(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 10 日(10.09.2010)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2010/101073 A1

(51) 国際特許分類:
B01J 8/06 (2006.01) *B01D 53/86* (2006.01)
B01D 53/70 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2010/052988

(22) 国際出願日: 2010 年 2 月 25 日(25.02.2010)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:
特願 2009-050533 2009 年 3 月 4 日(04.03.2009) JP

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 昭和電工株式会社(**SHOWA DENKO K.K.**) [JP/JP]; 〒1058518 東京都港区芝大門一丁目１３番９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): 早坂 裕二 (**HAYASAKA, Yuji**) [JP/JP]; 〒1058518 東京都港区芝大門一丁目１３番９号 昭和電工株式会社内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 古部 次郎, 外(**FURUBE, Jiro** et al.); 〒1070052 東京都港区赤坂５－４－１１ 山口建設第二ビル４階 セリオ国際特許事務所 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, CL, 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, PE, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

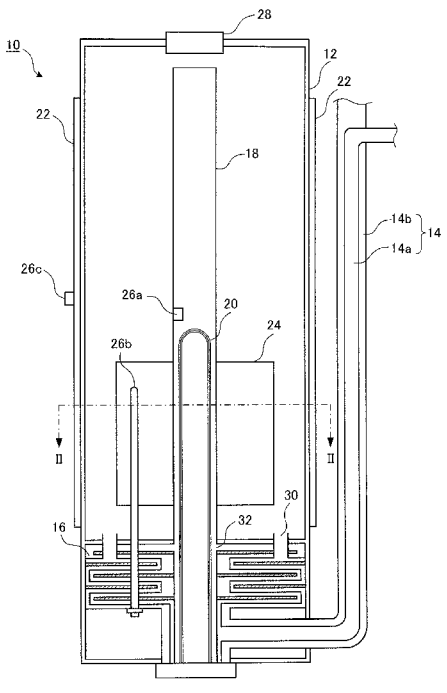
(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF,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

[続葉有]

(54) **Title**: REACTION DEVICE AND REACTION METHOD

(54) 発明の名称 : 反応装置および反応方法

[図1]



(57) **Abstract**: A reaction device (10) provided with: an outer tube (12) within which a reaction is performed; a heat exchanger (16) provided on one end side of the outer tube (12) and allowing exchange of heat between gas to be processed and a processed gas; the inner tube (14a) of a double-walled tube (14), the inner tube (14a) being adapted to supply to the heat exchanger (16) the gas to be processed; the outer tube (14b) of the double-walled tube (14), the outer tube (14b) being adapted to take the processed gas out of the heat exchanger (16); and an inner tube (18) connected to the heat exchanger (16), provided within the outer tube (12), and causing the gas to be processed to flow to the other end side of the outer tube (12), the other end side being the side spaced from said end side on which the heat exchanger (16) is provided. The reaction device is configured in such a manner that the device can be easily reduced in size and that the uniformity of the temperature distribution within the device is improved to make the device less likely to cause a variation in a reaction.

(57) 要約: 内部にて反応を行う外筒１２と、外筒１２の一方の端部側に配され、被処理ガスと処理済ガスとの間で熱交換を行う熱交換器１６と、熱交換器１６に被処理ガスを供給する二重管１４の内管１４ａと、熱交換器１６から処理済ガスを取り出す二重管１４の外管１４ｂと、熱交換器１６に接続し外筒１２の内部に配され熱交換器１６が配される端部側から離間した外筒１２の他方の端部側に向けて被処理ガスを流通させる内筒１８と、を備えることを特徴とする反応装置１０により、小型化しやすく、また内部の温度分布をより均一化して反応ムラが生じにくい反応装置を提供する。

WO 2010/101073 A1

添付公開書類:

— 国際調査報告（条約第 21 条(3)）

明　細　書

発明の名称 ： 反応装置および反応方法

技術分野

[0001] 本発明は、例えば、フッ素化合物を分解するために用いられる反応装置等に関する。

背景技術

[0002] 現在の半導体デバイスの製造プロセスにおいては、微細パターンを形成するためエッチングやクリーニングを行うことがある。この際にフッ素化合物が使用される場合が多い。また、フッ素化合物は、一般に安定で、人体に対し無害なものが多いため、他にも例えば、エアコンの冷媒用などに使用されている。

しかしながら、これらのフッ素化合物の中には、大気中に放出されると、地球環境に対し大きな影響を与えるものが多い。即ち、成層圏のオゾン層を破壊し、オゾンホールを作り出す原因となる。また温暖化ガスとして地球温暖化の一因ともなり得る。そして、上述のようにフッ素化合物は一般に安定であり、その影響は長期間続く場合が多い。

そこで、地球環境に影響を与えないために、使用されたフッ素化合物を分解し、地球環境に対し無害な状態にして大気中に放出する必要がある。

[0003] ここで例えば、特許文献１には、ＡｌをＡｌを含んでなる触媒を充填した反応器と、反応器で処理されるフッ素と炭素、硫黄、窒素の１つとの化合物を含むガス流に水蒸気を添加する水添加器と、反応器に充填された触媒及び反応器に導入されるフッ素化合物含有ガス流の少なくとも一方をフッ素化合物が加水分解しうる温度まで加熱するための加熱手段とを備えたフッ素含有化合物の分解処理装置が開示されている。

[0004] また、特許文献２には、外管と、内管と、内管の内部に設けられた触媒層と、外管に取り付けられたヒータとを有するフッ素含有化合物ガスの処理装置が開示されている。

