

(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
2020年12月30日(30.12.2020)



(10) 国際公開番号

WO 2020/262319 A1

(51) 国際特許分類:
C01B 32/77 (2017.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2020/024447

(22) 国際出願日: 2020年6月22日(22.06.2020)

(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 2019-119959 2019年6月27日(27.06.2019) JP

(71) 出願人: 日本ゼオン株式会社 (ZEON CORPORATION) [JP/JP]; 〒1008246 東京都千代田区丸の内一丁目6番2号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 松浦 豪 (MATSUURA Go); 〒1008246 東京都千代田区丸の内一丁目6番2号 日本ゼオン株式会社内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 杉村 憲司 (SUGIMURA Kenji); 〒1000013 東京都千代田区霞が関三丁目2番1号 霞が関コモンゲート西館36階 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, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, 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, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, 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, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

一 国際調査報告(条約第21条(3))

(54) Title: METHOD FOR PRODUCING CARBONYL SULFIDE

(54) 発明の名称: 硫化カルボニルの製造方法

(57) Abstract: The purpose of the present invention is to provide a production method which makes it possible to produce a carbonyl sulfide in a gas phase flow mode without using a catalyst. The present invention is a method for producing a carbonyl sulfide, the method comprising allowing a raw material gas containing a starting substance comprising CS₂ and at least one component selected from the group consisting of CO₂, CO, O₂ and O₃ to electrically discharge while circulating the raw material gas continuously, and then releasing an electrically charged product into the outside of a discharging zone.

(57) 要約: 本発明は、硫化カルボニルを、気相流通方式で、触媒を使用せずに製造可能な製造方法を提供することを目的とする。本発明は、CS₂と、CO₂、CO、O₂及びO₃からなる群より選ばれる少なくとも1種とからなる出発物質を含む原料ガスを、連続的に流通させた状態で放電させ、次いで放電領域外に放出することを含む、硫化カルボニルの製造方法である。



WO 2020/262319 A1

明 細 書

発明の名称： 硫化カルボニルの製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、硫化カルボニルの製造方法に関するものである。

背景技術

[0002] 硫化カルボニル（COS）は、半導体製造工程におけるカーボンハードマスク等のエッチングに有用なガスとして知られている。

[0003] そして、気相で硫化カルボニルを製造する方法としては、炭酸ガスと二硫化炭素を触媒の存在下で反応させる方法（特許文献1及び2）、硫黄と一酸化炭素を触媒の存在下で反応させる方法（特許文献3）が知られている。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特公昭47-40632号公報

特許文献2：米国特許第3409399号明細書

特許文献3：特開昭52-131993号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] しかしながら、上記の硫化カルボニルの製造方法は、いずれも触媒を使用するものであり、触媒の活性低下に伴い収率が低下するなど、連続的な製造が困難であった。

[0006] そこで、本発明は、硫化カルボニルを、気相流通方式で、触媒を使用せずに製造可能な製造方法を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0007] 本発明者は、上記目的を達成するために鋭意検討を行い、所定の原料ガスを連続で流通させた状態で放電させ、次いで連続的に放電領域外へ放出することにより、硫化カルボニルが得られることを見出し、本発明を完成させた。

