



(19) 中華民國智慧財產局

(12) 發明說明書公告本

(11) 證書號數：TW I714124 B

(45) 公告日：中華民國 109 (2020) 年 12 月 21 日

(21) 申請案號：108120601

(22) 申請日：中華民國 108 (2019) 年 06 月 14 日

(51) Int. Cl. : C01B35/06 (2006.01)

(30) 優先權：2018/06/26 日本 2018-121137

(71) 申請人：日商昭和電工股份有限公司 (日本) SHOWA DENKO K. K. (JP)
日本

(72) 發明人：毛利早紀 MOURI, SAKI (JP) ; 栗原秀行 KURIHARA, HIDEYUKI (JP)

(74) 代理人：林志剛

(56) 參考文獻：

TW 201536680A

TW 201808806A

CN 106957061A

CN 108163868A

US 3025138

審查人員：林峯州

申請專利範圍項數：3 項 圖式數：1 共 30 頁

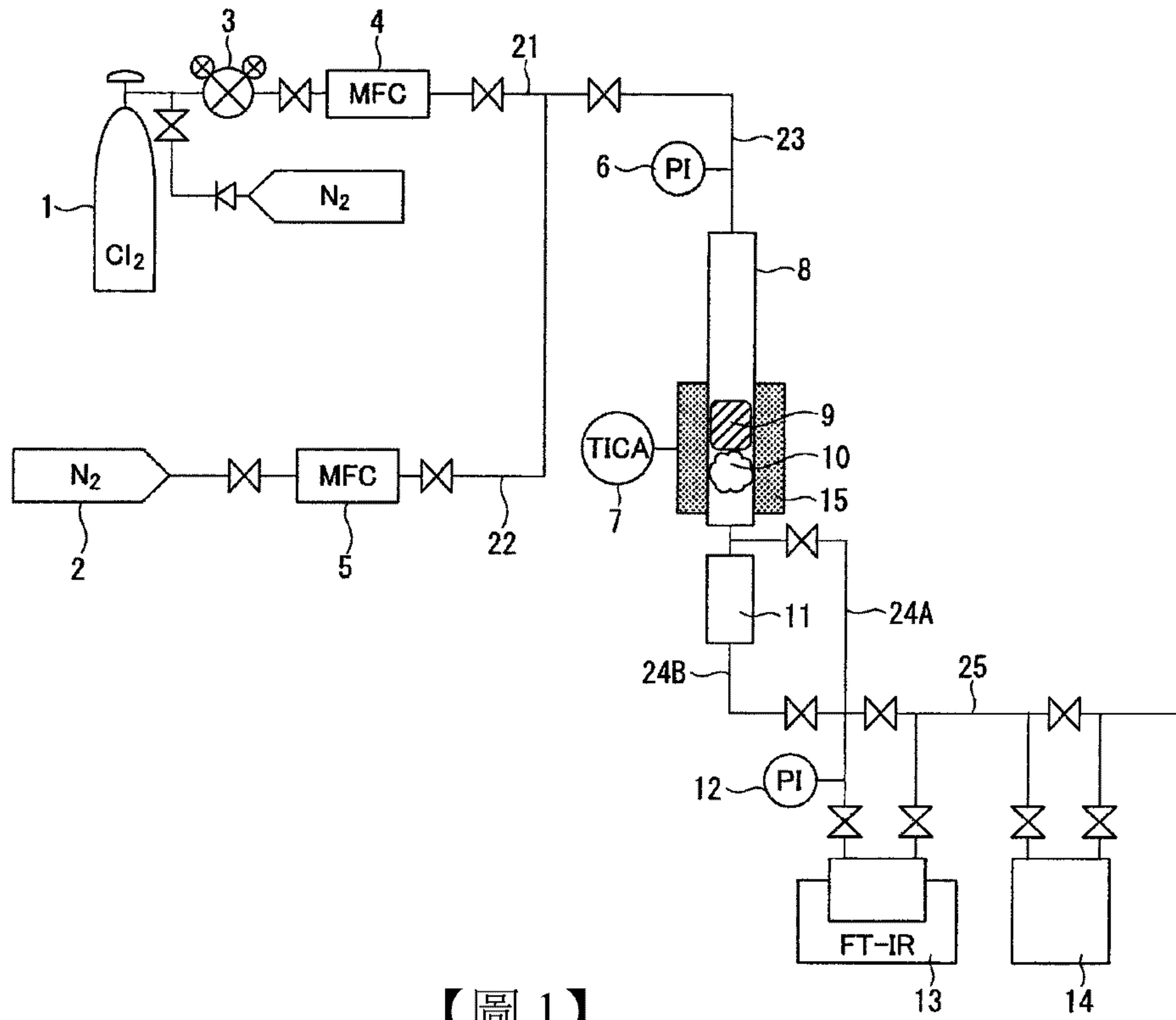
(54) 名稱

三氯化硼之製造方法

(57) 摘要

本發明係一種三氯化硼之製造方法，其課題為提供：可以簡易的製造工程而製造高純度之三氯化硼，且不易產生有製造線路的閉塞之三氯化硼之製造方法者。三氯化硼之製造方法係具備：於作為不純物而含有硼以外的金屬之碳化硼之原料碳化硼，使氯氣含有氣體接觸，對於金屬使氯氣含有氣體中的氯氣進行反應而作為金屬氯化物，得到含有金屬氯化物之碳化硼之金屬氯化工程，和自含有在金屬氯化工程所得到之金屬氯化物的碳化硼，除去金屬氯化物之除去工程，和於在除去工程而除去金屬氯化物的碳化硼，使氯氣含有氣體接觸，再使碳化硼與氯氣含有氣體中的氯氣反應而生成三氯化硼之生成工程。

指定代表圖：



【圖 1】

符號簡單說明：

- 1 . . . 氯氣容器
- 2 . . . 氮氣容器
- 3 . . . 穩壓器
- 4 . . . 流量控制器
- 5 . . . 流量控制器
- 6 . . . 壓力計
- 7 . . . 加熱器
- 8 . . . 管狀反應容器
- 9 . . . 碳化硼之粉末
- 10 . . . 石英棉
- 11 . . . 冷卻部
- 12 . . . 壓力計
- 13 . . . 傅立葉轉換紅外光譜裝置
- 14 . . . 捕集容器
- 15 . . . 斷熱材
- 21、22、23 . . . 配管
- 24A、24B、25 . . . 配管



