引入纯化系统中以形成纯化的三氯硅烷料流和纯化的四氯化硅料流,将所述纯化的三氯硅烷料流引入所述第一流化床反应器中。

18. 根据权利要求 17 的方法,其中将所述第一排出气体引入第一排出气体分离器中以将氢气与三氯硅烷和四氯化硅分离,将所述三氯硅烷和四氯化硅引入所述氯化气体纯化系统中,将纯化的四氯化硅料流引入所述第二流化床反应器中。

19. 根据权利要求 18 的方法,其中所述第一排出气体分离器为气-液分离器。

20. 根据权利要求 17-19 中任一项的方法,其中将所述第二排出气体引入第二排出气体分离器系统中以将三氯硅烷和未反应的四氯化硅与氢气分离,将所述三氯硅烷和未反应的四氯化硅引入所述氯化气体纯化系统中。

21. 根据权利要求 20 的方法,其中所述第二排出气体分离器为气-液分离器。

22. 根据权利要求 20 或 21 的方法,其中所述第二排出气体包含氢气和氯化氢,其中将三氯硅烷和未反应的四氯化硅与氢气和氯化氢分离,将所述氢气和氯化氢引入分离系统中

以分离氢气和氯化氢,将分离的氯化氢引入所述氯化反应器中,将分离的氢气引入所述第一流化床反应器和所述第二流化床反应器的至少一个中。

23. 根据权利要求 17-22 中任一项的方法,其中所述经氯化的产物气体包含三氯硅烷、四氯化硅、氢气和未反应的氯化氢,且其中所述纯化系统包括氯化气体分离器、四氯化硅分离器和三氯硅烷净化器,其中:

将所述经氯化的产物气体引入所述氯化气体分离器中以将三氯硅烷和四氯化硅与氢气和未反应的氯化氢分离;

将分离的三氯硅烷和四氯化硅引入所述四氯化硅分离器中以将四氯化硅与三氯硅烷分离并形成三氯硅烷进料气;

将所述三氯硅烷进料气引入三氯硅烷净化器中以从所述进料气中移除杂质;和

将纯化的三氯硅烷原料气引入所述第一流化床反应器中以制备多晶硅。

24. 根据权利要求 23 的方法,其中所述氯化气体分离器为气-液分离器,所述四氯化硅分离器为蒸馏塔,所述三氯硅烷净化器为蒸馏塔。

25. 根据权利要求 23 或 24 的方法,其中将分离的氢气和未反应的氯化氢引入分离系统中以分离氢气和氯化氢,将分离的氯化氢引入所述氯化反应器中,将分离的氢气引入所述第一流化床反应器和所述第二流化床反应器的至少一个中。

26. 根据权利要求 22 或 25 的方法,其中所述分离系统包括氢气分离器、氢气净化器和氯化氢净化器,其中:

将所述氢气和氯化氢引入所述氢气分离器中以形成氢气再循环气体和氯化氢再循环气体;

将所述氢气再循环气体引入氢气净化器以从所述氢气再循环气体中移除杂质;

将所述氯化氢再循环气体引入氯化氢净化器中以从所述氯化氢气体中移除杂质;和

将纯化的氢气再循环气体引入所述第一流化床反应器和所述第二流化床反应器的至少一个中;和

将纯化的氯化氢再循环气体引入所述氯化反应器中。

27. 根据权利要求 26 的方法,其中所述氢气分离器为起泡器,所述氢气净化器为吸附器,所述氯化氢净化器为蒸馏塔。

28. 根据权利要求 16-27 中任一项的方法,其中作为补充所添加的氯与所制备的多晶硅产物的摩尔比小于约 2:1,小于约 1:1,小于约 1:1.2,小于约 1:1.5,小于约 1:2,小于约 1:2.5,约 2:1-1:5 或约 1:1-约 1:5。

29. 根据权利要求 16-28 中任一项的方法,其中作为补充所添加的氢与所制备的多晶硅产物的摩尔比小于约 1:1,小于约 1:2,小于约 1:3,小于约 1:5,小于约 1:10,约 1:1-1:20 或约 1:2-约 1:10。

30. 根据权利要求 16-28 中任一项的方法,其中不将氢气添加至所述方法中以作为补充料流。

31. 一种用于通过分解三氯硅烷而制备多晶硅的系统,其中所述系统就三氯硅烷而言为基本上闭环的,所述系统包括:

在其中使氯化氢与硅接触以形成三氯硅烷和四氯化硅的氯化反应器;

三氯硅烷在其中分解以制备多晶硅的流化床反应器;和

将四氯化硅和氢气引入其中以形成三氯硅烷的氢化反应器。

32. 根据权利要求 31 的系统,其包括:

用于将三氯硅烷由所述氢化反应器输送至所述流化床反应器的输送装置;和
用于将三氯硅烷由所述氯化反应器输送至所述流化床反应器的输送装置。

33. 根据权利要求 31 或 32 的系统,其包括向其中引入三氯硅烷和四氯化硅以分离三氯硅烷和四氯化硅的纯化系统。

34. 根据权利要求 33 的系统,其包括:

用于将三氯硅烷由所述纯化系统输送至所述流化床反应器的输送装置;和
用于将四氯化硅由所述纯化系统输送至所述氢化反应器的输送装置。

35. 根据权利要求 33 或 34 的系统,其包括向其中引入来自所述流化床反应器的排出气体的排出气体分离器,所述排出气体包含四氯化硅、氢气和未反应的三氯硅烷,其中所述排出气体分离器将氢气与三氯硅烷和四氯化硅分离。

36. 根据权利要求 35 的系统,其包括用于将三氯硅烷和四氯化硅由所述排出气体分离器输送至所述纯化系统的输送装置。

37. 根据权利要求 33-36 中任一项的系统,其包括向其中引入来自所述氢化反应器的经氢化的气体的氢化气体分离器,所述经氢化的气体包含三氯硅烷、氯化氢、未反应的氢气和未反应的四氯化硅,其中所述氢化气体分离器将三氯硅烷和未反应的四氯化硅与氢气和未反应的氯化氢分离。

38. 根据权利要求 37 的系统,其包括用于将三氯硅烷和未反应的四氯化硅输送至所述纯化系统的输送装置。

39. 根据权利要求 37 或 38 的系统,其包括向其中引入来自所述氢化气体分离器的氢气和氯化氢以分离氢气和氯化氢的分离系统。

40. 根据权利要求 39 的系统,其包括:

用于将氯化氢由所述分离系统输送至所述氯化反应器的输送装置;和
用于将氢气由所述分离系统输送至所述流化床反应器和所述氢化反应器的至少一个中的输送装置。

41. 一种用于通过分解三氯硅烷而制备多晶硅的系统,其中所述系统就三氯硅烷而言为基本上闭环的,所述系统包括:

在其中使氯化氢与硅接触以形成三氯硅烷和四氯化硅的氯化反应器;

三氯硅烷在其中分解以制备多晶硅的第一流化床反应器;和

在其中使四氯化硅与氢气和颗粒状硅接触以形成三氯硅烷的第二流化床反应器。

42. 根据权利要求 41 的系统,其包括用于将三氯硅烷由所述氯化反应器输送至所述第一流化床反应器的输送装置。

43. 根据权利要求 41 或 42 的系统,其包括向其中引入三氯硅烷和四氯化硅以分离三氯硅烷和四氯化硅的纯化系统。

44. 根据权利要求 43 的系统,其包括:

用于将三氯硅烷由所述纯化系统输送至所述第一流化床反应器的输送装置;和
用于将四氯化硅由所述纯化系统输送至所述第二流化床反应器的输送装置。

45. 根据权利要求 43 或 44 的系统,其包括向其中引入来自所述第一流化床反应器的排

出气体的第一排出气体分离器,所述排出气体包含四氯化硅、氢气和未反应的三氯硅烷,其中所述第一排出气体分离器将氢气与三氯硅烷和四氯化硅分离。

46. 根据权利要求 45 的系统,其包括用于将三氯硅烷和四氯化硅由所述第一排出气体分离器输送至所述纯化系统的输送装置。

47. 根据权利要求 43-46 中任一项的系统,其包括向其中引入来自所述第二流化床反应器的第二排出气体的第二排出气体分离器,所述第二排出气体包含三氯硅烷、未反应的三氯硅烷、未反应的氢气,其中所述第二排出气体分离器将三氯硅烷和未反应的四氯化硅与未反应的氢气分离。