- [0008] 本発明は、上記課題を有利に解決することを目的とするものであり、 CS_2 と、 CO_2 、 CO 、 O_2 及び O_3 からなる群より選ばれる少なくとも1種とからなる出発物質を含む原料ガスを連続的に流通させた状態で放電させ、次いで放電領域外に連続的に放出することを含む、硫化カルボニルの製造方法に関する。
- [0009] 本発明の硫化カルボニルの製造方法では、原料ガスを連続的に流通させた状態で放電させることで、原料ガスに含まれる CS_2 と、 CO_2 、 CO 、 O_2 及び O_3 からなる群より選ばれる少なくとも1種とからなる出発物質を COS の前駆体となり得る活性種に変換し、次いで放電領域外に連続的に放出することにより、上記活性種が再結合し、硫化カルボニルが生成する。このように、本発明によれば、気相流通方式で、触媒を使用せずに、硫化カルボニル(COS)を製造することができる。
- [0010] 出発物質は、 CS_2 と、 CO_2 、 CO 、 O_2 及び O_3 からなる群より選ばれる少なくとも1種とからなる。これらの組み合わせを用いることにより、 COS の前駆体となり得る CS 活性種、 CO 活性種、酸素単体からなる活性種を好適に生成することができる。
- [0011] 本発明においては、触媒を用いずに COS を製造することができるため、有利である。
- [0012] 本発明においては、原料ガスを0.3kW以上の電力を供給して放電させることができ、また、原料ガスを1cm以上の電極間距離を有する電極間で放電させることができる。これらは、 COS の前駆体となり得る活性種を安定的に変換することができる点で有利である。
- [0013] 本発明においては、 CO_2 、 CO 、 O_2 及び O_3 からなる群より選ばれる少なくとも1種の体積の合計に対する、 CS_2 の体積の比が0.02以上であることが好ましい。この範囲とすることにより、 COS を十分に得ることができる。
- [0014] 本発明においては、原料ガスの体積に対し、 CS_2 の体積の比が0.02以上0.3以下であることが好ましい。この範囲とすることにより、 COS を

十分に得ることができる。

発明の効果

[0015] 本発明によれば、硫化カルボニルを、気相流通方式で、触媒を使用せずに製造することができる。本発明の製造方法は、触媒の活性低下による収率の低下といった事態を回避することができ、また、硫化カルボニルを連続的に製造することができる。

[0016] 以下に、本発明の実施形態について詳しく説明する。

[0017] [原料ガス]

原料ガスは、 CS_2 と、 CO_2 、 CO 、 O_2 及び O_3 からなる群より選ばれる少なくとも1種とからなる出発物質を含む。効率的に COS が得られる点から、 CS_2 と CO_2 との組み合わせがより好ましく、 CS_2 と O_2 との組み合わせは、原料転化率及び選択率のバランスの点からより好ましい。

[0018] 硫化カルボニルの選択率の点から、 CO_2 、 CO 、 O_2 及び O_3 からなる群より選ばれる少なくとも1種の体積の合計に対する、 CS_2 の体積の比は0.02以上が好ましい。 COS の選択率の点からは、0.3以上がより好ましい。また、体積の比は、35以下が好ましい。この範囲であれば、原料転化率を維持しつつ、良好な選択率を得ることができる。

[0019] 原料ガスは、不活性ガスを含んでいてもよい。不活性ガスを含むことで、安定した放電を容易に得ることができる。不活性ガスとしては、 N_2 、 He 、 Ne 、 Ar 、 Xe 、 Kr 等が挙げられ、 N_2 、 Ar 、 He が好ましく、 N_2 、 Ar がより好ましい。不活性ガスを使用する場合、不活性ガスは、1種のみでも、2種以上を併用してもよい。

[0020] 不活性ガスを使用する場合、原料ガス中の不活性ガスの含有割合は、99.9体積%以下であることができ、99体積%以下が好ましい。不活性ガスの含有割合は0体積%であってもよい。

[0021] 原料ガスは、出発物質及び任意の不活性ガス以外に、周囲環境から不可避免的に混入する不純物を含み得る。不純物としては、水分が挙げられる。原料ガスは、出発物質及び不可避免的不純物からなるものであることができる。

