

【公報種別】特許法第 17 条の 2 の規定による補正の掲載

【部門区分】第 3 部門第 1 区分

【発行日】平成20年11月27日(2008.11.27)

【公開番号】特開2007-99600(P2007-99600A)

【公開日】平成19年4月19日(2007.4.19)

【年通号数】公開・登録公報2007-015

【出願番号】特願2005-295498(P2005-295498)

【国際特許分類】

C 0 1 B 21/083 (2006.01)

B 0 1 J 19/00 (2006.01)

【F I】

C 0 1 B 21/083

B 0 1 J 19/00 H

B 0 1 J 19/00 3 0 1 B

【手続補正書】

【提出日】平成20年10月7日(2008.10.7)

【手続補正 1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

フッ素ガスとアンモニアガスとを管状反応器に供給して、希釈ガスの存在下、気相中、無触媒条件で反応させて、主として三フッ化窒素からなるガス生成物と主としてフッ化アンモニウムおよび / または酸性フッ化アンモニウムからなる固形生成物とを生成させる三フッ化窒素の製造方法であって、前記管状反応器を 2 つ以上使用し、かつ、これら 2 つ以上の管状反応器を切り替えながら上記反応を行うことを特徴とする三フッ化窒素の製造方法。

【請求項 2】

前記管状反応器に装着された、ハンマリング装置および / または掻き取り機により、前記管状反応器の内壁に付着した前記固形生成物を除去することを特徴とする請求項 1 に記載の三フッ化窒素の製造方法。

【請求項 3】

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

【請求項 4】

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

【請求項 5】

前記ハンマリング装置が前記反応器の外部に装着されたエアノッカーであり、該エアノッカーにより前記固形生成物を払い落として除去することを特徴とする請求項 2 ~ 4 のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【請求項 6】

前記掻き取り機を、前記管状反応器内部を鉛直上下方向に自在に駆動させて前記固形生成物を掻き取り除去することを特徴とする請求項 2 ~ 4 のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【請求項 7】

前記掻き取り機を、前記管状反応器の半径方向断面の中心を通る鉛直軸を中心軸として該反応器内部を自在に回転させて前記固形生成物を掻き取り除去することを特徴とする請求項 2 ～ 4 および 6 のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【請求項 8】

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

前記管状反応器に装着された、ハンマリング装置および / または掻き取り機により、前記管状反応器の内壁に付着した前記固形生成物を除去し、
該固形生成物を反応器下部に設けられた固形分を分離、排出する装置およびフィルターにより前記ガス生成物から除去することを特徴とする三フッ化窒素の製造方法。

【請求項 9】

前記ハンマリング装置が前記反応器の外部に装着されたエアノッカーであり、該エアノッカーにより前記固形生成物を払い落として除去することを特徴とする請求項 8 に記載の三フッ化窒素の製造方法。

【請求項 10】

前記掻き取り機を、前記管状反応器内部を鉛直上下方向に自在に駆動させて前記固形生成物を掻き取り除去することを特徴とする請求項 8 に記載の三フッ化窒素の製造方法。

【請求項 11】

前記掻き取り機を、前記管状反応器の半径方向断面の中心を通る鉛直軸を中心軸として該反応器内部を自在に回転させて前記固形生成物を掻き取り除去することを特徴とする請求項 8 または 10 に記載の三フッ化窒素の製造方法。

【請求項 12】

前記管状反応器が冷却構造を有することを特徴とする請求項 1 ～ 11 のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【請求項 13】

フッ素ガスとアンモニアガスとを 60 以下の温度で反応させることを特徴とする請求項 1 ～ 12 のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【請求項 14】

フッ素ガスとアンモニアガスとを、モル比（フッ素ガス：アンモニアガス）が 1：1 ～ 1：2 の範囲で供給することを特徴とする請求項 1 ～ 13 のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【請求項 15】

前記希釈ガスが、窒素、ヘリウム、アルゴン、六弗化硫黄、ヘキサフルオロエタン、オクタフルオロプロパンおよび三フッ化窒素からなる群より選ばれる少なくとも 1 種のガスであることを特徴とする請求項 1 ～ 14 のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【請求項 16】

希釈ガスを循環使用することを特徴とする請求項 1 ～ 15 のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【請求項 17】

前記反応後、未反応のフッ素ガスをアルカリ水溶液および / またはアルミナで処理することを特徴とする請求項 1 ～ 16 のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【請求項 18】

