(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2010 年 9 月 16 日(16.09.2010)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2010/103631 A1

(51) 国際特許分類:
C01B 33/107 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2009/054664

(22) 国際出願日: 2009 年 3 月 11 日(11.03.2009)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 電気化学工業株式会社(DENKI KAGAKU KOGYO KABUSHIKI KAISHA) [JP/JP]; 〒1038338 東京都中央区日本橋室町二丁目１番１号 Tokyo (JP).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 松尾 靖史(MATSUO, Yasufumi) [JP/JP]; 〒9490393 新潟県糸魚川市大字青海２２０９番地 電気化学工業株式会社 青海工場内 Niigata (JP). 竹村 晃一(TAKEMURA, Kouichi) [JP/JP]; 〒9490393 新潟県糸魚川市大字青海２２０９番地 電気化学工業株式会社 青海工場内 Niigata (JP).

(74) 代理人: 園田 吉隆, 外(SONODA, Yoshitaka et al.); 〒1630434 東京都新宿区西新宿二丁目１番１号 新宿三井ビル３４階 園田・小林特許事務所 Tokyo (JP).

(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

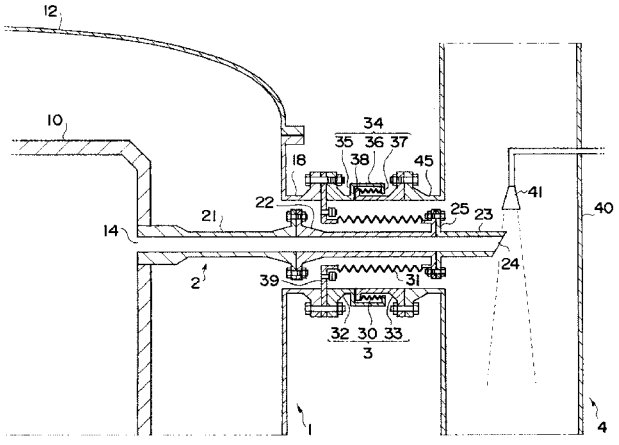
(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF,

[続葉有]

(54) **Title**: APPARATUS FOR PRODUCING TRICHLOROSILANE

(54) 発明の名称 : トリクロロシラン製造装置

[図2]



(57) **Abstract**: Disclosed is an apparatus having excellent heat resistance, which is used for producing trichlorosilane. The apparatus for producing trichlorosilane comprises a reactor (1) which is provided with a reaction chamber (10) wherein a reaction product gas containing trichlorosilane and hydrogen chloride is produced from a raw material gas containing tetrachlorosilane and hydrogen, a heater (11) for heating the reaction chamber (10), and an outer cylindrical case (12) for housing the reaction chamber (10) and the heater (11); a quenching tower (4) for cooling the reaction product gas; a connection cylinder (3) provided with a first bellows pipe (30) which expandably/contractibly connects the reactor (1) and the quenching tower (4); an extraction pipe (2) so arranged from the reaction chamber (10) to the quenching tower (4) passing through inside of the connection cylinder (3) as to guide the reaction product gas from the reactor (1) to the quenching tower (4); and a second bellows pipe (31) arranged substantially coaxially with the extraction pipe (2) within the connection cylinder (3) so as to cover the extraction pipe (2), while having one end joined to the inner circumferential surface of the connection cylinder (3) and the other end joined to the outer circumferential surface of the extraction pipe (2).

(57) 要約:

[続葉有]

WO 2010/103631 A1

CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告（条約第 21 条(3)）

本発明は、耐熱性に優れたトリクロロシラン製造装置に関し、テトラクロロシランと水素とを含む原料ガスからトリクロロシランと塩化水素とを含む反応生成ガスを生成する反応容器１０と、前記反応容器１０を加熱するヒータ１１と、前記反応容器１０およびヒータ１１を収容する外筒容器１２とを備える反応炉１と、前記反応生成ガスを冷却する急冷塔４と、前記反応炉１と急冷塔４との間を伸縮可能に連結する第一ベローズ管３０を備えた連結筒３と、前記反応容器１０から前記連結筒３内部を通って前記急冷塔４に至るように配され、前記反応生成ガスを反応炉１から急冷塔４に導出する抜出管２と、前記連結筒３内部において前記抜出管２を覆うように略同軸に配され、一端が連結筒３の内周に接合され、他端が抜出管２の外周に接合された第二ベローズ管３１とを備えている。

明 細 書

トリクロロシラン製造装置

技術分野

[0001] 本発明は、テトラクロロシランと水素とを反応させてトリクロロシランに転換する、耐熱性に優れたトリクロロシラン製造装置に関する。

背景技術

[0002] トリクロロシラン($SiHCl_3$)は、半導体、液晶パネル、太陽電池等の製造に用いられる特殊材料ガスである。近年、需要は順調に拡大し、エレクトロニクス分野で広く使用されるCVD材料として、今後も伸びが期待されている。

[0003] トリクロロシランは、テトラクロロシラン($SiCl_4$)と水素(H_2)とを接触させ、以下の熱平衡状態を達成することによって生成される。

$$SiCl_4 + H_2 \Leftrightarrow SiHCl_3 + HCl \qquad (1)$$

この反応は、ガス化したテトラクロロシランと水素からなる原料ガスを反応容器において800℃～1300℃に加熱することによって行われる。

[0004] 反応容器から排出される高温の反応生成ガスには、生成されたトリクロロシランおよび塩化水素の他、多量の未反応テトラクロロシランおよび水素が含まれている。反応生成ガスからトリクロロシランを取り出すには、テトラクロロシランとトリクロロシランの沸点の相違を利用して蒸留塔で凝縮する方法が用いられる。具体的には、コンデンサーにおいて、凝縮分であるクロロシランと、未凝縮分である塩化水素、水素、未凝縮クロロシランとに分け、さらに、深冷分離により－70℃程度まで冷却して凝縮分からトリクロロシランを分離する。