- [0022] 原料ガスに対する、 CS_2 の体積の比は、0.02以上が好ましい。また、体積比は0.3以下が好ましい。この範囲であれば、 COS を十分に得ることができる。
- [0023] 原料ガスは、放電させる際に、出発物質及び任意の不活性ガスを含んでいればよい。例えば、放電のため、放電機構を有する気相流通反応器（以下、単に「気相流通反応器」ともいう。）に、出発物質及び任意の不活性ガスを、それぞれ気体として、別々に供給して、原料ガスとしてもよく、全部を予め混合した気体として供給して、原料ガスとしてもよく、あるいは一部を予め混合した気体として、残部の気体とは別々に供給して、原料ガスとしてもよい。
- [0024] 出発物質は、それぞれ標準状態で気体又は液体である。出発物質は、別途気化室等を設けることなく、出発物質を気体として、気相流通反応器に供給することができるが、液体については別途設けた気化室で気化させた後、気相流通反応器に供給することが好ましい。供給は、連続的に行うことができる。供給流量の制御は、マスフローコントローラー等を用いて行うことができる。
- [0025] 例えば、出発物質が十分気化する温度及び圧力に保持した気化室に、出発物質を液体の状態を導入することにより気化させることができる。気化室の温度及び圧力は、出発物質が、瞬時に気化可能な温度及び圧力に保持することが好ましい。このような気化室を利用することにより、出発物質を、液体として気化室に連続的に導入し、気化室で瞬時に気化させて、気体として気相流通反応器に連続的に供給することができる。出発物質が固体の状態の場合、加熱して液体とした後、気化室に導入しても、直接気化室で昇華させて、気体として気相流通反応器に連続的に供給してもよい。
- [0026] 供給流量の制御は、気化室で気化したガスを、マスフローコントローラー等で制御することにより行うか、あるいは、出発物質を、液の状態で気化室に連続的に導入する際に、液体マスフローコントローラー等で制御することにより行うことができる。気化させた出発物質を気相流通反応器に導入する

際、不活性ガス等で希釈してもよい。

[0027] 原料ガスを気相流通反応器に流通させる際の空間速度は、特に限定されず、 0.01 h^{-1} 以上が好ましく、 0.1 h^{-1} 以上がより好ましく、 0.3 h^{-1} 以上がさらに好ましく、また、 100000 h^{-1} 以下が好ましく、 50000 h^{-1} 以下がより好ましく、 10000 h^{-1} 以下がさらに好ましい。空間速度が上記範囲内であれば、放電が困難になることが避けられ、生産性を低下させずに目的物質を効率的に製造することができる。

[0028] [放電]

気相流通反応器中で原料ガスを放電させて、原料ガスからCOSの前駆体となり得る活性種を生成させる。放電は、気相流通反応器の放電機構に電力を供給して発生させることができ、例えば、電力の供給によって気相流通反応器内に設置した電極間で放電を発生させることができる。

[0029] 放電を起こす際の供給電力は 0.3 kW 以上であることが好ましい。この範囲であれば、放電が安定し、目的物質を効率的に製造することができる。また、供給電力は 100 kW 以下が好ましい。この範囲であれば、原料ガスの煤化による反応管の目詰まり等が生じることを回避することができ、目的物質を安定して製造することができる。供給電力は、より好ましくは 0.5 kW 以上であり、また、より好ましくは 60 kW 以下である。

[0030] 放電は、電極間で発生させることができ、本発明においては、電極間距離は 1 cm 以上であることが好ましい。また、電極間距離は 100 cm 以下であることが好ましい。この範囲内であれば、安定した放電を行うことができる。

[0031] 原料ガスの放電の方法として、放電を起こすための電圧を印加する電極を有する方式を用いることができ、例えば、高周波放電、マイクロ波放電、誘電体バリア放電、グロー放電、アーク放電、コロナ放電等の方式を用いることができる。放電の安定性、ガスの処理量の点から、高周波放電、グロー放電、アーク放電が好ましい。

[0032] 放電の際の圧力（絶対圧）は、用いる放電の方法において、原料ガスが放

電し得る圧力であれば、特に限定されず、 1 Pa A 以上が好ましく、 5 Pa A 以上がより好ましく、また、 1 MPa A 以下が好ましく、 0.5 MPa A 以下がより好ましい。圧力（絶対圧）が上記範囲内であれば、目的物質を効率的に製造することができる。