前記フッ素ガスが、酸素および酸素含有化合物の合計含有量が 0.1 vol % 以下ならびにテトラフルオロメタンの含有量が 50 vol ppm 以下の高純度フッ素ガスであることを特徴とする請求項 1 ～ 17 のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【請求項 19】

前記高純度フッ素ガス中に含まれる酸素含有化合物が、 NO 、 NO_2 、 N_2O 、 CO 、 CO_2 、 H_2O 、 OF_2 および O_2F_2 からなる群より選ばれる少なくとも１種の化合物であることを特徴とする請求項１８に記載の三フッ化窒素の製造方法。

【請求項２０】

前記アンモニアガスが、酸素および酸素含有化合物の合計含有量が１０vol ppm以下ならびに油分の含有量が２質量ppm以下の高純度アンモニアガスであることを特徴とする請求項１～１９のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【請求項２１】

前記高純度アンモニアガス中に含まれる酸素含有化合物が、 NO 、 NO_2 、 N_2O 、 CO 、 CO_2 および H_2O からなる群より選ばれる少なくとも１種の化合物であることを特徴とする請求項２０に記載の三フッ化窒素の製造方法。

【請求項２２】

前記フッ素ガスの供給濃度が３モル％以下であることを特徴とする請求項１～２１のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【請求項２３】

前記アンモニアガスの供給濃度が６モル％以下であることを特徴とする請求項１～２２のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【請求項２４】

フッ素ガスとアンモニアガスとを０．０５～１．０MPaの圧力で反応させることを特徴とする請求項１～２３のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【請求項２５】

フッ素ガス供給手段、アンモニアガス供給手段、固形生成物を除去する手段と反応温度制御手段とを具備した２つ以上の管状反応器、使用する反応器を切り替える手段、該反応器から除去された固形生成物を貯留する手段、および固形生成物とガス成分とを分離する手段を含むことを特徴とする三フッ化窒素の製造装置。

【手続補正２】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】００１２

【補正方法】変更

【補正の内容】

【００１２】

その結果、本発明を完成するに至った。

すなわち、本発明は以下の〔１〕～〔２４〕に示される NF_3 の製造方法および〔２５〕に示される NF_3 の製造装置である。

〔１〕フッ素ガスとアンモニアガスとを管状反応器に供給して、希釈ガスの存在下、気相中、無触媒条件で反応させて、主として三フッ化窒素からなるガス生成物と主としてフッ化アンモニウムおよび／または酸性フッ化アンモニウムからなる固形生成物とを生成させる三フッ化窒素の製造方法であって、前記管状反応器を２つ以上使用し、かつ、これら２つ以上の管状反応器を切り替えながら上記反応を行うことを特徴とする三フッ化窒素の製造方法。

【手続補正３】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】００１８

【補正方法】変更

【補正の内容】

【００１８】

〔８〕長さ方向が鉛直方向となるように設置された管状反応器の上部からフッ素ガスとアンモニアガスとを供給して、希釈ガスの存在下、気相中、無触媒条件で反応させて、主として三フッ化窒素からなるガス生成物と主としてフッ化アンモニウムおよび／または酸性フッ化アンモニウムからなる固形生成物とを生成させる三フッ化窒素の製造方法であっ

て、

前記管状反応器を2つ以上使用し、かつ、これら2つ以上の管状反応器を切り替えながら上記反応を行い、

前記管状反応器に装着された、ハンマリング装置および/または掻き取り機により、前記管状反応器の内壁に付着した前記固形生成物を除去し、

該固形生成物を反応器下部に設けられた固形分を分離、排出する装置およびフィルターにより前記ガス生成物から除去することを特徴とする三フッ化窒素の製造方法。

[9] 前記ハンマリング装置が前記反応器の外部に装着されたエアノッカーであり、該エアノッカーにより前記固形生成物を払い落として除去することを特徴とする [8] に記載の三フッ化窒素の製造方法。

【手続補正4】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0019

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0019】

[10] 前記掻き取り機を、前記管状反応器内部を鉛直上下方向に自在に駆動させて前記固形生成物を掻き取り除去することを特徴とする [8] に記載の三フッ化窒素の製造方法。

【手続補正5】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0020

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0020】

[11] 前記掻き取り機を、前記管状反応器の半径方向断面の中心を通る鉛直軸を中心軸として該反応器内部を自在に回転させて前記固形生成物を掻き取り除去することを特徴とする [8] または [10] に記載の三フッ化窒素の製造方法。