I714124

【發明摘要】

【中文發明名稱】

三氯化硼之製造方法

【中文】

本發明係一種三氯化硼之製造方法，其課題為提供：可以簡易的製造工程而製造高純度之三氯化硼，且不易產生有製造線路的閉塞之三氯化硼之製造方法者。三氯化硼之製造方法係具備：於作為不純物而含有硼以外的金屬之碳化硼之原料碳化硼，使氯氣含有氣體接觸，對於金屬使氯氣含有氣體中的氯氣進行反應而作為金屬氯化物，得到含有金屬氯化物之碳化硼之金屬氯化工程，和自含有在金屬氯化工程所得到之金屬氯化物的碳化硼，除去金屬氯化物之除去工程，和於在除去工程而除去金屬氯化物的碳化硼，使氯氣含有氣體接觸，再使碳化硼與氯氣含有氣體中的氯氣反應而生成三氯化硼之生成工程。

【指定代表圖】第(1)圖。

【代表圖之符號簡單說明】

- 1：氮氣容器
- 2：氮氣容器
- 3：穩壓器
- 4：流量控制器
- 5：流量控制器
- 6：壓力計
- 7：加熱器
- 8：管狀反應容器
- 9：碳化硼之粉末
- 10：石英棉
- 11：冷卻部
- 12：壓力計
- 13：傅立葉轉換紅外光譜裝置
- 14：捕集容器
- 15：斷熱材
- 21、22、23：配管
- 24A、24B、25：配管

【特徵化學式】無

【發明說明書】

【中文發明名稱】

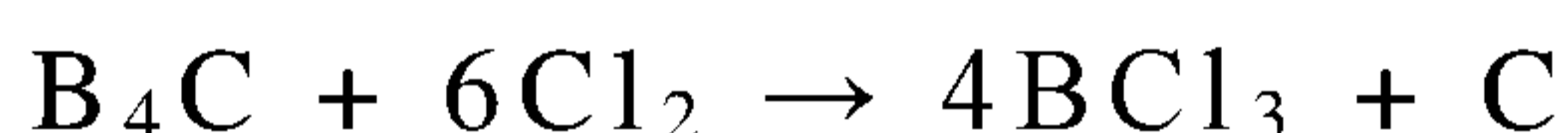
三氯化硼之製造方法

【技術領域】

【0001】本發明係有關三氯化硼之製造方法。

【先前技術】

【0002】作為三氯化硼(BCl_3)之製造方法之一，係知道有使氯氣(Cl_2)反應於碳化硼(B_4C)而作為氯化之方法。其反應係可由以下的反應式而表示者。



但在此製造方法中，在氯化反應時，生成有茶褐色之油狀物，而有使三氯化硼之製造線路閉塞之虞的問題。其油狀物的主成分係作為不純物而含有於碳化硼的鐵(Fe)等之金屬則與氯氣產生反應而副生成之金屬氯化物。另外，此油狀物中之金屬氯化物則混入於三氯化硼，而亦有三氯化硼的純度降低之問題。

【0003】除去含於碳化硼之金屬而精製之技術則例如，揭示於專利文獻1。此技術係經由使鹽酸，硫酸，硝酸等之酸性水溶液接觸於碳化硼的粉體之時，使含於碳化硼之金屬溶解於酸性水溶液而除去之構成。但對於適用揭示於專利文獻1之技術於上述之三氯化硼之製造方法，係有如以下的問題。

【0004】酸性水溶液係含有水，但水係為了使三氯化硼分解，而在使由酸性水溶液進行處理之碳化硼充分進行乾燥之後，必須供給於氯化反應。另外，必須將由酸性水溶液之處理而產生之酸性廢液進行後處理。即，當對於適用揭示於專利文獻1之技術於上述之三氯化硼之製造方法時，係有三氯化硼之製造工程複雜化的問題。

[先前技術文獻]

[專利文獻]

【0005】

[專利文獻1]日本國特許公開公報 2008年第272688號

【發明內容】

[發明欲解決之課題]

【0006】本發明係其課題為提供：可以簡易的製造工程而製造高純度之三氯化硼，且不易產生有製造線路的閉塞之三氯化硼之製造方法者。

為了解決課題之手段

【0007】為了解決前述課題，本發明之一形態係如以下的[1]~[6]。

[1] 一種三氯化硼之製造方法，其特徵為具備：於作為不純物而含有硼以外的金屬之碳化硼之原料碳化硼，以300℃以上700℃以下之溫度，使氯氣含有氣體接觸，對於前述金屬，使前述氯氣含有氣體中之氯氣反應而作為金屬

氯化物，得到含有前述金屬氯化物的碳化硼之金屬氯化工程，

和自含有在所述金屬氯化工程所得到之前述金屬氯化物的碳化硼，除去前述金屬氯化物之除去工程，

和於在所述除去工程而除去前述金屬氯化物之前述碳化硼，使氯氣含有氣體接觸，再使前述碳化硼與前述氯氣含有氣體中的氯氣反應而生成三氯化硼之生成工程的三氯化硼之製造方法。

【0008】 [2] 如[1]所記載之三氯化硼之製造方法，其中，在所述生成工程中，以 550°C 以上 1100°C 以下之溫度而使前述碳化硼與前述氯氣含有氣體接觸者。

[3] 如[1]或[2]記載之三氯化硼之製造方法，其中，前述金屬為鐵，鋁，鈣，鉻，矽，及鈦之中的至少1種。

[4] 如[3]記載之三氯化硼之製造方法，其中，前述金屬則含有鐵，含有於經由所述除去工程而除去前述金屬氯化物之前述碳化硼的鐵之含有量為不足0.30質量%者。

【0009】 [5] 如[1]~[4]任一項記載之三氯化硼之製造方法，其中，前述原料碳化硼係經由雷射繞射法而測定之D95則為 $500\mu\text{m}$ 以下的粉體，而前述D95係指：在體積基準的積算粒子徑分布中自小粒徑側的積算頻率則成為95%之粒子徑。

[6] 如[1]~[5]任一項記載之三氯化硼之製造方法，其中，在所述金屬氯化工程中所使用之前述氯氣含有氣體係由50體積%以上100體積%以下的氯氣與殘留部之非活性

