



(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 I585040 B

(45) 公告日：中華民國 106 (2017) 年 06 月 01 日

(21) 申請案號：104106338

(22) 申請日：中華民國 104 (2015) 年 02 月 26 日

(51) Int. Cl. : C01B33/107 (2006.01)

C01G17/04 (2006.01)

B01J19/08 (2006.01)

(30) 優先權：2014/03/03 德國

102014203810.3

(71) 申請人：贏創德固賽有限責任公司 (德國) EVONIK DEGUSSA GMBH (DE)

德國

(72) 發明人：皮瑞茲 加內那 PEREZ, JANAINA MARINAS (ES)；羅里德 哈特威格
 RAULEDER, HARTWIG (DE)；朗 裘根 LANG, JUERGEN ERWIN (DE)；喬茲
 克里斯汀 GOETZ, CHRISTIAN (DE)；尤仁柏 戈斯溫 UEHLENBRUCK,
 GOSWIN (DE)

(74) 代理人：林志剛

(56) 參考文獻：

CN 101298457A

審查人員：吳國宇

申請專利範圍項數：13 項 圖式數：0 共 18 頁

(54) 名稱

製備純八氯三矽烷及十氯四矽烷之方法

PROCESS FOR THE PREPARATION OF PURE OCTACHLOROTRISILANES AND
 DECACHLOROTETRASILANES

(57) 摘要

本發明關於製造三聚型及/或四聚型矽化合物或三聚型及/或四聚型鍺化合物之方法，其中將矽化合物的混合物或鍺化合物的混合物暴露於非熱電漿，且對所得相進行至少一次真空精餾及過濾。

The invention relates to a process for producing trimeric and/or quaternary silicon compounds or trimeric and/or quaternary germanium compounds, where a mixture of silicon compounds or a mixture of germanium compounds is exposed to a nonthermal plasma, and the resulting phase is subjected at least once to a vacuum rectification and filtration.

發明摘要

※申請案號：104106338

※申請日：104年02月26日

※IPC分類：

C01B33/107(2006.01)

C01G17/04(2006.01)

B01J19/08(2006.01)

【發明名稱】(中文/英文)

製備純八氯三矽烷及十氯四矽烷之方法

Process for the preparation of pure octachlorotrisilanes and
decachlorotetrasilanes

【中文】

本發明關於製造三聚型及/或四聚型矽化合物或三聚型及/或四聚型鍺化合物之方法，其中將矽化合物的混合物或鍺化合物的混合物暴露於非熱電漿，且對所得相進行至少一次真空精餾及過濾。

【英文】

The invention relates to a process for producing trimeric and/or quaternary silicon compounds or trimeric and/or quaternary germanium compounds, where a mixture of silicon compounds or a mixture of germanium compounds is exposed to a nonthermal plasma, and the resulting phase is subjected at least once to a vacuum rectification and filtration.

【代表圖】

【本案指定代表圖】：無

【本代表圖之符號簡單說明】：無

【本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式】：無

發明專利說明書

(本說明書格式、順序，請勿任意更動)

【發明名稱】(中文/英文)

製備純八氯三矽烷及十氯四矽烷之方法

Process for the preparation of pure octachlorotrisilanes and
decachlorotetrasilanes

【技術領域】

本發明關於自氯矽烷製造高純度及超高純度八氯三矽烷及十氯四矽烷之方法及設備，其係藉由將單體氯矽烷暴露於非熱電漿且將所得相真空蒸餾來進行。

【先前技術】

先前技術揭示用於製備聚氯矽烷之方法。例如，DE 10 2006 034 061 揭示將四氯化矽與氫來製備聚矽烷反應。因為在氫的存在下反應，所以所製得的聚矽烷含有氫。為了能夠維持設備連續操作，故添加相對於氫為過量四氯矽烷。此外，所揭示之設備具有複雜的結構且僅允許製備聚矽烷混合物。提高的聚矽烷分子量僅可經由串接的複數個反應器與高頻率發生器而達成。在通過每個串接的電漿反應器之後，聚矽烷的分子量在各電漿反應器之後增加。所揭示之方法受限於可轉化成氣相而不分解的化合物之製備。

