



(12) 发明专利

(10) 授权公告号 CN 101925532 B

(45) 授权公告日 2013.07.10

(21) 申请号 200980103180.3

(22) 申请日 2009.03.31

(30) 优先权数据

12/080,918 2008.04.07 US

(85) PCT申请进入国家阶段日

2010.07.23

(86) PCT申请的申请数据

PCT/US2009/002000 2009.03.31

(87) PCT申请的公布数据

W02009/126218 EN 2009.10.15

(73) 专利权人 劳德有限公司

地址 美国加利福尼亚州

(72) 发明人 斯蒂芬·M·劳德

(74) 专利代理机构 上海专利商标事务所有限公

司 31100

代理人 朱黎明

(51) Int. Cl.

C01B 33/107(2006.01)

(56) 对比文件

CN 101065324 A, 2007.10.31, 摘要.

CN 1934119 A, 2007.03.21, 实施例 1.

JP 特开 2005-29428 A, 2005.02.03, 第 14、20-22、25、33-37、42-50 段, 实施例 2.

US 2004/0047797 A1, 2004.03.11, 第 2 栏第 34-45 行、第 4 栏第 28-60 行、第 7 栏第 16-46 行、第 8 栏第 35-56 行.

审查员 李欣玮

权利要求书2页 说明书6页 附图4页

(54) 发明名称

自氯硅烷移除铝及其它金属氯化物的方法

(57) 摘要

本发明涉及自液态氯硅烷移除铝及其它金属氯化物的方法,所述的方法包括以下步骤:将晶种源引入不纯液态氯硅烷源中,在第一搅拌容器中激发铝及其它金属氯化物在液态氯硅烷中的晶种上结晶,将得到的液体与固体混合物经由冷却器输送至第二搅拌容器中再作结晶,将所得液体与固体混合物转移到固体移除装置中,将具有低固体含量的液体转移到另一处理过程或容器中,并将具有高固体含量的液体转移到废物浓缩装置中,将得到的具有低固体含量的液体输送到另一处理过程或容器中,并将所得的具有极高固体含量的液体输送到具有搅拌功能的废物储存容器中。

Table with multiple columns and rows, likely a patent classification or reference table.

CN 101925532 B

1. 一种自液态氯硅烷移除氯化铝及其它部分可溶的金属氯化物的方法,所述的方法包括以下步骤:

提供具有搅拌装置的处理容器;

将晶种材料和液态氯硅烷的不纯溶液引入所述处理容器中,所述液态氯硅烷的不纯溶液中含有氯化铝及其它金属氯化物;

保持所述氯化铝及其它部分可溶的金属氯化物溶解或悬浮在液态氯硅烷溶液中,同时使晶种与液态氯硅烷溶液混合,允许铝及金属氯化物层沉积在晶种上;

将晶种和液态氯硅烷溶液的混合物转送到固体移除容器中,在所述固体移除容器中产生具有高固体含量的液体的第一料流和具有低固体含量的液体溶液的第二料流;

将所述具有低固体含量的液体溶液的第二料流转移至另一处理过程或容器 A 中,并将所述具有高固体含量的液体的第一料流转移至废物储存容器或另一处理容器 B 中。

2. 如权利要求 1 所述的方法,其特征在于,所述的方法进一步包括在含有氯化铝的氯硅烷蒸气冷凝为液态氯硅烷并形成所述液态氯硅烷的不纯溶液之前,先将所述蒸气与晶种源混合。

3. 如权利要求 1 所述的方法,其特征在于,所述液态氯硅烷的不纯溶液包含一种或多种可移除的部分可溶的金属氯化物,所述部分可溶的金属氯化物选自包括 AlCl_3 、 SbCl_3 、 InCl 、 InCl_2 、 GaCl 、 GaCl_2 、 GaCl_3 、 SnCl_2 、 TlCl 、 ZnCl_2 、 ZrCl_4 的第一组化合物,所述部分可溶的金属氯化物通过所述方法基本上被移除。

4. 如权利要求 3 所述的方法,其特征在于,所述液态氯硅烷的不纯溶液还包含一种或多种完全可混溶的氯化物,所述完全可混溶的氯化物选自包括 BCl_3 、 TiCl_4 、 PCl_3 的第二组化合物,所述第二组化合物基本上不能通过所述方法被移除。

5. 如权利要求 3 所述的方法,其特征在于,所述液态氯硅烷的不纯溶液还包含一种或多种可移除的磷化合物,所述磷化合物选自包括 PH_3 、 PH_4Cl 、 POCl 和 PCl_5 的第一组化合物,所述化合物通过与铝和其它氯化物固体结合在所述方法中基本上被移除。