[0033] [目的物質]

放電させた原料ガスを、放電領域から連続的に放出することで、生成した活性種が再結合し、目的物質である硫化カルボニルが生成する。連続的な放出は、原料ガスの連続的な流通に対応する空間速度で行うことができる。

ここで、放電領域とは、原料ガスの放電を起こさせる空間をいう。例えば、放電機構として平行平板型電極を備えた気相流通反応器の場合、電極間の放電が発生する空間である。放電領域外に放出とは、上記空間の中から外に出ることをいう。

[0034] 放電させたガスを放電領域外に放出し、気相流通反応器から出した後、さらに熱交換器に導入して冷却してもよい。熱交換器の方式は、特に限定されず、空冷、水冷式等が挙げられる。冷却後の生成物には、硫化カルボニル以外の物質が含まれ得るので、任意に実施し得る分離精製工程により、硫化カルボニルを分離精製してもよい。分離精製方法としては、蒸留、溶液等による吸収、膜分離等が挙げられる。

実施例

[0035] 以下、実施例により本発明をより詳細に説明するが、本発明はこれらの実施例によって限定されるものではない。

[0036] (実施例1)

出発物質として CS_2 、 CO_2 及び不活性ガスとして Ar を用い、それぞれ 70 sccm 、 2 sccm 、 228 sccm の流量で、高周波放電が可能な平行平板型を内部に取り付けた、金属製の気相流通反応管（周波数 60 MHz 、容量 35 L 、電極間距離 3.5 cm ）に導入した。

[0037] 反応管内で、混合ガスを 10 Pa A （絶対圧）に保った状態で、供給電力 500 W で放電させた。反応管からガスを連続的に放出し、アルミニウムバ

ッグで捕集した。

[0038] 捕集したガスを、質量分析ガスクロマトグラフィー（GC-MS）（アジレント社製 Agilent 7890A）により分析した。分析して得られた GC-MS の各成分の面積値から、CO₂ のモル転化率を求め、原料転化率とした。また、上記面積値から、生成物中の各成分のモル選択率を求めた。結果を表 1 に示す。

[0039] （実施例 2）

CS₂、CO₂、Ar の流量をそれぞれ 50 sccm、10 sccm、240 sccm に変更したこと以外は、実施例 1 と同様である。結果を表 1 に示す。本実施例における原料転化率は、GC-MS の各成分の面積値から求めた CO₂ のモル転化率である。

[0040] （実施例 3）

CS₂、Ar の流量をそれぞれ 30 sccm、260 sccm に変更したこと以外は、実施例 2 と同様である。結果を表 1 に示す。本実施例における原料転化率は、GC-MS の各成分の面積値から求めた CO₂ のモル転化率である。

[0041] （実施例 4）

CS₂、Ar の流量をそれぞれ 10 sccm、280 sccm に変更したこと以外は、実施例 2 と同様である。結果を表 1 に示す。本実施例における原料転化率は、GC-MS の各成分の面積値から求めた CS₂ のモル転化率である。

[0042] （実施例 5）

CO₂、Ar の流量をそれぞれ 30 sccm、260 sccm に変更したこと以外は、実施例 4 と同様である。結果を表 1 に示す。本実施例における原料転化率は、GC-MS の各成分の面積値から求めた CS₂ のモル転化率である。

[0043] （実施例 6）

CO₂、Ar の流量をそれぞれ 100 sccm、190 sccm に変更した

こと以外は、実施例4と同様である。結果を表1に示す。本実施例における原料転化率は、GC-MSの各成分の面積値から求めたCS₂のモル転化率である。

[0044] (実施例7)

A_rをN₂に変更したこと以外は、実施例3と同様である。結果を表1に示す。本実施例における原料転化率は、GC-MSの各成分の面積値から求めたCO₂のモル転化率である。

[0045] (実施例8)