EP 1 264 798 A1 揭示在製備多晶矽期間用於處理包

含六氯二矽烷的副產物之方法。

US 4,542,002 和 WO 2009/143823 A2 亦揭示自四氯化矽及氫開始製備聚氯矽烷之電漿-化學方法。製備的結果獲得含氫之聚氯矽烷。根據 WO 2009/143823 A2，獲得含氫之高分子量聚氯矽烷的混合物。存在於聚氯矽烷中的四氯化矽在進一步使用之前必須以蒸餾移出，因此承擔了複雜性。在先前技術中特別的缺點為在氣態氫的存在下製備聚氯矽烷之需求。因此對材料及設備的防護措施加諸非常高的安全要求。

因此，在先前技術中習知於電漿中進行轉化反應，以產生複雜的混合物，其中實際的所欲產物與許多副產物及/或與在結構方面呈現非常接近於所欲產物之副產物一起出現。

本發明的目的係製造產業上有用的三聚型或四聚型氯矽烷或三聚型或四聚型氯鍺化合物。本發明的目的亦提供用於溫和分離三聚型或四聚型氯矽烷之經濟方法。

驚訝地發現將通式 $\text{Si}_n(\text{R}_1 \dots \text{R}_{2n+2})$ 之矽化合物(其為例如四氯化矽)的混合物，或通式 $\text{Ge}_n(\text{R}_1 \dots \text{R}_{2n+2})$ 之鍺化合物的混合物(其中 n 為至少 2，及 R_1 至 R_{2n+2} 為氫，及/或 $\text{X} = \text{氯、溴及/或碘}$) 在非熱電漿中轉化成通式 Si_3X_8 或 Si_4X_{10} 之矽化合物的混合物或通式 Ge_3X_8 或 Ge_4X_{10} 之鍺化合物的混合物，以及矽或鍺的更多聚化合物。

該等聚化合物具有至少兩個矽或鍺原子。就其本身而論，尤其涵蓋十二氯五矽烷及其結構性異構物或鍺之化合

物。同樣驚訝的是此種製備方法實質上可在沒有氫存在下於非熱電漿中進行。

此外，驚訝地發現在對所得相的至少一次真空精餾之後，在非熱電漿中所獲得的三聚型或四聚型矽或鍺化合物係以高純度獲得，而在電漿中的方法通常係預期與許多其他的化合物一起獲得。

● 【發明內容】

本發明因此提供一種用於製備通式 Si_3X_8 及/或 Si_4X_{10} 之三聚型/或四聚型矽化合物或通式 Ge_3X_8 及/或 Ge_4X_{10} 之三聚型/或四聚型鍺化合物之方法，

- a) 其中將通式 $\text{Si}_n(\text{R}_1 \dots \text{R}_{2n+2})$ 之矽化合物的混合物或通式 $\text{Ge}_n(\text{R}_1 \dots \text{R}_{2n+2})$ 之鍺化合物的混合物暴露於非熱電漿，

其中 $n \geq 2$ ，且 R_1 至 R_{2n+2} 為氫及/或 X，

且 X = 鹵素，且鹵素係選自氯、溴及/或碘，及

- b) 對所得相進行至少一次真空精餾及過濾，

其中獲得通式 Si_3X_8 或 Si_4X_{10} 之矽化合物或通式 Ge_3X_8 或 Ge_4X_{10} 之鍺化合物。

在本發明的上下文中，將詞句“通式 Si_3X_8 或 Si_4X_{10} 之矽化合物或通式 Ge_3X_8 或 Ge_4X_{10} 之鍺化合物”縮寫成“產物”，且將步驟 a 中所使用的通式 $\text{Si}_n(\text{R}_1 \dots \text{R}_{2n+2})$ 之矽化合物的混合物或通式 $\text{Ge}_n(\text{R}_1 \dots \text{R}_{2n+2})$ 之鍺化合物的混合物縮寫成“起始材料”。

