I726903

(19)中華民國智慧財產局

(12)發明說明書公告本　**(11)證書號數：TW I726903 B**

**(45)公告日： 中華民國 110 (2021) 年 05 月 11 日**

(21)申請案號：105126719　(22)申請日： 中華民國 105 (2016) 年 08 月 22 日

(51)Int. Cl.：　*H01M4/1393 (2010.01)*　*C23C16/42　(2006.01)*

(30)優先權：2016/04/11　美國　15/096,051

(71)申請人：美商漢洛克半導體營運公司 (美國) HEMLOCK SEMICONDUCTOR OPERATIONS LLC　(US)
美國

(72)發明人：楊　炯彬 YANG, JUNBING (US)

(74)代理人：林志剛

(56)參考文獻：

CN　102637874A　CN　105246825A

US　2012/0282527A1

審查人員：鐘文宏

申請專利範圍項數：11 項　圖式數：9　共 42 頁

(54)名稱

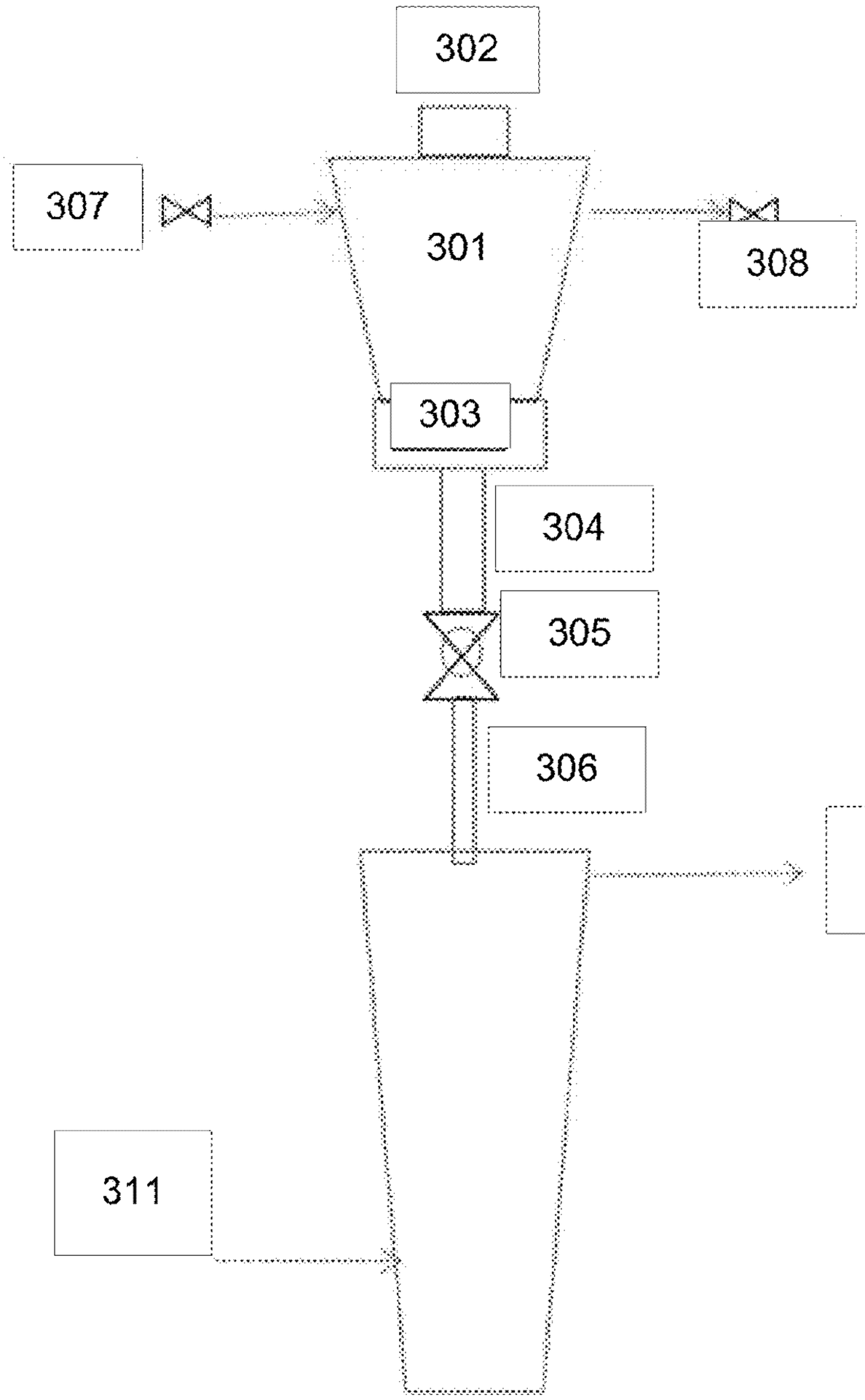
用於半連續及多步複合物生產的設備及製程

(57)摘要

本發明揭示一種方法及設備，其在一流化床反應器中透過一化學氣相沈積或一熱沈積製程來半連續生產矽-碳複合材料。所生產之矽-碳複合物具有一獨特結構，其中矽粒子被均勻分散、結合及嵌入至碳導電基質中而形成二級結構。所生產之矽-碳複合物可用作鋰電池及其他電化學能儲存裝置之先進陽極材料。

A method and apparatus produce silicon-carbon composite materials through a chemical vapor deposition or a thermal disposition process in a fluidized bed reactor on a semi-continuous basis. The produced silicon-carbon composite has a unique structure that silicon particles are uniformly dispersed, bonded and embedded into the carbon conductive matrix and forming a secondary structure. The produced silicon-carbon composite can be used as advanced anode materials for lithium battery and other electrochemical energy storage device.