6. 如权利要求 1 所述的方法,其特征在于,所述搅拌装置是具有防漏密封的机械搅拌器。

7. 如权利要求 1 所述的方法,其特征在于,所述固体移除容器是液体旋流器。

8. 如权利要求 1 所述的方法,其特征在于,所述废物储存容器是具有至少一个蒸气排放口和至少一个固体排放口的加热容器。

9. 如权利要求 1 所述的方法,其特征在于,重复进行所述方法的一个或多个步骤。

10. 如权利要求 1 所述的方法,其特征在于,所述方法进一步包括通过提高所述具有低固体含量的液体溶液的第二料流的温度,将所述第二料流中的固体再溶解的步骤。

11. 如权利要求 1 所述的方法,其特征在于,通过降低温度使溶解或悬浮在液态氯硅烷溶液中的氯化铝和其它部分可溶的金属氯化物的溶解度降低,同时使晶种与液态氯硅烷溶液混合,允许铝及金属氯化物层沉积在晶种上。

12. 如权利要求 1 所述的方法,其特征在于,通过蒸发氯硅烷使溶解或悬浮在液态氯硅烷溶液中的氯化铝和其它部分可溶的金属氯化物的溶解度降低,同时使晶种与液态氯硅烷溶液混合,允许铝及金属氯化物层沉积在晶种上。

自氯硅烷移除铝及其它金属氯化物的方法

【技术领域】

[0001] 本发明总的来说涉及氯硅烷的制备领域,更具体地说,涉及一种自氯硅烷移除铝及其它金属氯化物的方法。

【背景技术】

[0002] 光电装置对高纯度硅的需求日益增加,在许多制备高纯度硅的方法中,第一步将纯度约为 99% 的不纯硅(称为冶金级硅(MGS))转化为液态氯硅烷,通常为三氯硅烷(SiHCl_3),三氯硅烷可被纯化至极高纯度,随后可转化回极高纯度的固态硅。在所述第一步中,流化床反应器通常发生这样的情况:不纯的固态硅与含氯气体反应,而且许多固体杂质滞留在该反应器内或诸如旋流器的除尘设备中。然而,铝及一些其它污染物例如锑、硼、碳、铟、镓、磷、铈、锡、钛、锌及锆的性质使得它们形成挥发性化合物,与所希望的氯硅烷一起被带出反应器。因此,反应器的流出气体中含有这些挥发性化合物,所述流出气体随后被冷却形成液态氯硅烷混合物,其主要成份为二氯硅烷(SiH_2Cl_2)、三氯硅烷(SiHCl_3)及四氯化硅(亦称为四氯硅烷)(SiCl_4),该混合物可通过常规方法主要采用蒸馏进行纯化。铝是特别主要的,这是因为铝的数量大,在冶金级原料中为 2000-10000ppma,并且与硼一样,可在高纯度硅中用作具有电学活性的掺杂剂,因此必须将铝的含量降至极低;但硼在冶金级原料中的含量仅约 20-100ppma。此外,氯化铝(AlCl_3)具有在大气压下不会形成液相的异常性质。当压力接近例如用于蒸馏的大气压时,氯化铝可直接自固体转化为气体;但氯化铝可部分地溶解在氯硅烷中,这取决于温度。因此,可通过蒸馏来移除氯化铝,但却非常困难,因为蒸馏系统内往往会形成固态沉积物,并且不可能直接产生高浓度铝液态废物,因此需要处理的废物较多,费用高昂并且造成环境问题。如上所述,其它金属也可形成挥发性化合物,它们都是氯化物。在这些氯化物中大部分如锑、铟、镓、铈、锡、锌及锆的氯化物的性质与氯化铝相似,所以往往与铝一起被移除,但钛的氯化物除外。在形成挥发性化合物的其他元素硼、碳及磷之中,硼及碳化合物的性质不像铝,必须用一些其它方式来移除。磷化合物的性质也不像铝,但某些磷化合物如 PH_3 、 PH_4Cl 、 PCl_5 及 POCl_3 可与氯化铝结合形成加合物,与铝一起被移除,而磷化合物 PCl_3 除外。加合物为路易斯(Lewis)酸与路易斯碱结合得较弱的混合物,故其可容易地形成及离解。固态氯化铝/磷加合物的这种离解能力特别值得关注,因为收集在过滤器或罐中的固体可意外地释放气态或溶解的磷,导致磷的浓度激增。

[0003] 涉及氯硅烷制备的大多数现有专利既未提及移除金属氯化物,也未提及通过磷与氯化铝结合来移除磷。在 Breneman 等人的美国专利第 4,676,967 号“高纯度硅烷和硅的制备(High Purity Silane and Silicon Production)”中,提到的金属氯化物是作为废物的一部分被一起移除,移除该废物的主要目的在于移除残留的冶金硅粉末。固体可沉降于塔底部,定期吹扫底部的液体及固体内容物进行清除。这是“所有过程的唯一整合废物”。(参见第 5 页第 40 列)

[0004] Block 等人的美国专利申请第 2004/0042949 号“自氯硅烷移除铝的方法(Method for Removing Aluminum from Chlorosilanes)”及 Block 等人的美国专利第 6,887,448

号“高纯度硅的制备方法 (Method of Production of High Purity Silicon)”均使用温度大于 160℃和高压 (25-40 巴) 的蒸馏法。