[0005] 特許文献1：特開２００１－２２４９２６号公報

特許文献2：特開２００８－１２６０９２号公報

発明の開示

発明が解決しようとする課題

[0006] しかしながら、ＡＩを含んでなる触媒を充填した反応器と、反応器で処理されるフッ素と炭素、硫黄、窒素の１つとの化合物を含むガス流に水蒸気を添加する水添加器と、反応器に充填された触媒及び反応器に導入されるフッ素化合物含有ガス流の少なくとも一方をフッ素化合物が加水分解しうる温度まで加熱するための加熱手段とを備えたフッ素含有化合物の分解処理装置は、フッ素化合物含有ガスを加熱する予熱器が必要である。そのためエネルギー効率が悪く、装置の容積が大きくなる。そして、予熱器の外壁近傍ではフッ素化合物含有ガスの温度が高いが外壁から離れるにつれて温度が低下するため、反応のムラが生じる問題がある。

更に、外管と、内管と、内管の内部に設けられた触媒層と、外管に取り付けられたヒータとを有するフッ素含有化合物ガスの処理装置については、フッ素含有化合物ガスの予熱が十分行われないため、同様に処理装置内部の温度分布が一様になりにくい。そのため反応のムラが生じる問題がある。

[0007] 上記課題に鑑み、本発明の目的は、小型化しやすく、また内部の温度分布をより均一化して反応ムラが生じにくい反応装置を提供することにある。

また、他の目的は、被処理ガスを高い効率で処理することができる反応方法を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0008] 本発明の反応装置は、内部にて反応を行う外筒と、外筒の一方の端部側に配され、被処理ガスと処理済ガスとの間で熱交換を行う主熱交換部と、主熱交換部に被処理ガスを供給する管と、主熱交換部から処理済ガスを取り出す管と、主熱交換部に接続し、外筒の内部に配され、主熱交換部が配される端部側から離間した外筒の他方の端部側に向けて被処理ガスを流通させる内筒と、を備えることを特徴とする。

[0009] ここで、被処理ガスは、フッ素化合物を含むことを特徴とすることが好ましく、反応は、フッ素化合物を銅（Ｃｕ）、錫（Ｓｎ）、クロム（Ｃｒ）、モリブデン（Ｍｏ）、タングステン（Ｗ）、バナジウム（Ｖ）からなる群から選ばれる金属の化合物の少なくとも一種、アルミナおよびアルカリ土類金属化合物を含有する反応剤により分解するものであることが好ましい。更に、反応は、外筒と内筒との間で行うことが好ましい。

[0010] 更に本発明の反応装置は、内部の反応領域にて反応を行う外筒と、被処理ガスおよび処理済ガスを流通させ、被処理ガスと処理済ガスとの間で第１の熱交換を行う二重管と、二重管に接続し、被処理ガスと処理済ガスとの間で第２の熱交換を行う熱交換器と、熱交換器に接続し、外筒の内部に配され、被処理ガスと反応領域との間で第３の熱交換を行う内筒と、を備えることを特徴とする。

[0011] ここで、内筒の内部および外筒の外部に配される加熱器を更に備えることが好ましく、内筒の外側に取り付けられるフィンを更に備えることが更に好ましく、フィンは、反応領域の下側半分の位置に取り付けられることが更に好ましい。

[0012] また本発明の反応方法は、二重管に被処理ガスおよび処理済ガスを流通させ、被処理ガスと処理済ガスとの間で第１の熱交換を行い、二重管に接続する熱交換器に被処理ガスおよび処理済ガスを流通させ、被処理ガスと処理済ガスとの間で第２の熱交換を行い、熱交換器に接続する内筒に被処理ガスを流通させ、被処理ガスと反応領域との間で第３の熱交換を行い、反応領域で被処理ガスを処理済ガスにする反応を行うことを特徴とする。

[0013] ここで、被処理ガスは、フッ素化合物を含むガスであり、反応はフッ素化合物を分解するものであることが好ましい。

発明の効果

[0014] 本発明によれば、小型化しやすく、また反応ムラが生じにくい反応装置等を提供できる。

発明を実施するための最良の形態

[0015] 以下、添付図面を参照して、本発明の実施の形態について詳細に説明する。

図１は、本実施の形態が適用される反応装置の一例を説明した図である。

図１に示した反応装置１０は、内部にて反応を行う外筒１２と、被処理ガスおよび処理済ガスを流通させる二重管１４と、二重管１４に接続し外筒１２の一方の端部側に配され被処理ガスと処理済ガスとの間で熱交換を行う主熱交換部としての熱交換器１６と、主熱交換部としての熱交換器１６に接続し外筒１２内部に配され、熱交換器１６が配される端部側から離間した外筒１２の他方の端部側に向けて被処理ガスを流通させる内筒１８とを備える。

また、内筒１８の内部に配され被処理ガスを更に加熱すると共に外筒内部の反応領域に反応に必要な熱を供給するための加熱器としての内部ヒータ２０と、外筒１２の外部に配され同様に外筒内部の反応領域に反応に必要な熱を供給するための加熱器としての外部ヒータ２２と、内筒１８の外側に取り付けられ内部ヒータ２０からの熱を反応領域に均一に伝熱させるためのフィン２４と、温度を測定し図示しない制御装置により反応装置１０内部の温度制御を行うための熱電対等からなる温度センサ２６ａ，２６ｂ，２６ｃと、反応剤を充填するための反応剤投入口２８とを更に備える。

[0016] 外筒１２は、反応容器であり、内部で所定の反応を行わせることができる。本実施の形態では、被処理ガスとして、フッ素化合物を含むガスを外筒１２の内部に流通させる。そして、外筒１２と内筒１８との間に反応剤を充填し、この反応剤によりこのフッ素化合物を分解する反応を行う。

フッ素化合物としては、例えば、クロロフルオロカーボン類（以下、「ＣＦＣ」と略す。）、ハイドロクロロフルオロカーボン類（以下、「ＨＣＦＣ」と略す。）、パーフルオロカーボン類（以下、「ＰＦＣ」と略す。）、ハイドロフルオロカーボン類（以下、「ＨＦＣ」と略す。）、パーフルオロエーテル類（以下、「ＰＦＥ」と略す。）、ハイドロフルオロエーテル類（以下、「ＨＦＥ」と略す。）、フッ化硫黄等が該当する。