指定代表圖：




【圖3】

符號簡單說明：

301・・・器皿/腔室

302・・・開口

303・・・固體進給器

304・・・導管

305・・・氣密閥

306・・・導管

307・・・氮氣管線

308・・・排氣管線

311・・・氣體入口

312・・・氣體出口

專利案號：105126719

公告本

申請日：105/08/22

I726903

【發明摘要】

IPC分類：*H01M 4/1393* (2010.01)
*C23C 16/42* (2006.01)

【中文發明名稱】

用於半連續及多步複合物生產的設備及製程

【英文發明名稱】

APPARATUS AND PROCESS FOR SEMI-CONTINUOUS AND MULTI-STEP COMPOSITE PRODUCTION

【中文】

本發明揭示一種方法及設備，其在一流化床反應器中透過一化學氣相沈積或一熱沈積製程來半連續生產矽-碳複合材料。所生產之矽-碳複合物具有一獨特結構，其中矽粒子被均勻分散、結合及嵌入至碳導電基質中而形成二級結構。所生產之矽-碳複合物可用作鋰電池及其他電化學能儲存裝置之先進陽極材料。

【英文】

A method and apparatus produce silicon-carbon composite materials through a chemical vapor deposition or a thermal disposition process in a fluidized bed reactor on a semi-continuous basis. The produced silicon-carbon composite has a unique structure that silicon particles are uniformly dispersed, bonded and embedded into the carbon conductive matrix and forming a secondary structure. The produced silicon-carbon composite can be used as advanced anode materials for lithium battery and other electrochemical energy storage device.

【指定代表圖】

圖3

【代表圖之符號簡單說明】

301　器皿/腔室

302　開口

303　固體進給器

304　導管

305　氣密閥

306　導管

307　氮氣管線

308　排氣管線

311　氣體入口

312　氣體出口

# 【發明說明書】

【中文發明名稱】

用於半連續及多步複合物生產的設備及製程

【英文發明名稱】

APPARATUS AND PROCESS FOR SEMI-CONTINUOUS AND MULTI-STEP COMPOSITE PRODUCTION

【技術領域】

本發明大體上係關於鋰離子電池。更具體言之，本發明係關於一種用於生產可用作鋰離子電池之先進陽極材料之複合材料之製程。

【先前技術】

使用鋰離子電池(LIB)作為可再充電電源代表用於消費性電子產品、汽車及能量儲存器中之一有前景技術。然而，將LIB用於消費性電子產品、汽車及能量儲存器應用存在大量技術挑戰。LIB之進一步改良需要開發具有所要性質之新陰極、陽極及電解質材料。

矽-碳複合物係用於LIB之有前景陽極材料，此歸因於矽-碳複合物之優異高容量及長循環壽命。在生產此等材料之諸多方法中，透過一化學氣相沈積(CVD)製程來將矽併入至碳中產生均勻材料結構及良好效能。為最佳化電池效能，在整個陽極中，複合物中之矽碳比應為恆定的。

通常使用諸如流化床反應器(FBR反應器)、回轉式反應器及V型混合器等批式反應器來沈積矽至碳材料上，CVD製程以控制沈積時間等在材料中產生一恆定矽碳比。在大規模操作時，批式製程之效率非常低。例如，歸因於冷卻及再加熱要求，批式製程引發長停機時間。在各批次結束時，需要在可自反應設備移除完成產物及可將新鮮起始材料再裝入至設備

之前冷卻設備(通常冷卻至室溫)。接著，需要將設備再熱至一高溫來進行後續批式生產。加熱、冷卻及再熱設備之先前技術製程消耗大量能量(電力)且導致長停機時間。

多晶矽係太陽能電池之原材料且透過一化學氣相沈積(CVD)製程來生產。在此CVD製程中，在一矽基材上分解一含矽前驅物以形成固體矽。在一些情況中，在一FBR反應器中執行矽之CVD。

透過一基於FBR之CVD製程之多晶矽生產提供比傳統Siemens式CVD製程(其本質上係一批式製程)高之產量。高產量至少部分歸因於CVD製程能夠連續供應矽前驅物且使最終產物與起始矽晶種連續分離。在一些實施方案中，矽前驅物氣體可包含以下之一或多者：$SiH_4$ (甲矽烷)、$Si_2H_6$ (乙矽烷)、$Si_3H_8$ (丙矽烷)、$SiH_2Cl_2$ (二氯矽烷)、$SiHCl_3$ (三氯矽烷)、$SiH_2Br_2$ (二溴矽烷)、$SiHBr_3$ (三溴矽烷)、$SiH_2I_2$ (二碘矽烷)、$SiHI_3$ (三碘矽烷)、$SiI_4$ (四碘化矽)。

在FBR-CVD製程中，透過化學分解一含矽前驅物來供應小矽晶種作為用於矽沈積之基材。矽粒子大小隨矽沈積長大。可在FBR反應器中氣動地分離大矽粒子與小矽晶種，此係因為大矽粒子及小矽晶種具有不同實際大小及重量。較大矽粒子將降落至FBR腔室之底部而自腔室移除。替代地，較大矽粒子可自反應器移除且可藉由篩分來分離。即使使用此等分離技術，所得產物仍具有在反應器經受沈積時已花費大量不同停留時間之粒子。然而，此不影響多晶矽產物之效用，此係因為組成未改變。就矽沈積於碳上而言，具有大量不同沈積時間將引起產物具有矽碳比之一混合，其不利於產物用作鋰離子電池中之一陽極材料。

用於生產矽-碳複合物之一CVD製程可使用類似於用於多晶矽生產之

FBR反應器，但具有維持一恆定矽碳比及使最終產物與起始碳粉分離之額外挑戰。在矽-碳複合系統中，複合物通常具有類似於起始碳粒子之形態、粒子大小及密度。因此，難以使用用於多晶矽生產之當前FBR CVD製程中所採用之相同分離製程來使矽-碳複合物與碳粉分離。在不斷添加石墨材料且連續移除產物之連續模式中使用此一反應器將提供具有一不一致矽碳比之一劣質產物。在多晶矽製程中需要使用一改良FBR-CVD製程來生產矽-碳複合物。