[0005] 反応生成ガスから目的とするトリクロロシランを分離するにあたり、反応容器から導出されたばかりの高温の反応生成ガスをいきなり蒸留塔に導入してしまうと蒸留塔に過度の負荷がかかるため、典型的には、反応生成ガスを蒸留塔に導入する前に急冷塔において予備的に冷却しておく必要がある。

[0006] しかし、予備的冷却とはいっても、冷却力が不十分であると平衡がテトラクロロシラン側に傾き、一旦は生成したトリクロロシランが再びテトラクロロシランへと戻ってしまう。

そこで、トリクロロシランの回収効率の向上を図るために、平衡が十分にトリクロロシラン側に達した時点で反応生成ガスを可能な限り瞬時に所定温度まで冷却して平衡を凍結する必要がある。上記平衡状態を瞬時に凍結するには、典型的には、反応生成ガスを1秒未満のうちに600℃程度にまで急冷する必要がある。

[0007] テトラクロロシランと水素とを反応させてトリクロロシランに転換し、さらに反応生成ガスを冷却する機構を備えた反応容器としては、例えば特許文献1に記載されたものがある。この文献には、テトラクロロシランと水素を反応室に導入して600℃～1200℃の温度で転換反応させることによってトリクロロシランと塩化水素とを含む反応生成ガスを得た後、反応室から導出された反応生成ガスに室温に冷却されたクロロシラン混合物を噴霧により接触させ、1秒以内に300℃以下にまで急冷する冷却手段を備えた装置が提案されている。

[0008] また、特許文献2には、温度1200℃をこえ1400℃以下に加熱した反応器に$SiCl_4$とH_2とのモル比が1:1～1:2の混合ガスを導入して反応させ熱平衡状態とし(その平衡状態の混合物である$SiCl_4$とH_2とのモル比が1:1～1:4)、さらに$SiHCl_3$とHCl等を含有する混合物を1秒以内に600℃以下に急冷して反応を凍結させることにより$SiHCl_3$の収率及び収量を向上させる$SiHCl_3$の製造法が記載されている。

[0009] 特許文献1:特公昭57－38524公報

特許文献2:特開昭60－81010号公報

発明の概要

[0010] ところで、特許文献1に記載の装置では、反応炉と急冷塔とが急冷塔の側方に設けられた接続管を介して接続されており、接続管と反応炉との接合部には閉じた端部が形成されている。この閉じた端部にゾンデを貫通させ、当該ゾンデを介して反応炉で生成した反応ガスを急冷室へと導出している。

[0011] しかし、高温に達している反応炉と低温の急冷室とは、接続管と反応炉との接合部における閉じた端部壁面によって遮られているため、急冷塔と反応炉とを遮る端部壁面とその近傍には局所的に大きな温度差が生じる。その結果、当該部位に熱膨張による応力が集中し、歪みや破損を生じる場合がある。また、端部壁面に貫通して固定されているゾンデが熱膨張しても、ゾンデと端部壁面との接合部に応力が集中し、歪

みや破損に至る場合がある。

[0012] また、特許文献2に記載の装置では、反応器の排気側端部に反応生成ガスを導出するための取り出し管、例えば毛細管やラパール管が挿入されており、取り出し管と反応器の排気側端部との接合部は、反応生成ガスが漏れないように気密に固定されている。反応生成ガスは、この取り出し管を通過する際に自然に冷却される。

[0013] ところが、上記構成の装置では、反応生成ガスの冷却が取り出し管を通過する際の自然冷却に任されているため、必ずしも冷却速度および冷却能力の点で十分とは言えない。また、反応器の排気側端部やそれに貫通して固定されている取り出し管が熱膨張すると、これらの接合部に応力が加わり、歪みや破損を生じる場合がある。

[0014] 本発明は上記事情に鑑みてなされたものであり、反応炉と急冷塔との連結部に熱膨張による歪みや破損を生じないことが可能なトリクロロシラン製造装置を提供することを目的とする。より具体的には、高温条件で反応ガスを生成する反応炉と反応ガスを冷却する急冷塔とを繋ぐ連結筒、連結筒内において反応炉と急冷塔との間の空間を遮断する遮断部材、並びに、反応炉に収容されている反応容器から反応生成ガスを前記連結筒内を通して急冷塔へと導出する抜出管において、熱膨張により発生する応力を吸収するとともに、当該熱膨張による応力の発生を低減するトリクロロシラン製造装置を提供することを目的とする。

[0015] 本発明は、前記課題を解決するために以下の構成を採用した。すなわち、本発明のトリクロロシラン製造装置は、

テトラクロロシランと水素とを含む原料ガスからトリクロロシランと塩化水素とを含む反応生成ガスを生成する反応容器と、前記反応容器を加熱するヒータと、前記反応容器およびヒータを収容する外筒容器とを備える反応炉と、

前記反応生成ガスを冷却する急冷塔と、

前記反応炉と急冷塔との間を伸縮可能に連結する第一ベローズ管を備えた連結筒と、

前記反応容器から前記連結筒内部を通って前記急冷塔に至るように配され、前記反応生成ガスを反応炉から急冷塔に導出する抜出管と、

前記連結筒内部において前記抜出管を覆うように略同軸に配され、一端が連結筒

の内周に接合され、他端が抜出管の外周に接合された第二ベローズ管と
を備えていることを特徴とする。

[0016] このトリクロロシラン製造装置では、反応炉と急冷塔とを連結する連結筒が蛇腹構造を有する第一ベローズ管を備えていることにより、連結筒に熱が加わった際に熱膨張により生じる応力を第一ベローズ管の形状が変化することで吸収することができる。そのため、連結筒の熱膨張による破損を防ぐことができ、装置の安定性、安全性を高めることができる。

