

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第4687792号
(P4687792)

(45) 発行日 平成23年5月25日(2011.5.25)

(24) 登録日 平成23年2月25日(2011.2.25)

(51) Int.Cl. F I
C O 1 B 7/24 (2006.01) C O 1 B 7/24

請求項の数 8 (全 12 頁)

(21) 出願番号	特願2008-539871 (P2008-539871)	(73) 特許権者	000002853 ダイキン工業株式会社 大阪府大阪市北区中崎西2丁目4番12号 梅田センタービル
(86) (22) 出願日	平成19年10月18日(2007.10.18)	(74) 代理人	100100158 弁理士 鮫島 睦
(86) 国際出願番号	PCT/JP2007/070357	(74) 代理人	100068526 弁理士 田村 恭生
(87) 国際公開番号	W02008/047871	(72) 発明者	吉見 仁志 大阪府摂津市西一津屋1番1号 ダイキン 工業株式会社淀川製作所内
(87) 国際公開日	平成20年4月24日(2008.4.24)	(72) 発明者	平田 達也 大阪府摂津市西一津屋1番1号 ダイキン 工業株式会社淀川製作所内
審査請求日	平成21年4月16日(2009.4.16)		
(31) 優先権主張番号	特願2006-285733 (P2006-285733)		
(32) 優先日	平成18年10月20日(2006.10.20)		
(33) 優先権主張国	日本国(JP)		

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 五フッ化ヨウ素の製造方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

フッ素とヨウ素とを反応させて五フッ化ヨウ素を製造する方法であって、
ヨウ素を含む五フッ化ヨウ素の液相に隣接する気相にフッ素を供給し、
ヨウ素を含む五フッ化ヨウ素の液相は、フッ化水素を更に含み、
ヨウ素を含む五フッ化ヨウ素の液相は、その全体の質量基準で1.0～20質量%のフッ化水素を含む
ことを特徴とする五フッ化ヨウ素の製造方法。

【請求項2】

五フッ化ヨウ素の液相は、溶解しているヨウ素を含む溶液状態、または液相中に分散しているヨウ素を含むスラリー状態であることを特徴とする、請求項1に記載の五フッ化ヨウ素の製造方法。

【請求項3】

フッ素を気相に連続的に、供給することを特徴とする、請求項1または請求項2に記載の五フッ化ヨウ素の製造方法。

【請求項4】

ヨウ素を含む五フッ化ヨウ素の液相を反応器に連続的または間欠的に供給し、反応器からその中に存在する液相の一部分を連続的または間欠的に取り出すことを特徴とする、請求項1～3のいずれかに記載の五フッ化ヨウ素の製造方法。

【請求項5】

10

20

フッ化水素を気相に供給することによって液相がフッ化水素を含むことを特徴とする請求項 1 ~ 4 のいずれかに記載の五フッ化ヨウ素の製造方法。

【請求項 6】

フッ化水素は、フッ素との混合ガスとして気相に供給することを特徴とする請求項 5 に記載の五フッ化ヨウ素の製造方法。

【請求項 7】

気相に供給されたフッ素の転化率は、90%以上であることを特徴とする請求項 1 ~ 6 のいずれかに記載の五フッ化ヨウ素の製造方法。

【請求項 8】

フッ化水素を液相に供給することを特徴とする請求項 1 ~ 7 のいずれかに記載の五フッ化ヨウ素の製造方法。

10

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、ヨウ素とフッ素とを反応させることによって五フッ化ヨウ素 (IF_5) を製造する方法に関する。五フッ化ヨウ素は、反応性に富むフッ素化剤または含フッ素化合物の中間体製造の原料として有用である。

【背景技術】

【0002】

ヨウ素とフッ素との反応によって五フッ化ヨウ素を製造する方法としては、例えば、五フッ化ヨウ素中に溶解させたヨウ素とフッ素との向流接触法(特許文献 1 参照)、熔融ヨウ素またはスラリー状ヨウ素中へのフッ素のバブリング法(特許文献 2 および 3 参照)等がある。

20

【0003】

これらの方法では、フッ素は液相中に供給され、そのために希釈ガスとして使用している窒素、未反応フッ素等によってヨウ素の昇華が促進され、その結果、反応器の出口配管にヨウ素が固化・付着し、最終的には、配管が閉塞する危険性がある。また、それを回避するため温度を上げて運転することは困難である。

【0004】

また、五フッ化ヨウ素の生成熱は 920 kJ/mol と大きく、配管に固化・付着したヨウ素がフッ素と反応することによって局部的に温度が上昇する危険性もあり、安全性の面からみて必ずしも工業的に有用な方法とはいえない。