【發明內容】

本發明在一流化床反應器中透過一化學氣相沈積製程來半連續生產矽-碳複合材料。本發明揭示一種製程，其可連續生產在起始材料與最終產物之間具有類似密度及形態之複合粒子。一半連續製程及設備可生產矽-碳複合物且可超前地控制碳材料中之矽形態以避免矽粒子之過度生長。由本發明生產之矽-碳複合物具有完全不同於由FBR-CVD製程生產之多晶矽之形態及性質。矽-碳複合物亦具有不同於多晶矽之應用。

一高溫流化床反應器及製程生產一矽(Si)複合陽極材料，其可用於比現今用於大多數鋰電池中之傳統石墨陽極材料(375 mAh/gr)實質增大鋰離子電池比容量(2,000 mAh/gr+)。在設備中，將矽粒子沈積、結合及均勻嵌入基於石墨/石墨烯之多層奈米薄層中以形成一穩定且可商業擴展之矽複合陽極材料。該矽複合陽極材料可用於消費性電子裝置、電動車輛及再生能量儲存系統中之鋰電池。此設備、製程及材料已展現顯著改良能量密度、減小單元大小及重量且降低鋰電池之均化成本之巨大潛力。

一實施方案可包含一種用於產生一複合物之方法。該方法可包含：對一反應器中之一第一碳基材執行控制矽負載。可將該碳基材自該反應器

轉移至一儲集器。當該第一碳基材在該儲集器中冷卻時，可對該反應器中之一第二碳基材執行一控制矽負載。

一實施方案可包含一種用於產生一複合物之設備。該設備可包含一反應器及一儲集器。該反應器可執行一矽氣相沈積製程以產生一第一碳基材。該儲集器可接收該第一碳基材且當該第一碳基材在該儲集器中冷卻時允許該反應器執行一第二矽氣相沈積製程以產生一第二碳基材。

一實施方案可包含一種複合結構。該複合結構可包含複數個石墨烯層及複數個矽粒子。該複數個石墨烯層可形成兩個或兩個以上間隙，其中各間隙由該複數個石墨烯層之一各自上石墨烯層及一各自下石墨烯層形成。該複數個矽粒子可嵌入於由該複數個石墨烯層形成之各間隙內。

【圖式簡單說明】

圖1繪示用於生產矽-碳複合物之一設備之一方塊圖。

圖2繪示用於產生一矽-碳複合物之一方法。

圖3繪示用於執行一半連續CVD製程之一設備之一方塊圖。

圖4係用於執行一半連續沈積製程之一反應器之一方塊圖。

圖5係具有多步容量之一器皿之一方塊圖。

圖6係具有多步容量之一替代器皿之一方塊圖。

圖7A繪示一矽-石墨烯微觀結構。

圖7B繪示一矽-石墨烯宏觀結構。

圖8A係由一FBR反應器產生之一矽-石墨烯複合物之一圖解。

圖8B繪示由一FBR反應器產生之另一矽-石墨烯複合物。

圖9繪示用於與本發明一起使用之一運算環境之一方塊圖。

【實施方式】

## 相關申請案之交叉參考

本申請案主張2015年4月12日申請之名稱為「Apparatus and Process for Semi-Continuous Composite Production」之美國臨時申請案第62/146,304號之優先權權利，該案之揭示內容以引用的方式併入本文中。

一高溫流化床反應器及製程生產一矽(Si)複合陽極材料，其可用於比現今用於大多數鋰電池中之傳統石墨陽極材料(375 mAh/gr)實質上增大鋰離子電池比容量(2,000 mAh/gr+)。在設備中，將矽粒子沈積、結合及均勻嵌入基於石墨/石墨烯之多層奈米薄層中，以形成一穩定且可商業擴展之矽複合陽極材料。該矽複合陽極材料可用於消費性電子裝置、電動車輛及再生能量儲存系統中之鋰電池。此裝置、製程及材料已展現顯著改良能量密度、減小單元大小及重量，且降低鋰電池之均化成本的巨大潛力。

本發明在一流化床反應器中透過一化學氣相沈積製程或一熱沈積製程來半連續生產矽-碳複合材料。本發明揭示一種製程，其可半連續生產在起始材料與最終產物之間具有類似密度及形態的複合粒子。一半連續製程及設備可生產一矽-碳複合物，且可超前地控制石墨/石墨烯及其衍生物中之矽形態，以避免矽粒子之過度生長。由本發明生產之矽-碳複合物具有完全不同於由FBR-CVD製程生產之多晶矽的形態及性質。矽-碳複合物亦具有不同於多晶矽的應用。

圖1繪示用於生產矽-碳複合物之一設備之一方塊圖。該設備包含一流化床反應器120及一儲集器150。反應器120包含一反應性氣體輸入件110、一氣體沖洗輸入件115、一碳固體輸入件125、一廢氣輸出件130、反應器120與儲集器150之間之一連接機構135、一真空管線140、沖洗氣體輸入管線145、一複合物輸出件160、一流化氣體輸入件165，及矽前驅

物氣體輸入件170。反應器及儲集器可實施一半連續製程以生產一矽-碳複合物且控制石墨/石墨烯及其衍生物中之矽形態來避免所得矽粒子的過度生長。

可藉由一或多個電腦裝置來完全或部分控制反應器120及儲集器150。由反應器120及儲集器150執行之製程的完全或部分電腦控制允許製程比完全人工執行之一製程更準確且更有效率。儘管圖1之系統中未繪示，但反應器120及儲集器150可係由一或多個電腦通信地耦合及控制。另外，就圖2所討論之步驟之各者，亦可係由通信地耦合至及/或控制反應器120及儲集器150之一或多個電腦來執行或控制。