[0017] さらに、反応炉内部の空間と急冷塔内部の空間とが、抜出管と連結筒との間にこれらとほぼ同軸に配された第二ベローズ管によって遮断されているため、抜出管が熱膨張しても、遮断手段である第二ベローズ管がこれに追随して適宜伸縮して、これを吸収することができる。そのため、熱膨張によって抜出管や遮断手段が破損することを防ぐことができ、装置の安定性、安全性を高めることができるとともに、両塔間の気密状態をより安定に維持することができる。

[0018] また、反応炉と急冷塔との連結部に二重にベローズ管を配設したことにより、熱膨張以外の原因により発生した応力も吸収できる。そのため、例えば、耐震性においても優れている。

[0019] さらに、高温の外筒容器内の空間と低温の急冷塔内の空間とが第二ベローズ管により遮断されているため、当該第二ベローズ管の内外で熱交換が行われる。本発明では、第二ベローズ管が連結筒内部において抜出管を覆うようにこれと略同軸に配されていることから、第二ベローズ管に沿って外筒容器側から急冷塔側にかけて温度が緩やかに下降する中間的な温度帯域を形成することができる。その結果、抜出管にかかる熱的負荷を当該帯域にわたって広く分散でき、抜出管に局所的に大きな応力が発生することを防止することができる。

[0020] 本発明に係るトリクロロシラン製造装置によれば、反応炉と急冷塔とを連結する連結筒が第一ベローズ管を備え、かつ、連結筒内において反応炉と急冷塔とが抜出管とほぼ同軸に配された第二ベローズ管によって遮断されているため、これらの部位における熱膨張による破損を防ぐことができ、装置の安定性、安全性を高めることができる。

[0021] そして、さらに特筆すべきことに、本発明に係るトリクロロシラン製造装置によれば、連結筒内部において抜出管を覆うように第二ベローズ管を配したことにより、連結筒内部に中間的な温度帯域が形成され抜出管にかかる熱的負荷を分散できるため、抜出管に局所的に大きな応力が生じることを防止することができる。

図面の簡単な説明

[0022] [図1]本発明の実施形態であるトリクロロシラン製造装置の説明図である。

[図2]本発明の実施形態であるトリクロロシラン製造装置の連結筒周辺の概略縦断面図である。

符号の説明

[0023] 1:反応炉

2:抜出管

3:連結筒

4:急冷塔

10:反応容器

11:ヒータ

12:外筒容器

13:原料ガス導入口

14:反応生成ガス抜出口

15:発熱体

16:電極

17:原料ガス導入開口部

18:反応生成ガス抜出開口部

21:第一部材

22:第二部材

23:第三部材

24:反応生成ガス吹き出し部

25:突出部

30:第一ベローズ管

31:第二ベローズ管

32:第一筒状部材

33:第二筒状部材

34:収容部

35:直立部

36:拡径部

37:縁部

38:鍔部

39:板材

40:金属製容器

41:スプレーノズル

42:ポンプ

43:冷却装置

44:導管

45:反応生成ガス導入開口部

発明を実施するための形態

[0024] 以下、本発明の実施の形態について、図面を用いて説明する。尚、すべての図面において、同様な構成要素には同一の符号を付し、適宜説明を省略する。

[0025] 図1は、本発明に係るトリクロロシラン製造装置の一実施形態を概略的に示したものである。また、図2は当該トリクロロシラン製造装置の連結筒周辺の断面を概略的に示したものである。

[0026] 本実施形態のトリクロロシラン製造装置は、図1および図2に示すように、
テトラクロロシランと水素とを含む原料ガスからトリクロロシランと塩化水素とを含む反応生成ガスを生成する反応容器10と、前記反応容器10を加熱するヒータ11と、前記反応容器10およびヒータ11を収容する外筒容器12とを備える反応炉1と、

前記反応生成ガスを冷却する急冷塔4と、

前記反応炉1と急冷塔4との間を伸縮可能に連結する第一ベローズ管30を備えた連結筒3と、

前記反応容器10から前記連結筒3内部を通って前記急冷塔4に至るように配され、前記反応生成ガスを反応炉1から急冷塔4に導出する抜出管2と、

前記連結筒3内部において前記抜出管2を覆うように略同軸に配され、一端が連結筒3の内周に接合され、他端が抜出管2の外周に接合された第二ベローズ管31とを備えている。

[0027] ＜反応炉＞

反応炉1は、反応容器10と、当該反応容器10の外側を囲むように配される長尺のヒータ11と、前記反応容器10およびヒータ11を収容する外筒容器12とを備える。ヒータ11で反応容器10の外壁を加熱することにより、反応容器10の底部に設けられた原料ガス導入口13から供給されるテトラクロロシランと水素との混合ガスを反応容器10内部において約800℃から約1300℃の高温で反応させ、トリクロロシランと塩化水素を含む反応生成ガスを生成する。

[0028] ＜反応容器＞

反応容器10は、テトラクロロシランと水素とを高温環境下で反応させるための略円筒形状の容器であり、原料ガスを取り込むための原料ガス導入口13と、反応生成ガスを導出するための反応生成ガス抜出口14とを有する。本実施形態では、原料ガス導入口13を反応容器10の底部中央に設け、反応生成ガス抜出口14を反応容器10の上方の側壁に設ける構成としているが、これらの設置位置はこれに限定されるものではない。

[0029] 反応容器10を構成する材質は、気密性に優れた黒鉛材であり、特に、微粒子構造のため強度が高く、熱膨張等の特性がどの方向に対しても同一であることから耐熱性および耐食性にも優れている等方性高純度黒鉛を用いることが好ましい。