30

【0005】

更に、フッ素とヨウ素は非常に反応性が高いため、熔融ヨウ素、スラリー状ヨウ素のような高濃度のヨウ素にフッ素を接触させると、これらが爆発的に反応する恐れがあり、その結果、フッ素供給配管側へヨウ素が逆流する危険性もある。ヨウ素がフッ素配供給管側へ逆流するとフッ素供給配管内でフッ素とヨウ素とが反応し、そこで、温度が局部的に、また、急激に上昇し、配管、装置類を損傷する危険性がある。

【0006】

特に、反応器において反応熱の除去に一般的に使用される、間接的熱交換器(外側ジャケット等)を用いた顕熱による反応熱除去では、有効に除熱可能な熱量が反応熱と比較して余りにも少ないため、反応温度の制御が困難であり、スケールアップした場合、反応の暴走、さらには爆発の危険がある。

40

【0007】

別の製造方法として、熔融ヨウ素の上にフッ素ガスを通してこれらを反応させて五フッ化ヨウ素とヨウ素とを含む蒸気混合物を生成させ、既に生成している液状の五フッ化ヨウ素存在下で該蒸気混合物と新たなフッ素ガスを反応させて更に五フッ化ヨウ素を生成させる方法がある(特許文献 4 参照)。

【0008】

この方法ではヨウ素を液体状態に維持するために反応熱を利用できるという利点がある

50

が、フッ素ガスは反応性に富むため、反応による激しい発熱による暴走反応、爆発の危険を回避するに足る高度な反応制御技術が要求される。また、昇華性のあるヨウ素による配管閉塞の危険が伴うため、必ずしも工業的に十分に満足しうる方法とは言えない。

【特許文献 1】米国特許第 3,367,745 号公報

【特許文献 2】特開昭 54-65196 号公報

【特許文献 3】英国特許第 1326130 号公報

【特許文献 4】特開昭 58-145602 号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0009】

本発明が解決しようとする課題は、上述の従来五フッ化ヨウ素の製造方法の問題点を可及的に回避して、フッ素とヨウ素との反応を穏やかに実施して、結果的に、より安全に、また、より生産性に優れた五フッ化ヨウ素の製造方法を提供することである。

【課題を解決するための手段】

【0010】

発明者らが鋭意検討を重ねた結果、反応器において、ヨウ素を含む五フッ化ヨウ素を液相として存在させ、その液相に隣接する気相にフッ素を存在させる反応系を構成し、それを用いることによって、上記課題を解決できることを見出し、本発明の完成に至った。

【0011】

尚、フッ素の反応器への供給は、通常、連続的に実施するが、反応によって消費されたフッ素の量に対応する量だけフッ素を間欠的に供給してもよい。また、反応器に存在する液相については、反応器にそのまま保持してもよく、あるいは反応によって消費されたヨウ素の量に対応する量のヨウ素を、五フッ化ヨウ素との混合物として反応器に連続的または間欠的に供給してもよい。また、反応によって五フッ化ヨウ素が生成するので、生成した五フッ化ヨウ素の量に対応する量の五フッ化ヨウ素を反応器の液相から連続的または間欠的に除去してもよい。

【0012】

上述のように液相と気相とが隣接する反応系を用いると、次のようにフッ素とヨウ素とが接触して反応して五フッ化ヨウ素が生成する：

(a) 五フッ化ヨウ素液相中に存在していたヨウ素が液相から気相に移動して、気相に存在しているフッ素と接触して反応する、気相反応；

(b) 気相に存在していたフッ素が気相から液相としての五フッ化ヨウ素中に移動して、五フッ化ヨウ素液相中に存在しているヨウ素と接触して反応する、液相反応；

(c) 気相に存在しているフッ素が五フッ化ヨウ素液相中に存在しているヨウ素と接触して反応する、気相と液相との界面での反応。

【0013】

尚、気相に存在していたフッ素が液相としての五フッ化ヨウ素中に移動するメカニズム、五フッ化ヨウ素液相中に存在していたヨウ素が気相に移動するメカニズムは特に限定されるものではなく、例えばフッ素またはヨウ素の拡散、蒸発、昇華等の結果として移動する。

【0014】

従って、本発明は、フッ素とヨウ素とを反応させて五フッ化ヨウ素を製造する方法を提供し、この方法は、ヨウ素を含む五フッ化ヨウ素液相に隣接する気相にフッ素を供給することを特徴とする。このようにフッ素を供給すると、上述の反応(a)~(c)の内、少なくとも反応(a)によって、フッ素とヨウ素とが接触して反応し、五フッ化ヨウ素が生成する。勿論、他の反応(b)および/または(c)も同時に起こってよい。