[0005] Lord 的美国专利申请第 2007/0098612 A1 号“自硅生产设备中移除杂质的一套方法 (A Set of Processes for Removing Impurities from a Silicon production Facility)”讨论了各种现有技术方法, 并且顺便提及基于氯硅烷与基于溴硅烷的方法之间的区别在于, 在基于氯硅烷的方法中需要额外的过滤步骤来移除固态氯化铝。

[0006] 在处理含铝废物的现有技术中也讨论了现有分离技术的缺点。在 Ruff 的美国专利第 5, 066, 472 号第 1 页第 28 行中叙述了: “蒸馏通常只能粗糙地将氯硅烷与固体残留物分离, 其残留物为悬浮液, 需要另外加工处理”。他在第 1 页第 67 行中进一步阐述: “因此, 寻找一种处理蒸馏残留物及回收氯硅烷的方法的问题仍然存在……”。第一步是在螺旋干燥器中蒸发浓缩残留物浓缩。

[0007] 在 Breneman 的美国专利第 4, 743, 344 号及美国专利申请第 2006/0183958 号中采用了类似步骤。因此, 明显地现有技术的主要缺点在于含铝废物包含许多有价值的氯硅烷, 必须消耗大量的能量来回收该材料。

[0008] Block 的美国专利第 2004/0042949A1 号揭示了现有蒸馏分离技术的另一缺点, 即氯化铝在气相中升华而扩散到整个塔中, 致使无法分离整个塔中的铝, 也无法沉积固态氯化铝, 最终只能停止塔的运用进行清洗。这一发明的高温及高压 (25-40 巴) 蒸馏法使氯化铝保持液态, 但同样存在高能耗以及高压导致高成本等问题。高能耗是因为反应器的全部流出物都要煮沸而在反应器顶部溢出。同样, 高成本是因为必须蒸馏整个车间的流出物。此外, 还需要进一步蒸馏使所希望的三氯硅烷与副产物四氯化硅分离。

[0009] Lord 的美国专利第 2007/0098612A1 号既未阐明如何过滤氯化铝, 或者, 更重要地, 未阐明如何形成易过滤的适当固体。过滤处理要分批进行, 成本非常高。

[0010] 现有技术未提及的其它缺点还有: 金属氯化物在三氯硅烷中的可溶性不如在四氯化硅中的可溶性, 或者收集到的含有氯化铝的固体可吸收并释放与氯化铝结合的磷 (PH_3) 或其它可能的磷化合物 (PH_4Cl 、 POCl_3 、 PCl_5)。

【发明内容】

[0011] 本发明的主要目的在于提供自氯硅烷移除氯化铝的较佳方法。

[0012] 本发明的另一目的在于以固体形式移除铝和其它固体污染物。

[0013] 本发明的又一目的在于移除通常存在于氯硅烷中并形成固体的其它挥发性金属氯化物。

[0014] 本发明再一目的在于通过使磷化合物与氯化铝结合来移除磷, 防止磷化合物随后大量释放回三氯硅烷。

[0015] 本发明还有一目的在于提供低操作成本的方法。

[0016] 本发明还有另一目的在于提供低投资成本的方法。

[0017] 本发明还有又一目的在于提供适合回收氯内容物的废物。

[0018] 结合附图并参阅以下的说明, 本发明的其它目的和优点将显而易见, 其中, 通过阐述举例给出了本发明的具体实施方式。

[0019] 根据本发明较佳实施例, 一种自液态氯硅烷移除铝及其它金属氯化物的方法包括

以下步骤：提供具有搅拌装置的处理容器、将晶种材料和液态氯硅烷的不纯溶液引入该处理容器中，该液态氯硅烷的不纯溶液含有氯化铝及其它金属氯化物；

[0020] 保持氯化铝及其它部分可溶的金属氯化物溶解或悬浮在液态氯硅烷溶液中，同时使晶种与液态氯硅烷溶液混合，允许铝及金属氯化物层沉积在晶种上，将晶种与液态氯硅烷溶液的混合物转送到固体移除容器中，在该固体移除容器中产生具有高固体含量的液体的第一料流和具有低固体含量的液体溶液的第二料流；

[0021] 将具有低固体含量的液体溶液的第二料流转移至另一处理过程或容器，并将具有高固体含量的液体的第一料流转移至废物储存容器或另一处理容器中。

[0022] 【附图简要说明】

[0023] 附图构成本说明书的一部分且包括本发明的具体实施例，具体实施例可以各种形式来实施。应该理解到，为了有助于理解本发明，本发明的各方面在一些情况下可能扩大或放大显示。

[0024] 图 1 为包括本发明的方法及其与典型氯硅烷制备设备结合的操作流程图。

[0025] 图 2 为三氯化铝在三氯硅烷 (TCS) 及四氯化硅 (STC) 中的溶解度图。

【具体实施方式】

[0026] 在此提供较佳的实施例的详细说明。然而，应该理解到，本发明可以各种形式实施。因此，不应将在此所揭示的具体细节解释为限定，而应作为权利要求的基础和教导本领域技术人员在任一适当具体系统、结构或以任何方式实际应用本发明的代表性基础。