[0017] 更に詳述すると、ＣＦＣとしては例えば、$CCIF_3$、CCI_2F_2、ＣＣＩ

$_3$Ｆ、$Ｃ_2ＣＩ_3Ｆ_3$、$Ｃ_2ＣＩ_2Ｆ_4$、$Ｃ_2ＣＩＦ_5$等の化合物、ＨＣＦＣとしては例えば、ＣＨＣＩＦ$_2$、$Ｃ_2ＨＣＩ_2Ｆ_3$等の化合物が挙げられる。またＰＦＣとしては例えば、$ＣＦ_4$、$Ｃ_2Ｆ_6$、$Ｃ_3Ｆ_8$、$Ｃ_4Ｆ_8$（オクタフルオロシクロブタン）等の化合物、ＨＦＣとしては例えば、$ＣＨ_3Ｆ$、$ＣＨ_2Ｆ_2$、$ＣＨＦ_3$、$Ｃ_2Ｈ_2Ｆ_4$等の化合物が挙げられる。またＰＦＥとしては例えば、$ＣＦ_3ＯＣＦ_3$、$ＣＦ_3ＯＣＦ_2ＣＦ_3$等の化合物、ＨＦＥとしては$ＣＨＦ_2ＯＣＨＦ_2$、$ＣＨＦ_2ＯＣＨ_2ＣＦ_3$、$ＣＨ_3ＯＣＦ_2ＣＦ_3$等の化合物が挙げられる。またフッ化硫黄としては例えば、$ＳＦ_6$、$Ｓ_2Ｆ_{10}$等の化合物が挙げられる。

[0018] これらのフッ素化合物は、単独でも２種以上の混合物であってもよい。また、フッ素化合物は、ヘリウム、アルゴン、窒素等の不活性ガス、あるいは空気をキャリアガスとして希釈されていることが好ましい。本実施の形態では、被処理ガス中のフッ素化合物の濃度は、０．０１ｖｏｌ％～１０ｖｏｌ％であることが好ましい。

[0019] 反応剤としては、例えば、銅（Ｃｕ）、錫（Ｓｎ）、クロム（Ｃｒ）、モリブデン（Ｍｏ）、タングステン（Ｗ）、バナジウム（Ｖ）からなる群から選ばれる金属の化合物の少なくとも一種、アルミナ、およびアルカリ土類金属化合物を含有するものを用いることができる。

このうち、アルミナは、代表的な酸性物質（固体酸）であり、それ単独であってもフッ素化合物を分解できる。しかし、分解されて生成したフッ素によってアルミナ表面がフッ素化され、$ＡＩＦ_3$として被毒されて触媒活性が短時間で失活する。

[0020] そこで、本実施の形態では、アルカリ土類金属化合物を含有させている。これにより従来より低い反応温度でフッ素化合物を分解でき、生成するフッ素もアルカリ土類金属フッ化物として固定化できる。以下、これについて更に詳細に説明を行う。

まず本実施の形態におけるフッ素化合物の分解反応は、例えば以下の式で表すことができる。

[0021]

[化1]

$$CF_4 + 2CaCO_3/Al_2O_3 \rightarrow 2CaF_2 + 3CO_2 \quad \cdots (1)$$
$$C_2F_6 + 3CaCO_3/Al_2O_3 \rightarrow 3CaF_2 + 4CO_2 + CO \quad \cdots (2)$$

[0022] ここでの反応温度は、被処理ガス中に含まれるフッ素化合物の種類により異なる。例えばＰＦＣはフッ素化合物のうちで難分解性の化合物に分類され、中でもCF_4、C_2F_6等は最も難分解性であり、単なる熱分解だけで分解するには１２００℃～１４００℃の高温を必要とするが、本実施の形態の方法によれば５５０℃以上であれば分解できる。また、ＨＣＦＣである$CHClF_2$は、本実施の形態の方法によれば２００℃以上の温度であれば分解できる。このようにフッ素化合物の種類により、その分解温度はかなりの幅で開きがあり、その化合物の種類により反応器を最適温度に設定することが重要である。

[0023] アルカリ土類金属化合物としては、アルカリ土類金属の炭酸塩、水酸化物または酸化物を用いることができる。このうちマグネシウム（Ｍｇ）、カルシウム（Ｃａ）、ストロンチウム（Ｓｒ）、バリウム（Ｂａ）の炭酸塩がより好ましく、カルシウムの炭酸塩である炭酸カルシウム（$CaCO_3$）が更に好ましい。反応剤に、炭酸カルシウムを用いた場合、アルミナと共存することにより、フッ素化合物が分解して生成するフッ素をフッ化カルシウム（CaF_2）として固定することができる。このためアルミナのフッ素化を防止する役割を果たし、アルミナのフッ素化合物の分解機能（活性）を維持することができる。

[0024] また反応剤の成分の一つである、銅（Ｃｕ）、錫（Ｓｎ）、クロム（Ｃｒ）、モリブデン（Ｍｏ）、タングステン（Ｗ）、バナジウム（Ｖ）からなる群から選ばれる金属の化合物については、フッ素化合物を分解する助触媒としての働きがある。また、フッ素化合物の種類によっては、上記（２）式で例示したような反応で分解して生成する一酸化炭素を低酸素分圧下においても二酸化炭素まで酸化することができる。

上記化合物のうち、酸化銅（ＣｕＯ）、酸化錫（SnO_2）、酸化バナジウ

ム（V_2O_5）などの酸化物を用いるのが好ましく、酸化銅、酸化錫を用いるのが更に好ましい。

[0025] 本実施の形態では、アルミナとアルカリ土類金属化合物の含有量は、質量比で１：９～１：１であることが好ましい。また、金属の化合物の含有量は、アルミナとアルカリ土類金属化合物合計質量との比で、１：９９～５：９５であることが好ましい。