[0030] 特に、反応容器10の内周面および／または外周面が炭化ケイ素被膜処理されていること、当該炭化ケイ素被膜がCVD法により10～500μmの厚みで形成されていることが好ましい。炭化ケイ素被膜は化学的分解に対して極めて高い耐性を有するため、カーボン組織の化学的浸食を防止できる。そのため、炭化ケイ素被膜処理を施すことにより、反応容器10の表面を腐食から保護することができる。

[0031] ＜ヒータ＞

ヒータ11は、上下方向に延びる複数の長尺のカーボン製発熱体15と、当該発熱体15の一端に接続され発熱体15に電力を供給するための電極16とを備える。ヒータ11は、反応容器10の周囲を複数で取り囲むように配され、供給電力量を制御することにより反応容器10内部の温度を反応容器10の外側から調節する。

[0032] ＜外筒容器＞

外筒容器12は、外側がステンレス等の金属からなり、内側がカーボンボード、耐火レンガ、断熱レンガ等の断熱材で被覆された略円筒形状の容器である。外筒容器12は、前記反応容器10および前記ヒータ11を収容し、これらを外界から断熱する。外筒容器12には、反応容器10を収容した際に、その原料ガス導入口13および反応生成ガス抜出口14に対応する位置にそれぞれ原料ガス導入開口部17および反応生成ガス抜出開口部18が設けられている。反応生成ガス抜出開口部18にはフランジ等の継手手段が設けられており、後述する連結筒3と接続可能とされている。

[0033] ＜連結筒＞

本実施形態の連結筒3は、

一端に反応炉1の反応生成ガス抜出開口部18に接続される継手手段を有し他端に拡径された収容部34を有する第一筒状部材32と、

一端に前記第一筒状部材32の収容部34側に挿入される挿入側端部を有し他端に急冷塔4に接続される継手手段を有する第二筒状部材33と、

前記収容部34に収容され一端が第一筒状部材32の収容部34側端部に固定され他端が第二筒状部材33の挿入側端部に固定される第一ベローズ管30と

を備えている。

[0034] ＜第一筒状部材＞

第一筒状部材32は、ステンレスなどの金属からなり、一端に外筒容器12の反応生成ガス抜出開口部18に接続可能なフランジ等の継手手段を有し、他端に第一ベローズ管30を収容するための収容部34を有する。収容部34は、第一筒状部材32の径方向外側に垂直に延伸する直立部35と、当該直立部35から軸方向に沿って延伸する拡径部36と、当該拡径部36から径方向内側に垂直に延伸する縁部37とからなる。

[0035] 前記縁部37は第一ベローズ管30の一端を固定する部位であり、縁部37の径方向内側への突出幅は、第一ベローズ管30の一端を固定できる限りにおいて、第二筒状部材33の挿入を妨げず、しかも挿入された第二筒状部材33が軸方向および径方向に自由に動くことを妨げない範囲とされる。

[0036] ＜第二筒状部材＞

第二筒状部材33は、前記第一筒状部材32と同様にステンレスなどの金属からなり、一端に後述する急冷塔4の反応生成ガス導入開口部45に接続するためのフランジ等の継手手段を有し、他端（前記第一筒状部材32の収容部34側に挿入される挿入側端部）に第二筒状部材33の径方向外側に垂直に延伸する鍔部38を有する。

[0037] 前記鍔部38は第一ベローズ管30の一端を固定する部位であり、鍔部38の径方向外側への突出幅は、第一ベローズ管30の一端を固定できる限りにおいて、第一筒状部材32への挿入を妨げず、しかも第一筒状部材32に挿入された状態で第二筒状部材33が軸方向および径方向に自由に動くことを妨げない範囲とされる。

[0038] ＜第一ベローズ管＞

第一ベローズ管30は、金属から構成された筒状の蛇腹構造を備えた部材であり、軸心方向に伸縮可能であるとともに、径方向にも変形可能となっている。この第一ベローズ管30は金属製であればよいが、ステンレス鋼製であればより好適でありオーステナイト系ステンレス鋼製でもフェライト系ステンレス鋼製でもよい。

[0039] 第一ベローズ管30は、山の高さが入口径の2～10％程度、山と山との間隔が全長の2～8％程度であるものが好ましい。さらに、軸と垂直方向の変位量が第一ベローズ管30の入口径の3～10％、軸方向の変位量が全長の2～5％程度であるものが好ましい。また、山の間隔や高さは均一であっても不均一であってもよい。

[0040] 上記構成の連結筒3では、第一ベローズ管30は、第一筒状部材32の収容部34に格納され、その両端が第一筒状部材32の縁部37および第二筒状部材33の鍔部38の対向面にそれぞれ固定された構成とされる。従って、第一ベローズ管30はその内側が第二筒状部材33の胴体部によって覆われることになる。

[0041] 上記構成の連結筒3を組み立てるには、例えば、第一ベローズ管30の両端を第一筒状部材32の縁部37および第二筒状部材33の鍔部38にそれぞれ固定し、その状

態で第二筒状部材33を第一筒状部材32に挿入して第一ベローズ管30を収容部34に格納してもよい。また、第一筒状部材32の縁部37に相当する部材を別途取り付ける構成としてもよい。

[0042] ＜急冷塔＞

急冷塔4は、円筒状の金属製容器40と、当該容器内に設置され容器内に冷却液を噴霧するスプレーノズル41と、前記容器の底に溜まった冷却液を取り出してスプレーノズル41に循環させるポンプ42と、冷却液を冷却するための冷却装置43と、急冷塔4の頂部から冷却後の反応生成ガスを取り出すための導管44とを備える。急冷塔4の側壁には前記連結筒3を接続するための反応生成ガス導入開口部45が設けられており、当該反応生成ガス導入開口部45には連結筒3と接続するためのフランジ等の継手手段が設けられている。スプレーノズル41は、急冷塔4に導入される反応生成ガスに向けて冷却液を噴霧できるよう、反応生成ガス導入開口部45の上部近傍に設置される。