圖2繪示用於產生一矽-碳複合物之一方法。該方法可半連續生產矽-碳複合物，且可係由圖1之設備實施。在步驟210中，將碳粉載入至FBR中。可透過碳固體輸入件125來將粉末載入至FBR之一腔室中。

可在步驟215中提供惰性氣體。可透過流化氣體輸入件165來提供惰性氣體，以移除腔室內之任何微量空氣。可在步驟220中，於惰性氣體流動期間加熱FBR。可執行加熱來達到諸如(例如) 800°C至1000°C之一所要溫度。可在步驟225中增大惰性氣體流速。氣體流速經增大以使碳粉流化來達成一穩定流化狀態。

在步驟230中，引入反應性氣體及矽前驅物氣體。透過反應性氣體輸入件110來引入反應性氣體，同時透過矽前驅物氣體輸入件170來引入矽前驅物氣體。所引入之氣體引起矽氣體前驅物分解成固體矽反應物。

在步驟235中，一反應發生達一預定時間週期。反應發生以獲得一固體碳基材上之控制矽負載及形態。碳基材可包含一矽-碳複合物或錫-碳複合物。在步驟240中，自FBR移除反應性氣體及矽前驅物氣體。移除氣體

可包含：切斷反應性氣體及矽前驅物氣體以允許有足夠時間來自FBR腔室移除全部反應性氣體及含矽氣體。在步驟245中，儲集器經沖洗以自儲集器移除空氣。真空管線140及沖洗氣體輸入管線145用於自儲集器沖洗空氣。在步驟250中，將複合物自FBR轉移至儲集器。經由連接機構135來轉移複合物。連接機構可包含用於允許將複合物自FBR移動至儲集器之一管道、管路，或其他結構。藉由關閉廢氣出口、透過真空管線牽引蒸氣且沖洗來自沖洗管線115及165來實施轉移。

FBR經組態以接著在步驟255中供使用。組態可包含：在自FBR腔室移除全部複合物之後，關閉連接機構。接著，在步驟260中，自儲集器卸載複合物。可在複合物已冷卻至室溫之後卸載複合物。

本發明利用儲集器來收容所生產之高溫複合物，且允許其在靜態或流化床惰性氣體保護下冷卻至室溫。在複合物冷卻期間(其係一漫長週期)，儲集器使FBR腔室免於收容複合物，藉此允許半連續使用FBR腔室來生產複合物。

一惰性氣體氣塞可用於保護連接FBR反應器與其他部件之閥，其將含氯氣體曝露於高溫，且需要移動來打開及關閉。

在一些例項中，本發明可與一或多個運算系統一起利用。運算系統可專用於本發明之FBR及儲集器，且用於在一半連續製程中提供一改良複合物。例如，設備可採用特別設計之監測系統來觀察FBR內之複合物的流化及空缺。運算系統可係由圖3之系統實施。

在一些實施方案中，進料(「柵極」)可作為一粉末半連續進給至一加壓器皿中。柵極可包含石墨/石墨烯及其衍生物，且其具蓬鬆性、內聚性且易於聚結。在未聚結之情況下，柵極難以運送至一加壓器皿中。本發明

經由(例如)一螺絲、歐傑製程、一氣動方法及一多級進給器皿來達成此目標。

石墨/石墨烯、其衍生物及適用於本發明之一CVD製程中之其他類似類石墨材料具有一小粒子大小且因此被視為格爾達特(Geldart)型C類粒子。粒子大小石墨烯及衍生物具蓬鬆性、內聚性且趨向於在處置時聚集及壓緊。此使用於將石墨及衍生物進給至諸如閉鎖料斗、螺旋式進給器及回轉式進給器之矽沈積反應器之習知進給機構易於堵塞。然而，本發明包含使此等反應器與石墨烯及衍生材料一起使用之新穎製程。

先前技術之螺旋式進給器可為打開或封閉的，其中封閉之進給器已用於藉由形成一氣密壓緊插塞來抵著一壓力梯度進給粉末。測試表明，此可被達成，但所形成之插塞難以在流化床中啟開。因此，此技術無法在無某一額外啟塞裝置之情況下使用。因為無需插塞，所以打開之螺旋式進給器及封閉之螺旋式進給器兩者可用於無壓力梯度之器皿之間之進給，然而，此等進給器類似於回轉式進給器般提供流動控制，但無一壓力密封。

先前技術之回轉式氣塞進給器可用於提供一壓力密封，但具有將晶種矽添加至矽沈積反應器通常不可接受之一洩漏率。由於使用可燃有毒氣體，所以洩漏率係不可接受的。在一些實施方案中，當反應器係空的且操作氮氣時，可將本發明之沈積反應器進給於循環之間。因此，一回轉式進給器可用於本發明之一設備及一製程兩者中，此係因為密封不是由壓緊石墨材料提供，而是由一彈性體提供。然而，撓性彈性體對溫度敏感且本發明之反應器在沈積期間高溫操作。因此，可在操作期間實施諸如冷卻、一沖洗氣流及/或額外閥之設計技術來保護密封免受反應器之熱氣。

此外，在先前技術中，各種氣動類型之進給器用於將固體吹入至包

含矽沈積反應器之加壓反應器中。此等進給器需要使用諸如氫氣之一氣體(其與反應器中之氣體相容)，此意謂：為了安全，必須在系統可與空氣相通來進行再填充之前使用額外氮氣沖洗氣體來移除氫氣。如上文所提及，在一些實施方案中，本發明之半連續性允許在填充製程期間僅使用氮氣，因此，一氣動進給器將無需供應氫氣及氮氣兩者。所得氣動進給器將比先前技術之矽沈積反應器中之進給器更易於使用。此等進給器可具有將固體流導引至氣動轉移管道中之一錐形底部區段，且石墨材料壓緊於錐體中以因此形成插塞。因此，為使用一氣動進給器，可使用諸如一螺旋式進給器或回轉式進給器之一正向進給機構。