【0015】

尚、本明細書において、「気相」なる用語には、液相中に存在する気泡が含まれず、従って、パブリックによって液相中にフッ素を供給することは、「気相にフッ素を供給する」ことには相当しない。「気相にフッ素を供給する」とは、液相の上方にそれに隣接して

10

20

30

40

50

存在する気相にフッ素を供給する、即ち、液相の上方の空間にフッ素を供給し、そのように供給されたフッ素が（必要な場合には、後述の不活性ガスと一緒に）気相を構成することを意味する。

【0016】

ヨウ素を含む五フッ化ヨウ素の液相は、ヨウ素が溶解している溶液状態、または（液体または固体の）ヨウ素が（好ましくは微細な液滴または粒子の形態で）中で分散しているスラリー状態である。即ち、ヨウ素は液体の五フッ化ヨウ素に溶解するので、五フッ化ヨウ素中に飽和溶解度以下のヨウ素が存在する場合は、ヨウ素を含む五フッ化ヨウ素の液相は溶液状態であり、飽和溶解度より多くのヨウ素が存在する場合は、溶解しているヨウ素を含む五フッ化ヨウ素の溶液が液相として存在し、溶解しきれない（温度に応じて固体または液体の）ヨウ素がそのような溶液中に分散した状態となり、このような状態を、本明細書ではスラリー状態と呼ぶ。本発明の製造方法では、ヨウ素を含む五フッ化ヨウ素の液相は、液体ヨウ素が分散しているスラリー状態であるのが特に好ましい。

10

【0017】

ヨウ素を含む五フッ化ヨウ素の液相が溶液状態である場合、飽和溶解度以下の量のヨウ素を含み、ヨウ素の濃度は特に限定されるものではないが、液相全体の質量基準で、好ましくは0.6質量%以上、より好ましくはその液相温度での飽和溶解度のヨウ素、例えば45では1.0質量%のヨウ素を含む。

【0018】

ヨウ素を含む五フッ化ヨウ素の液相がスラリー状態である場合、飽和溶解度より多くの量のヨウ素を含み、ヨウ素の含量は特に限定されるものではないが、液相全体（分散しているヨウ素も含む）の質量基準で、好ましくは10~40質量%、より好ましくは20~40質量%、例えば30~40質量%のヨウ素を含む。

20

【発明の効果】

【0019】

本発明の五フッ化ヨウ素の製造方法によれば、フッ素を気相に供給することによって、気相に供給されたフッ素は優先的に気相部に存在するヨウ素と反応し（即ち、反応（a）が起こり）、残余のフッ素が気相中に存在する場合には、そのフッ素が液相に近づき、あるいは液相内に進入し、液相としての五フッ化ヨウ素中に存在している、溶解ヨウ素および/または分散ヨウ素と反応する、即ち、界面および/または液相中にて反応する（即ち、反応（b）および/または（c）が起こる）。このように反応することによって、反応器から気体を排出する配管へと未反応のヨウ素が流出するのが抑制され、ヨウ素が配管内で固化・付着する危険性が減少する。

30

【0020】

また、気相にフッ素を供給するため、従来公知の五フッ化ヨウ素の製造方法では生じる可能性があった、フッ素供給配管へのヨウ素の逆流、およびそれに付随する問題点も避けることができる。尚、本発明の五フッ化ヨウ素の製造方法では、気相に供給されたフッ素の転化率は、操作条件によって変わり得る。本発明の製造方法は、操作条件（例えば反応圧力、反応温度、供給フッ素量、必要に応じて実施する攪拌の程度、後述するように共存するフッ化水素の量等）を適当に選択することによって、フッ素の転化率が一般的には75%以上となるように、好ましくは85%以上となるように、より好ましくは90%以上となるように、特に好ましくは95%以上、例えば98%またはそれ以上となるように操作する。

40

【図面の簡単な説明】

【0021】

【図1】図1は、本発明の五フッ化ヨウ素の製造方法の一例を模式的に示すフローシートである。

【符号の説明】

【0022】

10...反応器、12...液相、14...気相、16...界面、18...ポンプ、20...混合槽、

50

2 2 ... 攪拌機、2 4 ... ポンプ、2 6 ... 気体排出配管、2 8 ... 冷却器、3 0 ... 攪拌機。

【発明を実施するための最良の形態】

【0 0 2 3】

本発明の五フッ化ヨウ素の製造方法の1つの態様では、ヨウ素を含む五フッ化ヨウ素を液相として反応器に存在させておき、その液相に隣接する気相にフッ素を、好ましくは連続的に、供給して、ヨウ素とフッ素とを反応させる。この液相中にはフッ素を直接的に供給しない。