氣體所成者。

發明效果

【0010】如根據本發明，可以簡易的製造工程而製造高純度之三氯化硼，且不易產生有製造線路的閉塞。

【圖式簡單說明】

【0011】

圖1係說明有關本發明之一實施形態之三氯化硼之製造方法的三氯化硼製造裝置之概略圖。

【實施方式】

【0012】對於在使碳化硼與氯氣反應而製造三氯化硼之方法中，作為原料所使用之碳化硼(原料碳化硼)，係有作為不純物而含有硼以外的金屬之情況。作為不純物之金屬係可舉出：鐵(Fe)、鋁(Al)、鈣(Ca)、鉻(Cr)、矽(Si)、鈦(Ti)等此等金屬之中至少1種則在氧化物等之形態而含有於碳化硼中。在上述的金屬之中，鐵的含有量有特別多之情況，而認為來自在碳化硼之製造時(粉碎時)所使用之球磨機。

【0013】當含有金屬於碳化硼中時，在生成三氯化硼之氯化反應時，與碳化硼同時，金屬亦被氯化之故，與主生成物之三氯化硼同時，生成有副生成物的金屬氯化物。其金屬氯化物係成為茶褐色之油狀物，而因析出於三氯化

硼之製造線路上的冷卻點之故，如蓄積時而有使製造線路閉塞之虞。

【0014】另外，將經由金屬的氯化而副生成有氯化鐵(III)(FeCl_3)、氯化鋁(AlCl_3)、氯化鈦(IV)(TiCl_4)、四氯化矽(SiCl_4)等時，此等之金屬氯化物係因對於氣體狀之三氯化硼之製品中亦有混入之虞之故，而有著製品的純度降低之虞。

【0015】本發明者們係進行銳意檢討的結果，發現在使碳化硼與氯氣反應而製造三氯化硼時，以簡易的工程，去除作為不純物而含有於碳化硼中之金屬則產生氯化反應而副生成之金屬氯化物，而可製造高純度的三氯化硼之方法，至完成本發明。

【0016】以下，對於本發明之一實施形態，加以說明。然而，本實施形態係顯示本發明之一例，而本發明係未加以限定於本實施形態者。另外，對於本實施形態係可加上種種的變更或改良，而加上如此變更或改良的形態，亦可包含於本發明。例如，在本實施形態所例示之材料、尺寸等係為一例，本發明係並非限定於此，在可得到本發明之效果之範圍內，可作適宜變更而實施者。

【0017】本實施形態之三氯化硼之製造方法係具備：於作為不純物而含有硼以外的金屬之碳化硼之原料碳化硼，使氯氣含有氣體接觸，對於金屬使氯氣含有氣體中的氯氣進行反應而作為金屬氯化物，得到含有金屬氯化物之碳化硼之金屬氯化工程，和自含有在金屬氯化工程所得到

之金屬氯化物的碳化硼，除去金屬氯化物之除去工程，和於在除去工程而除去金屬氯化物的碳化硼，使氯氣含有氣體接觸，再使碳化硼與氯氣含有氣體中的氯氣反應而生成三氯化硼之生成工程。

【0018】

[金屬氯化工程]

金屬氯化工程係於原料碳化硼，使氯氣含有氣體接觸，抑制碳化硼的氯化同時，氯化金屬而作為金屬氯化物，得到含有金屬氯化物之碳化硼的工程。抑制碳化硼的氯化同時，選擇性地進行原料碳化硼中之金屬的氯化之方法係未特別加以限定，但例如，可舉出：在碳化硼之氯化係不易產生，且金屬的氯化係容易產生之反應條件，進行氯化反應之方法。

【0019】 例如，如為反應溫度，如在金屬氯化工程中，以 300°C 以上 700°C 以下之溫度，使原料碳化硼與氯氣含有氣體接觸時，可抑制碳化硼之氯化同時，優先地使金屬氯化而作為金屬氯化物者。在金屬氯化工程中之反應溫度則脫離上述的溫度範圍時，因有產生有碳化硼之氯化，以及金屬的氯化則成為不充分之情況之故，可以簡易的製造工程而製造高純度之三氯化硼，且不易產生有製造線路的閉塞之效果有著無法充分得到之虞。

【0020】 然而，抑制碳化硼之氯化而優先性地氯化金屬的溫度係指：金屬氯化物之生成則可作為茶褐色，褐色，黃色等之有色的污染而確認之同時，所生成之氣體中

之三氯化硼的濃度為不足0.1質量%之溫度。如此之溫度係通常為300℃以上700℃以下，但當超過500℃時，在金屬氯化工程中雖為少量，但有產生有三氯化硼之生成反應之虞之故，對於三氯化硼之生產而言帶來損耗。因而，在金屬氯化工程中，使原料碳化硼與氯氣含有氣體接觸的溫度係作為300℃以上500℃以下者則為更佳。

【0021】在金屬氯化工程中，於抑制碳化硼的氯化同時，進行原料碳化硼中之金屬的氯化之反應容器內，在配置原料碳化硼之後，導入氯氣含有氣體，但亦可將常溫的氯氣含有氣體導入至反應容器內，而將加熱至高溫(例如，300℃以上700℃以下)之氯氣含有氣體導入至反應容器內亦可。

【0022】金屬氯化工程之氯化係可在大氣壓以下的壓力環境下實施，但在0.09MPa以上0.11MPa以下之壓力環境下而實施者為佳。如為0.09MPa以上時，原料碳化硼與氯氣含有氣體之接觸效率成為良好，而如為0.11MPa以下時，容易保持反應容器之氣密性。

在金屬氯化工程所使用之氯氣含有氣體的流量係無特別加以限定，但作為氯氣之流量(線速度)，作為0.5m/min以上2.5m/min以下者。

【0023】作為在金屬氯化工程所使用之氯氣含有氣體係可使用50體積%以上，不足100體積%之氯氣與殘留部之非活性氣體所成之混合氣體，而亦可使用未含有非活性氣體之100體積%的氯氣者。可使用於混合氣體的非活性氣