[0027] 首先参见图 1，其示出了一种典型的氯硅烷制备反应器 100，所述反应器产生包含固体与气体混合物的流出物 101，该混合物包括但不限于：粉末状的硅及其它固体、氯硅烷、氢、氯化氢、氯化铝及其它金属氯化物。该流出物 101 进入固体移除装置 102，诸如旋流器或过滤器系统，大部分固体从该装置中以料流 103 排出。然而，用作外部晶种源的大量固体残留在净化的气体流 104 中。然后，净化的气体流由移热装置 105 如热交换器或冷却系统冷却，其中一部分净化的气体流 104 冷凝为含有固体、液体及气体的料流 106。该料流 106 随后进入初始气体分离器 / 结晶器 107 中。气体流 112 在设有冷却剂 118 及回路 119 的移热系统 113 中冷却。气体流 112 现在主要包含氢和氯化氢，离开初始气体分离器 / 结晶器 107 作再循环。在初始气体分离器 / 结晶器 107 的底部收集液体和固体，并由搅拌器 108 混合，使固体悬浮在液体中并混合在可再循环的料流 152 中，所述料流 152 在有需要时可提供额外晶种。料流 120 中的液体和固体混合物离开初始气体分离器 / 结晶器 107 并进入另一移热装置 121，例如热交换器或冷却系统，形成过饱和溶液 122，在悬浮于溶液 122 中的晶种上进一步结晶。过饱和溶液 122 随后流经控制阀 123，以低压料流 124 排出并进入第二气体分离器 / 结晶器 125 中。所有释放的气体和蒸气 128 流向塔顶然后经过控制阀 129，控制阀 129 用于保持第二气体分离器 / 结晶器 125 中的压力。然后，低压气体流 170 进入第一氯硅烷蒸馏塔 160 中。进入第二气体分离器 / 结晶器 125 的液体和固体留在第二气体分离器 / 结晶器 125 的底部部分，用搅拌器 126 进行混合。浆液 127 离开第二气体分离器 / 结晶器 125 并进入第一固体分离装置，例如液体旋流器或过滤器 130。大部分固体以固体料流 131 排出，带有一些液态氯硅烷。该固体料流 131 再在第二固体分离装置例如液体旋流器或过滤器 132 中被进一步处理，进一步浓缩固体为高含量固体料流 140，同时以主液体

流 133 回收额外有用的氯硅烷。高含量固体料流 140 经由阀 141 直接排入废物罐 142, 废物罐 142 设有搅拌器 143 搅拌和夹套 147 加热, 所述夹套反过来供热 148 和返回料流 149。含有液体和固体的料流 144 被弃掉或被送去作进一步处理。同样地, 蒸气流 145 被弃掉或被送去作进一步处理。来自车间其他地方的另一额外的废物料流 146 被送入罐中。

[0028] 含有较少固体料流的回收液态氯硅烷 136 离开第一固体分离装置 130, 流经控制阀 137 后形成低压料流 138。含有较少固体料流的回收液态氯硅烷 133 离开第二固体分离装置 132, 流经控制阀 134 后形成低压料流 135。两股料流合并形成蒸馏塔 160 的液态进料流 139, 蒸馏塔 160 的操作压力通常是 2-10 巴。纯化三氯硅烷以料流 161 排出蒸馏塔 160, 其铝的浓度一般小于 1ppb, 而残留 AlCl_3 则以底部料流 162 排出蒸馏塔 160, 其铝的浓度一般为 30-100ppm。进料流 139 在进入蒸馏塔 160 之前可通过任选的进料加热器 163 加热, 形成加热料流 159, 这是常见的蒸馏做法。通过设置额外抽吸管线 150、泵 151 和排放管线 152, 可以循环利用部分来自第二气体分离器 / 结晶器 125 的浆液。也可以作其他修改达到相同目的。例如, 可使用压缩机 164 降低第二气体分离器 / 结晶器 125 的压力, 籍此使液体在蒸发时冷却; 这也需要使用泵 (图中未示) 对浆液流 127 加压。控制阀 123 可位于冷却装置 121 之前。