【0 0 2 4】

尚、反応器に一旦フッ素を供給した後で、フッ素を更に供給しなくてもよいが、一般的には、フッ素を連続的または間欠的に供給するのが好ましい。液相については、一旦反応器に液相を存在させた後で、その後、液相を構成するヨウ素を含む五フッ化ヨウ素を供給しなくてもよい。別の態様では、液相を構成するヨウ素を含む五フッ化ヨウ素を連続的または間欠的に反応器に供給してもよい。

【0 0 2 5】

すなわち、本発明の五フッ化ヨウ素の製造方法を、1つの態様では、フッ素の供給および液相を構成するヨウ素を含む五フッ化ヨウ素の供給の双方についてバッチ式で実施してよく、別の態様では、フッ素の供給については連続式で実施し、液相を構成するヨウ素を含む五フッ化ヨウ素の供給についてはバッチ式で実施してよく（いわゆるセミバッチ式）、更に別の態様では、フッ素の供給および液相を構成するヨウ素を含む五フッ化ヨウ素の供給の双方について連続式で実施してよい。

【0 0 2 6】

本発明の五フッ化ヨウ素の製造方法の他の1つの態様では、混合槽において媒体としての五フッ化ヨウ素と固体ヨウ素とを混合して、五フッ化ヨウ素およびヨウ素を含む混合物を予め調製し、調製した該混合物を反応器に液相として供給して用いる。尚、混合槽の五フッ化ヨウ素は反応の場を提供するため、この意味で媒体と呼ぶことができる。この場合、混合と反応とが別の工程で実施されるので、反応器へのヨウ素の直接添加を避けることができる。その結果、高濃度のヨウ素とフッ素が直接接触する可能性が大幅に減り、安全性が一層向上する。この混合のために、混合槽に攪拌機を設けることが好ましい。

【0 0 2 7】

この態様では、本発明の五フッ化ヨウ素の製造方法は、

1) 混合槽において、媒体としての五フッ化ヨウ素と固体ヨウ素を混合して、五フッ化ヨウ素およびヨウ素を含む混合物を調製する工程、

2) 前記混合物を反応器に液相として供給する工程、

3) 反応器の該液相に隣接する気相にフッ素を供給する工程（この工程では、供給したフッ素が液相中のヨウ素と反応して五フッ化ヨウ素を生成する）、

4) 反応器から液相を取り出す工程（この工程では、反応の結果、液相中のヨウ素の量は減少している）、および

5) 取り出した液相から五フッ化ヨウ素を得る工程

を含んで成る。尚、上記工程を連続的に実施して五フッ化ヨウ素を定常的に製造する場合、反応器に五フッ化ヨウ素が生成する量に対応して、混合槽にヨウ素を加え、生成した五フッ化ヨウ素の量に対応する量の五フッ化ヨウ素を反応器から取り出し、液相から除去してよい。

【0 0 2 8】

尚、この態様において、調製した混合物の反応器への供給を連続的に実施してよく、この場合、反応器の液面を一定に保持するように反応器の液相を連続的に抜き出すのが好ましく、抜き出した液相は、例えば混合槽に戻してよい。このようにすると、液相が反応器と混合槽との間で循環することになる。この循環の間、反応によって消費されるヨウ素の量に対応する量のヨウ素を混合槽に加えてよく、また、反応によって生成する五フッ化ヨウ素の量に対応する量の五フッ化ヨウ素を混合槽（あるいは直接反応器の液相）から取り出してよい。このように液相を循環すると、循環流による混合作用によって混合槽および

10

20

30

40

50

/または反応器の内容物の濃度分布または分散状態の均一性が改善される。特に、反応器では、液相内の成分の濃度分布状態、あるいはヨウ素の分散状態がより均一化されるという利点がある。

【0029】

尚、反応器から取り出した液相から五フッ化ヨウ素を得る工程は、いずれの適当な方法で実施してもよい。例えば、常圧下で精留することによって実施できる。

【0030】

更に別の態様では、反応器の底部にヨウ素の相を存在させ、その上に五フッ化ヨウ素相を存在させておく。この場合、ヨウ素が五フッ化ヨウ素相に拡散して移動するので、五フッ化ヨウ素相は、ヨウ素を含む溶液状態となる。これは、本発明のヨウ素を含む五フッ化ヨウ素の液相として使用できる。底部に存在するヨウ素の相は、固体ヨウ素であってもよいが、五フッ化ヨウ素相へのヨウ素の拡散が促進されるので、溶融したヨウ素、即ち、液体ヨウ素の相であるのが好ましい。