多級進給器皿或閉鎖料斗係將固體進給至一加壓反應器中之一非常常見構件，且依靠兩個氣密密封：一者介於反應器與反應器進給器皿之間且另一者介於反應器進給器皿與固體接收器皿(其與大氣週期性相通)之間。此等密封難以維持之原因係通過反應器之固體及反應器中之可燃及/或有毒氣體。通常需要如同氣動進給器之一多氣體沖洗系統。本發明之半連續製程無需此多氣體沖洗系統，此係因為半連續性及與大氣安全相通以填充固體之能力，同時反應器處於半連續循環之其清空部分中且操作氮氣。

圖3繪示用於執行一半連續CVD/熱沈積製程之一設備之一方塊圖。具有一可關閉開口302之一器皿301具有一固體進給器303、一導管304、一氣密閥405及連接至反應器310之一導管306。反應器310亦具有一氣體入口311及一氣體出口312。依一半連續方式循環地操作反應器310，在此期間，存在有益於操作填充機構之循環之一部分。此循環部分發生於已停止沈積且反應器內之固體粒子由諸如氮氣之一惰性氣體(其透過入口311流

入且透過出口312流出)流化時。此時，關閉氣密閥305，關閉固體進給器，且允許沖洗氮氣流動通過管線307而至腔室301中且透過管線308來流出至排氣孔。在沖洗排氣管線308且關閉氮氣管線307之後，打開頂部開口302且澆注石墨材料。關閉開口302，打開排氣管線308，且氮氣透過管線307流入且透過管線308流出。管線307及308經關閉以隔離腔室301。一旦反應器已清空產物，則可將新材料放入至反應器中。首先打開氣密閥305，接著起動固體進給器303以依一控制速率將新材料進給至導管306及接著反應器中。固體流經控制使得導管306不出現可引起閉塞之阻塞。最大固體流量取決於最小限制處之導管之直徑。

在執行一半連續CVD製程之後，所得矽-石墨烯複合產物可被移除且與原材料分離。所得矽-石墨烯複合物具有類似於起始石墨烯之實體形態，因此，幾乎無法使用常用於多晶矽生產中之方法來分離所得矽-石墨烯複合物與起始石墨烯。

在沈積之後，矽-石墨烯複合物具有分佈於其內之矽，但外部形態及粒子直徑大致保持不變。相比而言，在先前技術之矽連續沈積於矽粒子上中，藉由研磨來添加或產生之晶種矽粒子使直徑生長。因此，已長時間位於反應器中之晶種矽粒子已接收大量矽沈積，較大，且可藉由基於粒子大小之分離技術(諸如(例如)，藉由篩分或藉由選擇性流化之分離)來與具有較少沈積之矽粒子分離。名稱為「Machine for production of granular silicon」之美國專利第6,827,786號('786專利)中描述先前技術中之篩分之實例，該專利將一矽篩展示為圖1a中之項目14。名稱為「Reactor for fluidized bed silane decomposition」之美國專利第4,818,495號('495專利)中展示流化分離之一實例，其中圖4展示一分離器18及一收集器20。

此等分離技術不適用於所得矽-石墨烯複合物，此係因為反應器中之矽沈積與粒子大小之間不存在有用相關性。矽複合物之有用性質取決於個別粒子中之矽與石墨烯之比率，而非塊體材料中之比率。因此，必須小心控制每顆粒之矽之沈積以避免顆粒之間之大差異，其將導致此等顆粒在製造電池電極中之使用問題。應進行石墨/石墨烯及其衍生物之批式處理，使得各粒子具有相同沈積曝露時間。

本發明之實施方案自FBR移除產物。用於自FBR移除產物之方法包含(但不限於)：自設備吹出、使用脈衝氣體來自底部排放及由位於Encinitas, CA之SML聯合公司製造之專用閥。

在先前技術之將矽沈積於矽粒子上中，存在用於移除矽粒子之各種方式。可將此等方式分成可移除粒子之整個床之技術及移除床之一部分之技術。由於需要批式處理石墨烯及其衍生物，所以僅移除粒子之整個床之技術可用於移除矽-石墨烯複合物。

在一些實施方案中，一FBR可包含一反應器、一或多個入口冷卻器、一珠粒及氣體加熱器、及一珠粒冷卻器。可透過一珠粒冷卻器來將所產生之產物自底部移除至一矽篩中。由於移除發生於底部處，所以可透過珠粒冷卻器來移除粒子之整個床。在一些實施方案中，不期望選擇性地移除床之部分且使床再循環，因此，一篩係有害的且可被移除。類似地，亦可自底部移除產物，但不期望僅選擇性地移除床之大粒子作為產物，因此亦可移除分離器。因此，提供自一腔室之底部或在一腔室之底部附近移除矽-石墨烯複合產物之本發明之一FBR可用於(例如)藉由移除材料之整個床來移除矽-石墨烯複合物。

用於自一FBR之頂部或在一FBR之頂部附近移除矽-石墨烯複合材料

之某些技術不適用於移除矽-石墨烯產物作為一連續製程之部分。無法修改一連續頂部移除技術來提供完全連續床移除。然而，就本發明之半連續製程而言，可藉由在循環之沈積部分期間移除細小粒子且將其處置成與產物(其接著因流化氣體之短期大幅增加而在沈積循環結束時被吹散)分離來使用一半連續頂部移除設計。

儘管底部移除之概念常見於矽沈積中，但矽-石墨烯複合產物之實際移除因矽-石墨烯複合材料之不同性質而顯著不同於矽產物之移除。特定言之，矽-石墨烯複合物具有較大內聚力、趨向於聚結及較低密度。因而，矽-石墨烯複合物反應不同且表現不同，且無法被針對諸如矽粒子之一材料設計之技術有效移除。因而，典型FBR底部移除機制及頂部移除機制不適用於分離矽-石墨烯複合材料。