根據本發明之方法的經濟優點特別藉由根據本發明之具有配置在兩個管柱之間的氣體放電反應器之設備而達成。

所得產物較佳地不含有氫。在本發明的上下文中，若氫原子的含量少於 1×10^{-3} 重量%，較佳為少於 1×10^{-4} 重量%，更佳為少於 1×10^{-6} 重量%到少至偵測極限(目前在 1×10^{-10} 重量%)，則適用不含有氫。

用於測定氫原子含量的較佳方法為 $^1\text{H-NMR}$ 光譜術。使用 ICP-MS 來測定以其他下列特定元素的整體污染輪廓。

根據本發明之方法的特別主要優點為所得產物的直接可用性，不進一步純化而用於以太陽能技術沉積適當品質或半導體品質的高純度矽或鍺層。

本發明因此同樣地提供根據本發明所製得的產物用於製造氮化矽、氮氧化矽、碳化矽、碳氧化矽或氧化矽，或氮化鍺、氮氧化鍺、碳化鍺、碳氧化鍺或氧化鍺之用途。

根據本發明之方法於下文更詳細解釋。

在方法的步驟 a 中，反應係在非熱電漿中進行。可能有利的是使用氣體放電反應器及配置在下游的管柱。

較佳地可將其中 $n \geq 3$ 之起始材料用於根據本發明之方法中。

在根據本發明之方法中，較佳地使用具有少於或等於 100 重量 ppm 至 0.001 重量 ppt 之下列特定元素的總污染量的起始材料。以少於或等於 50 重量 ppm 至 0.001 重量

ppt 之下列特定元素的總污染量定義超高純度起始材料，以少於或等於 40 重量 ppm 至 0.001 重量 ppt 之整體雜質較佳。此外，整體污染物的含量較佳為少於或等於 100 重量 ppm 至 0.001 重量 ppt，尤其佳為少於或等於 50 重量 ppm 至 0.001 重量 ppt，其中起始材料的污染物輪廓係如下：

- a. 從 15 重量 ppm 至 0.0001 重量 ppt 之鋁，及/或
- b. 少於或等於 5 至 0.0001 重量 ppt 之硼，
較佳在從 3 重量 ppm 至 0.0001 重量 ppt 之範圍內，
及/或
- c. 少於或等於 2 重量 ppm 之鈣，
較佳為從 2 重量 ppm 至 0.0001 重量 ppt，及/或
- d. 從 5 重量 ppm 至 0.0001 重量 ppt 之鐵，
較佳為從 0.6 重量 ppm 至 0.0001 重量 ppt，及/或
- e. 從 5 重量 ppm 至 0.0001 重量 ppt 之鎳，
較佳為從 0.5 重量 ppm 至 0.0001 重量 ppt，及/或
- f. 從 5 重量 ppm 至 0.0001 重量 ppt 之磷，
較佳為從 3 重量 ppm 至 0.0001 重量 ppt，及/或
- g. 少於或等於 10 重量 ppm 之鈦，
少於或等於 2 重量 ppm，
較佳為從 1 重量 ppm 至 0.0001 重量 ppt，
更佳為從 0.6 重量 ppm 至 0.0001 重量 ppt，
更佳為從 0.1 重量 ppm 至 0.0001 重量 ppt，及/或
- h. 少於或等於 3 重量 ppm 之鋅，

較佳為從 1 重量 ppm 至 0.0001 重量 ppt，

更佳為從 0.3 重量 ppm 至 0.0001 重量 ppt，及/或

i. 碳，

其中碳的標的濃度係在熟習所屬技術領域者已知的測量方法背景中習知的偵測極限。

上述元素的總污染量較佳地藉助於 ICP-MS 來測定。整體而言，本方法可藉助於線上分析而連續監測。所需純度可藉助於 GC、IR、NMR、ICP-MS，或在 Si 沈積之後藉由電阻測量或 GD-MS 來檢查。