[0029] 图 1 示出了本发明的方法的一个应用实施例, 表 1 为它的质量平衡。反应器 100 的操作压力是 30 巴, 固体移除装置 102 是旋流器, 它的效率为 96%, 以 0.03 公斤 / 小时的速率在流出物中产生晶种。气体与晶种的混合物在管壳式热交换器 105 中冷却, 该管壳式热交换器 105 回收本发明方法的热量, 再送到初始脱气器 / 结晶器 107 中, 所述脱气器 / 结晶器是设有磁力驱动搅拌器 108 的压力容器, 它的停留时间为 1 小时。出口液体料流 120 除了含有氯硅烷和甲基氯硅烷之外通常也含有如表 2 中所示的浓度的杂质。移热装置 121 为管壳式热交换器, 其内部为抛光或涂敷有聚四氟乙烯 (teflon) 的管以降低黏度。出口温度最好维持在 40-60°C 之间以确保低于 $\text{AlCl}_3 \cdot \text{PH}_3$ 加合物的熔点 83°C。第二气体分离器 / 结晶器 125 同样为具有 1 小时停留时间的 10 巴低压的压力容器, 也设有类似的磁力驱动搅拌器 126 搅拌。应当注意, 这两种搅拌器都可通过搅拌器叶片、容器壁和晶种本身与已存在的晶种碰撞而产生晶种。因此, 晶体粒度分布可控制在 5 至 200 微米的较佳范围内。浆液 127 被送入第一固体移除装置 130 中, 该第一固体移除装置 130 可以是液体旋流器或水力旋流器, 使用液压使液体旋转并移除固体, 其方式类似于较常见的气体旋流器。为了达到约 98% 的高效率, 将四个直径为 1 英吋的液体旋流器在常用的压力容器中用歧管集合在一起。操作是连续的, 通过调节压差从而调节分流的控制阀 137 和 134 来控制。通过在壁和 / 或出口喷嘴上使用极硬的氧化铝陶瓷和提供易更换的磨损部件来减低旋流器的腐蚀。第二固体移除装置 132 也是水力旋流器, 但只有一个直径为 1/2 英吋的液体旋流器和固体收集器, 该固体收集器可积聚高浓度固体 (通常占 40 (重量) %), 定期排放固体, 通常每 4-16 小时排放一次。即使在固体排放期间液体的排放也是持续的。废物罐 142 接收一些其它废物 146, 其具有较低固体含量但带有其它杂质, 例如四氯化钛和三氯化硼。夹套 147 以 150psig 蒸汽 148 加热, 伴有冷凝液料流 149。蒸气流 145 和液体 / 固体流 144 被送去作进一步处理。废物罐 142 分离含有磷加合物的固体, 而且即使有部分磷释放出来, 也能够防止磷返回系统。参见表 1 可知, 固体料流 140 仅含有 1kg/hr 的固体。因此, 即使水力旋流器 132 只在最长排放时间排空, 即每 16 小时排 1 次, 最高固体含量也只有 16kg; 因而使大量磷激增的机率

降至最低。

[0030] 参照图 2 可见,当以摩尔分数的对数相对于绝对温度的倒数绘图时,氯化铝 (AlCl_3) 的溶解度基本上是线性的。重要的是,氯化铝在三氯硅烷 (TCS) 中的溶解度为在四氯化硅 (STC) 中溶解度的 1/3 至 1/4。因此 AlCl_3 的溶解度取决于氯硅烷混合物的温度以及三氯硅烷和四氯化硅的摩尔分数。当以计算的进料浓度 AlCl_3 进料时,确保 AlCl_3 在整个蒸馏塔 160 中一直保持溶解状态也是重要的。较方便的做法是首先采用分段式蒸馏塔程序,假设 AlCl_3 是溶解的,以氯硅烷和氯化铝的标准性质确定每一阶段中 AlCl_3 、三氯硅烷和四氯化硅的理想浓度。第二,基于温度和各成分的组成确定 AlCl_3 的浓度低于溶解度极限。重要的是,应该注意固相 AlCl_3 产生全蒸气压,而溶解的 AlCl_3 由于液态 AlCl_3 的全蒸气压而使它的浓度大大增加时也产生蒸气压。作简单检查可确保基本上包含塔中所有 AlCl_3 的底部料流 162 能够保持 AlCl_3 溶解。在料流 159 中, AlCl_3 的数量为 $1.35\text{E}-3\text{kg}$ 摩尔,四氯化硅为 28.8kg 摩尔。这一浓度为 $4.69\text{E}-5$ 。从图 2 的方程式得出最低温度如下:

$$[0031] \quad \text{四氯化硅中的摩尔溶解度} = (1.35\text{E}-3)/28.8 = 4.69\text{E}-5$$

$$[0032] \quad \text{四氯化硅中的溶解度对数} = -0.6221*(1000/T)-2.5361$$

$$[0033] \quad \text{Log}(4.69\text{E}-5) = -4.33 = -0.6221*(1000/T)-2.5361$$

$$[0034] \quad T = 346.9\text{K} = 73.8^\circ\text{C}$$

[0035] 因此,底部料流 162 的最低温度是 73.8°C 。故此塔操作压力可设置成确保底部温度高于该最低温度。在该实施例中的压力为 8 巴,底部温度在 $140-150^\circ\text{C}$ 之间,远高于所要求的温度。假设底部料流 162 中全部为四氯化硅,则所需的最小压力将是 1.6 巴。对塔的其他设计作类似的计算,例如使用侧取,对于本领域的技术人员而言是显而易见。另一步骤是检查进料料流 159 是否不含悬浮固体。从图 2 的方程式得出在进料流温度 81.7°C (354.85K) 下的溶解度如下:

$$[0036] \quad \text{温度倒数 } 1000/T = 2.818$$

$$[0037] \quad \text{四氯化硅中溶解度的对数} = -0.6221*2.818-2.5361 = -4.289$$

$$[0038] \quad \text{四氯化硅中的摩尔溶解度} = 10^{(-4.289)} = 5.14\text{E}-5$$

$$[0039] \quad \text{三氯硅烷中溶解度的对数} = -0.3609*2.818-3.8276 = -4.845$$

$$[0040] \quad \text{三氯硅烷中的摩尔溶解度} = 10^{(-4.845)} = 1.43\text{E}-5$$

[0041] 下一步骤是分别将四氯化硅和三氯硅烷的摩尔数 (参见表 1,料流 139) 乘以各自的摩尔溶解度,然后将那些结果相加,得到可溶于料流中的 AlCl_3 的最大摩尔数。

$$[0042] \quad \text{溶于四氯化硅中的 } \text{AlCl}_3\text{Kg 摩尔} = 5.14\text{E}-5*28.8 = 1.48\text{E}-3$$

$$[0043] \quad \text{溶于三氯硅烷中的 } \text{AlCl}_3\text{Kg 摩尔} = 1.43\text{E}-5*10.8 = 1.54\text{E}-4$$

$$[0044] \quad \text{溶于混合物中的 } \text{AlCl}_3 \text{ 最大 Kg 摩尔数} = 1.634\text{E}-3$$

[0045] 参照表 1,料流 139 所含的 AlCl_3 总量为 $1.348\text{E}-3\text{kg}$ 摩尔,其中悬浮的 AlCl_3 含量为 $2.28\text{E}-4\text{kg}$ 摩尔,溶解的 AlCl_3 含量为 $1.12\text{E}-3\text{kg}$ 摩尔。 81.7°C 的料流 139 的组成中 AlCl_3 的最大溶解量为 $1.634\text{E}-3\text{kg}$ 摩尔,料流 139 中 AlCl_3 的实际含量为 $1.348\text{E}-3\text{kg}$ 摩尔,二者之比为 1.21,这可提供足够的驱动力在加热器 163 和连接至蒸馏塔 160 的管道所提供的停留时间内溶解运载通过固体分离装置的极细颗粒。较低的驱动力需要较长的停留时间,反之亦然。

[0046] 虽然结合较佳的实施例叙述了本发明,但并不意味着将本发明的保护范围限定

于所述的具体形式,相反地,本发明涵盖包含在由随附的权利要求书所限定的本发明精神和范围内的替代、修改及等同的内容。

名称	化学式	101	103	104	106	120	112	122	124	127	136	151	135	140	139	189
		kmol/h	kmol/h	kmol/h	kmol/h	kmol/h	kmol/h	kmol/h	kmol/h	kmol/h	kmol/h	kmol/h	kmol/h	kmol/h	kmol/h	kmol/h
料流编号																
悬浮固体(kg/h)		0.75	0.72	0.03	1.20	0.86	0.00	1.05	1.05	1.05	0.02	1.03	0.01	1.02	0.03	0.00
温度(°C)		600.00	50.00	550.00	130.00	126.10	18.30	50.00	50.00	50.00	50.00	50.00	40.00	40.00	50.00	81.70
压力(aim)		25.19	1.00	24.39	24.12	24.14	24.09	23.78	10.20	10.20	9.20	9.20	8.20	5.00	8.20	8.20
总摩尔流量(kmol/h)		109.72	0.03	109.69	109.69	40.32	69.37	40.32	40.32	40.32	35.82	4.50	4.48	0.02	40.32	40.32
MMW g/mol																
气体/液体																
H2	H2(气)	6.85E+01	0.00E+00	6.85E+01	7.00E+01	7.00E+01	6.88E+01	7.00E+01	7.00E+01	7.00E+01	6.22E+01	7.80E+02	7.79E+02	1.74E+02	7.00E+01	7.00E+01
STC	SiCl4(气)	2.88E+01	0.00E+00	2.88E+01	6.92E+00	0.00E+00	2.77E+03	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00
STC(液)	SiCl4(液)	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	2.19E+01	2.88E+01	0.00E+00	2.88E+01	2.88E+01	2.88E+01	2.56E+01	3.21E+00	3.21E+00	7.18E+03	2.88E+01	2.88E+01
总STC	SiCl4(气+液)	2.88E+01	0.00E+00	2.88E+01	2.88E+01	2.88E+01	2.77E+03	2.88E+01	2.88E+01	2.88E+01	2.56E+01	3.21E+00	3.21E+00	7.18E+03	2.88E+01	2.88E+01
TCS	SiHCl3(气)	1.08E+01	0.00E+00	1.08E+01	4.09E+00	0.00E+00	7.81E+02	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00
TCS(液)	SiHCl3(液)	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	6.76E+00	1.08E+01	0.00E+00	1.08E+01	1.08E+01	1.08E+01	9.57E+00	1.20E+00	1.20E+00	2.68E+03	1.08E+01	1.08E+01
总TCS	SiHCl3(气+液)	1.08E+01	0.00E+00	1.08E+01	1.08E+01	1.08E+01	7.81E+02	1.08E+01	1.08E+01	1.08E+01	9.57E+00	1.20E+00	1.20E+00	2.68E+03	1.08E+01	1.08E+01
HCl(液)	HCl(液)	5.24E+01	0.00E+00	5.24E+01	5.24E+01	1.78E+02	5.06E+01	1.78E+02	1.78E+02	1.78E+02	1.59E+02	1.89E+03	1.98E+03	4.44E+06	1.78E+02	1.78E+02
AlCl3(液)	AlCl3(液)	8.74E+03	0.00E+00	8.74E+03	4.37E+04	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00
固体	固体															
Si	Si	2.67E+02	2.56E+02	1.07E+03	1.07E+03	1.07E+03	0.00E+00	1.07E+03	1.07E+03	1.07E+03	2.14E+05	1.05E+03	1.05E+03	1.04E+03	3.18E+05	3.18E+05
AlCl3(溶解)	AlCl3(溶解)	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	8.30E+03	2.52E+03	0.00E+00	1.12E+03	1.12E+03	1.12E+03	9.95E+04	1.25E+04	1.25E+04	2.79E+07	1.12E+03	1.35E+03
AlCl3(悬浮)	AlCl3(悬浮)	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	0.00E+00	6.25E+03	0.00E+00	7.65E+03	7.65E+03	7.65E+03	1.53E+04	7.49E+03	7.49E+03	7.42E+03	2.28E+04	0.00E+00