體的種類係未特別加以限定，但例如，可舉出氮氣，氫，氮等。

【0024】原料碳化硼係經由雷射繞射法所測定之D95則為 $3\mu\text{m}$ 以上 $500\mu\text{m}$ 以下之粉體者為佳，而D95則為 $5\mu\text{m}$ 以上 $100\mu\text{m}$ 以下之粉體者為更佳。如使用如上述之原料碳化硼時，因與氮氣的反應速度變大之故，在後述之生成工程之三氯化硼的生成效率則成為良好。

然而，D95係指：在體積基準之積算粒子徑分布中，自小粒徑側的積算頻率成為95%之粒子徑。

【0025】

[除去工程]

除去工程係自含有在金屬氯化工程所得到之金屬氯化物的碳化硼，除去金屬氯化物之工程。如在三氯化硼的生成前，因可從碳化硼分離金屬氯化物之故，可以簡易的工程而自碳化硼，充分地除去金屬者。

【0026】自碳化硼除去金屬氯化物的方法係未特別加以限定，但例如，金屬氯化物則如氯化鐵(III)、氯化鋁、氯化鈦(IV)、四氯化矽，以比較低溫進行氯化之化合物的情況時，可將含有金屬氯化物之碳化硼保持成高溫，而經由使金屬氯化物氯化，自碳化硼分離者。

【0027】如根據使金屬氯化物氯化之方法，因可非常容易地自碳化硼分離金屬氯化物之故，無須如前述之以往技術，在除去金屬之後，乾燥碳化硼，以及將廢液進行後處理。即，可經由非常簡易的工程而自碳化硼除去金屬

者。因而，對於三氯化硼之製造工程全體，亦可作為非常簡易的工程者。

【0028】含有金屬氯化物之碳化硼的保持溫度係如作為金屬氯化物產生氯化之溫度以上的溫度即可，但對於在金屬氯化工程中，以 300°C 以上 700°C 以下之溫度，使原料碳化硼與氯氣含有氣體接觸而使金屬氯化的情況，係在其溫度中，經由氯化而生成之金屬氯化物產生氯化，自碳化硼加以除去金屬。即，金屬氯化工程與除去工程同時進行。

【0029】但，含有金屬氯化物的碳化硼之保持溫度不足 300°C 時，金屬氯化物(例如，氯化鐵(III))有未充分產生氯化之情況之故，而自碳化硼之金屬的除去則有成為不充分之虞。因而，含有在除去工程之金屬氯化物的碳化硼之保持溫度係作為 400°C 以上者則為更佳。

【0030】在除去工程中，含有於除去金屬氯化物的碳化硼之硼以外的金屬之合計含有量則呈成為不足0.30質量%，理想為0.25質量%以下，更理想為0.20質量%以下地，自碳化硼除去金屬氯化物者為佳，另外，含有於除去金屬氯化物的碳化硼之鐵的含有量則呈成為不足0.30質量%，理想為0.25質量%以下，更理想為0.20質量%以下地，自碳化硼除去金屬氯化物者為佳。如由如此作為，成為容易得到高純度之三氯化硼。

【0031】在除去工程之金屬氯化物的氯化係可在大氣壓以下的壓力環境下實施，但在 0.09MPa 以上 0.11MPa 以

下之壓力環境下而實施者為佳。如為0.09MPa以上，容易除去金屬氯化物，而如為0.11MPa以下，容易保持進行除去工程之容器的氣密性。

【0032】

[生成工程]

生成工程係使氯氣含有氣體接觸於在除去工程除去金屬氯化物的碳化硼，再使碳化硼與氯氣含有氣體中之氯氣反應而生成三氯化硼之工程。

【0033】經由區分氯化金屬的反應與氯化碳化硼之反應而在其他工程進行之時，可氯化充分除去金屬之碳化硼而製造三氯化硼者。因此，在生成工程中，存在於反應系統內之金屬氯化物係因微量之故，可以簡易的製造工程而製造高純度之三氯化硼，且不易產生有製造線路的閉塞。

【0034】在生成工程中使碳化硼與氯氣含有氣體接觸的溫度係如生成三氯化硼，未特別加以限定，但550℃以上1100℃以下者為佳，而800℃以上1100℃以下更佳，900℃以上1000℃以下又更佳。在生成工程中使碳化硼與氯氣含有氣體接觸的溫度，則如為上述的溫度，加上於三氯化硼之生成速度充分高之情況，不易於進行生成工程之反應的反應容器或其周邊的構件產生損傷。

【0035】作為在生成工程所使用之氯氣含有氣體係可作為50體積%以上，不足100體積%之氯氣與殘留部之非活性氣體所成之混合氣體，而作為未含有非活性氣體之100體積%的氯氣者為佳。當將以非活性氣體而稀釋氯氣之混

合氣體作為氯氣含有氣體而使用時，成為混入存在有所生成之三氯化硼與非活性氣體，而成為必須分離此等。非活性氣體之種類係未特別加以限定，但可舉出氮氣，氫，氦。

在生成工程與金屬氯化工程中，使用同種之氯氣含有氣體亦可，而亦可使用別種之氯氣含有氣體。即，在生成工程與金屬氯化工程，氯氣含有氣體中之氯氣的比例係亦可為同一或不同。

【0036】然而，金屬氯化工程，除去工程，及生成工程之3工程係所有在同一的反應容器內進行亦可，而亦可將3工程之中一部分或全部的工程，在個別反應容器內進行。對於在金屬氯化工程之結束後，將碳化硼轉換到另外的反應容器時，在無菌箱內等之乾燥環境下進行轉換操作者為佳。在3工程所使用之反應容器的材質係如為未經由氯氣，三氯化硼，氯化氫等而腐蝕之構成，未特別加以限定，而例如，亦可為石墨，金屬，陶瓷。

【0037】另外，經由本實施形態之三氯化硼之製造方法所製造之三氯化硼係作為三氯化硼以外的不純物，有含有氧氣，氮氣，二氧化碳，一氧化碳，甲烷，氫氣，氦，氯化氫，四氯化矽等之情況。此等之不純物係可經由一般的蒸餾而除去者。