A_rをN₂に変更したこと以外は、実施例5と同様である。結果を表1に示す。本実施例における原料転化率は、GC-MSの各成分の面積値から求めたCS₂のモル転化率である。

[0046] (実施例9)

CS₂、CO₂の流量をそれぞれ70 sccm、230 sccmとし、不活性ガスを用いないこと以外は、実施例1と同様である。結果を表1に示す。本実施例における原料転化率は、GC-MSの各成分の面積値から求めたCS₂のモル転化率である。

[0047] (実施例10)

供給電力を2000Wに変更したこと以外は、実施例9と同様である。結果を表1に示す。本実施例における原料転化率は、GC-MSの各成分の面積値から求めたCS₂のモル転化率である。

[0048] (実施例11)

CS₂、CO₂の流量をそれぞれ5 sccm、295 sccmに変更したこと以外は、実施例9と同様である。結果を表1に示す。本実施例における原料転化率は、GC-MSの各成分の面積値から求めたCS₂のモル転化率である。

[0049] (実施例12)

CO₂をO₂に変更したこと以外は、実施例2と同様である。結果を表2に示す。本実施例における原料転化率は、GC-MSの各成分の面積値から求め

た O_2 のモル転化率である。

[0050] (実施例 1 3)

CO_2 を O_2 に変更したこと以外は、実施例 3 と同様である。結果を表 2 に示す。本実施例における原料転化率は、GC-MS の各成分の面積値から求めた O_2 のモル転化率である。

[0051] (実施例 1 4)

CO_2 を O_2 に変更したこと以外は、実施例 4 と同様である。結果を表 2 に示す。本実施例における原料転化率は、GC-MS の各成分の面積値から求めた CS_2 のモル転化率である。

[0052] (実施例 1 5)

CO_2 をCOに変更したこと以外は、実施例 2 と同様である。結果を表 3 に示す。本実施例における原料転化率は、GC-MS の各成分の面積値から求めたCOのモル転化率である。

[0053] (実施例 1 6)

CO_2 をCOに変更したこと以外は、実施例 4 と同様である。結果を表 3 に示す。本実施例における原料転化率は、GC-MS の各成分の面積値から求めた CS_2 のモル転化率である。

[0054] (実施例 1 7)

CO_2 をCOに変更したこと以外は、実施例 5 と同様である。結果を表 3 に示す。本実施例における原料転化率は、GC-MS の各成分の面積値から求めた CS_2 のモル転化率である。

[0055]

[表1]

実施例	出発物質①	流量 [sccm]	出発物質②	流量 [sccm]	不活性 ガス	流量 [sccm]	体積比 (出発物質①/出発物質②)	体積比 (出発物質①/全ガス)	電力 (kW)	空間速度 [hr ⁻¹]	原料転化率 [mol%]	生成物選択率[mol%]			
												H ₂ S*	COS	SO ₂	その他
実施例1	CS ₂	70	CO ₂	2	Ar	228	35.0	0.23	0.50	0.5	1.9%	0.0%	100.0%	0.0%	0.0%
実施例2		50		10		240	5.00	0.17	0.50	0.5	1.9%	0.0%	100.0%	0.0%	0.0%
実施例3		30		10		260	3.00	0.10	0.50	0.5	1.8%	0.0%	100.0%	0.0%	0.0%
実施例4		10		10		280	1.00	0.03	0.50	0.5	5.3%	7.6%	29.5%	62.9%	0.0%
実施例5		10		30		260	0.33	0.03	0.50	0.5	38.7%	3.5%	8.0%	88.6%	0.0%
実施例6		10		100	N ₂	190	0.10	0.03	0.50	0.5	70.1%	0.4%	2.5%	97.1%	0.0%
実施例7		30		10		260	3.00	0.10	0.50	0.5	3.2%	0.0%	22.8%	0.0%	77.2%
実施例8		10		30		260	0.33	0.03	0.50	0.5	15.7%	1.4%	4.6%	93.3%	0.6%
実施例9		70		230		-	0.30	0.23	0.50	0.5	8.9%	0.0%	49.4%	50.6%	0.0%
実施例10		70		230		-	0.30	0.23	2.00	0.5	20.5%	0.0%	53.1%	46.9%	0.0%
実施例11		5		295	-	-	0.02	0.02	0.5	0.5	11.6%	0.0%	22.2%	77.8%	0.0%