【手続補正6】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0021

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0021】

[12] 前記管状反応器が冷却構造を有することを特徴とする上記 [1] ~ [11] のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

[13] フッ素ガスとアンモニアガスとを60 以下の温度で反応させることを特徴とする上記 [1] ~ [12] のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【手続補正7】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0022

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0022】

[14] フッ素ガスとアンモニアガスとを、モル比（フッ素ガス：アンモニアガス）が1：1～1：2の範囲で供給することを特徴とする上記 [1] ~ [13] のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【手続補正8】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0023

【補正方法】変更

【補正の内容】

【 0 0 2 3 】

【 1 5 】 前記希釈ガスが、窒素、ヘリウム、アルゴン、六弗化硫黄、ヘキサフルオロエタン、オクタフルオロプロパンおよび三フッ化窒素からなる群より選ばれる少なくとも1種のガスであることを特徴とする上記 [1] ~ [1 4] のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【手続補正 9】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】 0 0 2 4

【補正方法】変更

【補正の内容】

【 0 0 2 4 】

【 1 6 】 希釈ガスを循環使用することを特徴とする上記 [1] ~ [1 5] のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【手続補正 1 0】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】 0 0 2 5

【補正方法】変更

【補正の内容】

【 0 0 2 5 】

【 1 7 】 前記反応後、未反応のフッ素ガスをアルカリ水溶液および / またはアルミナで処理することを特徴とする上記 [1] ~ [1 6] のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【手続補正 1 1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】 0 0 2 6

【補正方法】変更

【補正の内容】

【 0 0 2 6 】

【 1 8 】 前記フッ素ガスが、酸素および酸素含有化合物の合計含有量が 0 . 1 v o l % 以下ならびにテトラフルオロメタンの含有量が 5 0 v o l p p m 以下の高純度フッ素ガスであることを特徴とする上記 [1] ~ [1 7] のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【手続補正 1 2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】 0 0 2 7

【補正方法】変更

【補正の内容】

【 0 0 2 7 】

【 1 9 】 前記高純度フッ素ガス中に含まれる酸素含有化合物が、 NO 、 NO_2 、 N_2O 、 CO 、 CO_2 、 H_2O 、 OF_2 および O_2F_2 からなる群より選ばれる少なくとも1種の化合物であることを特徴とする上記 [1 8] に記載の三フッ化窒素の製造方法。

【手続補正 1 3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】 0 0 2 8

【補正方法】変更

【補正の内容】

【 0 0 2 8 】

【 2 0 】 前記アンモニアガスが、酸素および酸素含有化合物の合計含有量が 1 0 v o l

p p m以下ならびに油分の含有量が2質量 p p m以下の高純度アンモニアガスであることを特徴とする上記 [1] ~ [1 9] のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【手続補正 1 4】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0 0 2 9

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0 0 2 9】

[2 1] 前記高純度アンモニアガス中に含まれる酸素含有化合物が、 NO 、 NO_2 、 N_2O 、 CO 、 CO_2 および H_2O からなる群より選ばれる少なくとも1種の化合物であることを特徴とする上記 [2 0] に記載の三フッ化窒素の製造方法。

【手続補正 1 5】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0 0 3 0

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0 0 3 0】

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

[2 3] 前記アンモニアガスの供給濃度が6モル%以下であることを特徴とする上記 [1] ~ [2 2] のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【手続補正 1 6】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0 0 3 1

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0 0 3 1】

[2 4] フッ素ガスとアンモニアガスとを0.05 ~ 1.0 MPaの圧力で反応させることを特徴とする上記 [1] ~ 2 3 のいずれかに記載の三フッ化窒素の製造方法。

【手続補正 1 7】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0 0 3 2

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0 0 3 2】

[2 5] フッ素ガス供給手段、アンモニアガス供給手段、固形生成物を除去する手段と反応温度制御手段とを具備した2つ以上の管状反応器、使用する反応器を切り替える手段、該反応器から除去された固形生成物を貯留する手段、および固形生成物とガス成分とを分離する手段を含むことを特徴とする三フッ化窒素の製造装置。

【手続補正 1 8】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0 0 3 3

【補正方法】削除

【補正の内容】

【手続補正 1 9】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0 0 3 4

【補正方法】削除

【補正の内容】

【手続補正 2 0】

【補正対象書類名】明細書
【補正対象項目名】0035
【補正方法】削除
【補正の内容】