48. 根据权利要求 47 的系统,其包括用于将三氯硅烷和未反应的四氯化硅输送至所述纯化系统的输送装置。

49. 根据权利要求 47 或 48 的系统,其包括向其中引入来自所述第二排出气体分离器的氢气和氯化氢以分离氢气和氯化氢的分离系统。

50. 根据权利要求 49 的系统,其包括:

用于将氯化氢由所述分离系统输送至所述氯化反应器的输送装置;和

用于将氢气由所述分离系统输送至所述第一流化床反应器和所述第二流化床反应器的至少一个中的输送装置。

51. 根据权利要求 41-50 中的系统,其中所述氯化反应器为流化床反应器。

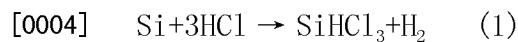
在基本闭环的方法和系统中制备多晶硅

背景技术

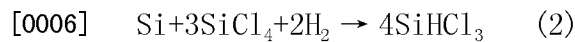
[0001] 本发明的领域涉及在基本闭环的方法中制备多晶硅，特别是包括分解由冶金级硅制备的三氯硅烷的方法。

[0002] 多晶硅是一种用于制备包括例如集成电路和光伏（即太阳能）电池在内的许多商业产品的重要原材料。多晶硅通常通过化学气相沉积机理制备，其中在流化床反应器中将硅由可热分解的硅化合物沉积至硅颗粒上或在西门子型反应器中沉积至硅棒上。晶种颗粒的尺寸持续增大，直至其以多晶硅产物（即“颗粒状”多晶硅）形式排出反应器中。合适的可分解硅化合物包括例如硅烷和卤代硅烷如三氯硅烷。

[0003] 三氯硅烷可通过如下步骤制备：使氯化氢与硅源在下述反应中接触：



[0005] 或通过使四氯化硅和氢气与硅源在下述反应中接触：



[0007] 氯化氢和四氯化硅是多晶硅的三氯硅烷基制备方法中较为昂贵的组分。

[0008] 持续需要通过热分解三氯硅烷且相对于常规方法降低氢气和氯气用量的多晶硅制备方法以及就氯化氢而言能在基本闭环的方法中制备多晶硅的方法。还持续需要使用该方法制备多晶硅的系统。

[0009] 发明简述

[0010] 本发明的一个方面涉及一种制备多晶硅的基本闭环的方法。将三氯硅烷和氢气引入流化床反应器中以形成多晶硅和包含四氯化硅、氢气和未反应的三氯硅烷的排出气体。将一定量的来自所述排出气体的四氯化硅和氢气引入氯化反应器中以形成三氯硅烷和氯化氢。使氯化氢和硅接触以形成三氯硅烷和四氯化硅。将通过使氯化氢和硅接触所形成的三氯硅烷引入流化床反应器中以制备多晶硅。

[0011] 本发明的另一方面涉及一种制备多晶硅的基本闭环的方法。将三氯硅烷和氢气引入第一流化床反应器中以形成多晶硅和包含四氯化硅、氢气和未反应的三氯硅烷的第一排出气体。将硅和一定量的来自所述排出气体的四氯化硅和氢气引入第二流化床反应器中以形成含有三氯硅烷和未反应的氢气和未反应的四氯化硅的第二排出气体。使氯化氢和硅接触以形成三氯硅烷和四氯化硅。将通过使氯化氢与硅接触所形成的三氯硅烷引入第一流化床反应器中以制备多晶硅。

[0012] 本发明的另一方面涉及一种用于通过分解三氯硅烷而制备多晶硅的系统。所述系统就三氯硅烷而言是基本闭环的。所述系统包括氯化氢与硅在其中接触从而形成三氯硅烷和四氯化硅的氯化反应器。所述系统包括三氯硅烷在其中分解以制备多晶硅的流化床反应器。所述系统还包括将四氯化硅和氢气引入其中以形成三氯硅烷的氯化反应器。

[0013] 本发明的又一方面涉及一种用于通过分解三氯硅烷而制备多晶硅的系统。所述系统就三氯硅烷而言是基本闭环的。所述系统包括氯化氢与硅在其中接触从而形成三氯硅烷和四氯化硅的氯化反应器。所述系统包括三氯硅烷在其中分解以制备多晶硅的第一流化床反应器。所述系统包括四氯化硅与氢气和颗粒状硅在其中接触以形成三氯硅烷的第二流化

床反应器。

[0014] 存在与本发明上述方面有关的所述特征的各种改进。也可将其他特征引入本发明的上述方面中。这些改进和额外特征可单独存在或以任何组合存在。例如,可将下文就本发明的任意示意性实施方案所述的各个特征单独或以任何组合的方式引入本发明的任意上述方面中。

附图简介

[0015] 图 1 为用于根据本发明的第一实施方案通过热分解三氯硅烷而制备多晶硅的系统的流程图;

[0016] 图 2 为用于根据本发明的第二实施方案通过热分解三氯硅烷而制备多晶硅的系统的流程图;

[0017] 图 3 为用于根据本发明的第一实施方案纯化包含三氯硅烷和四氯化硅的排出气体的纯化系统的流程图;

[0018] 图 4 为用于根据本发明的第一实施方案分离和纯化氢气和氯化氢的分离系统的流程图;和

[0019] 图 5 为用于纯化由用于氢化四氯硅烷的第二流化床反应器中排出的第二排出气体的第二排出气体分离系统的流程图。

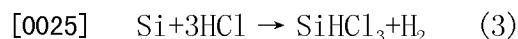
[0020] 在全部附图中,相同的附图标记表示相同的部件。

[0021] 发明详述

[0022] 根据本发明,提供了用于由三氯硅烷制备多晶硅的基本闭环的方法和系统。本文所用的措辞“基本闭环的方法”或“基本闭环的系统”是指其中就所述基本闭环的系统或方法而言,除杂质之外,不从所述系统或方法中取出所述化合物,且除补充料流之外,不向所述系统和方法中供入所述化合物。如本文所用,就除硅之外的所有化合物如三氯硅烷、四氯化硅、氯化氢和 / 或氢气而言,所述系统和方法是基本闭环的。

[0023] 制备多晶硅的闭环方法

[0024] 在本发明的若干实施方案中且如图 1 所示,引入硅源 3 和氯化氢 6 并使其在氯化反应器 7 中接触以形成经氯化的产物气体 10。所述经氯化的产物气体 10 含有三氯硅烷和四氯化硅以及氢气和未反应的氯化氢。三氯硅烷和四氯化硅可根据如下反应在氯化反应器 7 中形成:



[0027] 就此而言,应理解的是,本文所用的两种或更多种反应性化合物的“接触”通常导致所述组分发生反应,且术语“接触”和“反应”为同义词以及派生自这些术语,这些术语及其派生词不应视为具有限制性含义。硅源 3 通常为冶金级硅;然而,应理解的是可使用其他硅源如砂(即 SiO_2)、石英、燧石、硅藻土、矿物硅酸盐、氟硅酸盐及其混合物。优选硅的粒度为约 10- 约 750 μm 或约 50- 约 250 μm 。粒度的增大会降低反应速率,而较小的粒度由于较小直径颗粒间内聚力的增大会导致更多的颗粒夹带在反应器废气中且难以流化。

[0028] 氯化反应器 7 可为硅 3 在其中悬浮于氯化氢进气 6 中的流化床反应器。反应器 7 可在至少约 250° C, 且在其他实施方案中,在至少约 300° C(例如约 250- 约 450° C 或约