產物之任何底部移除需要定位於FBR腔室之底部處、連接至某種容器之某種導管。此導管必須具有一向上氣流，其足以防止固體在沈積期間向下流動，但可經減小以在期望移除固體時允許固體向下流動。已提出各種解決方案，其包含：提供既為反應性氣體入口又為微粒產物出口之一管路；及使用一環形移除裝置及具有非反應性氫氣之一向上流之一分離管路。向上氣流必須依某一方式被加熱且稀釋反應器中之反應性氣體。因此，可期望儘可能使用最小直徑且仍獲得固體流。移除矽-石墨烯複合材料之其他嘗試(例如，透過一產物移除導管)導致導管閉塞。

可藉由控制脈衝氣體之導通及切斷循環且藉由脈衝氣體流動來達成控制出口流。可期望在沈積期間隔離反應器，但問題出在需要諸如沖洗及特殊修改之特殊預防措施之矽粒子的磨損性上。先前技術中之純度要求亦限制使用金屬材料，因此使用諸如石英之陶瓷。

與本身不具有一儲集器之先前技術矽沈積技術不同，可藉由冷卻來降低本發明之儲集器中之矽-石墨烯複合材料的溫度。可使用一環形移除裝置來達成冷卻，該環形移除裝置藉由透過環之內壁將熱量交換至傳入矽反應性氣體來冷卻產物。亦可藉由將熱量交換至一水冷套來達成冷卻。由於傳入矽沈積氣體接近珠粒移除管道，所以此等兩種方法可用於在產物離開沈積室而至儲集器時冷卻產物。使用水冷套方法更容易地實現來自儲集器之珠粒的最後冷卻。

在一些實施方案中，本發明使用一儲集器來冷卻一分離流化床中之產物。相較於先前技術，此具有若干優點，該先前技術揭示該儲集器可冷卻之通常受限於速率的系統，此係因為受限表面積及冷卻流動固體(其具有比流體顯著更大之熱質量及內部熱流阻力)的難度。在冷卻一流動固體柱時，於中心具有一極高溫度且於壁面處具有一低溫係很常見的，此係因為粒狀固體具有低粒子間傳導性。相較之下，一流化床具有對粒子之顯著更高傳熱性，此係因為冷卻氣體直接接觸粒子之全部外側面積，且粒子實體地四處走動來接觸壁面。因此，本發明之作為一流化床用於冷卻之一分離儲集器具有以下優點：其固有地更快很多且可使用諸如冷卻壁面及冷卻內部零件(其通常係線圈)之習知流化床熱交換技術。由於矽-石墨烯複合產物對金屬污染不敏感，所以儲集器可係由金屬製成，其極大簡化建構且降低一FBR之成本。儲集器可設計有冷卻壁面及內部零件，其亦保護壁面免受來自沈積反應器之高溫矽-石墨烯複合材料侵害。即使冷卻因使用一熱介質之儲存器或使多個反應器儲集器系統彼此異相操作而半連續，但可自此一系統回收有價值熱量。在先前技術之將矽沈積於矽系統上中，熱回收被公認為係值得的但難以實施。在先前技術之系統中，可將產物轉移至

氣旋冷卻器，但消除熱量存在挑戰，此係因為純度限制使諸如石英之一陶瓷需要含有粒子，且此等陶瓷不具有足以用作壓力容器之強度。

然而，就矽-石墨烯複合材料而言，顯著減少磨損且不存在金屬腐蝕問題，因此可使用習知閥。在一些實施方案中，若向上氣流被閥完全關閉，則可使用兩個閥(其等之間具有一沖洗)來避免閉塞閥及閉塞至閥之入口管線。一頂部閥可為容許氣體向上流動但防止固體向下流動之一固體控制閥。第二閥可密封氣流。此允許在儲集器承受操作壓力時，自產物儲集器下方安全移除產物容器。諸如滑閥、夾緊閥或回轉閥之各種閥適用於固體流動控制閥。可自諸如旋塞閥及球閥之一系列類似閥(其在打開時允許固體自由流動通過閥，且在關閉時密封氣壓)選擇氣體控制閥。吾人已發現，具有彈性座之一球閥係一良好選擇。

在一些實施方案中，所形成之複合物具有類似於起始固體材料之一密度及形態，因此難以透過用於多晶矽生產中之方法來將複合材料與起始材料分離。

圖4係用於執行一半連續沈積製程之一反應器之一方塊圖。沈積反應器400係含有一粒子床401之一器皿，其具有一固體入口402、一氣體出口403、一氣體入口404、一氣體分配器405及一固體出口406。沈積反應器400係由外部加熱器408加熱。沈積反應器400之操作係循環的。在循環開始時，透過氣體入口404來加入諸如氮氣之惰性氣流，接著，惰性氣流向上流動通過氣體分配器405而至容器中。另一向上氣流自固體沖洗管線407加入，向上通過固體出口406以防止固體下落至固體出口。透過固體入口402將固體引入至沈積反應器400中以形成一粒子床401。一旦形成床，則停止固體進給且使兩個惰性氣流依足以使粒子床401流化之一流速

轉變成氫氣，且加熱器408用於將床溫升至800°C至1000°C之所要沈積溫度。初始氫氣流隨著床溫升高而減少，以使流化維持於所要攪動位準處。

在建立沈積溫度及氫氣流速之後，將諸如(例如)甲矽烷$SiH_4$或三氯矽烷$SiHCl_3$之一矽沈積氣體添加至透過氣體入口404進入之氫氣流。接著，只要獲得所要沈積量需要，則沈積一直進行。沈積可進行(例如)半小時至5小時。為終止沈積，自透過氣體入口404進入之氫氣移除矽沈積氣體，且根據需要進一步添加氫氣以維持流化。粒子床中之材料現已沈積有矽，且準備將其移動至儲集器420。在發生此轉移之前，必須透過出口冷卻套409，藉由使冷卻劑透過冷卻劑入口410流入且透過冷卻劑出口411流出來建立冷卻流。