[0043] 冷却液は、トリクロロシランとテトラクロロシランとの混合液で構成され、テトラクロロシランとトリクロロシランの全体量に対するテトラクロロシランの比は、1～0．5である。温度は、60℃以下とすることが好ましい。例えば、テトラクロロシラン：トリクロロシランの組成比が85：15、温度が40℃程度のものを好適に使用することができる。

[0044] 急冷塔4の頂部から取り出された冷却後の反応生成ガスは、導管44を経てさらに蒸留塔（不図示）へと送られ、目的とするトリクロロシランの分離が行われる。

[0045] ＜抜出管＞

抜出管2は、連結筒3内部を通って反応容器10内部と急冷塔4内部とを繋ぐカーボン製の管状部材であり、反応容器10内の反応生成ガスを急冷塔4に導出する。

[0046] 抜出管2を構成する材質は、気密性に優れた黒鉛材であり、特に、微粒子構造のため強度が高く、熱膨張等の特性がどの方向に対しても同一であることから耐熱性および耐食性にも優れている等方性高純度黒鉛を用いることが好ましい。

[0047] 特に、抜出管2の内周面および／または外周面が炭化ケイ素被膜処理されていること、当該炭化ケイ素被膜がCVD法により10～500μmの厚みで形成されていることが好ましい。炭化ケイ素被膜は化学的分解に対して極めて高い耐性を有するため

、カーボン組織の化学的浸食を防止できる。そのため、炭化ケイ素被膜処理を施すことにより、抜出管2の表面を腐食から保護することができる。

[0048] 抜出管2は、気密性や強度の点で優れることから単一の部材からなるものが好ましいが、複数の部材を連結したものであってもよい。本実施形態の抜出管2は、複数の部材から構成され、装置を組み立てた際に、主に反応炉1内に位置する第一部材21、主に連結筒3内に位置する第二部材22、および主に冷却塔内に位置する第三部材23とからなる。すなわち、第一部材21は、一端に反応容器10の反応生成ガス抜出口14との接続部を有し他端に第二部材22を連結するための継手手段を有し、第二部材22は、両端に第一部材21または第三部材23を連結するための継手手段を有し、第三部材23は、一端に第二部材22を連結するための継手手段を有し他端に反応生成ガス吹き出し部24を有する。

[0049] 抜出管2の継手手段は、後述する第二ベローズ管31が接合されるように抜出管2の外周側に突出部25を形成するものとされる。このような突出部25を形成する継手手段としては、典型的には、フランジを用いることができる。また、略円筒状の管状部材を用い、突き合わせ端部を外側からリングで螺合締結するものでもよい。この場合には、リングが第二ベローズ管31を固定するための突出部25を形成する。

[0050] ＜第二ベローズ管＞

第二ベローズ管31は、金属から構成された蛇腹構造の部材であり、軸心方向に伸縮可能であるとともに、径方向にも変形可能となっている。第一ベローズ管30と同様に、この第二ベローズ管31は金属製であればよいが、ステンレス鋼製であればより好適でありオーステナイト系ステンレス鋼製でもフェライト系ステンレス鋼製でもよい。また、単層であっても多層であってもよいが、多層構造の場合は耐腐食性が増すため好ましい。

[0051] 第二ベローズ管31は、山の高さが入口径の2～10％程度、山と山との間隔が全長の2～8％程度であるものが好ましい。さらに、軸と垂直方向の変位量が第二ベローズ管31の入口径の3～10％、軸方向の変位量が全長の2～5％程度であるものが好ましい。また、山の間隔や高さは均一であっても不均一であってもよい。

[0052] 第二ベローズ管31は、連結筒3内部において抜出管2の外側にこれを覆うようにほ

ぼ同軸で配され、一端が連結筒3の内周に接合され、他端が抜出管2の外周に接合される。

本実施形態では、第二ベローズ管31と連結筒3内周との接続は、外筒容器12の反応生成ガス抜出開口部18に設けられた継手手段と連結筒3の第一筒状部材32に設けられた継手手段との間にドーナツ状の板材39を挟み込み、当該板材39の連結筒3内に張り出した部分に第二ベローズ管31の一端を固定することによって行われる。また、第二ベローズ管31と抜出管2外周との接続は、抜出管2を構成する第二部材22と第三部材23との連結部に形成された突出部25に第二ベローズ管31の一端を固定することによって行われる。

このようにして、反応炉1内部の空間と急冷塔4内部の空間とが連結筒3内に配置された第二ベローズ管31によって遮断される。

[0053] 本実施形態では、連結筒3を構成する部材を伸縮自在な第一ベローズ管30で接続しているため、連結筒3に局所的に大きな温度差がかかって第一筒状部材32および第二筒状部材33が熱膨張したとしても、第一ベローズ管30の形状が変化することで連結筒3に係る応力を吸収することができ、連結筒3の歪みや破損を回避することができる。

[0054] また、第一ベローズ管30の外側が第一筒状部材32の拡径部36で覆われ、内側が第二筒状部材33の胴体部によって覆われるため、連結筒3内部に存在し得る化学物質、すなわち反応生成ガスや冷却液中に含まれる反応性物質が第一ベローズ管30に付着してこれを劣化し伸縮性を損ねることを防止できる。

[0055] また、連結筒3内周と抜出管2外周との間に接続され反応炉1内部の空間と急冷塔4内部の空間とを遮断する手段として、伸縮可能な第二ベローズ管31を用いることにより、抜出管2が熱膨張または収縮しても、これに追従して第二ベローズ管31が適宜伸縮するため、抜出管2を破損することがなく、両空間の遮断状態が破られることもない。

[0056] そしてさらに、第二ベローズ管31が連結筒3内部において抜出管2を覆うようにこれと略同軸に配されていることから、第二ベローズ管31に沿って外筒容器12側から急冷塔4側にかけて温度が緩やかに下降する中間的な温度帯域を形成することができる