300-约 400° C) 的温度下操作。鉴于反应 (3) 和 (4) 的放热性质,氯化反应器 7 可包括冷却装置(例如与反应器床热连通的冷却旋管或冷却夹套)从而有助于控制所述反应器的温度。就此而言,应理解的是尽管氯化反应器 7 可为流化床反应器,然而本文所用的氯化反应器应与下文所述“第一流化床反应器”和“第二流化床反应器”加以区分。

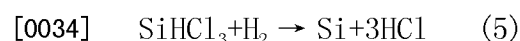
[0029] 反应器 7 可在至少约 1 巴,如约 1-约 10 巴,约 1-约 7 巴或约 2-约 5 巴的压力(即,高于大气压)下操作。氯化氢进气 6 可含有一定量的杂质如氯硅烷(例如四氯化硅和/或三氯硅烷)。在本发明的各个实施方案中,氯化氢料流 6 包含至少约 80 体积%的氯化氢,至少约 90 体积%,至少约 95 体积%或者甚至至少约 99 体积%的氯化氢(例如约 80-约 99 体积%或约 90-约 99 体积%)。

[0030] 氯化反应器 7 可含有一定量的催化剂以在经氯化的产物气体 10 中相对于四氯化硅的形成而促进三氯硅烷的形成。例如,氯化反应器 7 可含有美国专利 5,871,705 中所公开的 VIII 族金属催化剂(例如铁、钴、镍、钒和/或铂)或含有铝、铜或钛金属的催化剂,其出于所有相关和一致目的通过引用并入本文。反应器 7 也可含有一定量的一种或多种碱金属化合物(例如氯化锂、氯化钠、氯化钾、氯化铯、氯化铷、硫酸钠和/或硝酸钠)以提高对三氯硅烷的选择性。反应器 7 可在最小流化速度的约 1.1-约 8 倍下或最小流化速度的约 1.5-约 4 倍下操作。

[0031] 氯化反应器 7 中的氯化氢转化率可根据反应条件而变化,且通常为至少约 50%,至少约 65%,至少约 80%,至少约 90%,在一些实施方案中,转化率可达 100%(例如约 50-约 100%或约 80-约 100%)。对三氯硅烷的选择性可为至少约 50%,至少约 65%或者甚至至少约 80%(例如约 50-约 90%或约 70-约 90%)。

[0032] 将所述经氯化的产物气体 10 引入纯化系统 4 中以形成纯化的三氯硅烷料流 20 和纯化的四氯化硅料流 22。所述纯化系统 4 也可将氢气和氯化氢 26 与纯化的三氯硅烷 20 和纯化的四氯化硅 22 分离,且可从气流 20、22 中分离各种金属杂质(例如金属氯化物)。可将所述三氯硅烷料流 20 纯化至含有小于约 10 体积%的除三氯硅烷之外的化合物(例如四氯化硅),优选还含有更少量杂质,如小于约 5 体积%,小于约 1 体积%,小于约 0.1 体积%或者甚至小于约 0.001 体积%的除三氯硅烷之外的化合物。通常纯化的四氯化硅料流 22 含有至少约 50 重量%的四氯化硅,在一些实施方案中,至少约 60 重量%,至少约 70 重量%,至少约 80 重量%或者甚至至少约 90 重量%的四氯化硅。就此而言,应理解的是可接受较不纯(例如纯度低至 50 重量%或者甚至更低)的四氯化硅料流 22,因为将对所述四氯化硅料流进一步加工以形成下文所述的三氯硅烷。

[0033] 将所述纯化的三氯硅烷料流 20 引入流化床反应器 30 中,其中料流 20 在其中流化并使硅晶种颗粒生长以制备可作为多晶硅产物 27 从反应器 30 中取出的多晶硅。多晶硅 27 根据如下反应由三氯硅烷 20 制备,同时形成四氯化硅副产物:



[0036] 除三氯硅烷 20 之外,还将氢气 29 作为载气引入流化床反应器 30 中以提高多晶硅 27 的总转化率。流化床反应器 30 可根据于 2010 年 10 月 22 日提交且作为美国公开专利 _____ 公开的美国申请 12/910,465 操作,出于所有相关和一致目的通过引用并入本文。例如,可将三氯硅烷 20 引入反应器 30 的核心区域,且引入所述反应器中的三氯硅

烷总浓度可为至少约 20 体积 % (例如约 20- 约 50 体积 %)。进料气可处于低于约 350° C 的温度下。反应器 30 可在小于约 90% 的平衡下操作且停留时间小于约 10 秒。反应器 30 可在约 3- 约 8 巴的压力下操作,且可将反应气体加热至至少约 700° C (例如约 700- 约 1300° C) 的温度。通过流化床反应器 30 的气体速度通常可保持为在所述流化床中流化颗粒所需的最小流化速度的约 1- 约 8 倍。从反应器 30 中取出的颗粒状多晶硅的平均直径可为约 800- 约 1200 μm 。可将急冷气体引入反应器 30 (例如,在所述反应器的稀相区) 中以在从所述反应器中排出之前降低排出气体 32 的温度从而抑制硅灰的形成。所述流化床反应器可包括外壳,在该外壳中惰性气体保持在高于工艺气压力的压力 (例如约 0.005- 约 0.2 巴的压力) 下以确保工艺气不从裂缝中流出且保持在反应室中。

[0037] 在本发明的一些实施方案中,所述流化床反应器中的三氯硅烷转化率可为至少约 40%,至少约 55%,至少约 70% 或者甚至至少约 80% (例如约 40- 约 90% 或约 55- 约 90%)。对沉积硅的选择性可为至少约 10%,至少约 15%,至少约 20%,至少约 25% 或者甚至至少约 30% (例如约 15- 约 40% 或约 20- 约 30%)。

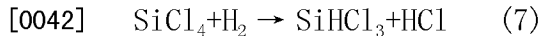
[0038] 从反应器 30 中排出的排出气体 32 含有四氯化硅、未反应的三氯硅烷和氢气。排出气体 32 也可含有少量其他气体 (例如氯化氢) 和硅灰。在本发明的一些实施方案中,排出气体 32 可含有至少约 10 体积 % 的四氯化硅,至少约 15 体积 %,至少约 20 体积 % 或至少约 30 体积 % 的四氯化硅 (例如约 10- 约 40 体积 % 或约 10- 约 20 体积 % 的四氯化硅)。排出气体 32 可含有至少约 10 体积 % 的未反应三氯硅烷,至少约 15 体积 %,至少约 20 体积 % 或至少约 30 体积 % 的未反应三氯硅烷 (例如约 10- 约 40 体积 % 或约 10- 约 20 体积 % 的未反应三氯硅烷)。所述排出气体的大部分其余物质通常为氢气。例如,从流化床反应器 30 中排出的排出气体 32 可含有至少约 40 体积 % 的氢气,至少约 50 体积 %,至少约 60 体积 %,至少约 70 体积 %,至少约 80 体积 % 或者甚至至少约 90 体积 % 的氢气 (例如约 40- 约 90 体积 % 或约 60- 约 80 体积 %)。排出气体 32 中的氯化氢量可小于约 5 体积 %,且通常小于约 1 体积 % (例如约 0.1- 约 5 体积 %)。所述排出气体中的硅灰量可为约 0.1- 约 5 重量 %。就此而言,应理解的是对所述组分的上述百分比是示例性的,且可使用其他相对量的组分而不偏离本发明的范围。

[0039] 将排出气体 32 引入排出气体分离器 50 中以将氢气 (和氯化氢,如果存在的话) 31 与四氯化硅和未反应的三氯硅烷 36 分离。在引入排出气体分离器 50 之前,可使所述气体通过颗粒分离器 (未示出) 以除去作为三氯硅烷热分解的副产物所产生的硅灰。分离的四氯化硅和三氯硅烷 36 可再循环回至纯化系统 4 中以进一步使用。将氢气 (和任何氯化氢) 31 引入分离系统 52 中以分离氢气 54 和氯化氢 6,这将在下文更充分地描述。