* 原料ガス中に不可避的に含まれる水分によるものと推測される。

[0056] [表2]

実施例	出発物質①	流量 [sccm]	出発物質②	流量 [sccm]	不活性 ガス	流量 [sccm]	体積比 (出発物質①/出発物質②)	体積比 (出発物質①/全ガス)	電力 (kW)	空間速度 [hr ⁻¹]	原料転化率 [mol%]	生成物選択率[mol%]				
												CO ₂	H ₂ S*	COS	SO ₂	その他
実施例12	CS ₂	50	O ₂	10	Ar	10	5.00	0.20	0.50	0.5	5.7%	44.9%	0.0%	55.1%	0.0%	
実施例13		30		10		3.00	0.13	0.50	0.5	9.2%	54.6%	0.0%	45.4%	0.0%		
実施例14		10		10		1.00	0.07	0.50	0.5	43.9%	29.7%	1.9%	4.2%	84.2%	0.0%	

* 原料ガス中に不可避的に含まれる水分によるものと推測される。

[0057] [表3]

実施例	出発物質①	流量 [sccm]	出発物質②	流量 [sccm]	不活性 ガス	流量 [sccm]	体積比 (出発物質①/出発物質②)	体積比 (出発物質①/全ガス)	電力 (kW)	空間速度 [hr ⁻¹]	原料転化率 [mol%]	生成物選択率[mol%]				
												CO ₂	H ₂ S*	COS	SO ₂	その他
実施例15	CS ₂	50	CO	10	Ar	10	5.00	0.20	0.50	0.5	6.2%	81.0%	0.0%	19.0%	0.0%	0.0%
実施例16		10		10		1.00	0.07	0.50	0.5	8.8%	0.0%	11.2%	0.0%	0.0%		
実施例17		10		30		0.33	0.13	0.50	0.5	12.5%	88.6%	0.0%	11.4%	0.0%	0.0%	

* 原料ガス中に不可避的に含まれる水分によるものと推測される。

[0058] 表 1 ～ 3 より、実施例では、触媒を使用せずに、硫化カルボニルを製造できることがわかる。また、出発物質に占める CS_2 の体積割合が大きい方が、 COS の選択率が高くなることがわかる。実施例 9 ～ 11 に示されるように、不活性ガスを使用しなくても、良好な硫化カルボニルの選択率が達成できることがわかる。

産業上の利用可能性

[0059] 本発明によれば、硫化カルボニルを、気相流通方式で、触媒を使用せずに製造することができる。本発明の製造方法は、触媒の活性低下による収率の低下といった事態を回避することができ、また、硫化カルボニルを連続的に製造することができ、産業上の利用可能性が高い。

請求の範囲

- [請求項1] CS_2 と、 CO_2 、 CO 、 O_2 及び O_3 からなる群より選ばれる少なくとも1種とからなる出発物質を含む原料ガスを、連続的に流通させた状態で放電させ、次いで放電領域外に放出することを含む、硫化カルボニルの製造方法。
- [請求項2] 触媒を用いない、請求項1記載の硫化カルボニルの製造方法。
- [請求項3] 前記原料ガスの放電を起こす際に0.3kW以上の電力を供給する、請求項1又は2に記載の硫化カルボニルの製造方法
- [請求項4] 前記原料ガスを1cm以上の電極間距離を有する電極間で放電させる、請求項1～3のいずれか一項に記載の硫化カルボニルの製造方法
- [請求項5] 前記 CO_2 、 CO 、 O_2 及び O_3 からなる群より選ばれる少なくとも1種の体積の合計に対し、前記 CS_2 の体積の比が0.02以上である、請求項1～4のいずれか一項に記載の硫化カルボニルの製造方法。
- [請求項6] 前記原料ガスの体積に対し、前記 CS_2 の体積の比が0.02以上0.3以下である、請求項1～5のいずれか一項に記載の硫化カルボニルの製造方法。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2020/024447