。その結果、抜出管2にかかる熱的負荷を当該帯域にわたって広く分散でき、抜出管2に局所的に大きな応力が発生することを防止することができる。

[0057] なお、本発明の技術範囲は上記実施形態に限定されるものではなく、本発明の趣旨を逸脱しない範囲において種々の変更を加えることが可能である。

[0058] 例えば、反応容器は、優れた耐久性や伝熱効率を実現するために本来は一体成型されていることが好ましいが、製造技術上の問題から、略円筒体を複数連結一体化させたものが用いられる。略円筒体を複数連結一体化させる反応容器としては、特に、複数の略円筒体を、端部同士を突き合わせて略同軸に上下に配し、突き合わせ端部を外側からリングで螺合締結するものが好ましい。このような構造とすることにより、略円筒体の構造を単純なものとすることができ、上端または下端に肉厚の薄い部位が形成されないため、物理的衝撃に対して優れた耐性を有する。また、連結部において一方の略円筒体の端部が他方の略円筒体の端部に嵌合するような構成ではないため、高温環境下で使用することにより略円筒体が熱膨張しても、個々の略円筒体の熱膨張係数の相違による連結部の割れやひび割れを引き起こすことがない。そのため、反応容器の構成部材を交換する頻度が低減され、装置の作業能率を改善することができる。

[0059] また、上記実施態様では、第一ベローズ管が第一筒状部材の収容部に格納され、その内側が第二筒状部材の胴体部によって覆われるように構成したが、第一筒状部材と第二筒状部材との連結部に第一ベローズ管が用いられていれば連結筒にかかる応力を十分に吸収することができるため、第一ベローズ管が第一筒状部材と第二筒状部材との間に収容されていなくても構わない。

[0060] また、上記実施態様では、第二ベローズ管の反応炉側端部を連結筒に接続し、急冷塔側端部を抜出管に接続するように構成したが、これを逆に接続しても構わない。すなわち、第二ベローズ管と連結筒内側との接続を、外筒容器の急冷塔の反応生成ガス導入開口部に設けられた継手手段と連結筒の第二筒状部材に設けられた継手手段との間にドーナツ状の板材を挟み込み、当該板材の連結筒内に張り出した部分に第二ベローズ管の一端を固定することによって行い、第二ベローズ管と抜出管外側との接続を、抜出管を構成する第一部材と第二部材との連結部に形成された突出

部に第二ベローズ管の一端を固定することによって行ってもよい。

[0061] さらに、上記実施態様では、抜出管が3つの部材から構成されているが、単一の部材からなるものであっても、あるいはさらに多くの部材から構成されるものであってもよい。

実施例

[0062] 以下、本発明を実施例によりさらに説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

[0063] 実施例1

図2に示すトリクロロシラン製造装置を使用してトリクロロシランの製造を行い、連結筒、抜出管、および第二ベローズ管における歪みや破損の有無を調べた。

[0064] ＜装置説明＞

この装置には以下の部材を用いた。

[0065] 連結筒:

ステンレス製の筒状部材をステンレス鋼製のベローズ管(厚み:2mm)を介して連結した連結筒を用いた。このベローズ管の軸と垂直方向の変位量が入口径の5%程度、軸方向の変位量が全長の5%程度であった。

[0066] 第二ベローズ管:

ステンレス鋼製のベローズ管を用いた。このベローズ管の軸と垂直方向の変位量が入口径の5%程度、軸方向の変位量が全長の5%程度であった。

[0067] 抜出管:

炭化ケイ素被膜処理を施したカーボン製の管状部材を用いた。

[0068] ＜実験条件＞

上記の装置を用いて、反応炉においてテトラクロロシランと水素(モル＝1:1)の原料ガスを、常圧、反応温度1100℃にて反応させ、反応生成ガスを抜出管を介して急冷塔に取り出し、20℃に温度調節した冷却液(トリクロロシラン濃度20%)を用いて冷却した。

[0069] このトリクロロシラン製造装置を連続的に2000時間運転した後、装置を解体して連結筒、抜出管、および第二ベローズ管を観察したところ、いずれの部材にも歪みや破

損は観察されなかった。

[0070] 比較例1

第二ベローズ管の代わりに蛇腹構造を有しない筒状部材(厚み:2mm)を配設したこと以外は、上記実施例1と同様にトリクロロシラン製造装置を整えた。この筒状部材は、実施例1で使用した第二ベローズ管と同じ材質からなる。

[0071] このトリクロロシラン製造装置を、実施例1と同様に運転し、装置を解体して連結筒、抜出管、および筒状部材を観察したところ、抜出管と筒状部材とに歪みが認められた。

[0072] 比較例2

第二ベローズ管の代わりに、抜出管が貫通可能な開口を有する板状部材(厚み:2mm)を用いて反応炉側の空間と急冷塔側の空間とを連結筒の中央付近で遮断したこと以外は、上記実施例1と同様にトリクロロシラン製造装置を整えた。この筒状部材は、実施例1で使用した第二ベローズ管と同じ材質からなる。

[0073] このトリクロロシラン製造装置を、実施例1と同様に運転し、装置を解体して連結筒、抜出管、および板状部材を観察したところ、板状部材と接合した部位において抜出管に歪みが認められた。

[0074] 比較例3

連結筒の代わりに、第一ベローズ管を有しない筒状部材(厚み:2mm)を配設したこと以外は、上記実施例1と同様にトリクロロシラン製造装置を整えた。この筒状部材は、実施例1で使用した連結筒の第一および第二筒状部材と同じ材質からなる。

[0075] このトリクロロシラン製造装置を、実施例1と同様に運転し、装置を解体して筒状部材、抜出管、および第二ベローズ管を観察したところ、筒状部材に歪みが認められた。