【0031】

本発明の五フッ化ヨウ素の製造方法の別の態様では、フッ素を供給する気相に隣接する液相を構成する五フッ化ヨウ素は、更にフッ化水素を含んでよい。五フッ化ヨウ素がフッ化水素を含むことによって、液相に溶解するヨウ素の量を増やすことができ、反応がより効率的に進む。

【0032】

本発明の製造方法において、液相についてバッチ式を採用する場合、反応が進むにつれて、液相中の五フッ化ヨウ素の量が増加するので、フッ化水素を途中で追加しない場合には、液相中のフッ化水素の濃度が徐々に減少する。この減少を考慮しても、反応期間中の反応器の液相に含まれるフッ化水素の濃度は、液相の全量基準（即ち、 IF_5 、 HF および I_2 の総量基準、但し、分散しているヨウ素が存在する場合は、そのヨウ素の量も含める）で例えば1.0～50.0質量%、特に2.0～20.0質量%となるように維持するのが好ましい。さらには5～15重量%となるようにするのが一層好ましい。フッ化水素の濃度が10質量%を超えるとヨウ素溶解度は緩やかに低下する。よって、フッ化水素濃度を10質量%前後に保つことが反応器が有効に使え、特に好ましいことになる。尚、定常状態で製造方法を実施する場合には、フッ化水素の濃度は実質的に一定になるが、その場合であっても、反応器の液相に含まれるフッ化水素は、上述の範囲であるのが好ましい。

【0033】

液相を構成する五フッ化ヨウ素が更にフッ化水素を含む場合、フッ化水素を気相に供給することによってフッ化水素が含まれるようにしてよい。別の態様では、フッ化水素を直接液相に供給してもよく、更に別の態様では、気相と液相の双方にフッ化水素を供給してよい。

【0034】

フッ化水素を気相に供給する場合、フッ化水素は、フッ素との混合ガスとして気相に供給してよく、気相に供給されたフッ化水素が液相に溶解できる。この場合、混合ガスの組成は特に限定されないが、その全体の質量基準で1.0～10質量%のフッ化水素を含むのが好ましい。

【0035】

尚、フッ素とヨウ素とを反応させる条件は、特に限定されるものではなく、この反応に常套的に採用されている条件を本発明の製造方法においても採用できる。具体的には、温度条件としては、液相中に分散するヨウ素が固体または液体として存在できる温度、例えば10～50であり、この温度範囲より低い温度では、五フッ化ヨウ素の凝固という可能性があり、また、この温度範囲より高い温度では、ヨウ素の昇華促進による配管詰まりという可能性がある。好ましい温度範囲は20～40、より好ましい温度範囲は25～35である。反応圧力についても特に限定されるものではなく、反応器内において、五フッ化ヨウ素が液相として存在できる圧力であればよい。例えば0～0.1m・P

10

20

30

40

50

s (ゲージ圧)の圧力で実施でき、通常、大気圧下で実施してよい。

【0036】

本発明の製造方法において用いる反応器についても、先と同様に、この反応に常套的に採用されている装置を本発明の製造方法においても使用できる。通常、一般的に用いられる槽型の反応器、凝縮器付き反応器等を使用してよい。尚、反応器はその液相の混合を促進する攪拌装置を有するのが好ましい。攪拌装置として攪拌機は、特に液相がスラリー状態である場合には、スラリーの分散状態を安定的に維持できるので、有用である。

【0037】

本発明の製造方法において気相へ供給するフッ素は、反応に対して不活性であるガスによって希釈した状態で供給するのが好ましい。通常、窒素、ヘリウム、アルゴン、四フッ化炭素、六フッ化イオウ、パーフロロエタン等によって希釈する。希釈倍率は、特に限定されるものではないが、例えば、気相に供給するガスの全量基準でフッ素の体積%が10~95%となるように希釈する。この範囲より小さい場合には、反応器出口配管への五フッ化ヨウ素やヨウ素の流出やフッ素転化率の低下による生産性の低下という可能性があり、また、この範囲より大きい場合には、ヨウ素、五フッ化ヨウ素のフッ素供給配管への逆流という可能性がある。好ましい態様では、供給する気体に含まれるフッ素の体積%が20~90%であり、より好ましい態様では、供給する気体に含まれるフッ素の体積%が30~90%、特に50~90%である。