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER C01B 32/77 (2017.01) i FI: C01B32/77 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) C01B32/00-32/991 Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Published examined utility model applications of Japan 1922-1996 Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2020 Registered utility model specifications of Japan 1996-2020 Published registered utility model applications of Japan 1994-2020 Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) JSTPlus (JDreamIII); JST7580 (JDreamIII); JSTChina (JDreamIII)																										
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT <table border="1"> <thead> <tr> <th>Category*</th> <th>Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages</th> <th>Relevant to claim No.</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>A</td> <td>JP 2018-519414 A (SAUDI ARABIAN OIL COMPANY) 19.07.2018 (2018-07-19) entire text</td> <td>1-6</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>JP 2012-224494 A (SHOWA DENKO KABUSHIKI KAISHA) 15.11.2012 (2012-11-15) entire text</td> <td>1-6</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>WO 2012/144441 A1 (SHOWA DENKO KABUSHIKI KAISHA) 26.10.2012 (2012-10-26) entire text</td> <td>1-6</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>JP 2014-20812 A (TAIYO NIPPON SAN SO CORPORATION) 03.02.2014 (2014-02-03) entire text</td> <td>1-6</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>WO 2004/089824 A1 (FINK, Winston, David) 21.10.2004 (2004-10-21) entire text</td> <td>1-6</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>BEZUK, Steve J. et al., J.Phys.Chem., 1983, vol. 87, no. 1, pp. 131-136 entire text</td> <td>1-6</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>JP 61-5409 B2 (IHARA CHEMICAL INDUSTRY CO., LTD.) 18.02.1986 (1986-02-18) entire text</td> <td>1-6</td> </tr> </tbody> </table>			Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.	A	JP 2018-519414 A (SAUDI ARABIAN OIL COMPANY) 19.07.2018 (2018-07-19) entire text	1-6	A	JP 2012-224494 A (SHOWA DENKO KABUSHIKI KAISHA) 15.11.2012 (2012-11-15) entire text	1-6	A	WO 2012/144441 A1 (SHOWA DENKO KABUSHIKI KAISHA) 26.10.2012 (2012-10-26) entire text	1-6	A	JP 2014-20812 A (TAIYO NIPPON SAN SO CORPORATION) 03.02.2014 (2014-02-03) entire text	1-6	A	WO 2004/089824 A1 (FINK, Winston, David) 21.10.2004 (2004-10-21) entire text	1-6	A	BEZUK, Steve J. et al., J.Phys.Chem., 1983, vol. 87, no. 1, pp. 131-136 entire text	1-6	A	JP 61-5409 B2 (IHARA CHEMICAL INDUSTRY CO., LTD.) 18.02.1986 (1986-02-18) entire text	1-6
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.																								
A	JP 2018-519414 A (SAUDI ARABIAN OIL COMPANY) 19.07.2018 (2018-07-19) entire text	1-6																								
A	JP 2012-224494 A (SHOWA DENKO KABUSHIKI KAISHA) 15.11.2012 (2012-11-15) entire text	1-6																								
A	WO 2012/144441 A1 (SHOWA DENKO KABUSHIKI KAISHA) 26.10.2012 (2012-10-26) entire text	1-6																								
A	JP 2014-20812 A (TAIYO NIPPON SAN SO CORPORATION) 03.02.2014 (2014-02-03) entire text	1-6																								
A	WO 2004/089824 A1 (FINK, Winston, David) 21.10.2004 (2004-10-21) entire text	1-6																								
A	BEZUK, Steve J. et al., J.Phys.Chem., 1983, vol. 87, no. 1, pp. 131-136 entire text	1-6																								
A	JP 61-5409 B2 (IHARA CHEMICAL INDUSTRY CO., LTD.) 18.02.1986 (1986-02-18) entire text	1-6																								
☒ 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 "I" 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 20 August 2020 (20.08.2020)		Date of mailing of the international search report 01 September 2020 (01.09.2020)																								
Name and mailing address of the ISA/ Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan		Authorized officer Telephone No.																								