[0076] <実験の考察>

以上の比較実験から明らかなように、反応炉と急冷塔とを連結する連結筒が第一ベローズ管を備え、かつ、反応炉と急冷塔とが抜出管と連結筒との間に配された第二ベローズ管によって遮断される構成とすることにより、熱膨張によるこれらの部材の歪みや破損を防ぐことができ、装置の安定性、安全性を高めることができた。また、連結

筒内部において抜出管を覆うように第二ベローズ管を配したことにより、抜出管にかかる熱的負荷を分散でき、抜出管に局所的に大きな応力が生じることを防止することができた。

[0077] 以上、本発明を実施例に基づいて説明した。この実施例はあくまで例示であり、種々の変形例が可能なこと、またそうした変形例も本発明の範囲にあることは当業者に理解されるところである。

請求の範囲

[1] テトラクロロシランと水素とを含む原料ガスからトリクロロシランと塩化水素とを含む反応生成ガスを生成する反応容器と、反応容器を加熱するヒータと、反応容器およびヒータを収容する外筒容器とを備える反応炉と、

反応生成ガスを冷却する急冷塔と、

反応炉と急冷塔との間を伸縮可能に連結する第一ベローズ管を備えた連結筒と、

反応容器から連結筒内部を通って急冷塔に至るように配され、反応生成ガスを反応炉から急冷塔に導出する抜出管と、

連結筒内部において抜出管を覆うように略同軸に配され、一端が連結筒の内周に接合され、他端が抜出管の外周に接合された第二ベローズ管と

を備えるトリクロロシラン製造装置。

[2] 連結筒が、

一端に反応炉に接続される継手手段を有し他端に拡径された収容部を有する第一筒状部材と、

一端に第一筒状部材の収容部側に挿入される挿入側端部を有し他端に急冷塔に接続される継手手段を有する第二筒状部材と、

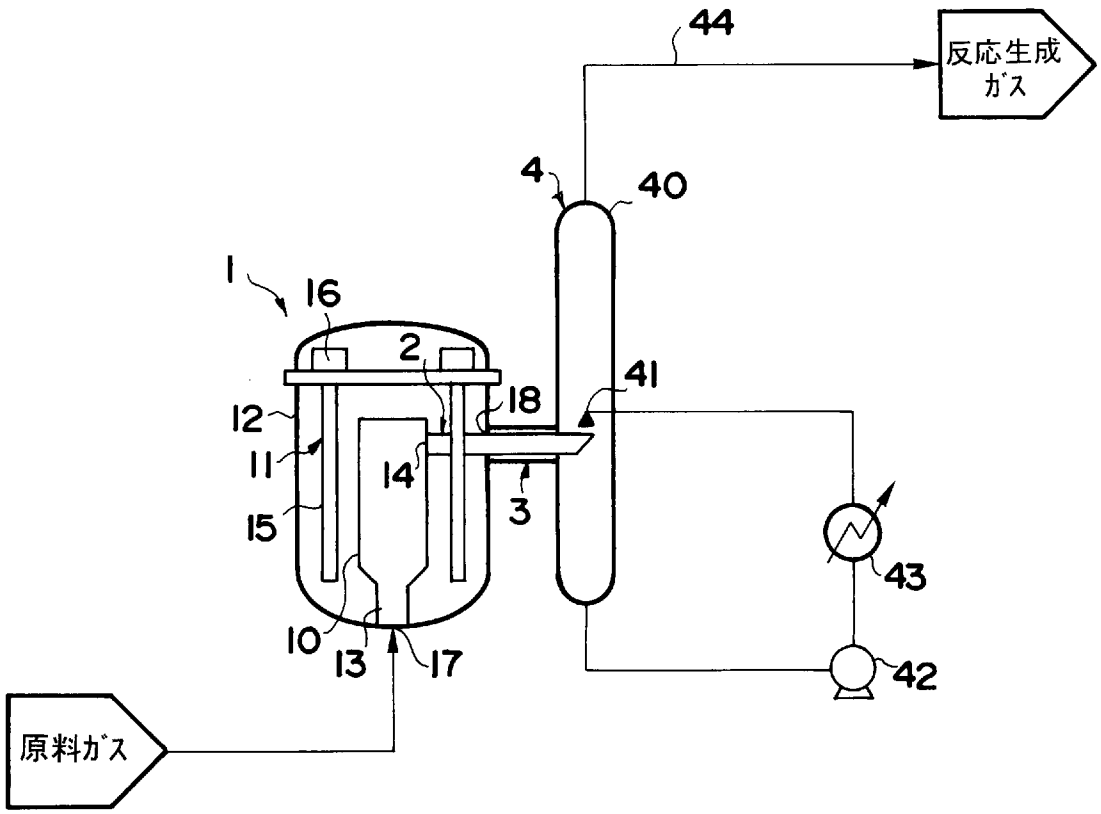
収容部に収容され一端が第一筒状部材の収容部側端部に固定され他端が第二筒状部材の挿入側端部に固定される第一ベローズ管と