【0038】以下，對於本實施形態之三氯化硼之製造方法，參照顯示三氯化硼製造裝置之一例的圖1同時，更詳細地加以說明。然而，在圖1中，為了容易了解本發明之

特徵，而說明之方便上，有擴大要部而圖示之情況，而圖1所示之各構成要素之尺寸比率等係不限於與實際之三氯化硼製造裝置相同。

【0039】圖1所示之三氯化硼製造裝置係具備：充填有氯氣之氯氣容器1(例如，氣瓶)，和充填有非活性氣體之氮氣之氮氣容器2(例如，氣瓶)，和裝填有碳化硼(原料碳化硼)之粉末9的石英製之管狀反應容器8，和可分析氣體中之三氯化硼，水分，氯化氫等之傅立葉轉換紅外光譜裝置13，和將所生成之氣體狀之三氯化硼作為液化而捕集之捕集容器14。

【0040】對於管狀反應容器8之內部係設置有進行氯化反應等之反應的反應部，而於此反應部，支持碳化硼(原料碳化硼)之粉末9於石英棉10上同時加以裝填著。並且，此反應部係經由加熱器7而加以溫度控制之同時，由斷熱材15所被覆而加以保溫。

對於在製造三氯化硼時，首先，將氯氣，自氯氣容器1，藉由配管21，23而導入至管狀反應容器8。此時，由穩壓器3而調整氯氣的供給壓同時，以流量控制器4調整氯氣的流量。

【0041】將以非活性氣體而稀釋氯氣的混合氣體，導入至管狀反應容器8之情況係在配管21之中間部分中(即，在較管狀反應容器8為上游側)，混合氯氣與氮氣，將在配管21內所調製之混合氣體，藉由配管23而導入至管狀反應容器8。

【0042】即，配置有連通氮氣容器2與配管21之中間部分的配管22，而氮氣則自氮氣容器2，藉由配管22而導入至配管21之中間部分，成為呈混合氯氣與氮氣。此時，成為可經由流量控制器5而調整氮氣之流量之故，混合氣體中之氯氣的比例係成為可經由流量控制器5而調整。

【0043】對於管狀反應容器8之反應部係裝填有碳化硼(原料碳化硼)之粉末9，而在金屬氯化工程及除去工程中，碳化硼(原料碳化硼)之粉末9則經由加熱器7而加熱為碳化硼與氯氣之反應不易產生之溫度(300℃以上700℃以下)。於此，導入氯氣而與碳化硼(原料碳化硼)之粉末9接觸之故，而抑制碳化硼之氯化同時，含有於碳化硼(原料碳化硼)之粉末9之金屬則與氯氣優先進行反應而進行氯化，生成金屬氯化物(金屬氯化工程)。

【0044】然而，此金屬氯化工程係亦可在大氣壓的壓力環境下進行，而在較大氣壓為低壓之壓力環境下進行亦可。對於較大氣壓為低壓之壓力環境下進行金屬氯化工程之情況，係如使用未圖示之真空泵而減壓三氯化硼製造裝置之內部即可。管狀反應容器8內之壓力係可經由壓力計6而測定者。

【0045】所生成之金屬氯化物則為例如，如氯化鐵(III)、氯化鋁、氯化鈦(IV)、四氯化矽，以比較低溫進行氯化之化合物的情況係進行生成馬上在管狀反應容器8之反應部中進行氯化，從碳化硼分離(除去工程)。即，對於本實施形態之情況，係金屬氯化工程與除去工程則同時進

行。其結果，自管狀反應容器8內之碳化硼除去金屬。

【0046】在金屬氯化工程與除去工程中，因經由閥的開關控制，配管24A係成為不可流通，而配管24B係成為可流通之故，氯化之金屬氯化物係經由氮氣而傳送至冷卻部11而加以冷卻而進行液化或固化。並且，經由液化或固化而除去金屬氯化物的氣體係在歷經傅立葉轉換紅外光譜裝置13之後，藉由配管25而傳送至三氯化硼製造裝置的外部。此時，氣體係呈成為未經由捕集容器14而傳送至三氯化硼製造裝置的外部。

【0047】如自碳化硼(原料碳化硼)之粉末9的金屬之除去結束之後，停止自氮氣容器1之氮氣的導入，僅將流通在三氯化硼製造裝置之內部的氣體作為氮氣，以氮氣而置換管狀反應容器8內之氣體。並且，經由加熱器7而加熱反應部，使碳化硼之粉末9的溫度，上升至經由碳化硼與氮氣之反應而開始生成三氯化硼之生成開始溫度以上之溫度(例如，550℃以上1100℃以下)。

【0048】如碳化硼之粉末9的溫度成為上述生成開始溫度以上之溫度之後，停止氮氣的導入，再次自氮氣容器1導入氮氣至管狀反應容器8。在此，碳化硼與氮氣的反應則開始，生成三氯化硼(生成工程)。所生成之三氯化硼係因在生成工程之管狀反應容器8內之溫度中為氣體狀之故，經由氮氣而自管狀反應容器8送出至下游側。

【0049】在生成工程中，因經由閥的開關控制，配管24A係成為可流通，而配管24B係成為不可流通之故，氣

體狀的三氯化硼係經由氯氣而傳送至傅立葉轉換紅外光譜裝置13，進行分析。經由進行氣體中之三氯化硼的分析之時，可算出三氯化硼之純度，產量，收率等者。

【0050】經由傅立葉轉換紅外光譜裝置13之氣體係藉由配管25而傳送至捕集容器14。並且，因在捕集容器14內，氣體則冷卻為例如0°C程度之三氯化硼則作為液化之故，分離三氯化硼與氯氣，而三氯化硼係捕集於捕集容器14內，氯氣係藉由配管25而傳送至三氯化硼製造裝置的外部。配管24A，24B，25內的壓力係可經由壓力計12而測定者。

[實施例]

【0051】於以下顯示實施例及比較例，更詳細地說明本發明。然而，在實施例及比較例之各種分析值等係由如以下方法加以測定。原料碳化硼之粉末的粒子徑D95係經由濕式雷射繞射法而測定。D95係指：在體積基準之積算粒子徑分布中，自小粒徑側的積算頻率成為95%之粒子徑。使用於粒子徑D95之測定的裝置係microtrac-bel股份有限公司製之雷射繞射·散射式粒子徑分布測定裝置「microtrac」。測定條件係如以下。