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2020/024447

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	US 2012/0289439 A1 (MESTERS CAROLUS MATTHIAS ANNA MARIA) 15.11.2012 (2012-11-15) entire text	1-6

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2020/024447

Patent Documents referred in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
JP 2018-519414 A	19 Jul. 2018	US 2016-0305029 A1 entire text KR 10-2018-0019526 A CN 108093633 A (Family: none)	
JP 2012-224494 A	15 Nov. 2012	CN 103328379 A	
WO 2012/144441 A1	26 Oct. 2012	entire text KR 10-2013-0105712 A	
JP 2014-20812 A	03 Feb. 2014	US 2014-0017129 A1 entire text	
WO 2004/089824 A1	21 Oct. 2004	CN 001774396 A entire text	
JP 61-5409 B2	18 Feb. 1986	GB 002057412 A entire text	
US 2012/0289439 A1	15 Nov. 2012	DE 003031469 A CA 002784592 A entire text CN 102695672 A	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C01B 32/77(2017.01)i FI: C01B32/77		
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）） C01B32/00-32/991		
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 1971-2020年 日本国実用新案登録公報 1996-2020年 日本国登録実用新案公報 1994-2020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） JSTPlus (JDreamIII); JST7580 (JDreamIII); JSTChina (JDreamIII)		
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
A	JP 2018-519414 A (サウジ アラビアン オイル カンパニー) 19.07.2018 (2018 - 07 - 19) 全文	1-6
A	JP 2012-224494 A (昭和電工株式会社) 15.11.2012 (2012 - 11 - 15) 全文	1-6
A	WO 2012/144441 A1 (昭和電工株式会社) 26.10.2012 (2012 - 10 - 26) 全文	1-6
A	JP 2014-20812 A (太陽日酸株式会社) 03.02.2014 (2014 - 02 - 03) 全文	1-6
A	WO 2004/089824 A1 (FINK, WINSTON, DAVID) 21.10.2004 (2004 - 10 - 21) 全文	1-6
A	BEZUK Steve J. ET al., J.Phys.Chem., 1983, Vol.87, No.1, p.131-136 全文	1-6
A	JP 61-5409 B2 (イハラケミカル工業株式会社) 18.02.1986 (1986 - 02 - 18) 全文	1-6
☒ 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、一般的な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抵触するものではなく、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 20.08.2020	国際調査報告の発送日 01.09.2020	
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	権限のある職員（特許庁審査官） 廣野 知子 4G 9266 電話番号 03-3581-1101 内線 3416	

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
A	US 2012/0289439 A1 (MESTERS CAROLUS MATTHIAS ANNA MARIA) 15.11.2012 (2012 - 11 - 15) 全文	1-6

国際調査報告
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2020/024447

引用文献			公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP	2018-519414	A	19.07.2018	US 2016-0305029 A1 全文 KR 10-2018-0019526 A CN 108093633 A	
JP	2012-224494	A	15.11.2012	(ファミリーなし)	
WO	2012/144441	A1	26.10.2012	CN 103328379 A 全文 KR 10-2013-0105712 A	
JP	2014-20812	A	03.02.2014	US 2014-0017129 A1 全文	
WO	2004/089824	A1	21.10.2004	CN 001774396 A 全文	
JP	61-5409	B2	18.02.1986	GB 002057412 A 全文 DE 003031469 A	
US	2012/0289439	A1	15.11.2012	CA 002784592 A 全文 CN 102695672 A	