同樣有利的是有可能免除使用昂貴的惰性稀有氣體。另一選擇地，有可能添加逸入氣體(entraining gas)，較佳為加壓之惰性氣體，諸如氮、氬、其他稀有氣體或其混合物。

該方法的其他優點為以極佳的方式選擇性製備超高純度八氯三矽烷，其可具有低含量的超高純度六氯二矽烷、超高純度十氯四矽烷及/或十二氯五矽烷且符合半導體工業的要求。

在根據本發明之方法中，可獲得純度在 ppb 範圍內的產物。

根據本方法，既獲得八氯三矽烷及/或十氯四矽烷，另外亦可額外獲得六氯二矽烷、十二氯五矽烷或包含特定的聚氯矽烷中之至少二者的混合物。

在根據本發明之方法中，可獲得如下定義之“高純度”及“超高純度”產物。

高純度產物具有少於或等於 100 重量 ppm 之總污染含量，及超高純度產物具有少於或等於 50 重量 ppm 之總污染含量。

總污染量為一個、更多個或全部選自硼、磷、碳和外來金屬、以及氫之元素的污染量總和，較佳地選自硼、磷、碳、鋁、鈣、鐵、鎳、鈦和鋅及/或氫。

超高純度產物的該等污染物輪廓係如下：

- a. 少於或等於 5 重量 ppm 之鋁，或
從 5 重量 ppm 至 0.0001 重量 ppt，
較佳為從 3 重量 ppm 至 0.0001 重量 ppt，及/或
- b. 從 10 重量 ppm 至 0.0001 重量 ppt 之硼，
較佳在從 5 至 0.0001 重量 ppt 之範圍內，
更佳在從 3 重量 ppm 至 0.0001 重量 ppt，及/或
- c. 少於或等於 2 重量 ppm 之鈣，
較佳為從 2 重量 ppm 至 0.0001 重量 ppt，及/或
- d. 少於或等於 20 重量 ppm 之鐵，
較佳為從 10 重量 ppm 至 0.0001 重量 ppt，
更佳為從 0.6 重量 ppm 至 0.0001 重量 ppt，及/或
- e. 少於或等於 10 重量 ppm 之鎳，
較佳為從 5 重量 ppm 至 0.0001 重量 ppt，
更佳為從 0.5 重量 ppm 至 0.0001 重量 ppt，及/或
- f. 少於 10 重量 ppm 至 0.0001 重量 ppt 之磷，
較佳為從 5 重量 ppm 至 0.0001 重量 ppt，
更佳為從 3 重量 ppm 至 0.0001 重量 ppt，及/或

- g. 少於或等於 10 重量 ppm 之鈦，
少於或等於 2 重量 ppm，
較佳為從 1 重量 ppm 至 0.0001 重量 ppt，
更佳為從 0.6 重量 ppm 至 0.0001 重量 ppt，
更佳為從 0.1 重量 ppm 至 0.0001 重量 ppt，及/或
- h. 少於或等於 3 重量 ppm 之鋅，
較佳為從 1 重量 ppm 至 0.0001 重量 ppt，
更佳為從 0.3 重量 ppm 至 0.0001 重量 ppt，
- i. 碳，及
- j. 氫，

其中氫和碳的標的含量在各例子中係在熟習所屬技術領域者已知的測量方法之偵測極限範圍內的濃度。

以前述元素或污染物的產物總污染量在高純度產物中總計在從 100 重量 ppm 至 0.001 重量 ppt 之範圍內，且在超高純度產物中較佳為總計在從 50 重量 ppm 至 0.001 重量 ppt 之範圍內。根據本發明所獲得的產物具有在熟習所屬技術領域者已知的測量方法之偵測極限範圍內的氫濃度。