【0038】

別の態様では、フッ素と不活性ガスとを別々に反応器に供給して、反応器の気相においてフッ素が希釈されるようにしてもよい。この場合も、供給するフッ素と不活性ガスとの総量に対して、フッ素の割合が上記範囲となるように供給するのが好ましい。

【0039】

次に、本発明の五フッ化ヨウ素の製造方法の一例を模式的に示す、図1のフローシートを参照して、本発明の製造方法を更に詳細に説明する。本発明の製造方法は、反応器10にヨウ素を含む五フッ化ヨウ素を液相12として存在させ、液相12の上方に位置する気相14にフッ素、好ましくは図示するように窒素によって希釈されたフッ素を供給する。液相12は、上述のように溶液状態であっても、スラリー状態であってもよい。

【0040】

気相14に供給されたフッ素は、主として気相中に存在するヨウ素と反応し、また、一部のフッ素は液相12中に移動して、そこに存在するヨウ素と反応し得る。加えて、気相のフッ素と液相のヨウ素とが気液界面16でも反応し得る。

【0041】

ヨウ素を含む五フッ化ヨウ素は、例えば混合槽20にて調製してよい。混合槽20に五フッ化ヨウ素およびヨウ素を加え、攪拌機22を用いて攪拌しながらこれらを混合する。得られた混合物をポンプ24によって反応器10に供給する。反応に先立って、このように予め調製した混合物を反応器10に液相として供給し、その後、反応器10に混合物を供給しなくてもよい。この場合、フッ素を連続的に気相に供給しているので、セミバッチ方式で五フッ化ヨウ素を製造することになる。フッ素を気相に供給しない場合には、バッチ方式で五フッ化ヨウ素を製造することになる。

【0042】

他の態様では、混合物を連続的または間欠的に反応器10に供給し、反応器10から液相の一部分をポンプ18によって抜き出して直接系外に取り出してよい。別の態様では、液相の一部分を混合槽に戻して、混合槽から液相を抜き出して系外に取り出してよい。これらの場合では、連続式で五フッ化ヨウ素を製造することになる。この場合、反応系に含まれる五フッ化ヨウ素が漸次的に増加するので、生成した五フッ化ヨウ素を反応系から回収するのが好ましい。また、生成した五フッ化ヨウ素に対応する量のヨウ素を混合槽に供給するのが好ましい。このような五フッ化ヨウ素の回収についてはいずれの適当な方法で実施してもよい。例えば、反応器または混合槽からオーバーフローによりヨウ素、フッ化水素および五フッ化ヨウ素を含む混合液を抜き出した後、蒸留して五フッ化ヨウ素を分離

10

20

30

40

50

回収する方法を採用できる。

【0043】

1つの態様では、抜き出した液相を、混合槽20に供給してよく、この場合、液相が反応器10と混合槽20との間で循環する。反応が進むと、液相中の五フッ化ヨウ素の量が増えるので、その場合、例えば混合槽からその内容物の一部分を取り出し、その一部分から五フッ化ヨウ素を回収してよい。また、ヨウ素が、反応によって消費されるので、ヨウ素を混合槽20に追加し、そこで調製される混合物を反応器に供給してよい。

【0044】

図示した態様では、供給すべきフッ素は、窒素によって希釈された状態で気相に供給される。反応器において、フッ素はできる限り、ヨウ素と反応するのが好ましく、実質的に、供給したフッ素の少なくとも80%、好ましくは少なくとも90%、より好ましくは少なくとも95%、例えば少なくとも98%がヨウ素と反応する。未反応のフッ素(通常、少量)および窒素は、気体排出配管26を経て反応器10から排出される。尚、配管26には、同伴される五フッ化ヨウ素を回収するために冷却器28が設けられている。尚、必要に応じて、反応器10にも攪拌機30を設けてよく、通常、設けるのが好ましい。

【実施例1】

【0045】

内容積150mlのフッ素樹脂(PFA)製の反応器にヨウ素40g、五フッ化ヨウ素223gを入れ攪拌しスラリー状態の液相を調製した。反応器内の気相部にフッ素50Ncc/min、窒素50Ncc/minの混合ガスを供給し、反応器を氷浴で冷却して内温を30~50に保持しながらフッ素とヨウ素の反応を開始した。6時間反応させたが、ヨウ素のフッ素/窒素配管への逆流は認められず、円滑に反応は進んだ。反応器から排出される非凝縮ガスを紫外-可視分光光度計で分析したところ、フッ素ガスの転化率は98mol%であった。反応器内の液相は、実質的に五フッ化ヨウ素からなり、ヨウ素は無くなっていた。