儲集器420係含有一粒子床421之一器皿，其具有一固體入口422、一氣體出口423、一氣體入口424、一氣體分配器425及一固體出口426。儲集器420由一外套428及內部線圈431冷卻。儲集器420之操作亦係循環的。在循環開始時，透過氣體入口424來加入諸如氫氣、氬氣或氮氣之一非反應性氣流，接著，該非反應性氣流向上流動通過氣體分配器425而至器皿420中。另一向上氣流自閥沖洗管線427加入且向上通過固體出口426以防止固體下落至固體出口。在此固體轉移之前，必須透過儲集器冷卻套428，藉由使冷卻劑透過冷卻劑入口429流入且透過冷卻劑出口430及儲集器內部線圈431流出，藉由使冷卻劑透過冷卻劑入口432流入且透過冷卻劑出口433流出來建立冷卻流。

下一步驟係透過固體入口422來自沈積反應器400引入固體以形成一粒子床421。一旦沈積反應器400清空，則停止固體進給且依足以使粒子床421流化之一流速轉變兩個惰性氣流，且使用冷卻套428及冷卻線圈429

來將床溫降至10°C至150°C之所要出口溫度。初始氣流隨著床溫降低而增加以使流化維持於所要攪動位準處。在達到所要溫度之後，準備將固體轉移至產物容器440。在此轉移之前，必須透過出口冷卻套434，藉由使冷卻劑透過冷卻劑入口435流入且透過冷卻劑出口436流出來建立冷卻流，且產物容器440必須準備接收固體。產物容器440係含有一粒子床441之一氣密器皿，其具有一固體入口442、一氣體出口443、一氣體入口444。為接收固體，在循環開始時，透過氣體入口424來加入諸如氬氣或氮氣之一惰性氣流，接著，該惰性氣流向上流動通過器皿440且自氣體出口443流出。藉由首先打開氣密閥438，接著打開固體閥437及固體隔離閥445 (若提供)來加入固體流。固體流入至產物容器440中，直至已轉移所要量，接著關閉固體閥437且接著關閉氣密閥438。接著，可藉由使惰性氣體流動通過氣體入口444且自氣體出口443流出來沖洗產物材料達一段時間。若期望使材料維持由惰性氣體包覆，則在容器上提供隔離閥。此等閥經展示為固體隔離閥445、氣體出口隔離閥446及氣體入口隔離閥447。接著，關閉此等閥445、446及447，斷開至閥之連接，移除產物容器，且使用一空容器來替換產物容器。

在一些實施方案中，可將半連續製程實施成一多步製程。此可依各種方式實施。一對初始沈積器皿及儲集器皿可由一或多對沈積器皿及儲集器皿跟隨。在此一操作中，沈積之一部分將發生於第一器皿中，接著儲集器皿將冷卻初始產物，將其轉移至一第二沈積反應器來繼續沈積，且一第二儲集器將冷卻材料。器皿之間之轉移引起聚結物之混合及一些分解將有益於證明後一步驟中之更均勻流化及沈積。在一些實施方案中，可提供諸如器皿之間之篩分的額外裝置來提供聚結物之額外分解及一更均勻粒子大

小。用於實現聚結物之分解之一些類型之裝置需要一冷卻材料，且將因此被放置於初始儲集器之後。

圖5係具有多步容量之一器皿之一方塊圖。為了繪示及實例，圖5之器皿未繪示有通常實施於此一器皿內之全部組件，諸如圖4之方塊圖中所繪示之輸入連接及輸出連接。

器皿501係一第一沈積反應器且藉由導管502來連接至第一儲集器皿503。第一儲集器皿503具有一出口導管504。器皿501、503及導管502及504類似於圖4之半連續方塊圖。然而，圖5之器皿包含一解聚結裝置505，而非如同圖5之一產物容器。解聚結裝置可包含一篩或能夠分解可在沈積及處置期間形成之聚結物之任何其他裝置。解聚結裝置可用於分解聚結物且亦混合固體。接著，經解聚結及混合之固體經由導管506來行進至第二沈積反應器507。在第二沈積反應器中，發生進一步沈積。接著，固體經由導管508來行進至第二儲集器509進行最後冷卻且經由導管510來排放至產物容器511。

用於多步沈積之一器皿具有部分透過沈積製程來混合且解聚結矽-石墨烯複合物之優點，其改良沈積之品質控制，特定言之，相對於矽石墨比及粒子位準之沈積品質控制。此可尤其有利於產生具有高矽石墨比之矽-石墨烯複合粒子，其具有電池電極所要之性質。

在多級設計中，初始沈積步驟係用於所要沈積之一部分。將經部分處理之材料移除至儲集器，接著，將該材料進給至另一沈積反應器級以用於進一步沈積。此一多步製程具有更精確控制沈積之優點且接近有利於擴大規模之一更連續製程。

第一級之儲集器亦可充當第二級之沈積反應器。多個沈積級可將熱

矽-石墨烯複合產物提供至一單一儲集器級。在此一設計中，用於在沈積之後提供聚結物之分解之裝置將必須在高溫處運行。可將此一多級系統整合至由一最終產物儲集器跟隨之多級反應器之一單一器皿中。圖6係繪示此等可能性之兩者的一示意圖。

圖6係具有多步容量之一替代器皿之一方塊圖。亦可具有基本半連續製程之其他不同組合，其維持一批式沈積之品質效益且提供冷卻矽-石墨烯複合產物之一更連續生產。儘管無法繪示全部可能組合，但圖6繪示兩個基本組合且熟悉技術者可推斷其他組合。