在本方法中，使用具有兩個管柱的氣體放電反應器產生非熱電漿。根據本方法，非熱電漿較佳為以電產生之電漿。此電漿係在其中誘發電漿-電轉換且建基於非等溫電漿之電漿反應器中產生。高的電子溫度 $T_e \geq 10^4$ K 及相對低的氣體溫度 $T_G \leq 10^3$ K 為該等電漿的特徵。化學方法所需之活化能量主要經由電子碰撞(電漿-電轉換)來進行。典

型的非熱電漿可藉由例如輝光放電、HF 放電、中空陰極放電或電暈放電來產生。進行根據本發明之電漿處理的操作壓力較佳為 1 至 1000 mbar_{abs}，尤其佳為 100 至 500 mbar_{abs}，尤其為 200 至 500 mbar_{abs}，其中欲處理之相較佳地調整至 -40°C 至 200°C 之溫度，尤其佳為 20 至 80°C，最尤其佳為 30 至 70°C。在銻化合物的例子中，對應之溫度可與此不同 - 較高或較低。

● 關於非熱電漿之定義，參照相關的專業文獻，諸如參照 “Plasmatechnik: Grundlagen und Anwendungen – Eine Einführung [Plasma Technology: Fundamentals and Applications – An Introduction]; team of authors”, Carl Hanser Verlag, Munich/Vienna; 1984, ISBN 3-446-13627-4。

● 帕申定律 (Paschen's law) 陳述電漿放電之起始電壓實質上為氣體壓力 p 與電極距離 d 之乘積 $p \cdot d$ 的函數。關於根據本發明之方法，此乘積係在從 0.001 至 300 mm·bar 之範圍內，較佳為從 0.01 至 100 mm·bar，尤其佳為 0.05 至 10 mm·bar，尤其為 0.07 至 2 mm·bar。放電可藉助於從 1 至 1000 kV 的各種 AC 電壓及/或脈衝電壓來誘發。電壓的大小以熟習所屬技術領域者已知的方式不僅取決於放電設定的 $p \cdot d$ 值，並亦取決於處理氣體本身。尤其適合的電壓為那些在反應器的整個放電空間內容許高的邊緣斜度 (edge slope) 且同時形成放電的脈衝電壓

AC 電壓及/或耦合電磁脈衝對時間的分布可為矩形、

梯形、脈衝式或由個別的時間分布之區段所組成。AC 電壓及耦合電磁脈衝可以每一種該等時間分布的形式組合。

在本發明之方法中，AC 電壓頻率 f 可在從 1 Hz 至 100 GHz 之範圍內，較佳為從 1 Hz 至 100 MHz。重疊在此基礎頻率上的電磁脈衝之重複率 g 可經選擇在從 0.1 kHz 至 50 MHz 之範圍內，較佳為從 50 kHz 至 50 MHz。該等脈衝之振幅可經選擇從 1 至 15 kV_{pp} (kV 峰對峰)，較佳為從 1 至 10 kV_{pp}，更佳為從 1 至 8 kV_{pp}。

該等脈衝可具有熟習所屬技術領域者已知的所有形狀，例如正弦、矩形、三角形或其組合。尤其佳的形狀為矩形或三角形。

與沒有耦合電磁脈衝及產生電漿的 AC 電壓之正弦分布的先前技術之方法相比，這本身係建基於時間(time-based)而大幅地增加高純度或超高純度產物之產率。

在根據本發明之方法中，若耦合至電漿中的電磁脈衝與至少一個具有相同重複率的其他電磁脈衝重疊時，或兩個或至少兩個脈衝相對於彼此而具有 1 至 1000 之負荷比(duty ratio)時，則可達成進一步的產率增加。較佳地選擇具有矩形形狀且在各例子中具有 10 之負荷比及非常高的邊緣斜度的兩個脈衝。邊緣斜度愈大，則產率愈高。對該等脈衝所選擇的振幅可為從 1 至 15 kV_{pp}，較佳為從 1 至 10 kV_{pp}。