[0026] 本実施の形態では、この反応剤を粒径が０．５ｍｍ～１０ｍｍの粒状品とし、外筒１２の内側と内筒１８の外側の間に生じる空間に充填する。充填量としては、この空間全体に対し、８０％～９０％の高さになるようにするのが好ましい。そして、この反応剤が充填された部分が、反応を行う反応領域となる。

[0027] 外筒１２に用いられる材料としては、反応の際の反応温度や反応生成物に耐性があるものであれば、特に限定されることはないが、ステンレス等により作製することが好ましい。また外筒１２の形状としては、特に限定されることはないが、円柱形状であって、内径が１００ｍｍ～２ｍであることが内部の温度の均一性の観点と強度の観点から好ましい。

[0028] 二重管１４は、内側の管である内管１４ａと外側の管である外管１４ｂとからなる。そして、内管１４ａまたは外管１４ｂのいずれかの管に被処理ガスを流通させ、もう一方の管で処理済ガスを流通させると共に、内側の管を通して、被処理ガスと処理済ガスとの間で第１の熱交換を行う。この場合、被処理ガスと処理済ガスは対向して流通するため二重管１４は、対向流式の二重管式熱交換器として捉えることもできる。被処理ガスは内管１４ａおよび外管１４ｂのどちらを通してもよいが、この熱交換の効率性の観点からは、内管１４ａを通した方が好ましい。即ち外管１４ｂに通すと、外管１４ｂは大気に接しているため、大気中に放熱を起こしてしまう。そのため被処理ガスは、放熱を生じにくい内管１４ｂを通した方がよい。また、処理済ガスは、できるだけ室温に近い温度にして放出することが好ましい。よって、その観点からも被処理ガスを内管１４ａに通し、処理済ガスを外管１４ｂに通

した方が好ましい。つまり、処理済ガスの熱が外管１４ｂを通し放熱することができるため、処理済ガスの温度を低下させることができる。

[0029] 主熱交換部としての熱交換器１６は、外筒１２の一方の端部側に配される。そして、二重管１４に接続し、例えば、内管１４ａにより熱交換器１６に被処理ガスを供給し、外管１４ｂにより熱交換器１６から処理済ガスを取り出す。また熱交換器１６において、被処理ガスと処理済ガスとの間で第２の熱交換を行う。

本実施の形態において、外筒１２と内筒１８に円柱形状のものを用いた場合、熱交換器１６は、ドーナツ形状のステンレスからなる板を重ね合わせて溶接し、被処理ガスと処理済ガスが別々の経路を通り、流通するようにしている。そして、被処理ガスと処理済ガスは、熱交換器１６内部をジグザグに対向する形で流通し、ドーナツ形状の板を通して熱交換を行うことができる。このように、流路をジグザグにすることで、小さい容積で多量の熱を交換することができる。本実施の形態では、被処理ガスおよび処理済ガスは、熱交換を行う部分においてこのジグザグの流路をそれぞれ２．５往復するように構成している。このジグザグの流路はそれぞれ１．５往復以上であることが好ましい。これより少ないと熱交換が不足し本装置出口の排ガス温度が高くなる傾向がある。

なお、処理済ガスは、反応領域の熱交換器１６側に複数開けられた小口径の孔３０を通して、熱交換器１６内部に侵入することができる。また熱交換器１６を通り抜けた被処理ガスは、内筒１８側面に開けられた複数の穴３２を通して、内筒１８内に侵入することができる。

[0030] なお熱交換器１６は、このような構造のものに限られるものではなく、スパイラル式熱交換器、プレート式熱交換器、多重円管式熱交換器等の種々の熱交換器を使用することができる。

[0031] 内筒１８は、外筒１２の内部に配される。そして、熱交換器１６に接続し、熱交換器１６が配される端部側から離間した外筒１２の他方の端部に向けて被処理ガスを流通させる。被処理ガスは、この内筒１８を通る際に、内筒

１８を通して反応領域との間で第３の熱交換を行う。これにより被処理ガスを更に加熱することができる。内筒１８は、本実施の形態では１本で構成されるが、２本以上であってもよい。また内筒１８の位置については、本実施の形態のように１本で構成される場合は、外筒１２の中心部に設置することが好ましい。

[0032] また本実施の形態において、内筒１８は、内部に内部ヒータ２０を備える。この内部ヒータ２０は、被処理ガスを更に加熱すると共に外筒内部の反応領域に反応に必要な熱を供給する。また内筒１８の外側にはフィン２４が取り付けられている。内部ヒータ２０で発生した熱は、内筒１８およびこのフィン２４を通し反応領域まで伝熱する。またこのフィン２４を備えることにより、内部ヒータ２０で発生した熱を反応領域に、より均一に伝熱させることができる。ここで、本実施の形態の反応装置１０を熱交換器１６が配される側を下側として使用する場合、フィン２４は、反応領域の下側半分の位置に取り付けられ、上側半分には取り付けないことが好ましい。即ち、反応領域の上部は、対流により温度が上昇しやすく、この部分にもフィン２４を取付けると、下側より上側の温度が高くなりやすくなる。そのため、下側半分の位置に取り付けることで、反応領域の上部と下部の温度分布をより均一化することができる。

[0033] またフィン２４は、複数枚取り付けることが好ましい。

図２は、図１に示した反応装置１０のII－II断面図である。

図２に示した反応装置１０では、フィン２４は、内筒１８の外側に１８枚取り付けられている。このように複数枚取り付けることにより反応領域の温度分布をより均一化することができる。ここでフィン２４の枚数や長さは、反応装置１０における反応条件によって適宜選択することができる。