[0040] 分离器 50 可根据本领域技术人员所知晓的用于分离气态组分的任意方法构造。在一些实施方案中,分离器 50 为气-液分离器。该类气-液分离器的实例包括其中降低进气的压力和 / 或温度从而导致低沸点气体 (例如四氯化硅和三氯硅烷) 冷凝并与高沸点气体 (例如氢气和氯化氢) 分离的容器。合适的容器包括本领域通常称为“气液分离罐”的容器。任选地,可对所述容器进行冷却以促进气体分离。或者,所述分离器 50 可为一个或多个蒸馏塔。

[0041] 将从所述纯化系统 4 中取出的四氯化硅 22 引入氯化反应器 60 中以形成三氯硅烷。由所述纯化系统 4 排出的四氯化硅 22 包括作为氯化反应器 7 中的副产物和多晶硅流

化床反应器 30 中的副产物形成的四氯化硅。除四氯化硅 22 之外,将来自分离系统 52 的氢气 57 引入氢化反应器 60 中。从所述纯化系统 22 取出的四氯化硅 4 根据如下反应转化为三氯硅烷:



[0043] 氢化反应器 60 可为氢气 57 在其中鼓泡通过液态四氯化硅 22 从而形成三氯硅烷的起泡器。或者,在加压反应容器中蒸发四氯化硅 22 且加热氢气 57 和四氯化硅 22 并使其反应。就此而言,可使用本领域技术人员所知晓的适于所述氢化反应的任何容器而没有限制。可将所述反应容器的内容物加热至至少约 800° C 的温度从而将四氯化硅转化为三氯硅烷。在一些实施方案中,将四氯化硅 22 和氢气 57 加热至至少约 900° C,至少约 1000° C 或者甚至至少约 1100° C (例如约 800-约 1500° C,约 800-约 1200° C 或者约 1000-约 1200° C) 的温度。优选地,对所述反应容器加压以促进三氯硅烷的形成。例如,氢化反应器 60 可在至少约 2 巴,在其他实施方案中,至少约 5 巴,至少约 10 巴或者甚至至少约 15 巴 (例如约 2-约 20 巴或约 8-约 15 巴) 的压力下操作。所述反应器 60 中所引入的氢气与四氯化硅之比可根据反应条件而变化。使用化学计量过量的氢气通常导致三氯硅烷的转化率提高。在各实施方案中,氢气与四氯化硅的摩尔比为至少约 1:1,至少约 2:1 或者甚至至少约 3:1 (例如约 1:1-约 5:1 或约 1:1-约 3:1)。

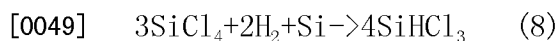
[0044] 通常至少约 20% 的四氯化硅在氢化反应器 60 中转化为三氯硅烷,其中转化率可为至少约 30%,至少约 40% 或者甚至至少约 50% (例如约 20-约 60% 的转化率)。所得的经氢化的气体 63 含有三氯硅烷、未反应的四氯化硅、未反应的氢气和氯化氢。取决于添加至所述反应器中的过量氢气 57 的量,所述经氢化的气体 63 中的三氯硅烷量可为至少约 5 体积%,在其他实施方案中,可为至少约 10 体积%,至少约 25 体积%或至少约 40 体积% (例如约 5-约 40 体积%,约 5-约 20 体积%或约 5-约 10 体积%)。同样地,所述经氢化的气体中的氯化氢量可为至少约 5 体积%,在其他实施方案中,可为至少约 10 体积%,至少约 25 体积%或至少约 40 体积% (例如约 5-约 40 体积%,约 5-约 20 体积%或约 5-约 10 体积%)。未反应的四氯化硅的量可为所述经氢化料流的至少约 10 体积%,至少约 20 体积%,或至少约 30 体积%或至少约 40 体积% (例如约 10-约 40 体积%,约 10-约 30 体积%或约 15-约 25 体积%)。经氢化的气体 63 的其余部分通常为氢气。例如,经氢化的气体 63 可含有至少约 40 体积%氢气,或者在其他实施方案中,可含有至少约 50 体积%,至少约 60 体积%,至少约 70 体积%或者甚至至少约 80 体积%氢气 (例如约 40-约 90 体积%,约 50-约 80 体积%或约 60-约 80 体积%)。

[0045] 将经氢化的气体 63 引入氢化气体分离器 70 中以将三氯硅烷和未反应的四氯化硅 73 与氢气和未反应氯化氢 75 分离。将三氯硅烷和未反应的四氯化硅 73 引入气体纯化系统 4 中以回收三氯硅烷 20 并将四氯化硅 73 再次引入所述氢化反应器 60 中。将分离的氢气和氯化氢 75 引入下文所述的分离系统 52 中。氢化气体分离器 70 可为气-液分离器如气液分离罐或者可为上文就分离器 50 所述的蒸馏塔。

[0046] 分离系统 52 将氢气与氯化氢 6 分离。可将氢气 54 用于氢化反应器 60 和 / 或流化床反应器 30 中。将氯化氢 6 用于氯化反应器 7 中。引入分离系统 52 中的氢气和氯化氢料流含有来自纯化系统 4 的氢气和 / 或氯化氢 26、来自分离器 50 的氢气和 / 或氯化氢 31 以及来自氢化气体分离器 70 的氢气和 / 或氯化氢。

[0047] 制备多晶硅的另一实施方案如图 2 所示。就此而言,应指出的是类似于图 1 的图 2 所示的工艺料流和装置通过将图 1 的相应附图标记加“100”表示(例如零件 4 变为零件 104)。图 2 的方法基本与图 1 的相同;然而,图 2 包括第二流化床反应器 180,而不是氢化反应器 60(图 1)。就此而言,应理解的是在某些实施方案中,所述方法可使用串联或并联操作的氢化反应器 60(图 1)和第二流化床反应器 180(图 2)二者而不偏离本发明的范围。

[0048] 在图 2 的方法中,将从纯化系统 104 取出的四氯化硅 122 引入第二流化床反应器 180 中。将来自分离系统 152 的氢气 157 作为载气引入流化床反应器 180 中。还将硅源 185 引入所述第二流化床反应器 180 中。借助引入所述反应器 180 中的氢气 157 和四氯化硅气体 122 将颗粒状硅 185 流化。将硅源引入所述流化床反应器 180 中允许根据如下反应直接氢化四氯化硅从而形成三氯硅烷:



[0050] 所述直接氢化反应(8)可根据已知的操作参数,例如美国专利 4,526,769 或美国专利 4,676,967 中所述的那些进行,出于所有相关和一致目的通过引入将二者并入本文。所述流化床反应器 180 可在至少约 500° C,在一些实施方案中,在至少约 550° C,至少约 600° C,至少约 650° C 或至少约 700° C(例如约 500-约 750° C 或约 550-约 650° C)的温度下操作。可将四氯化硅 122 和/或氢气 157 预热,然后引入流化床反应器 180 中和/或可通过使用外部加热装置将热量从外部引入反应器 180 中。流化床反应器 180 可在升高的压力,如至少约 3 巴或至少约 6 巴的压力下操作;然而,可使用较高的压力,如至少约 20 巴,至少约 25 巴,至少约 30 巴或至少约 35 巴(例如约 20-约 35 巴)以使腐蚀最小化并提高三氯硅烷产率。

[0051] 硅源 185 可为冶金级硅;然而,应理解的是可使用其他硅源,例如砂(即 SiO₂)、石英、燧石、硅藻土、矿物硅酸盐、氟硅酸盐及其混合物。所述硅的粒度可为约 10-约 500 μm 或约 50-约 300 μm。可以以基本等摩尔量添加硅 185、四氯化硅 122 和氢气 157;然而,可将氢气用作载气且可以以化学计量过量添加。氢气与四氯化硅的摩尔比可为至少约 2:3,至少约 1:1,至少约 2:1,至少约 3:1 或至少约 5:1(例如约 2:3-约 5:1)。