【0052】測定時間：30秒

粒子透過性：透過

粒子折射率：2.00

粒子形狀：非球形

溶媒名：乙醇

溶媒折射率：1.36

測定範圍：0.021-1408 μm

【0053】硼以外的金屬之含有量係經由高頻率誘導結合電漿發光分光分析法(ICP發光分光分析法)而測定。

三氯化硼之濃度及生成量係經由THERMO FISHER SCIENTIFIC公司製之傅立葉轉換紅外光譜裝置而測定。

窗板的材質：氟化鋇(BaF_2)

單元長：10cm

資料間隔：0.964 cm^{-1}

掃描次數：16

使用於分析的波數：1908 cm^{-1}

三氯化硼的收率係經由計算對於自原料碳化硼之裝料量所計算之三氯化硼的理論生成量之三氯化硼的實際生成量之比例而算出。

【0054】

[實施例1]

使用與圖1之三氯化硼製造裝置同樣的構成之三氯化硼製造裝置，進行與上述實施形態同樣的操作而使原料碳化硼之粉末與氯氣含有氣體反應，製造三氯化硼。

【0055】作為氯氣含有氣體係使用純度99.999體積%、水分含有量0.9體積ppm之市售之高純度氯氣。

作為原料碳化硼之粉末係使用經由雷射繞射法而測定之D95為48 μm 之碳化硼粉末。另外，此原料碳化硼的粉末

所含有之硼以外的金屬之種類與含有量係如以下。即，鐵 0.30 質量 %、鋁 0.027 質量 %、鈣 0.037 質量 %、鉻 0.012 質量 %、矽 0.78 質量 %。

【0056】將此原料碳化硼之粉末 0.3g 裝填於石英製之管狀反應容器內，再將流量 125.6ccm(cm^3/min)之氮氣供給至管狀反應容器之同時，將原料碳化硼之粉末加上 15 分鐘而升溫至 450℃。之後，將供給至管狀反應容器之氣體，自氮氣切換為上述氮氣含有氣體(高純度氮氣)，在大氣壓下，再經由遍布 1 小時而將常溫的氮氣含有氣體供給至管狀反應容器之時(流量係以常溫為 125.6ccm)、使含有於原料碳化硼之粉末的金屬與氮氣反應而氯化金屬，做成金屬氯化物。所生成之金屬氯化物係以 450℃ 進行氯化，自碳化硼的粉末加以除去。

【0057】上述之氯化反應中係將自管狀反應容器所排出之排出氣體，導入至傅立葉轉換紅外光譜光度計，進行排出氣體的紅外光譜分析。並且，確認氯化反應中之排出氣體中的三氯化硼之濃度為 0.02 體積 % 以下之同時，進行氯化反應。如氯化反應結束之後，將供給至管狀反應容器之氣體，自氮氣含有氣體切換為氮氣，再經由以常溫而將流量 125.6ccm 的氮氣供給 10 分鐘於管狀反應容器之時，以氮氣而置換管狀反應容器內的氣體。之後，自管狀反應容器採取碳化硼的粉末，經由誘導結合電漿發光分光分析而測定鐵的含有量。其結果，碳化硼中之鐵的含有量係 0.10 質量 %。

【0058】接著，以常溫，將流量125.6ccm的氮氣供給於管狀反應容器之同時，將碳化硼的粉末，花上30分鐘而升溫至900°C。之後，將供給至管狀反應容器之氣體，自氮氣切換為氮氣含有氣體，經由在大氣壓下而遍布10分鐘，供給常溫之氮氣含有氣體之時(流量係125.6ccm)、使碳化硼與氮氣反應而使三氯化硼生成。

【0059】三氯化硼之生成反應中係認為金屬氯化物之有色的污染則未在三氯化硼製造裝置之製造線路上看到，而亦未有三氯化硼製造裝置之製造線路閉塞的情況。將所生成之三氯化硼，以0°C捕集於三氯化硼製造裝置之捕集容器，進行誘導結合電漿發光分光分析。其結果，所生成之三氯化硼中的鐵之含有量係50質量ppb，而鋁之含有量係6質量ppb。另外，三氯化硼之收率係98%。

【0060】

[表1]

	實施例								比較例		
	1	2	3	4	5	6	7	8	1	2	3
原料碳化硼之D95 (μm)	48	48	48	48	48	100	500	1-3mm	48	48	48
溫度($^{\circ}\text{C}$)	450	300	375	450	450	450	450	450	-	250	750
時間(h)	1	1	1	1	3	1	1	1	-	1	1
氯氣含有氣體中之 氯氣的濃度(體積%)	100	100	100	50	100	100	100	100	-	100	100
鐵的含有量(質量%)	0.10	0.22	0.16	0.20	0.13	0.10	0.10	0.13	0.30	0.30	-
溫度($^{\circ}\text{C}$)	900	900	900	900	900	900	900	900	900	900	900
氯氣含有氣體中之 氯氣的濃度(體積%)	100	100	100	50	100	100	100	100	100	100	100
製造線路上之污染	無	無	無	薄污染	無	無	無	無	濃污染	有	無
鐵的含有量(質量ppb)	50	100	80	100	60	60	60	70	3000	3000	-
鋁的含有量(質量ppb)	6	6	6	6	6	6	6	6	270	6	-
三氯化硼之收率(%)	98	98	98	98	98	95	90	30	98	98	不足10

【 0061】**[實施例 2]**

使含有於原料碳化硼之粉末的金屬與氯氣反應而氯化金屬的溫度，及將除去金屬氯化物之溫度作為 300°C 的點以外，係由與實施例 1 同樣作為而製造三氯化硼。其結果，除去金屬氯化物之後的碳化硼中之鐵的含有量係 0.22 質量%。另外，三氯化硼之生成反應中係認為金屬氯化物之有色的污染則未在三氯化硼製造裝置之製造線路上看到，而亦未有三氯化硼製造裝置之製造線路閉塞的情況。更且，所生成之三氯化硼中的鐵之含有量係 100 質量 ppb，而鋁之含有量係 6 質量 ppb。另外，三氯化硼之收率係 98%。