[0034] 内筒１８およびフィン２４に用いられる材料としては、反応の際に生じる反応熱や反応生成物に耐性があるものであれば、特に限定されることはないが、ステンレス等により作製することが好ましい。また内筒１８の形状としては、特に限定されることはないが、円柱形状であることが内部の温度の均

一性の観点からは好ましい。

また、内部ヒータ２０には、例えば、インコネル（登録商標）ヒータを使用することができる。そして、このインコネル（登録商標）ヒータを例えば３本用い、デルタ結線を行って内筒１８の内部に収容することができる。

[0035] また本実施の形態では、外筒１２の外側に外部ヒータ２２を備える。この外部ヒータを備えることにより、反応領域の反応に必要な熱を外側からも供給することができる。外部ヒータ２２で発生した熱は、外筒１２を通し反応領域まで伝熱する。そして、外部ヒータ２２と内部ヒータ２０を双方備えることにより、反応領域の外側と内側の両方から加熱を行うことが可能となる。そのため、反応領域の温度分布を更に均一化することができる。

外部ヒータ２４には、例えば、インコロイ（登録商標）ヒータを使用することができる。そして均一に熱を供給する観点から、このインコロイ（登録商標）ヒータを外筒１２の周囲に設置することが好ましい。

また、メンテナンス等における本実施の形態の反応装置と制御装置との切り離しを容易にするため、ヒータおよび／または温度センサと制御装置とを、例えばメタルコンセントで接続することが好ましい。

[0036] また更に、大気中への放熱を防止し、反応領域への加熱を更に効率よく行うために、外筒１２を保温材（図示せず）で覆うことが好ましい。保温剤としては、例えば、ガラスクロス、シリコンクロス等の材料で構成されたものを使用することができる。

[0037] 以上のような構成の反応装置１０では、被処理ガスであるフッ素化合物を含むガスは、まず二重管１４の内管１４ｂを流通する。この際に、被処理ガスと処理済ガスとの間で第１の熱交換を行う。次に二重管１４に接続する熱交換器１６内に入り、熱交換器１６の内部を流通し、再び処理済ガスとの間で第２の熱交換を行う。そして熱交換器１６に接続する内筒１８内に入る。被処理ガスは、内筒１８内を流通するときに反応領域との間で第３の熱交換を行うと共に内部ヒータ２０により加熱される。内筒１８を通り抜けた後は、反応領域に入り、処理剤により被処理ガスに含まれるフッ素化合物が分解

される。この反応により被処理ガスは処理済ガスとなる。処理済ガスは、今度は熱交換器１６、二重管１４の外管１４ｂを流通しつつ被処理ガスとの間で上述の第２の熱交換、第１の熱交換を行う。そして、二重管１４を通り抜けた後は大気中に放出される。

このような反応は、二重管１４に被処理ガスおよび処理済ガスを流通させ、被処理ガスと処理済ガスとの間で第１の熱交換を行い、二重管１４に接続する熱交換器１６に被処理ガスおよび処理済ガスを流通させ、被処理ガスと処理済ガスとの間で第２の熱交換を行い、熱交換器１６に接続する内筒１８に被処理ガスを流通させ、被処理ガスと反応領域との間で第３の熱交換を行い、反応領域で被処理ガスを処理済ガスにする反応を行うことを特徴とする反応方法として捉えることもできる。

[0038] 本実施の形態の反応装置１０は、外筒１２と熱交換器１６とを一体化することができる。また、被処理ガスおよび処理済ガスを熱交換器１６に導入するための配管を二重管１４としている。これらの構造により反応装置１０の小型化を行いやすくなる。

[0039] 更に、二重管１４による第１の熱交換、熱交換器１６による第２の熱交換、内筒１８による第３の熱交換という３段階の熱交換を行うことにより、被処理ガスが十分に予熱され、反応領域に達するまでに十分な高温となる。そのため反応領域における温度分布が均一化しやすい。そのため反応ムラが生じにくくなる。また、反応領域における温度分布が均一でない場合、温度が高い部分での反応剤の消耗が激しくなる場合がある。そのためこの部分で反応剤の寿命がくると、全ての反応剤を交換する必要があり不経済である。本実施の形態の反応装置１０では、反応領域における温度分布が均一化しやすいので、反応ムラが生じにくくなるばかりでなく、反応剤の消耗が一様になりやすくなり反応剤の寿命を延ばすことができる。

[0040] また更に、内筒１８による第３の熱交換および内部ヒータ２０による加熱を行うことで、熱交換器１６の容積を小さくすることができる。このため、外筒１２と内筒１８との空間を大きく採ることができ、反応剤をより多く充

填することができる。そのため、より高い効率で反応を起こすことができ、そして、より多くの被処理ガスを処理することができる。

外筒１２と内筒１８の間の空間容積つまり外筒内部の反応領域は、内部の温度の均一性の観点と強度の観点から２リットル～３０００リットルであることが好ましい。また特に２リットル～２００リットルであることが好ましい。この場合キャスター等を取り付けることが容易となり、反応装置１０の交換作業の際に有利となる。そして内部の温度の均一性および反応効率の観点から、４０リットル～２００リットルであることが更に好ましい。

また上記の構造を有することで、反応温度が２００℃～１０００℃の反応装置として使用でき、かつ、反応装置出口のガス温度を２００℃以下にすることができる。

[0041] なお、本実施の形態においては、被処理ガスとしてフッ素化合物を含むガスを挙げ、このフッ素化合物を分解する反応について説明を行ったが、これに限られるものではない。被処理ガスとしてフッ素化合物以外のガスを使用し、反応剤をこのガスの反応に適したものに変更すれば、本実施の反応装置１０を適用することができる。

例えば、半導体製造装置におけるパージガスラインや手術室から排出される余剰麻酔ガス中に含まれる亜酸化窒素を分解除去するため、反応剤として固体触媒を使用する反応等に用いることができる。