[0052] 在本发明的一些实施方案中,可将催化剂添加至流化床反应器 180 中以获得更高的三氯硅烷转化率。在一些实施方案中,可将含铜催化剂添加至第二流化床反应器 180 中。该催化剂的实例包括铜氧化物和铜氯化物,如 CuO、Cu₂O、CuCl 和 CuCl₂。无论是否使用催化剂,至少约 20% 的四氯化硅在第二流化床反应器 180 中转化为三氯硅烷,其中转化率可至少为约 30%,至少约 40% 或者甚至至少约 50%(例如约 20-约 60% 转化率)。

[0053] 如图 2 所示,将来自第二流化床反应器 180 的第二排出气体 164 引入第二排出气体分离系统 190 中。所述第二排出气体 164 含有三氯硅烷、未反应的四氯化硅、未反应的氢气且可含有其他化合物如氯化氢和二氯硅烷。在本发明的若干实施方案中,可使用如图 5 所示的系统 190。所述系统 190 包括移除硅颗粒(例如硅灰)的颗粒分离器 192,其在第二流化床反应器 180 中实施。合适的颗粒分离器包括例如袋滤器、旋风分离器和液体涤气器。可将硅灰 193 再循环回至第二流化床反应器 180 中以进一步转化为三氯硅烷。可将贫硅灰的排出气体 194 引入分离器 195 中。所述分离器 195 可为上文对分离器 50(图 1)所述的气-液分离器(例如气液分离罐)或者可为蒸馏塔。所述分离器 195 将三氯硅烷和未反应的四氯化硅 173 与氢气和氯化氢(如果存在的话)175 分离。将三氯硅烷和反应的四氯化

硅 173 引入气体纯化系统 104(图 2)中以回收三氯硅烷 120 并将四氯化硅 122 再次引入第二流化床反应器 180 中。将分离的氢气和氯化氢 175 引入分离系统 152 中。

[0054] 本发明实施方案中所用的示例性纯化系统 4 如图 3 所示。就此而言,应理解的是在纯化系统 104(图 2) 可与图 3 所示的纯化系统 4 相同或类似而不偏离本发明的范围。纯化系统 4 包括从氯化产物气体 10 中移除在三氯硅烷分解期间所形成的硅灰 13 的颗粒分离器 11。合适的颗粒分离器包括例如烧结金属过滤器、袋滤器、旋风分离器和液体涤气器。可将硅灰 13 作为废弃物取出或者可再循环至第一流化床反应器 30 中。将贫硅灰的氯化产物气体 19 引入氯化气体分离器 16 中以将三氯硅烷和四氯化硅 12 与氢气和未反应的氯化氢 26 分离。所述氯化气体分离器 16 可为上文对分离器 50(图 1) 所述的气-液分离器(例如气液分离罐)或者可为蒸馏塔。将氢气和未反应的氯化氢 26 引入分离系统 52(图 1) 中以分离氢气和氯化氢。将所述分离的三氯硅烷和四氯化硅 12 引入四氯化硅分离器 18 中以将四氯化硅 22 与三氯硅烷分离并形成三氯硅烷进料气 17。所述四氯化硅分离器 18 可为蒸馏塔或适于从三氯硅烷移除四氯化硅的任何其他装置。将三氯硅烷进料气 17 引入三氯硅烷净化器 15 中以从所述进料气中移除杂质。净化器 15 也可为蒸馏塔或适于从含三氯硅烷的气体中移除杂质 14 的任何其他装置。所述杂质 14 可作为废弃物除去或可再循环(例如通过引入分离器系统 52 中)。将所述纯化的三氯硅烷进料气 20 引入流化床反应器 30(图 1) 中以制备多晶硅 27。

[0055] 分离器系统 52 的实施方案如图 4 所示。就此而言,应理解的是分离器系统 152(图 2) 可与图 4 所示的分离器系统 52 相同或类似。将来自纯化系统 4 的氢气和氯化氢 26、来自分离器 50 的氢气和氯化氢 31 以及来自氯化气体分离器 70 的氢气和氯化氢 75 引入氢气分离器 42 中以形成氢气再循环气体 45 和氯化氢再循环气体 47。就此而言,应理解的是可首先将一种或多种氢气和氯化氢气体 26、31、75 引入净化器(未示出)如蒸馏塔中以纯化氢气和氯化氢(例如通过移除任何氯化物如四氯化硅、三氯硅烷和/或二氯硅烷),然后将其引入氢气分离器 42 中。在其中使用净化器的实施方案中,可将所述氯化物再循环至纯化系统 4 中。

[0056] 将氢气再循环气体 45 引入氢气净化器 49 中以从氢气再循环气体 45 中除去杂质 41。杂质 41 可作为废弃物从所述系统中除去或可再循环(例如引入纯化系统 4 中)。将纯化的氢气再循环气体 54 引入流化床反应器 30 或氢化反应器 60(图 1) 或第二流化床反应器 180(图 2) 中。将氯化氢再循环气体 47 引入氯化氢净化器 44 中以从所述氯化氢再循环气体 47 中除去杂质 42。杂质 42(例如氯硅烷)可作为废弃物从所述系统中除去或可再循环(例如引入纯化系统 4 中)。将纯化的氯化氢再循环气体 6 再循环至氯化反应器 7 中。

[0057] 氢气分离器 42 可为适于将氢气与氯化氢分离的任何类型的分离器。示例性分离器 42 为起泡器,其中使氢气和氯化氢鼓泡通过含流体(例如水)的容器,且其中通常连续引入(未示出)并移除所述流体。氯化氢吸附于流体(例如水)中,而分离的氢气作为气体从所述容器中移除。将氢气 45 送至氢气净化器 49 中,所述氢气净化器 49 可为吸附器或适于从氢气中移除杂质的任何其他装置。氯化氢净化器 44 可为一个或多个蒸馏塔。就此而言,应理解的是可将除了上文所提及的那些之外的用于分离和纯化氢气和氯化氢的其他方法和装置可以以任意组合(例如串联或并联)使用而不偏离本发明的范围。

[0058] 在本发明的若干实施方案中,作为补充所添加的氯(即基于氯原子(Cl)的摩尔

数,而不是基于双原子气体(Cl_2)的摩尔数)——包括补充料流中所添加的氯气本身和构成其他含氯化物(例如 HCl 、 SiHCl_3 和/或 SiCl_4)一部分的氯原子——与所制备的多晶硅产物(不包括硅灰)的摩尔比为小于约2:1,在其他实施方案中,为小于约1:1,小于约1:1.2,小于约1:1.5,小于约1:2或小于约1:2.5(例如约2:1-1:5或约1:1-约1:5)。除了或者代替,作为补充所添加的氢(即基于氢原子(H)的摩尔数,而不是基于双原子气体(H_2)的摩尔数)——包括补充料流中所添加的氢气本身和构成其他含氢化合物(例如 HCl 、 SiHCl_3 、 SiCl_4 和/或 SiH_4)一部分的氢原子(但不包括用于在起泡器型的系统中将氢气从氯化氢分离的水中所含的氢)的摩尔比可小于约1:1,在其他实施方案中,可小于约1:2,小于约1:3,小于约1:5,小于约1:10(例如约1:1-1:20或约1:2-约1:10)。在一些实施方案中,不向所述方法中添加氢气液体作为补充料流。此外,在一些实施方案中,不向所述系统中添加三氯硅烷或四氯化硅;相反,这些化合物在该系统内形成并消耗。

[0059] 用于制备多晶硅的闭环系统

[0060] 可将上文所描述的方法引入用于制备多晶硅的基本闭环的系统中。上文方法就三氯硅烷、氢气和/或氯化氢而言,可为基本上闭环的。在本发明的若干实施方案中且如图1所示,所述系统包括氯化氢与硅在其中接触从而形成三氯硅烷和四氯化硅的氯化反应器7。所述系统还包括三氯硅烷在其中分解以形成多晶硅的流化床反应器30和向其中引入四氯化硅和氢气以形成三氯硅烷的氢化反应器60。所述系统可包括用于将三氯硅烷由氢化反应器60输送至流化床反应器30的输送装置和用于将三氯硅烷由氯化反应器7输送至流化床反应器30的输送装置。