【 0062】**[實施例 3]**

使含有於原料碳化硼之粉末的金屬與氯氣反應而氯化金屬的溫度，及將除去金屬氯化物之溫度作為 375°C 的點以外，係由與實施例 1 同樣作為而製造三氯化硼。其結果，除去金屬氯化物之後的碳化硼中之鐵的含有量係 0.16 質量%。另外，三氯化硼之生成反應中係認為金屬氯化物之有色的污染則未在三氯化硼製造裝置之製造線路上看到，而亦未有三氯化硼製造裝置之製造線路閉塞的情況。更且，所生成之三氯化硼中的鐵之含有量係 80 質量 ppb，而鋁之含有量係 6 質量 ppb。另外，三氯化硼之收率係

98%。

【 0063 】

[實施例 4]

將使用於含有於原料碳化硼之粉末的金屬之氯化反應的氯氣含有氣體，和使用於碳化硼之氯化反應之氯氣含有氣體，做成以氮氣而稀釋氯氣之混合氣體的點以外，係由與實施例 1 同樣作為而製造三氯化硼。混合氣體中的氯氣之濃度係做成 50 體積 %。

【 0064 】 其結果，除去金屬氯化物之後的碳化硼中之鐵的含有量係 0.20 質量 %。另外，三氯化硼之生成反應中係認為金屬氯化物之茶色的薄污染則在三氯化硼製造裝置之製造線路上(管狀反應容器之下游側開口部)看到，但未有三氯化硼製造裝置之製造線路閉塞的情況。更且，所生成之三氯化硼中的鐵之含有量係 100 質量 ppb，而鋁之含有量係 6 質量 ppb。另外，三氯化硼之收率係 98%。

【 0065 】

[實施例 5]

將使原料碳化硼之粉末與氯氣含有氣體接觸的時間做成 3 小時的點以外，係由與實施例 1 同樣作為而製造三氯化硼。其結果，除去金屬氯化物之後的碳化硼中之鐵的含有量係 0.13 質量 %。另外，三氯化硼之生成反應中係認為金屬氯化物之有色的污染則未在三氯化硼製造裝置之製造線路上看到，而亦未有三氯化硼製造裝置之製造線路閉塞的情況。更且，所生成之三氯化硼中的鐵之含有量係 60 質量

ppb，而鋁之含有量係6質量ppb。另外，三氯化硼之收率係98%。

【0066】

[實施例6]

原料碳化硼之粉末的粒子徑D95則為100 μ m的點以外，係由與實施例1同樣作為而製造三氯化硼。其結果，除去金屬氯化物之後的碳化硼中之鐵的含有量係0.10質量%。另外，三氯化硼之生成反應中係認為金屬氯化物之有色的污染則未在三氯化硼製造裝置之製造線路上看到，而亦未有三氯化硼製造裝置之製造線路閉塞的情況。更且，所生成之三氯化硼中的鐵之含有量係60質量ppb，而鋁之含有量係6質量ppb。另外，三氯化硼之收率係95%。

【0067】

[實施例7]

原料碳化硼之粉末的粒子徑D95則為500 μ m的點以外，係由與實施例1同樣作為而製造三氯化硼。其結果，除去金屬氯化物之後的碳化硼中之鐵的含有量係0.10質量%。另外，三氯化硼之生成反應中係認為金屬氯化物之有色的污染則未在三氯化硼製造裝置之製造線路上看到，而亦未有三氯化硼製造裝置之製造線路閉塞的情況。更且，所生成之三氯化硼中的鐵之含有量係60質量ppb，而鋁之含有量係6質量ppb。另外，三氯化硼之收率係90%。

【0068】

[實施例8]

原料碳化硼之粉末則通過網眼 5.60mm 之乾式篩，網眼 3.35mm 之乾式篩殘留部分則成為 20 質量% 以下，網眼 1mm 之乾式篩殘留部分則成為 65 質量% 以上之構成的點以外，係由與實施例 1 同樣作為而製造三氯化硼。

其結果，除去金屬氯化物之後的碳化硼中之鐵的含有量係 0.13 質量%。另外，三氯化硼之生成反應中係認為金屬氯化物之有色的污染則未在三氯化硼製造裝置之製造線路上看到，而亦未有三氯化硼製造裝置之製造線路閉塞的情況。更且，所生成之三氯化硼中的鐵之含有量係 70 質量 ppb，而鋁之含有量係 6 質量 ppb。另外，三氯化硼之收率係 30%。

【0069】

[比較例 1]

未進行含有於原料碳化硼之粉末的金屬之氯化，而於未除去金屬之原料碳化硼，使氯氣反應而進行碳化硼之氯化的點以外，係由與實施例 1 同樣作為而製造三氯化硼。未除去金屬之原料碳化硼之粉末中的鐵之含有量係 0.30 質量%。

【0070】三氯化硼之生成反應中係認為金屬氯化物之茶褐色的濃污染則在三氯化硼製造裝置之製造線路上(管狀反應容器之下游側開口部)看到，但在 10 分鐘的反應時間之間中，未有三氯化硼製造裝置之製造線路閉塞的情況。更且，所生成之三氯化硼中的鐵之含有量係 3 質量 ppm，而鋁之含有量係 270 質量 ppb。另外，三氯化硼之收

率係98%。

【0071】

[比較例2]

使含有於原料碳化硼之粉末的金屬與氯氣反應而氯化金屬的溫度，及將除去金屬氯化物之溫度作為250°C的點以外，係由與實施例1同樣作為而製造三氯化硼。其結果，碳化硼中之粉末中的鐵的含有量係0.30質量%。

【0072】另外，三氯化硼之生成反應中係認為金屬氯化物之茶褐色的污染則在三氯化硼製造裝置之製造線路上(管狀反應容器之下游側開口部)看到，但未有三氯化硼製造裝置之製造線路閉塞的情況。更且，所生成之三氯化硼中的鐵之含有量係3質量ppm，而鋁之含有量係6質量ppb。另外，三氯化硼之收率係98%。

【0073】

[比較例3]

使含有於原料碳化硼之粉末的金屬與氯氣反應而氯化金屬的溫度，及將除去金屬氯化物之溫度作為750°C的點以外，係由與實施例1同樣作為而製造三氯化硼。但在使含有於原料碳化硼之粉末的金屬與氯氣反應而氯化金屬的工程中，碳化硼與氯氣產生反應而生成有三氯化硼，生成氣體(自管狀反應容器所排出之排出氣體)中的三氯化硼濃度則成為90體積%。