実施例

[0042] 反応装置として図１および図２に示した反応装置１０を用いた。反応剤としてアルミナと炭酸カルシウムを質量比で３：７とし、酸化錫をアルミナおよび炭酸カルシウムの合計重量に対し３質量%としたものを用いた。また、被処理ガスとして、フッ化物ガスであるCF_4を、６０００ｖｏｌｐｐｍの濃度で、２５０Ｌ／ｍｉｎの流量で反応装置１０内に流通させた。なおキャリアガスとしては窒素ガスを用いた。

その結果、処理済ガスのCF_4の濃度は０ｐｐｍとなり、CF_4が分解できたことを確認した。また、この際に反応装置１０の外部と内部の温度分布の

測定を行った。

[0043] 図３は、反応装置１０の温度分布を説明した図である。

図３において、横軸は温度を表し、縦軸は反応領域の高さ方向位置を表している。そして、それぞれの場所における外部温度と内部温度を示した。ここで外部温度は、温度センサ２６ｃ（図１参照）の高さ方向位置を順次変更することで測定された温度である。また内部温度は温度センサ２６ｂ（図１参照）の高さ方向位置を順次変更することで測定された温度である。

図３からわかる通り、内部温度および外部温度は反応領域の高さ方向位置に対し、５５０℃～５８０℃の範囲内の概ね３０℃以内の温度差に収まっており、反応領域における均一な温度分布が実現できていることがわかる。

図面の簡単な説明

[0044] [図1]本実施の形態が適用される反応装置の一例を説明した図である。

[図2]図１に示した反応装置のII－II断面図である。

[図3]反応装置の温度分布を説明した図である。

符号の説明

[0045] １０…反応装置、１２…外筒、１４…二重管、１６…熱交換器、１８…内筒、２０…内部ヒータ、２２…外部ヒータ、２４…フィン

請求の範囲

[請求項1] 内部にて反応を行う外筒と、

前記外筒の一方の端部側に配され、被処理ガスと処理済ガスとの間で熱交換を行う主熱交換部と、

前記主熱交換部に前記被処理ガスを供給する管と、

前記主熱交換部から前記処理済ガスを取り出す管と、

前記主熱交換部に接続し、前記外筒の内部に配され、前記主熱交換部が配される端部側から離間した当該外筒の他方の端部側に向けて前記被処理ガスを流通させる内筒と、

を備えることを特徴とする反応装置。

[請求項2] 前記被処理ガスは、フッ素化合物を含むことを特徴とする請求項１に記載の反応装置。

[請求項3] 前記反応は、前記フッ素化合物を銅（Ｃｕ）、錫（Ｓｎ）、クロム（Ｃｒ）、モリブデン（Ｍｏ）、タングステン（Ｗ）、バナジウム（Ｖ）からなる群から選ばれる金属の化合物の少なくとも一種、アルミナおよびアルカリ土類金属化合物を含有する反応剤により分解するものであることを特徴とする請求項２に記載の反応装置。