產率隨著重複率增加。例如，在具有數倍基礎頻率(例如，10 倍基礎頻率)之重複率的例子中可發現飽和效

果，其中不再造成產率增加。此飽和效果可取決於氣體組成、實驗設定之 $p \cdot d$ 值，並亦取決於電漿反應器對該電子穩壓器的電調節。

在本發明之方法中，電磁脈衝或脈衝等可通過具有電流或電壓感應(impression)之脈衝穩壓器耦合。若脈衝係受電流感應，則獲得較大的邊緣斜度。

在根據本發明之方法的另一實施態樣中，脈衝亦可以熟習所屬技術領域者已知的瞬間非同步(transient asynchronous)方式代替周期同步方式耦合。

對根據本發明之方法的步驟 a 之後所獲得的所得相於步驟 b 中進行至少一次(較佳為一次)真空精餾及過濾。

較佳地可在步驟 b 中進行真空精密蒸餾，其分離出較高分子量的聚氯矽烷或鍺化合物。另一選擇地或另外，亦可繼而進行層析整理，以便於分離出污染物或另外以便於調整通式 Si_3X_8 或 Si_4X_{10} 之矽化合物或通式 Ge_3X_8 或 Ge_4X_{10} 之鍺化合物的含量。

亦可有利地連續進行方法步驟 a 及/或 b。

本發明同樣地提供用於連續進行根據本發明之方法的設備，該設備的特徵為其具有產生非熱電漿的反應器，及至少一個真空精餾管柱，及至少一個過濾設備，及/或吸附設備。

根據本發明之設備可具有臭氧產生器(ozonizator)作為反應器。反應器較佳地可配備有多個玻璃管，尤其為石英玻璃管。設備之玻璃管可藉助於惰性材料所製成之間隔物

而保持距離。此等間隔物最好由玻璃或特夫綸 (Teflon) 製成。

本發明亦提供根據本發明所製得的矽化合物或鍺化合物用於製造氮化矽、氮氧化矽、碳化矽、碳氧化矽或氧化矽，或氮化鍺、氮氧化鍺、碳化鍺、碳氧化鍺或氧化鍺之用途。

根據本發明所獲得的產物較佳地用於製造氮化矽、氮氧化矽、碳化矽、碳氧化矽或氧化矽之層，或氮化鍺、氮氧化鍺、碳化鍺、碳氧化鍺或氧化鍺之層。

【實施方式】

根據本發明之方法係參考實施例而於下文例證。

實施例 1 (分離八氯三矽烷)

在精餾設備中，將包含三矽烷和寡聚矽烷的 1212 克矽烷混合物在作為保護氣體之氮氛圍下引入精餾罐中。接著將設備抽空至 8 mbar 且加熱至 157°C。獲得 269 克八氯三矽烷。

將由於管柱蒸餾而獲得的八氯三矽烷在保護氣體下通過 0.45 μm 聚丙烯過濾器過濾，且在此方式中以此溫和方式獲得高純度八氯三矽烷。

實施例 2 (分離八氯三矽烷)

在精餾設備中，將包含三矽烷和寡聚矽烷的 300 公斤

矽烷混合物在保護氣體條件下(氮氛圍)引入精餾罐中。

以不銹鋼蒸餾包裝填充之精餾單元具有介於 80 與 120 個之間的理論板數。

將設備抽空至 9.3 mbar 且加熱至 170°C。獲得具有以氣相層析術所測得的超過 95%純度之 121.6 公斤八氯三矽烷。

將由於管柱蒸餾而獲得的八氯三矽烷在保護氣體下通過 0.45 μm 聚丙烯過濾器過濾，且在此方式中獲得高純度八氯三矽烷。

實施例 3 (分離十氯四矽烷)

在精餾設備中，將包含寡聚矽烷的 468 克矽烷混合物在作為保護氣體之氮氛圍下引入精餾罐中。接著將設備抽空至 2 mbar 且加熱至 157°C。獲得 160 克十氯四矽烷。