【0074】三氯化硼之生成反應中，於三氯化硼製造裝置之製造線路上(管狀反應容器之下游側開口部)未看到認

為金屬氯化物的污染，但所裝填之碳化硼則幾乎既已產生反應之故，幾乎未看到三氯化硼之生成，而三氯化硼之收率係不足10%。

【符號說明】

【0075】

- 1：氮氣容器
- 2：氮氣容器
- 8：管狀反應容器
- 9：碳化硼之粉末
- 11：冷卻部
- 13：傅立葉轉換紅外光譜裝置
- 14：捕集容器

【發明申請專利範圍】

【第1項】

一種三氯化硼之製造方法，其特徵為具備：於作為不純物而含有硼以外的金屬之碳化硼之原料碳化硼，以 300°C 以上 700°C 以下之溫度，使氯氣含有氣體接觸，對於前述金屬，使前述氯氣含有氣體中之氯氣反應而作為金屬氯化物，得到含有前述金屬氯化物的碳化硼之金屬氯化工程，

和自含有在前述金屬氯化工程所得到之前述金屬氯化物的碳化硼，除去前述金屬氯化物之除去工程，

和於在前述除去工程而除去前述金屬氯化物之前述碳化硼，使氯氣含有氣體接觸，再使前述碳化硼與前述氯氣含有氣體中的氯氣反應而生成三氯化硼之生成工程；

前述金屬則含有鐵，

同時進行前述金屬氯化工程與前述除去工程，

測定含於前述金屬氯化工程與前述除去工程所得前述碳化硼的鐵之含有量，

前述測定的鐵之含有量為不足 0.30 質量%，

前述原料碳化硼係經由雷射繞射法而測定之 D_{95} 則為 $500\mu\text{m}$ 以下的粉體，而前述 D_{95} 係指：在體積基準的積算粒子徑分布中自小粒徑側的積算頻率則成為 95% 之粒子徑。

【第2項】

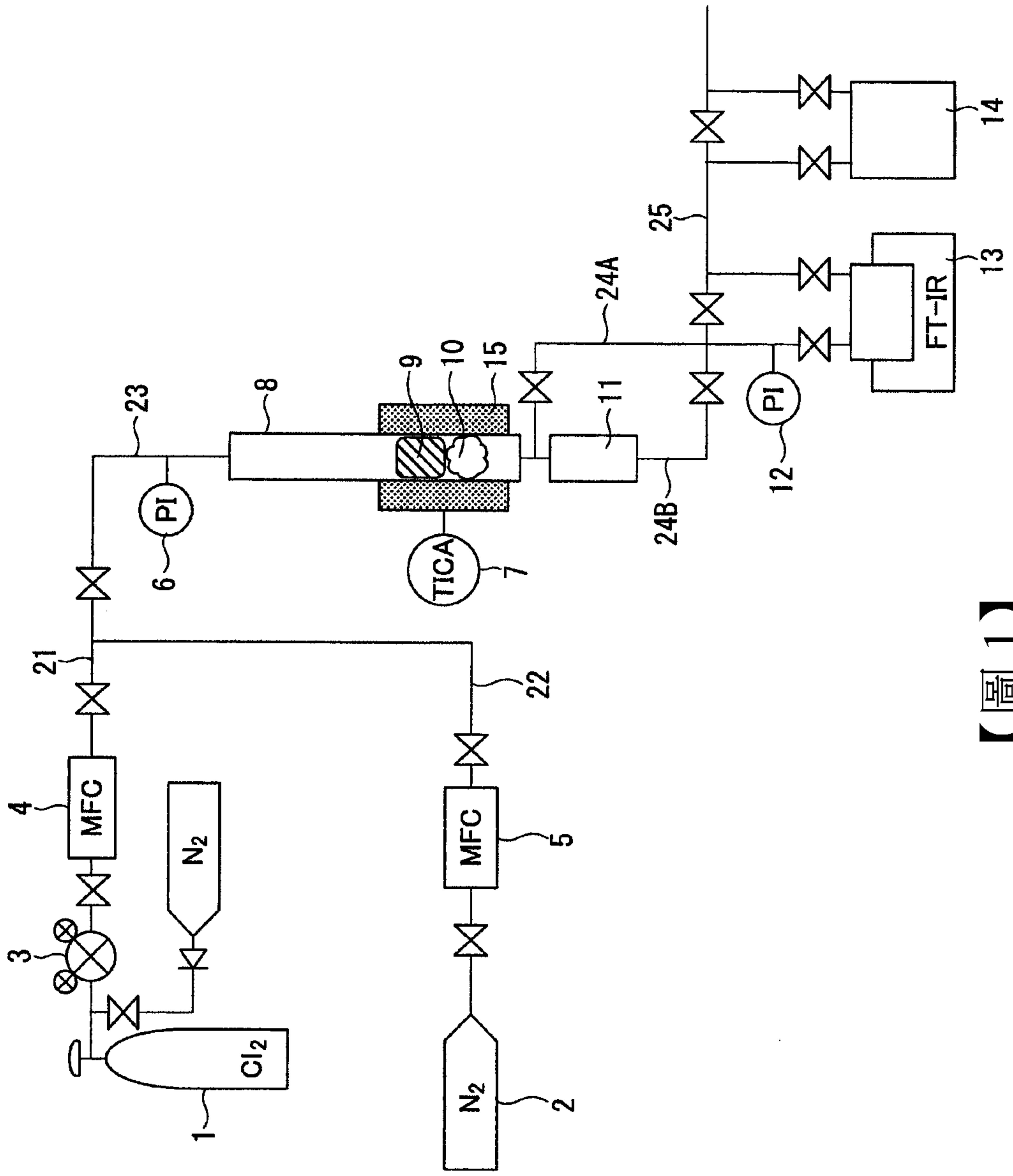
如申請專利範圍第1項所記載之三氯化硼之製造方

法，其中，在前述生成工程中，以 550°C 以上 1100°C 以下之溫度而使前述碳化硼與前述氯氣含有氣體接觸者。

【第3項】

如申請專利範圍第1項或第2項記載之三氯化硼之製造方法，其中，在前述金屬氯化工程中所使用之前述氯氣含有氣體係由50體積%以上100體積%以下的氯氣與殘留部之非活性氣體所成者。

【發明圖式】



【圖 1】