[請求項4] 前記反応は、前記外筒と前記内筒との間で行うことを特徴とする請求項１乃至３の何れか１項に記載の反応装置。

[請求項5] 内部の反応領域にて反応を行う外筒と、

被処理ガスおよび処理済ガスを流通させ、当該被処理ガスと当該処理済ガスとの間で第１の熱交換を行う二重管と、

前記二重管に接続し、前記被処理ガスと前記処理済ガスとの間で第２の熱交換を行う熱交換器と、

前記熱交換器に接続し、前記外筒の内部に配され、被処理ガスと前記反応領域との間で第３の熱交換を行う内筒と、

を備えることを特徴とする反応装置。

[請求項6] 前記内筒の内部および前記外筒の外部に配される加熱器を更に備え

ることを特徴とする請求項５に記載の反応装置。

[請求項7] 前記内筒の外側に取り付けられるフィンを更に備えることを特徴とする請求項５または６に記載の反応装置。

[請求項8] 前記フィンは、前記反応領域の下側半分の位置に取り付けられることを特徴とする請求項７に記載の反応装置。

[請求項9] 二重管に被処理ガスおよび処理済ガスを流通させ、当該被処理ガスと当該処理済ガスとの間で第１の熱交換を行い、

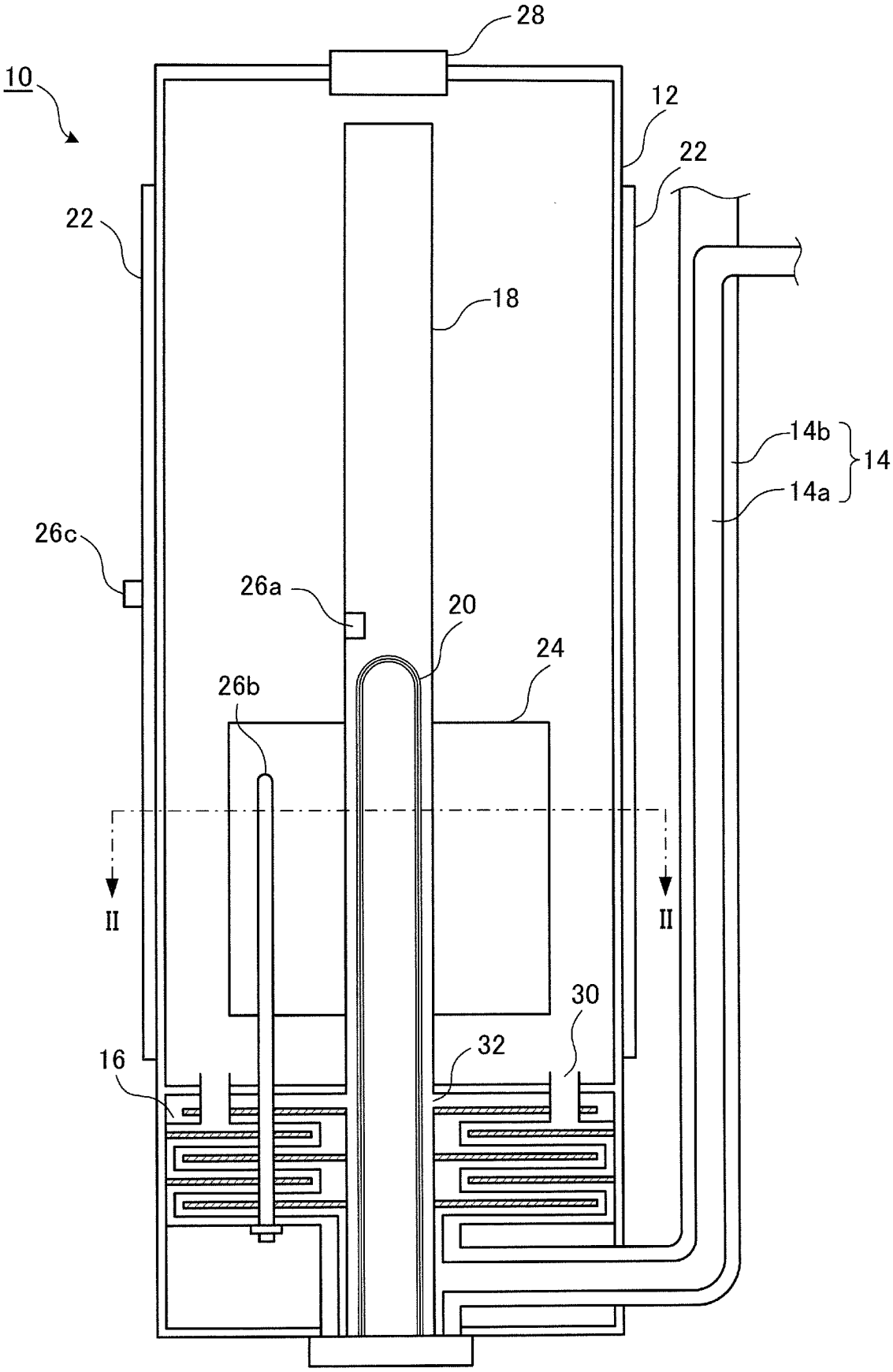
前記二重管に接続する熱交換器に被処理ガスおよび処理済ガスを流通させ、当該被処理ガスと当該処理済ガスとの間で第２の熱交換を行い、