を備える請求項1記載のトリクロロシラン製造装置。

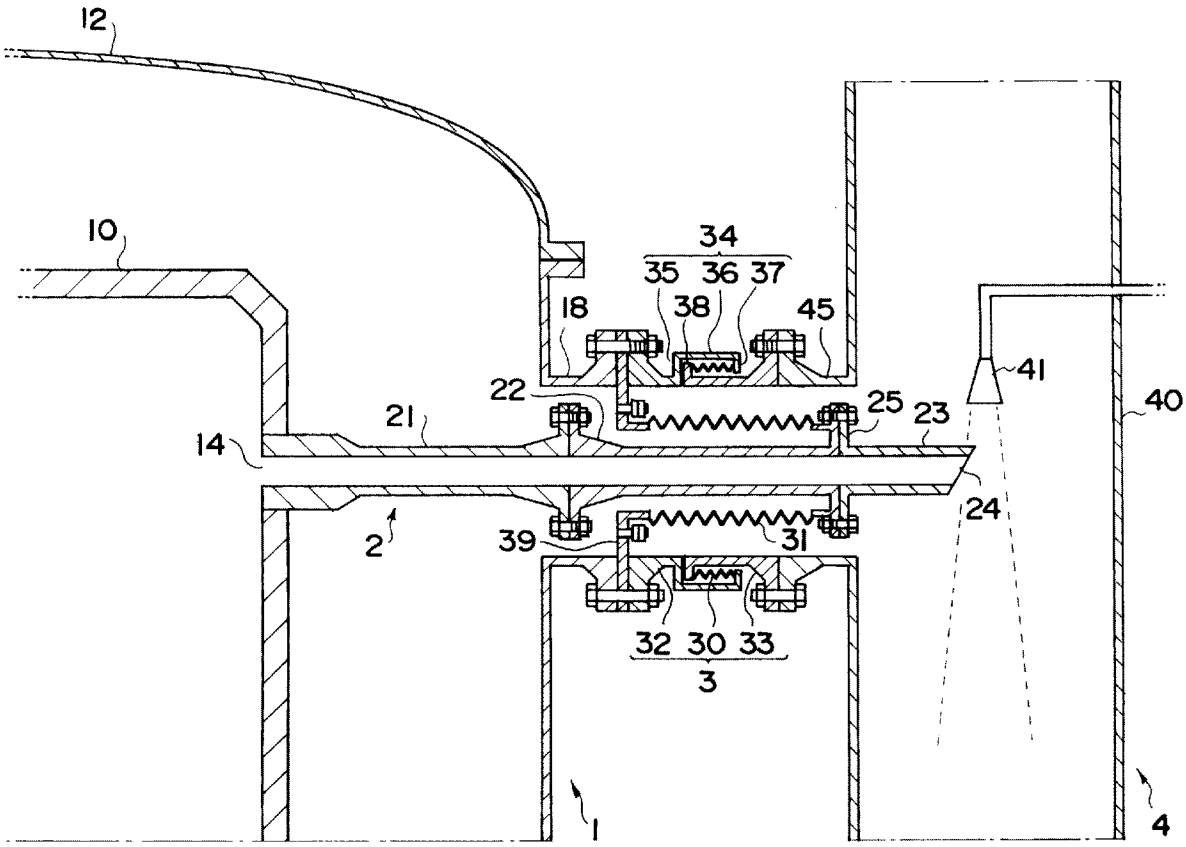
[3] 第一ベローズ管の軸と垂直方向の変位量が入口径の3～10％であり、軸方向の変位量が全長の2～5％である請求項1記載のトリクロロシラン製造装置。

[4] 第二ベローズ管の軸と垂直方向の変位量が入口径の3～10％であり、軸方向の変位量が全長の2～5％である請求項1記載のトリクロロシラン製造装置。

[図1]



[図2]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2009/054664

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C01B33/107(2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
C01B33/107

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2009
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2009 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2009

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 48-095396 A (Deutsche Gold-und Silber Scheideanstalt Vormals Roessler), 07 December, 1973 (07.12.73), Claims; page 2, lower right column, line 18 to page 3, lower right column, line 5; Figs. 1, 2 & US 4165363 A & US 4217334 A & GB 1395863 A & DE 2209267 A & FR 2172964 A & BE 795913 A & BE 795913 A1 & IT 975971 A & IT 975971 B	1-4
A	JP 60-081010 A (Denki Kagaku Kogyo Kabushiki Kaisha), 09 May, 1985 (09.05.85), Claims; page 2, lower left column, lines 5 to 10 (Family: none)	1-4

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
02 June, 2009 (02.06.09)	16 June, 2009 (16.06.09)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office Facsimile No.	Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2009/054664

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2008-275117 A (Toyo Tire and Rubber Co., Ltd.), 13 November, 2008 (13.11.08), Claims; Par. No. [0002]; Figs. 1 to 4 (Family: none)	1-4

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２００９／０５４６６４

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C01B33/107(2006.01)i

Ｂ．　調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C01B33/107

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２００９年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２００９年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２００９年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

Ｃ．　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー＊	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
A	JP 48-095396 A (ドイツチエ・ゴールド・ウント・ジルベル・シヤイデアンスタルト・フオールマールス・ロエツスレル) 1973.12.07, 特許請求の範囲, 第２頁右下欄第１８行－第３頁右下欄第５行, 第１図, 第２図 & US 4165363 A & US 4217334 A & GB 1395863 A & DE 2209267 A & FR 2172964 A & BE 795913 A & BE 795913 A1 & IT 975971 A & IT 975971 B	1-4

☑　Ｃ欄の続きにも文献が列挙されている。

☐　パテントファミリーに関する別紙を参照。

＊　引用文献のカテゴリー

「Ａ」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「Ｅ」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「Ｌ」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）

「Ｏ」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「Ｐ」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献

「Ｔ」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「Ｘ」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Ｙ」特に関連のある文献であって、当該文献と他の１以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「＆」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日 ０２．０６．２００９	国際調査報告の発送日 １６．０６．２００９
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ） 郵便番号１００－８９１５ 東京都千代田区霞が関三丁目４番３号	特許庁審査官（権限のある職員）　４Ｇ　３９４７ 佐藤　哲 電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４１６

Ｃ（続き）．　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー＊	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
A	JP 60-081010 A (電気化学工業株式会社) 1985.05.09, 特許請求の範囲, 第２頁左下欄第５－１０行 (ファミリーなし)	1-4
A	JP 2008-275117 A (東洋ゴム工業株式会社) 2008.11.13, 【特許請求の範囲】,【０００２】,【図１】－【図４】 (ファミリーなし)	1-4