【比較例1】

【0046】

実施例1と同様に、内容積150mlのフッ素樹脂製の反応器にスラリー状態の液相を調製した。反応器内の液相部にフッ素50Ncc/min、窒素50Ncc/minの混合ガスを供給し、氷浴で反応器を冷却して内温を30~50に保持しながらフッ素とヨウ素の反応を開始した。4分後、液相中のヨウ素がフッ素/窒素配管(フッ素樹脂製)に逆流し、配管内でフッ素と反応した。反応熱のために、配管は500以上となり、溶融・破裂し、フッ素、ヨウ素および五フッ化ヨウ素が漏洩したために反応を停止した。

【実施例2】

【0047】

内容積200mlの金属製(SUS316)オートクレーブにヨウ素75g、五フッ化ヨウ素300gを入れて攪拌し、スラリー状態の液相を調製した。攪拌回転数は500rpmとし、オートクレーブ内の気相部にフッ素90Nm³/min、窒素10Nm³/minの混合ガスを供給し、氷浴でオートクレーブを冷却して内温を30~50に保持しながらフッ素とヨウ素の反応を開始した。7時間反応させたが、ヨウ素のフッ素/窒素配管への逆流もなく円滑に反応した。反応器に残った液相を回収したところ、反応器内のヨウ素は全て消費されて無くなっており、無色透明の液であった。この液を¹⁹F-NMRで分析したところ、五フッ化ヨウ素が100mol%であった。オートクレーブから排出される非凝縮ガスを紫外-可視分光光度計で分析したところ、フッ素の転化率は常時98%以上であった。反応後オートクレーブ上蓋内面、出口配管に固体ヨウ素の付着はみられなかった。

【実施例3】

【0048】

実施例2と同様に、内容積200mlの金属製(SUS316)オートクレーブにスラリー状態の液相を調製した。攪拌回転数は500rpmとし、オートクレーブ内の気相部

10

20

30

40

50

にフッ素180Ncc/min、窒素20Ncc/minの混合ガスを供給し、氷浴でオートクレーブを冷却して内温を30~50 に保持しながらフッ素とヨウ素の反応を開始した。3時間反応させたが、ヨウ素のフッ素/窒素配管への逆流もなく円滑に反応し、オートクレーブから排出される非凝縮ガスを紫外-可視分光光度計で分析したところ、フッ素の転化率は常時98%以上であった。仕込んだヨウ素は完全には消費されておらず、反応後もオートクレーブ中にヨウ素は残っていたが、オートクレーブ上蓋内面、出口配管に固体ヨウ素の付着はみられなかった。

【実施例4】

【0049】

内容積500mlの冷却管付きの金属製(SUS316)オートクレーブにヨウ素150g、五フッ化ヨウ素300gを入れて攪拌し、スラリー状態の液相を調製した。冷却管は20 に冷却した。攪拌回転数は500rpmとし、オートクレーブ内の気相部にフッ素450Ncc/min、窒素50Ncc/minの混合ガスを供給し、氷浴でオートクレーブを冷却して内温を30~50 に保持しながらフッ素とヨウ素の反応を開始した。3時間反応させたが、ヨウ素のフッ素/窒素配管への逆流もなく円滑に反応し、オートクレーブから排出される非凝縮ガスを紫外-可視分光光度計で分析したところ、フッ素の転化率は常時98%以上であった。仕込んだヨウ素は完全には消費されておらず、反応後もオートクレーブ中にヨウ素は残っていたが、オートクレーブ上蓋内面、冷却管、出口配管に固体ヨウ素の付着はみられなかった。

【比較例2】

【0050】

実施例4と同様に、内容積500mlの冷却管付きの金属製(SUS316)オートクレーブにスラリー状態の液相を調製した。冷却管は20 に冷却した。攪拌回転数は500rpmとし、オートクレーブ内の液相部にフッ素450Ncc/min、窒素50Ncc/minの混合ガスを供給し、氷浴でオートクレーブを冷却し内温を30~50 に保持しながらフッ素とヨウ素の反応を開始した。3時間反応させたが、オートクレーブから排出される非凝縮ガスを紫外-可視分光光度計で分析したところ、フッ素の転化率は常時98%以上であった。仕込んだヨウ素は完全には消費されておらず、反応後もオートクレーブ中にヨウ素は残っており、オートクレーブ上蓋内面、冷却管、出口配管を目視観察したところ固体ヨウ素付着が冷却管、出口配管には認められた。