將由於管柱蒸餾而獲得的十氯四矽烷在保護氣體下通過 0.45 μm 聚丙烯過濾器過濾，且在此方式中以此溫和方式獲得高純度十氯四矽烷。

實施例 4 (分離十氯四矽烷)

在精餾設備中，將包含三矽烷和寡聚矽烷的 300 公斤矽烷混合物在保護氣體條件下(氮氛圍)引入精餾罐中。

以不銹鋼蒸餾包裝填充之精餾單元具有介於 80 與 120 個之間的理論板數。

在分離八氯三矽烷之後，如實施例 2 中所述，將設備

抽空至 3.33 mbar 且加熱至 184°C。獲得具有以氣相層析術所測定的超過 95%純度之 39.6 公斤十氯四矽烷。

將由於管柱蒸餾而獲得的十氯四矽烷在保護氣體下通過 0.45 μm 聚丙烯過濾器過濾，且在此方式中以此溫和方式獲得高純度十氯四矽烷。

申請專利範圍

1. 一種製備通式 Si_3X_8 及/或 Si_4X_{10} 之三聚型及/或四聚型矽化合物或通式 Ge_3X_8 及/或 Ge_4X_{10} 之三聚型及/或四聚型鍺化合物之方法，

a) 其中將通式 $\text{Si}_n(\text{R}_1 \dots \text{R}_{2n+2})$ 之矽化合物的混合物或通式 $\text{Ge}_n(\text{R}_1 \dots \text{R}_{2n+2})$ 之鍺化合物的混合物暴露於非熱電漿，

其中 $n \geq 2$ ，且 R_1 至 R_{2n+2} 為 X ，且 $\text{X} =$ 鹵素且在各出現場合係獨立選自氯、溴或碘，及

b) 對所得相進行至少一次真空精餾及過濾，其中獲得通式 Si_3X_8 或 Si_4X_{10} 之矽化合物或通式 Ge_3X_8 或 Ge_4X_{10} 之鍺化合物。

2. 根據申請專利範圍第 1 項之方法，其中 $n \geq 3$ 。

3. 根據申請專利範圍第 1 或 2 項之方法，其中在步驟 b 之後或在步驟 b 之前對該所得相進行吸附。

4. 根據申請專利範圍第 1 或 2 項之方法，其中該方法步驟 a) 及/或 b) 係連續進行。

5. 根據申請專利範圍第 1 或 2 項之方法，其中在方法步驟 a) 中的該非熱電漿處理係在從 1 至 1000 mbar_{abs} 之壓力下進行。

6. 一種用於連續進行根據申請專利範圍第 1 至 5 項之方法的設備，其特徵為其具有產生非熱電漿的反應器，及至少一個真空精餾管柱，及至少一個過濾設備，及/或吸附設備。

7. 根據申請專利範圍第 6 項之設備，其中該反應器為臭氧產生器(ozonizator)。

8. 根據申請專利範圍第 6 或 7 項中任一項之設備，其中該反應器配備有多個玻璃管。

9. 根據申請專利範圍第 8 項之設備，其中該等玻璃管為石英玻璃管。

10. 根據申請專利範圍第 8 項之設備，其中在該反應器中的該等玻璃管係藉由惰性材料所製成之間隔物而保持距離。

11. 根據申請專利範圍第 10 項之設備，其中該間隔物的材料為玻璃或特夫綸(Teflon)。

12. 一種根據申請專利範圍第 1 至 5 項中任一項所製得的矽化合物或鍺化合物之用途，其係用於製造氮化矽、氮氧化矽、碳化矽、碳氧化矽或氧化矽，或氮化鍺、氮氧化鍺、碳化鍺、碳氧化鍺或氧化鍺。

13. 根據申請專利範圍第 12 項之用途，其係用於製造氮化矽、氮氧化矽、碳化矽、碳氧化矽或氧化矽之層，或氮化鍺、氮氧化鍺、碳化鍺、碳氧化鍺或氧化鍺之層。