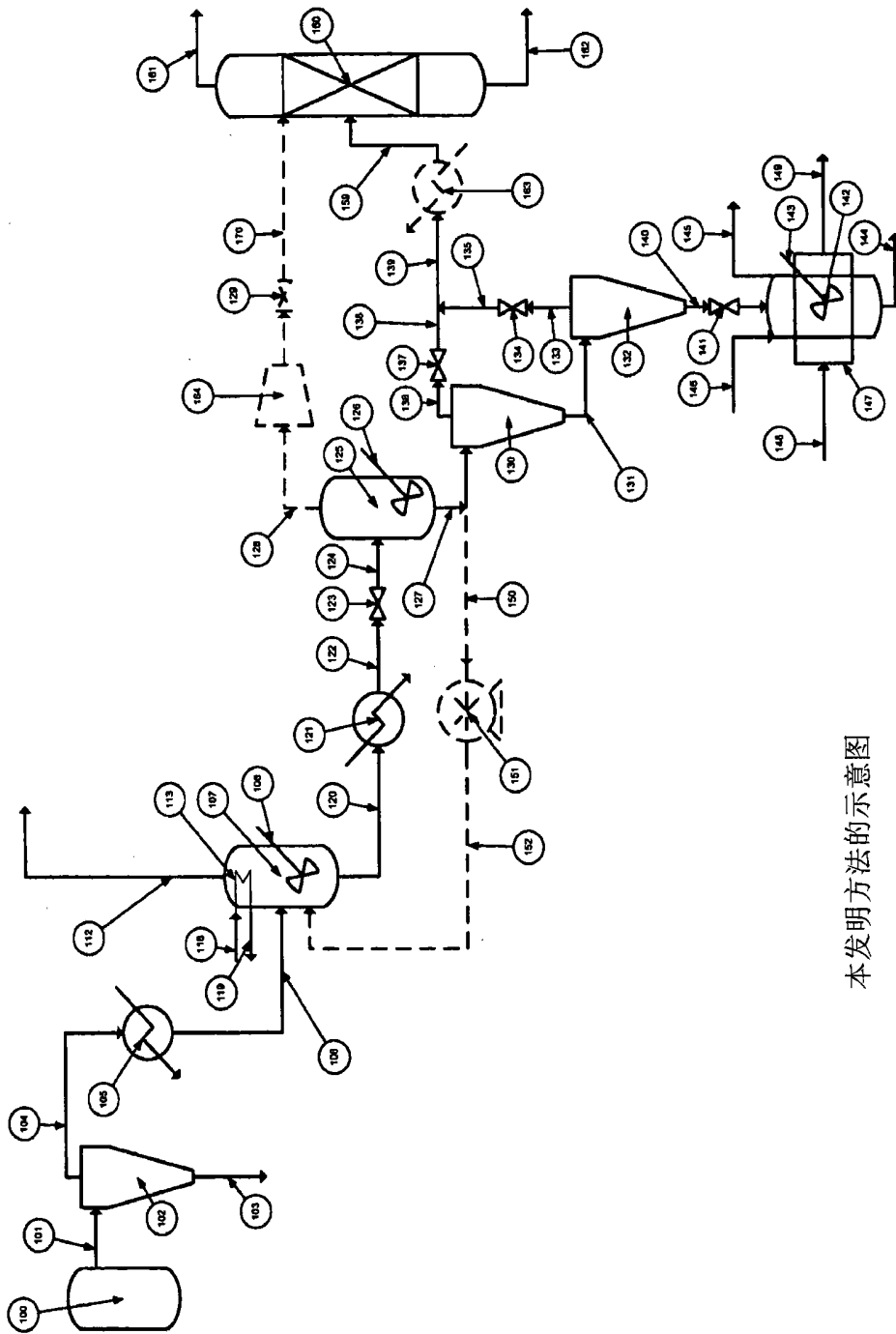
表1. 本发明方法的质量平衡

挥发性氯化物名称	可通过本发明的方法移除	典型ppm (以原子计)	最小ppm (以原子计)	最大ppm (以原子计)
铝	是	60	10	1000
铈	是	1.5	.2	20
硼	否	6	1	100
铟	是	0.4	.1	10
镓	是	0.6	.1	10
磷	是*	0.2	.05	5
铊	是	2.5	.1	10
锡	是	0.4	.05	50**