【実施例5】

【0051】

内容積200mlの金属製(SUS316)オートクレーブにヨウ素75g、五フッ化ヨウ素300gを入れて攪拌し、スラリー状態の液相を調製した。攪拌回転数は300rpmとし、オートクレーブ内の気相部にフッ素150Nm1/min、窒素50Nm1/minの混合ガスを供給し、氷浴でオートクレーブを冷却して内温を30~50 に保持しながらフッ素とヨウ素の反応を開始した。ヨウ素のフッ素/窒素配管への逆流もなく円滑に反応した。オートクレーブから排出される非凝縮ガスを紫外-可視分光光度計で分析したところ、フッ素の転化率は平均69.6%であった。反応後オートクレーブ上蓋内面、出口配管に固体ヨウ素の付着は認められなかった。

【実施例6】

【0052】

内容積200mlの金属製(SUS316)オートクレーブにヨウ素75g、五フッ化ヨウ素300g、フッ化水素14gを入れて攪拌し、スラリー状態の液相を調製した。攪拌回転数は300rpmとし、オートクレーブ内の気相部にフッ素150Nm1/min、窒素25Nm1/min、フッ化水素25Nm1/minを供給し、氷浴でオートクレーブを冷却して内温を30~50 に保持しながらフッ素とヨウ素の反応を開始した。ヨウ素のフッ素/窒素配管への逆流もなく円滑に反応した。オートクレーブから排出される非凝縮ガスを紫外-可視分光光度計で分析したところ、フッ素の転化率は平均84.7%であった。反応後オートクレーブ上蓋内面、出口配管に固体ヨウ素の付着は認められな

10

20

30

40

50

った。

【実施例 7】

【0053】

実施例 4 と同様に、内容積 500 ml の冷却管付きの金属製 (SUS316) オートクレープにスラリー状態の液相を調製した。冷却管は 20 に冷却した。攪拌回転数は 500 rpm とし、オートクレープ内の気相部にフッ素 670 Ncc/min、窒素 80 Ncc/min の混合ガスを供給し、氷浴でオートクレープを冷却し内温を 30 ~ 50 に保持しながらフッ素とヨウ素の反応を開始した。

【0054】

オートクレープの気相出口のフッ素濃度を 15 分ごとに測定してフッ素の転化率を求め、また、オートクレープ中の液相の IF_5 / I_2 比 (モル比) を測定したところ、表 1 の結果を得た。尚、ヨウ素のフッ素 / 窒素配管への逆流もなく円滑に反応が進み、仕込んだヨウ素は完全には消費されておらず、反応後もオートクレープ中にヨウ素は残っていたが、オートクレープ上蓋内面、冷却管、出口配管に固体ヨウ素の付着は認められなかった。

【0055】

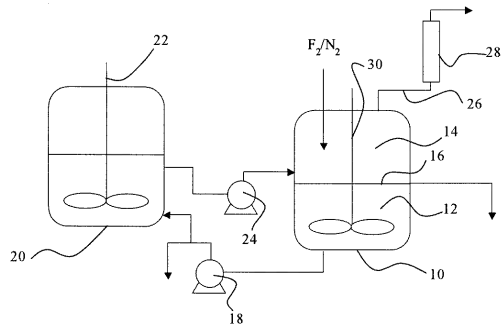
【表 1】

反応時間 (分)	フッ素転化率 (%)	IF_5 / I_2 [mol/mol]
15	98	2.7
30	97.6	3.6
45	96.4	4.9
60	95.8	7.0
75	94.8	11.0
90	93.2	21.0
105	82.6	72.5

【0056】

表 1 の結果から分かるように、反応開始から時間が経過するにつれてフッ素の転化率が減少し、フッ素とヨウ素が反応して五フッ化ヨウ素が生成した結果、オートクレープ内の液相の IF_5 / I_2 比が増加した。

【図1】



フロントページの続き

- (72)発明者 磯貝 智弘
大阪府摂津市西一津屋1番1号 ダイキン工業株式会社淀川製作所内
- (72)発明者 柴沼 俊
大阪府摂津市西一津屋1番1号 ダイキン工業株式会社淀川製作所内

審査官 岡田 隆介

- (56)参考文献 特開昭58-145602(JP,A)

- (58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

C01B 7/00-11/04

WPI

JSTPlus(JDreamII)

JST7580(JDreamII)

Science Direct