



УКРАЇНА

(19) UA (11) 17240 (13) U
(51) МПК (2006)
C01B 33/00МІНІСТЕРСТВО ОСВІТИ
І НАУКИ УКРАЇНИДЕРЖАВНИЙ ДЕПАРТАМЕНТ
ІНТЕЛЕКТУАЛЬНОЇ
ВЛАСНОСТІ

ОПИС

ДО ДЕКЛАРАЦІЙНОГО ПАТЕНТУ
НА КОРИСНУ МОДЕЛЬвидається під
відповідальність
власника
патенту

(54) СПОСІБ ОДЕРЖАННЯ СИЛАНУ

1

2

(21) u200603281

(22) 27.03.2006

(24) 15.09.2006

(46) 15.09.2006, Бюл. № 9, 2006 р.

(72) Петрик Адольф Гаврилович, Шварцман Леонід Якович, Касаткін Юрій Александрович, RU

(73) Касаткін Юрій Александрович, RU

(57) 1. Спосіб одержання силану, який включає диспропорціювання трихлорсилану в шарі каталізатора в реакторі, конденсацію продуктів реакції диспропорціювання для відділення газоподібного силану, рециркуляцію принаймні частини сконден-

сованої фази в реакційну зону реактора протитечією висхідному потоку газової фази і виведення рідкого тетрахлориду кремнію з нижньої частини реактора, який **відрізняється** тим, що реакцію диспропорціювання проводять у шарі вільного незафіксованого каталізатора при швидкості подачі трихлорсилану в реакційну зону, яка складає 0,8-1,0 швидкості, що відповідає точці інверсії фаз. 2. Спосіб за п. 1, який **відрізняється** тим, що висота шару каталізатора, попередньо завантаженого в реактор, складає 75-85 % висоти реакційної зони реактора.

Корисна модель відноситься до металургії, а саме до способів одержання силану для напівпровідникової промисловості.

Найбільш близьким за технічною суттю і результатом, що досягається, до способу, що заявляється, є спосіб одержання силану [див. п. Німеччини №19860146 від 24.12.98р., опубл.29.06.2000р. МПК⁶ C01B33/04, C01B33/107], який включає диспропорціювання трихлорсилану в шарі каталізатора в реакторі, конденсацію продуктів реакції диспропорціювання для відділення газоподібного силану, рециркуляцію принаймні частини сконденсованої фази в реакційну зону реактора протитечією висхідному потоку газової фази і виведення рідкого тетрахлориду кремнію з нижньої частини реактора.

У відомому способі диспропорціювання трихлорсилану здійснюють у фіксованому шарі каталізатора. Для цього каталізатор розміщують на решітці, звернувши шар каталізатора також фіксують решіткою. Тиск у реакційній зоні реактора підтримують у межах від 1,0 до 50атм. В реакційну зону реактора подають пари трихлорсилану. Отримані в результаті диспропорціювання продукти реакції направляють на проміжну конденсацію в інтервалі температур від (-25)°C до 50°C. Сконденсовану фазу рециркулюють у шар каталізатора протитечією висхідному потоку газової фази. Несконденсовані легкокиплячі продукти реакції диспропорцію-

вання конденсують при температурі до (-110)°C для відділення газоподібного силану, а конденсат частково рециркулюють на стадію проміжної конденсації.

Відомий спосіб характеризується недостатньо високим виходом силану (~95% від стехіометричного) і невисокою продуктивністю способу в цілому. Зазначені недоліки відомого способу пояснюються наступним.

При здійсненні реакції диспропорціювання трихлорсилану у фіксованому шарі каталізатора навколо нерухомих його часток утворюється приповерхневий газовий шар із продуктів реакції диспропорціювання, що перешкоджає проникненню трихлорсилану до активних центрів каталізатора. Масообмін між фазами у фіксованому шарі каталізатора лімітується конвективною дифузією, що сповільнює масопередачу між фазами, обумовлює недостатньо високі вихід силану і продуктивність способу в цілому.

В основу корисної моделі поставлена задача удосконалення способу одержання силану, в якому шляхом нових умов здійснення відомих дій забезпечується інтенсифікація реакцій диспропорціювання і масообміну між реагентами гетерофазного процесу синтезу силану і за рахунок цього досягається підвищення його виходу і продуктивності способу в цілому.

Поставлена задача вирішується тим, що у ві-

(13) U
17240
(11) U
(19) U

домому способі одержання силану, який включає диспропорціювання трихлорсилану в шарі каталізатора в реакторі, конденсацію продуктів реакції диспропорціювання для відділення газоподібного силану, рециркуляцію принаймні частини сконденсованої фази в реакційну зону реактора протічечією висхідному потоку газової фази і виведення рідкого тетрахлориду кремнію з нижньої частини реактора, новим, відповідно до технічного рішення, що заявляється, є те, що реакцію диспропорціювання проводять у шарі вільного незафіксованого каталізатора при швидкості подачі трихлорсилану в реакційну зону, яка складає 0,8-1,0 швидкості, що відповідає точці інверсії фаз.

Новим є також те, що висота шару каталізатора, попередньо завантаженого в реактор, складає 75-85% висоти реакційної зони реактора.

Між сукупністю суттєвих ознак корисної моделі, що заявляється, і технічним результатом, що досягається, існує такий причинно-наслідковий зв'язок.