钛	否	11	1	100
锌	是	7.0	1	100**
锆	是	5.6	1	100

* 由于在接近环境温度下某些磷化合物可与铝及其它氯化物可逆地结合，故可移除磷。

** 这些浓度范围通常可见于铜催化剂中，铜催化剂一般会被添加至冶金级硅中，在此情况下，上述浓度有可能会更高。

表 2 液体料流 120 中各杂质的浓度范围



本发明方法的示意图

图 1

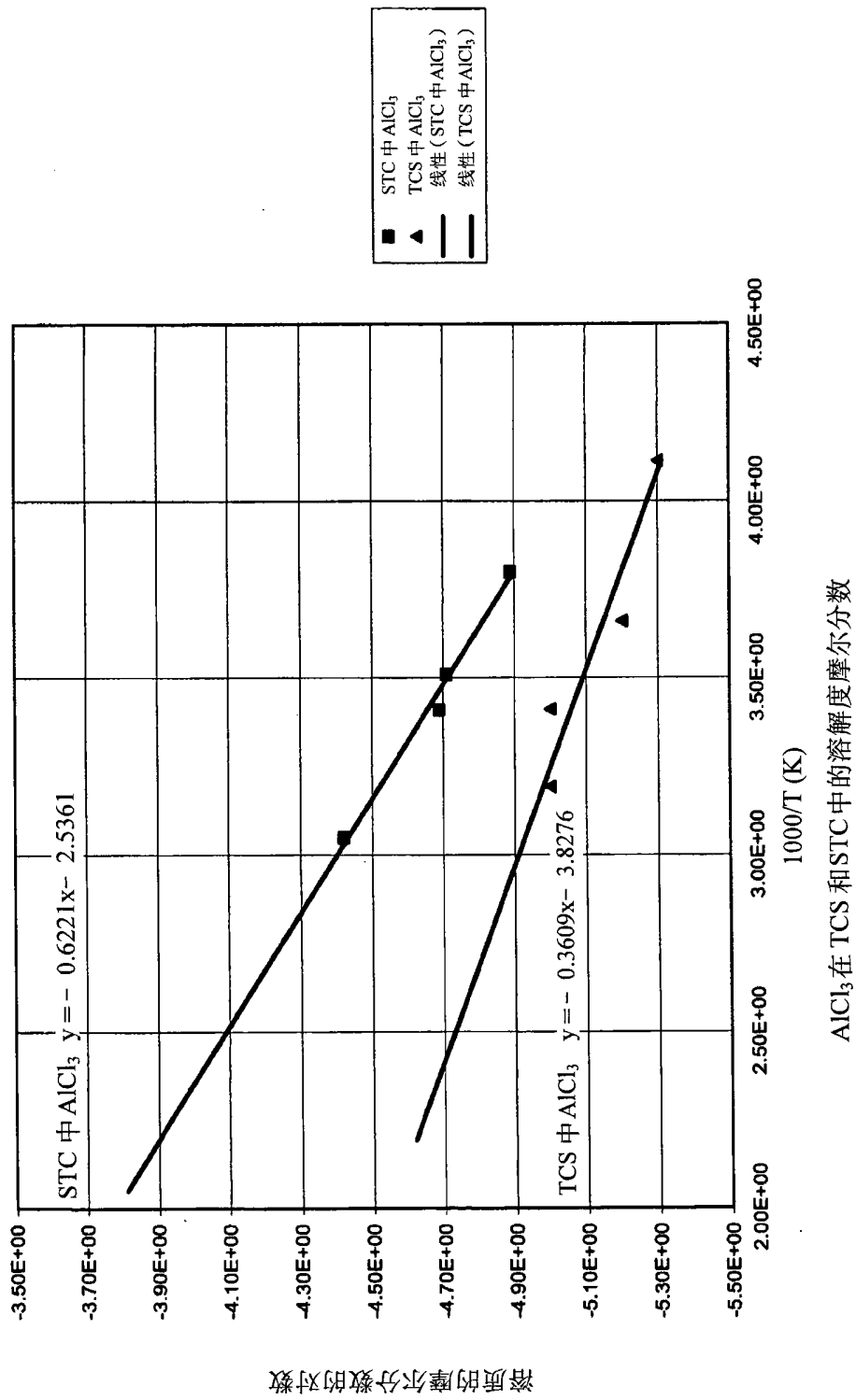


图 2