[0061] 所述系统也可包括纯化系统4,向其中引入三氯硅烷和四氯化硅从而分离三氯硅烷和四氯化硅。所述系统包括用于将三氯硅烷由纯化系统4输送至流化床反应器30的输送装置和用于将四氯化硅从纯化系统4输送至氢化反应器60的输送装置。进一步参照图1,所述系统可包括排出气体分离器50,向其中引入来自流化床反应器30的排出气体,其中所述排出气体分离器50将氢气与三氯硅烷和四氯化硅分离。一个输送装置将三氯硅烷和四氯化硅由排出气体分离器50输送至纯化系统4中。

[0062] 所述系统包括向其中引入来自所述氢化反应器的氢气的氢化气体分离器70。氢化气体分离器70将三氯硅烷和未反应的四氯化硅与氢气和未反应的氯化氢分离。一个输送装置将三氯硅烷和未反应的四氯化硅输送至纯化系统4中。

[0063] 所述系统也可包括分离系统52,向其中引入来自所述氢化气体分离器的氢气和氯化氢以分离氢气和氯化氢。一个输送装置将氯化氢由分离系统52输送至氯化反应器7中。一个输送装置将氢气由分离系统52输送至流化床反应器30和氢化反应器60的至少一个中。

[0064] 本发明第二实施方案的用于制备多晶硅的系统如图2所示。所述系统类似于图1的系统;然而,图2的系统包括第二流化床反应器180,向其中添加硅以根据上文反应(8)形成三氯硅烷。所述系统包括氯化反应器107,在其中使氯化氢与硅接触以形成三氯硅烷和四氯化硅。所述系统还包括三氯硅烷在其中分解以制备多晶硅的第一流化床反应器130和四氯化硅在其中转化为三氯硅烷的第二流化床反应器180。一个输送装置将三氯硅烷由氯化反应器107输送至第一流化床反应器130中。

[0065] 所述系统包括将三氯硅烷和四氯化硅引入其中以分离三氯硅烷和四氯化硅的纯

化系统 104。一个输送装置将三氯硅烷由纯化系统 104 输送至第一流化床反应器 130 中,且一个输送装置将四氯化硅由纯化系统 104 输送至第二流化床反应器 180 中。

[0066] 所述系统可包括向其中引入来自第一流化床反应器 130 的排出气体的第一排出气体分离器 150。所述排出气体分离器 150 将氢气与三氯硅烷和四氯化硅分离。一个输送装置将三氯硅烷和四氯化硅由第一排出气体分离器 150 输送至纯化系统 104 中。

[0067] 所述系统包括向其中引入来自第二流化床反应器 180 的第二排出气体的第二排出气体分离器系统 190。第二排出气体分离器 190 将三氯硅烷和未反应的四氯化硅与未反应的氢气分离。一个输送装置将三氯硅烷和未反应的四氯化硅输送至纯化系统 104 中。

[0068] 本发明第二实施方案的系统还可包括分离系统 152,向其中引入来自第二排出气体分离器 190 的氢气和氯化氢以分离氢气和氯化氢。一个输送装置将氯化氢由分离系统 152 输送至氯化反应器 107 中,且一个输送装置将氢气由分离系统 152 输送至第一流化床反应器 107 和所述第二流化床反应器 180 的至少一个中。

[0069] 就此而言,用于图 1 和图 2 系统中的合适输送装置是常规的且是本领域技术人员所公知的。用于转移气体的合适输送装置包括例如再循环风机或鼓风机,而用于转移固体的合适输送装置包括例如刮板、螺杆、带和气动输送器。就此而言,应理解的是本文所用的措辞“输送装置”并非意指由一个单元直接转移至另一单元,而是仅仅经由任意数量的间接转移部件和 / 或机制将物料由一个单元转移至另一单元。例如,可将来自一个单元的物料输送至进一步的处理单元(例如净化)中,然后输送至第二单元。在该实例中,包括中间加工设备本身的各输送单元可视为“输送装置”,且措辞“输送装置”不应视为具有限制性含义。

[0070] 优选地,用于所述制备多晶硅的系统中的所有设备均在包括曝露于所述系统中所用和所制备的化合物的环境中耐腐蚀。合适的构造材料是常规的且是本发明领域中所公知的,其包括例如碳钢、不锈钢、MONEL 合金、INCONEL 合金、HASTELLOY 合金、镍、石墨(例如挤出或等压模塑的(iso-molded))和碳化硅(例如转化的石墨或挤出的)。

[0071] 如图 1 和图 2 所示,所述系统和方法就氢气、氯化氢和三氯硅烷而言为基本上闭环的,这是因为所述系统在进料流 3 中(和图 2 的料流 103、185 中)不包含氢气、氯化氢或三氯硅烷且不在出料流 27 中(或者图 2 的 127)中将这些化合物从所述系统中移除。就此而言,应理解的是可在清洁料流中从所述系统中移除一定量的氢气、氯化氢或三氯硅烷,且作为补充料流供入所述系统或方法中。这些化合物的补充可通过将所述化合物添加至任何工艺料流中而实现,这可由本领域技术人员决定。

[0072] 应理解的是上文所描述的方法和系统可包括多于一个的任何所述设备(例如反应器和 / 或分离单元),且所述多个单元可串联和 / 或并联操作而不偏离本发明的范围。此外,就此而言,应理解的是所述方法和系统为示例性的,且所述方法和系统可毫无限制地包括具有其他功能的其他装置。

[0073] 当介绍本发明的要素或其优选实施方案时,冠词“一个”、“一种”和“所述”旨在意指存在一个或多个要素。术语“包含”、“包括”和“具有”旨在为包纳性的,且意指除所列要素之外可存在其他要素。