Нові умови здійснення відомих дій, а саме:

- проведення реакції диспропорціювання трихлорсилану в шарі вільного незафіксованого каталізатора;

- подача трихлорсилану в реакційну зону зі швидкістю, яка складає 0,8-1,0 швидкості, що відповідає точці інверсії фаз

у сукупності з відомими ознаками корисної моделі забезпечують інтенсифікацію реакцій диспропорціювання і масопередачі.

Це пояснюється наступним. Точці інверсії фаз відповідає максимальне значення утримуючої здатності по дисперсній фазі, під якою розуміють кількість дисперсної фази, утриманої в даний момент в одиниці об'єму суцільної фази. При інверсії фаз газ стає суцільною фазою, а рідина диспергується в ньому, утворюючи газорідну емульсію. При заявленій швидкості подачі трихлорсилану в шар вільного незафіксованого каталізатора з парів трихлорсилану, що надходить, і спрямованої протічечією до нього сконденсованої фази, яка складається із суміші ди-, три- і тетрахлорсиланів, у реакційній зоні утворюються газорідна емульсія і твердорідна суспензія. Ця гетерофазна система знаходиться в метастабільному стані, що характеризується різким зростанням масообміну між фазами. В результаті значно інтенсифікуються процеси масопередачі, сприяючи поділу і переносу фаз. Безупинна взаємодія між фазами здійснюється за рахунок турбулентної дифузії, що сприяє відводу продуктів реакції диспропорціювання і доставці парів трихлорсилану до активних центрів каталізатора. Це, в свою чергу, забезпечує збільшення площі контакту реагентів з поверхнею часток каталізатора і сприяє більш повному перетворенню трихлорсилану в силан.

Заявлена швидкість подачі трихлорсилану в реакційну зону є оптимальною і встановлена експериментально.

При подачі трихлорсилану в реакційну зону зі швидкістю нижче заявленої не відбувається утворення газорідної емульсії, що знижує масообмін між фазами та обумовлює зниження виходу силану і продуктивності способу.

Підвищення швидкості подачі трихлорсилану

вище межі, що заявляється, призводить до виносу сконденсованої фази з реакційного об'єму, погіршує диспропорціювання трихлорсилану, знижує вихід силану і продуктивність способу.

Експериментально встановлено, що висока продуктивність способу з високим виходом силану досягається при завантаженні каталізатора в реактор у кількості, при якому висота його шару складає 75-85% висоти реакційної зони. Таке заповнення реактора забезпечує вільний рух каталізатора в процесі здійснення способу, що заявляється.

Підвищення кількості каталізатора вище заявленої ускладнює його вільне переміщення, що погіршує умови масопередачі між фазами. Зниження кількості каталізатора нижче заявленої не доцільно, тому що призводить до зниження продуктивності способу.

Спосіб, що заявляється, реалізується таким чином.

В реактор на ґрати завантажують каталізатор шаром, висота якого складає 75-85% висоти реакційної зони. Трихлорсилан завантажують у куб, з'єднаний з реактором, де його нагрівають до утворення парів. Пари трихлорсилану подають в реактор у шар каталізатора зі швидкістю, яка складає 0,8-1,0 швидкості, що відповідає точці інверсії фаз. Газоподібні продукти, що утворилися в результаті реакції диспропорціювання, надходять у конденсатор, в якому підтримують температуру (-20) - (-90)°C, для відділення газоподібного силану від сконденсованих продуктів. Сконденсовану фазу рециркулюють у реактор протічечією висхідному потоку газової фази. При цьому в реакційній зоні утворюється гетерофазна система: газорідна емульсія і твердорідна суспензія. Система характеризується високими масообмінними властивостями, що дозволяє підвищити вихід силану і продуктивність способу в цілому. Тиск у реакторі підвищується за рахунок утворення газової фази і підтримується в межах від 1,5 до 51,0 атм. (оптимально - 4 атм). Рідкий тетрахлорид кремнію виводять з нижньої частини реактора. Підживлення свіжим трихлорсиланом здійснюють введенням його в куб або у нижню частину реакційної зони реактора. Трихлорсилан подають у реактор з розрахунку 15-25 кг на кг каталізатора. При цьому перепад тиску в шарі каталізатора при стаціонарному режимі складає 0,02-0,05 атм/м висоти каталізатора.

Спосіб, що заявляється, був випробуваний у лабораторних умовах. Як вихідну сировину використовували технічний 98,8% трихлорсилан. Як каталізатор використовували аніонообмінну смолу марки АН21. В експериментах змінювали швидкість подачі трихлорсилану в реакційну зону від 0,1 до 0,5 м/с у живому перетині реактора, що відповідає заявленій швидкості подачі трихлорсилану, яка складає 0,8-1,0 швидкості, що відповідає точці інверсії фаз. Висоту шару каталізатора, попередньо завантаженого в реактор, змінювали від 75 до 85% висоти реакційної зони. Були проведені також експерименти при позамежних значеннях швидкості подачі трихлорсилану і висоті шару каталізатора.

Найкращі результати, а саме, вихід силану

98,2-98,6% від стехіометричного, продуктивність по силану - 445-550л/година, досягнуті при заявленій швидкості подачі трихлорсилану в реакційну зону і заявленій кількості каталізатора у реакторі.

Заявлений спосіб одержання силану здійснюють на відомому устаткуванні з використанням відомих матеріалів і засобів, що підтверджує промислову придатність об'єкта.