前記熱交換器に接続する内筒に被処理ガスを流通させ、被処理ガスと反応領域との間で第３の熱交換を行い、

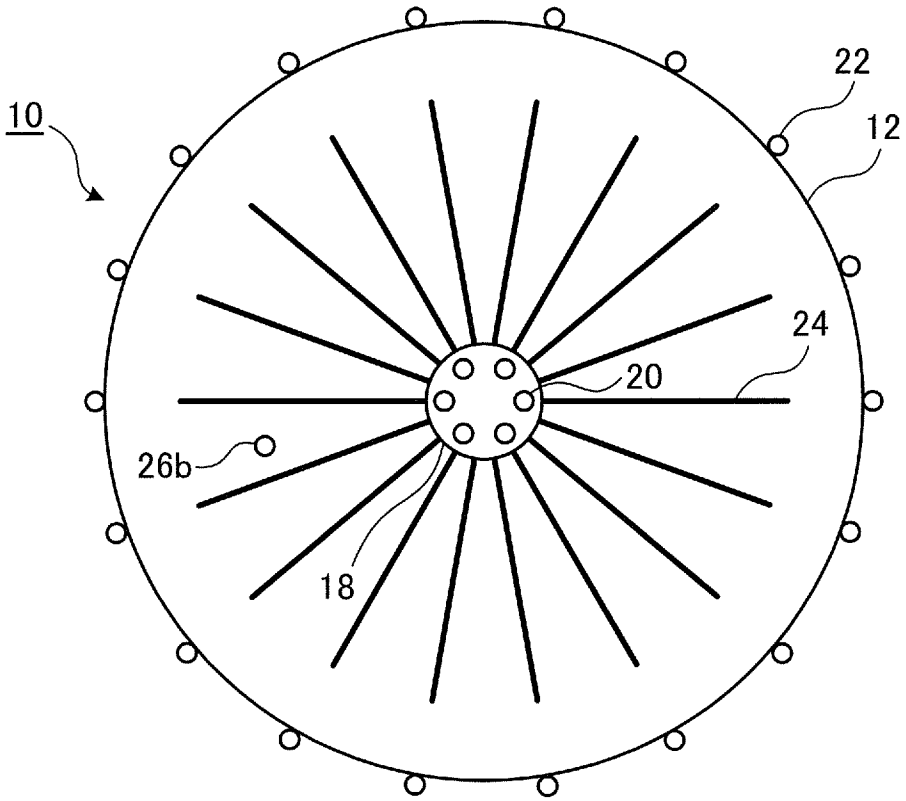
前記反応領域で被処理ガスを処理済ガスにする反応を行うことを特徴とする反応方法。

[請求項10] 前記被処理ガスは、フッ素化合物を含むガスであり、前記反応は当該フッ素化合物を分解するものであることを特徴とする請求項９に記載の反応方法。

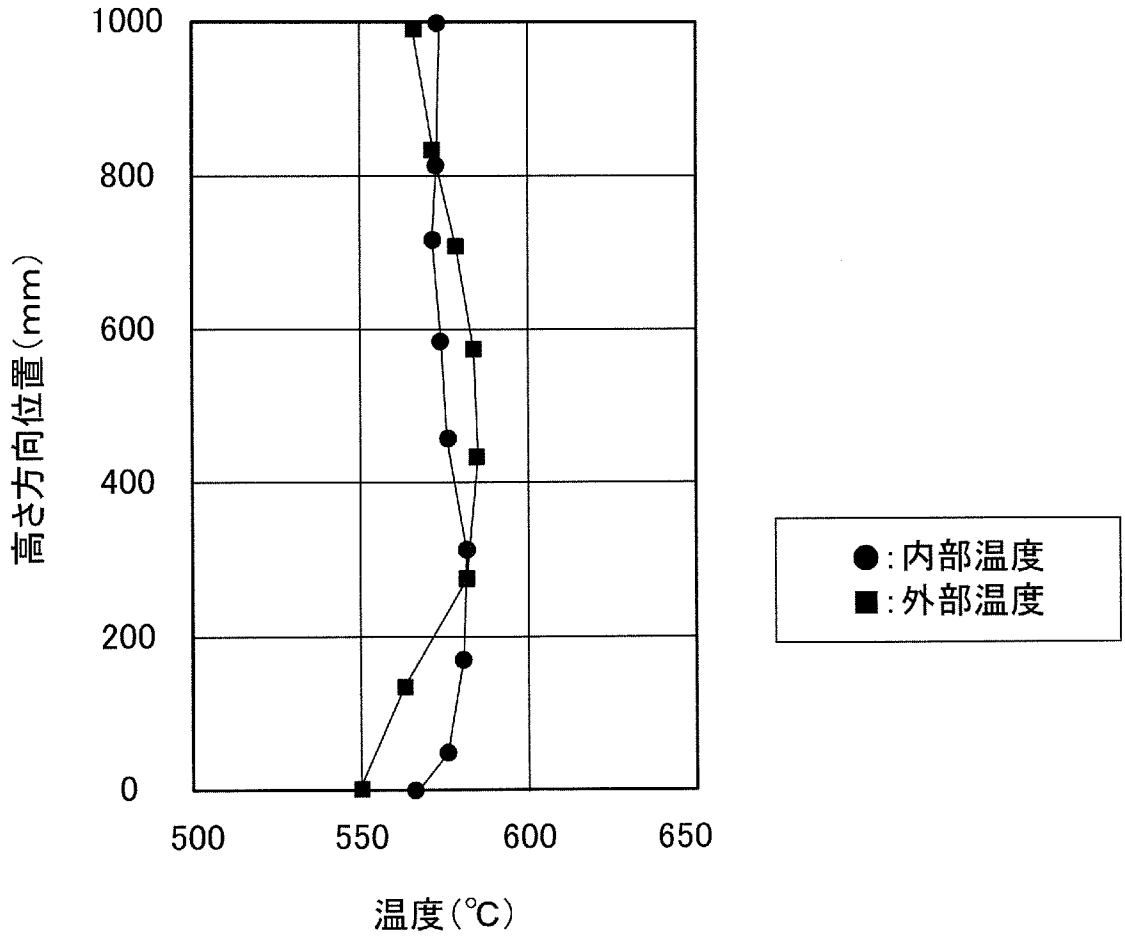
[図1]



[図2]



[図3]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2010/052988

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
B01J8/06(2006.01)i, *B01D53/70*(2006.01)i, *B01D53/86*(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)
B01J8/00, B01D53/34, B01J19/00

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	1996-2010
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2010	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2010

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.
X Y	JP 64-51126 A (Mitsubishi Heavy Industries, Ltd.), 27 February 1989 (27.02.1989), fig. 1; page 2, lower left column, line 7 to page 3, upper right column, line 3 (Family: none)	1,4 2,3,5-10
Y	JP 2008-126092 A (Ube Industries, Ltd.), 05 June 2008 (05.06.2008), fig. 1; paragraphs [0027] to [0066] (Family: none)	2,3,10
Y	JP 2001-219031 A (Air Liquide Japan, Ltd.), 14 August 2001 (14.08.2001), entire text; all drawings & US 2001/0012501 A1 & EP 1123727 A1 & SG 95625 A	2,3,10

☒ 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
15 April, 2010 (15.04.10)	27 April, 2010 (27.04.10)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office Facsimile No.	Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2010/052988

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2003-144843 A (Japan Pionics Co., Ltd.), 20 May 2003 (20.05.2003), claims; fig. 6 & WO 2003/041845 A1 & TW 226261 B	2,3,10
Y	JP 2004-920 A (Showa Denko Kabushiki Kaisha), 08 January 2004 (08.01.2004), entire text; all drawings & US 2005/0129593 A1 & EP 1492617 A1 & WO 2003/080230 A1 & CA 2480346 A1 & TW 590792 B & CN 1642630 A	5-10

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１０／０５２９８８

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　B01J8/06(2006.01)i, B01D53/70(2006.01)i, B01D53/86(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.　B01J8/00, B01D53/34, B01J19/00

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	１９７１－２０１０年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０１０年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０１０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
X Y	JP 64-51126 A (三菱重工業株式会社) 1989.02.27, 第１図, 2頁左下欄7行－3頁右上欄3行 (ファミリーなし)	1,4 2,3,5-10
Y	JP 2008-126092 A (宇部興産株式会社) 2008.06.05, 図1, 段落 0027-0066 (ファミリーなし)	2,3,10
Y	JP 2001-219031 A (日本エア・リキード株式会社) 2001.08.14, 全文, 全図 & US 2001/0012501 A1 & EP 1123727 A1 & SG 95625 A	2,3,10

☑　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	国際調査報告の発送日
１５．０４．２０１０	２７．０４．２０１０

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）　４Ｑ　３１２８
山本　吾一
電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４６８

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
Y	JP 2003-144843 A (日本パイオニクス株式会社) 2003.05.20, 特許請求の範囲, 図６ & WO 2003/041845 A1 & TW 226261 B	2,3,10
Y	JP 2004-920 A (昭和電工株式会社) 2004.01.08, 全文, 全図 & US 2005/0129593 A1 & EP 1492617 A1 & WO 2003/080230 A1 & CA 2480346 A1 & TW 590792 B & CN 1642630 A	5-10