[0074] 由于可对上述装置和方法做出各种改变而不偏离本发明的范围,意欲上文描述中所含的且在附图中所示的所有事项均应理解为示意性的,而非限制性含义的。

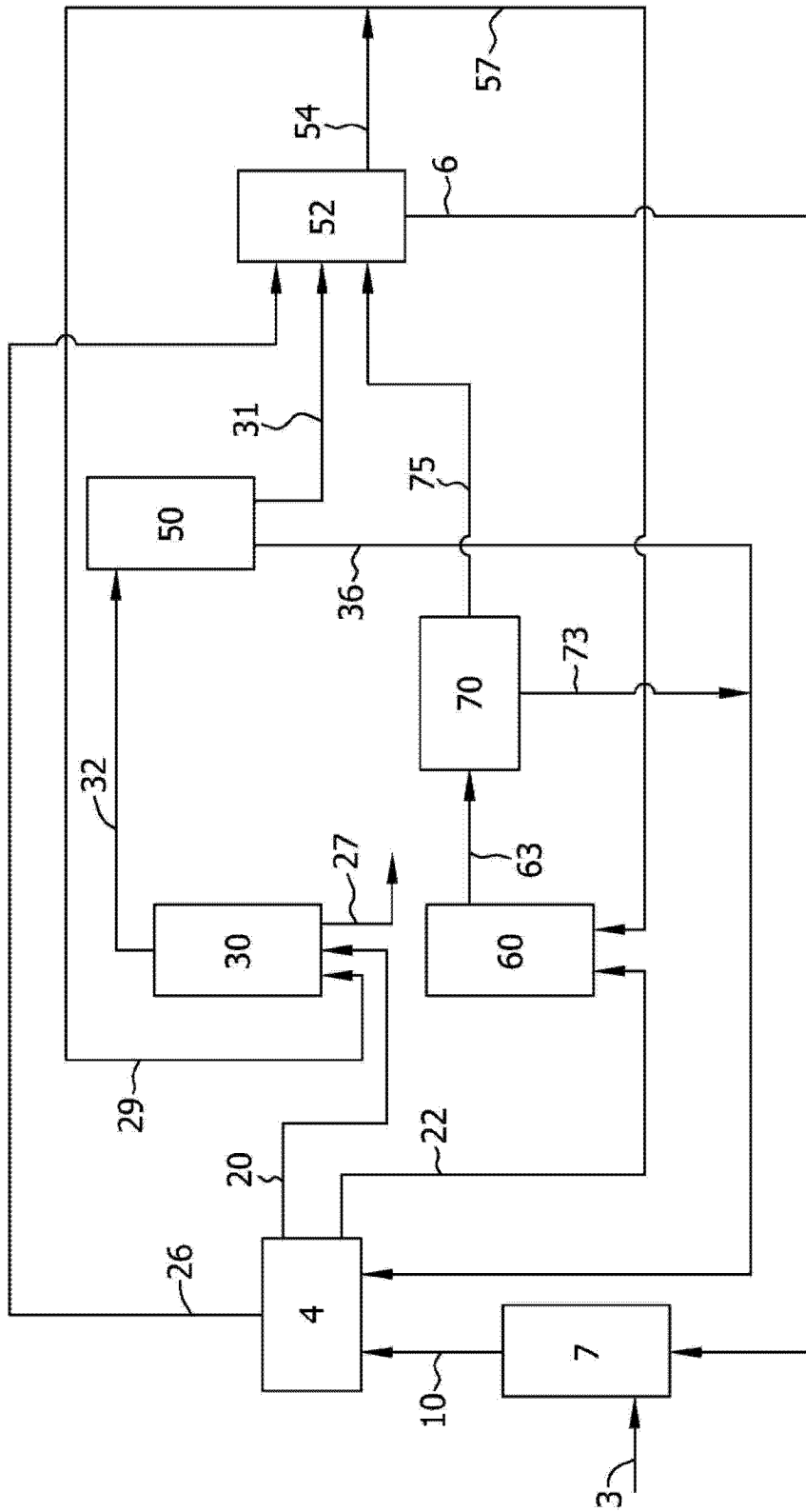


图 1

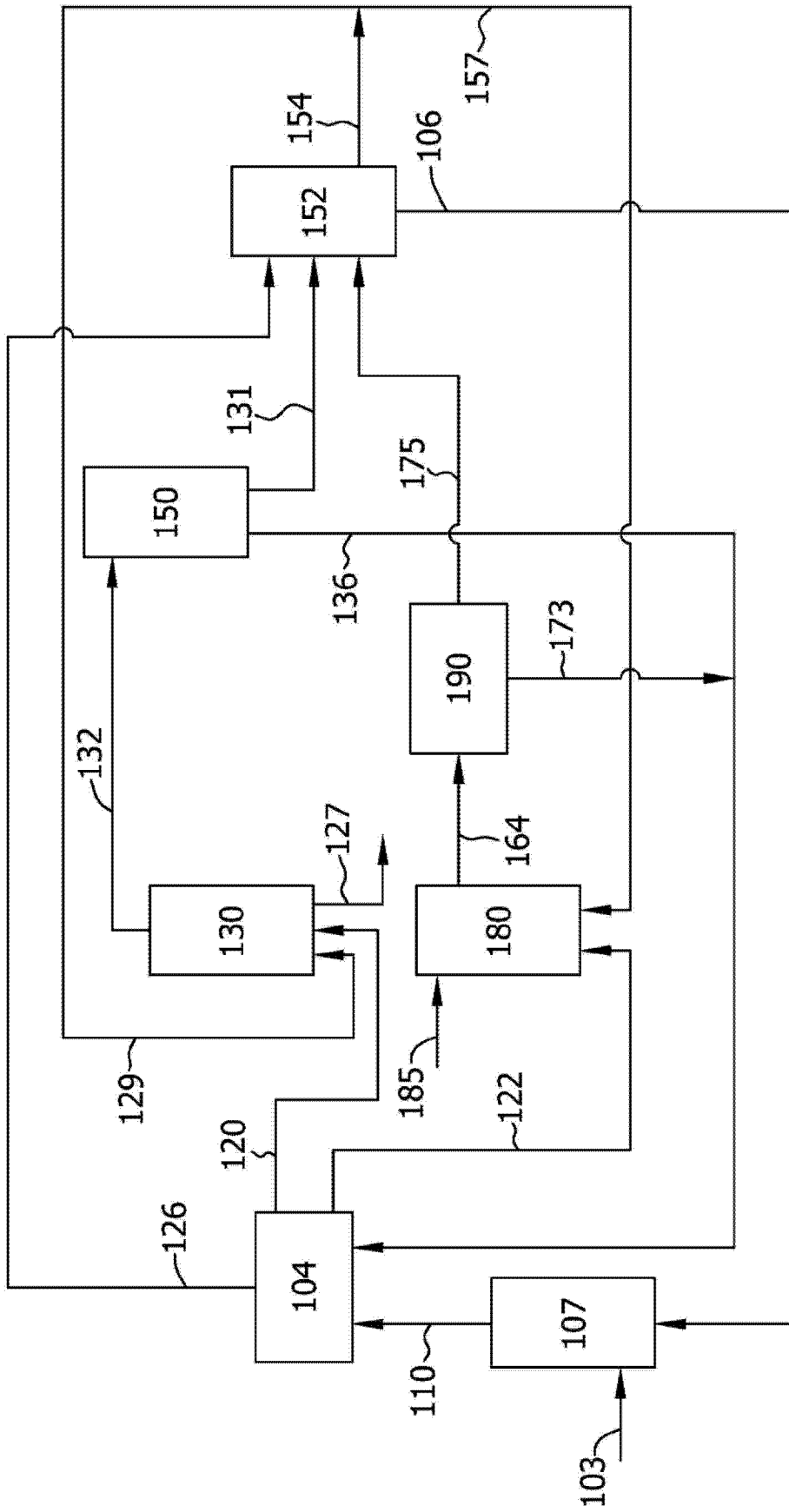


图 2

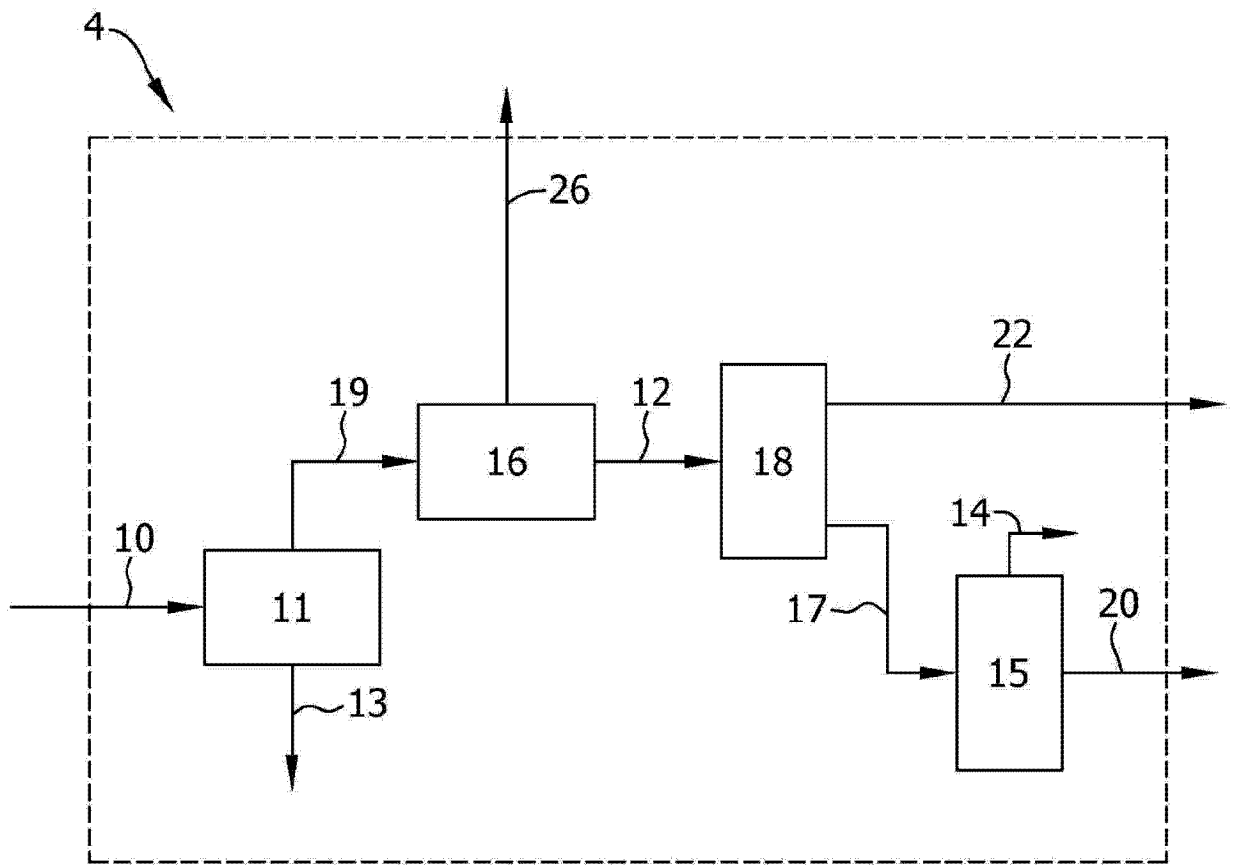


图 3

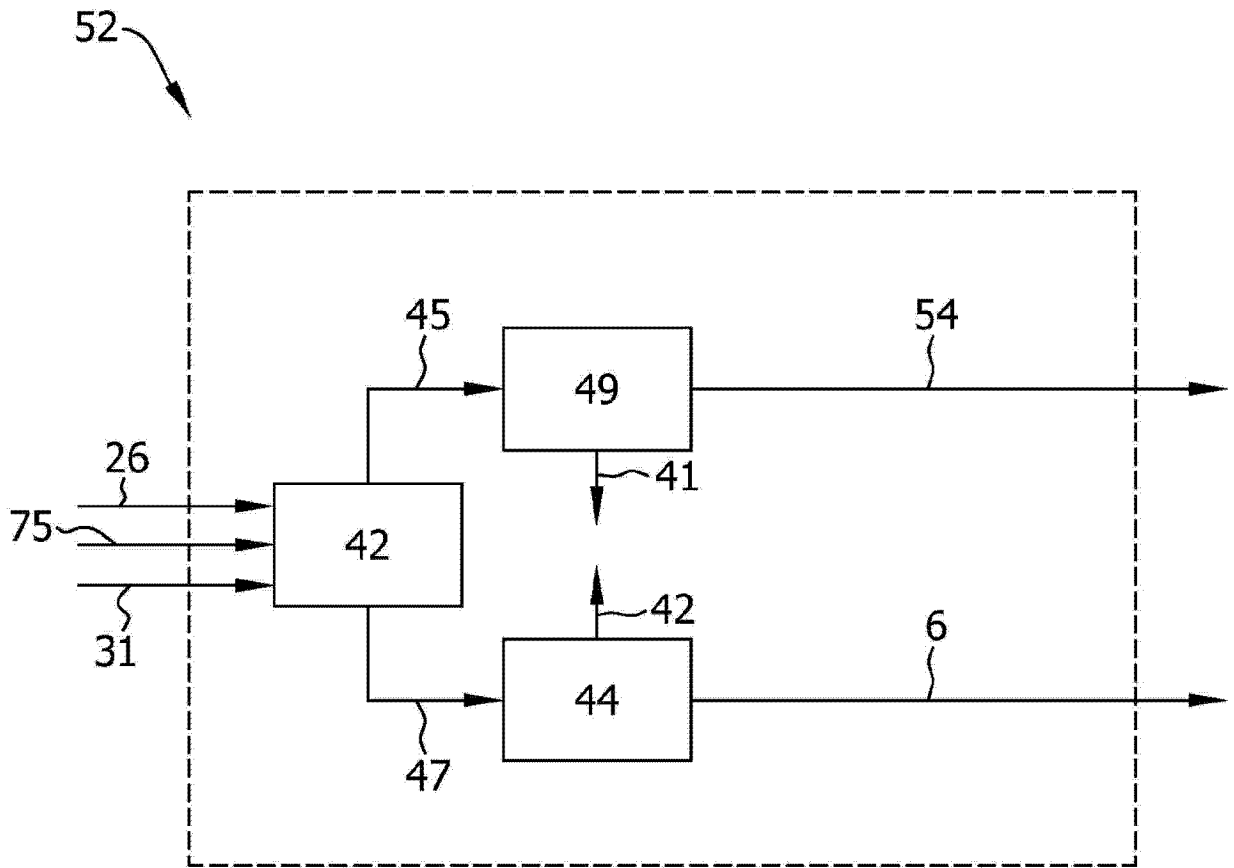


图 4

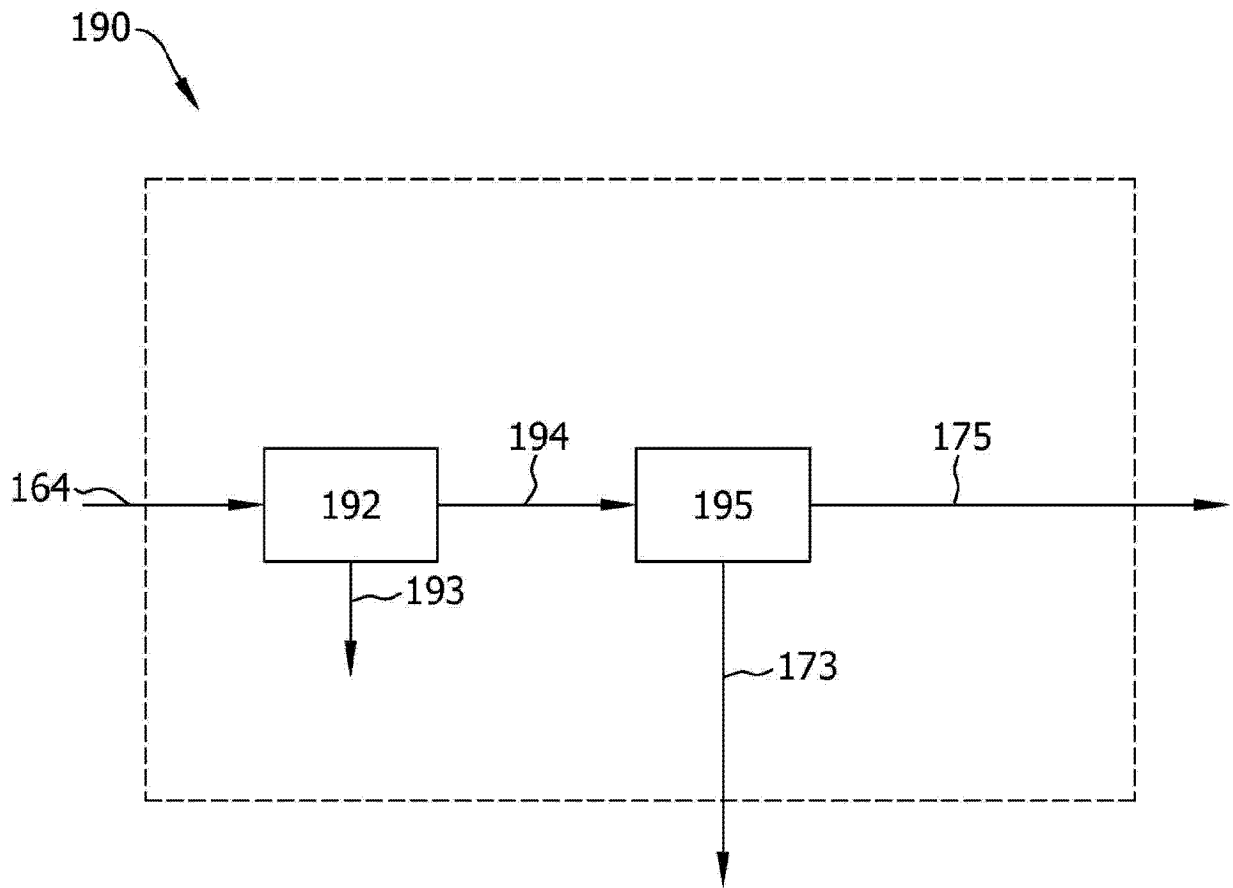


图 5