圖6係使用一高溫解聚結裝置之半連續製程之一多步應用之一示意圖。高溫解聚結裝置定位於兩個串聯沈積反應器之間。高溫解聚結裝置代替用於圖5中之一冷卻儲集器及低溫解聚結裝置，其與進給至一單一儲集器中之並聯沈積反應器組合使用。為清楚理解一多步製程之佈局，器皿未展示圖5中所展示之全部輸入連接及輸出連接。

器皿610係藉由導管611來連接至具有一出口導管613之第一解聚結裝置612之第一沈積反應器。此步驟分解聚結物且亦在無需通常由儲集器提供之冷卻之情況下混合固體。接著，經解聚結及混合之固體經由導管613來行進至其中發生進一步沈積之第二沈積反應器614。接著，固體經由導管615來行進至單獨儲集器630。在單獨儲集器630處，發生一最後冷卻且經由導管631來排放至產物容器640。一第三沈積反應器620、一第二解聚結器622及一第四沈積反應器624與此等沈積反應器並聯。沈積反應器620係藉由導管621來連接至具有一出口導管623之第一解聚結裝置622之第三沈積反應器。此步驟分解聚結物且亦在無需通常由儲集器提供之冷卻之情況下混合固體。經解聚結及混合之固體經由導管623來行進至其中發生進

一步沈積之第四沈積反應器624。接著，固體經由導管625來行進至單獨儲集器630進行最後冷卻且經由導管631來排放至產物容器640。

如圖6中所展示且如相對於圖6所討論，本發明之實施方案將沈積分配至兩個或兩個以上串聯反應器中，該等反應器可與一解聚結裝置連接且接著由一儲集器跟隨以冷卻最終矽-石墨烯複合產物。本發明之實施方案亦可具有兩個或兩個以上並聯沈積反應器，其等各生產相同矽-石墨烯複合產物且將產物排放至一共同冷卻儲集器中。若並聯反應器之循環經控制為彼此異相，則可更連續進料給儲集器且穩定冷卻循環以因此使循環更連續，藉此能夠成為回收熱量之一調和源及冷卻產物之一穩定供應器兩者。在一些實施方案中，可將儲集器冷卻器分成一個以上器皿，其可有利於熱回收。

在用於多晶矽生產之一多級反應器中，第一反應器通常用於低溫(600°C至700°C)多晶矽沈積，接著進行高溫後處理以在第二級反應器中使多晶矽結晶。可藉由熱處理來減少多晶矽之氫含量。較佳地，對一流化床中之藉由化學氣相沈積來產生之呈珠粒狀形式之多晶矽粒子進行該製程。較佳地，在1020°C至1200°C之一溫度處進行熱處理達自約6小時至約1小時之一時間以足以減少氫含量且不足以引起所處理之粒子之聚結。較佳地，在脫氫期間使粒子床維持運動以減小粒子在所採用之製程溫度處聚結之趨勢。藉由該製程生產之產物可具有30 ppma或更小之一氫含量。此等改良產物可用於生產用於生產半導體裝置之單晶矽。

圖7A繪示一矽-石墨烯複合微觀結構。圖7A之微觀結構包含石墨烯層710及矽粒子720。矽島粒子(即，矽粒子)可嵌入於由石墨烯層形成之間隙內。矽粒子可均勻分散、結合及嵌入於由石墨烯層710形成之石墨烯基

質中。矽島粒子可具有2 nm至2微米長之尺寸。因此，複合結構包含一奈米複合物。複數個石墨烯層及複數個矽粒子形成一嵌入式導電基質。在圖7A之微觀結構中，微觀結構之所繪示部分可為約10微米長。在一些實施方案中，矽-石墨微觀結構之一團狀物或其他部分可具有0.05微米至40微米之長度範圍內之一大小。石墨烯層之間之矽粒子之圖解未按比例繪製，且其大小可小於或大於圖7A中所展示之標度。圖7A之矽-石墨烯複合微觀結構及圖7B之宏觀結構可由一流化床反應器形成且可用於諸如一電池、電池組電池或其他電源之一電化學裝置中。

矽-石墨烯微觀結構可形成如圖7B中所展示之一宏觀結構。矽-石墨烯宏觀結構可形成由若干類晶體群組之矽-石墨烯複合材料形成之一形狀。矽-石墨烯宏觀結構形成聚結矽-石墨烯複合物之二級結構。在一些實施方案中，矽-石墨烯宏觀結構可形成為具有5微米至100微米之一直徑之球形形狀或團狀物。在一些實施方案中，矽-石墨宏觀結構可形成為具有2微米至40微米之一直徑之球形形狀或團狀物。具有嵌入矽粒子之複數個石墨烯層可形成耦合及導電材料之一或多個團狀物。可形成由大二維矽-石墨烯薄片滾動成一球形結構或團狀物之矽-石墨烯宏觀結構。複合結構形成聚結矽-石墨烯複合粒子。

在一些實施方案中，本文中所描述之獨特矽-石墨烯複合物使矽粒子與基質之間具有一強結合力。基質中之粒子可包含矽，或除可為矽粒子之外，亦可為Sn、Pb、Al、Au、Pt、Zn、Cd、Ag、Mg或Mo之一或多者，或可用Sn、Pb、Al、Au、Pt、Zn、Cd、Ag、Mg或Mo之一或多者來代替矽粒子。基質材料可為在一鋰電池環境中穩定之導電材料，其包含(但不限於)碳質脫層片材。

圖8A係由一FBR反應器產生之一矽-石墨烯複合物之一圖解。矽-石墨烯複合物呈由一矽-石墨烯微觀結構形成之晶體810形式。微觀結構包含均勻分散、結合及嵌入於一石墨烯基質中之矽粒子。圖8A之宏觀結構亦展示二維矽-石墨烯薄片滾動成一球形結構。圖8B繪示由一FBR反應器產生之另一矽-石墨烯複合物。圖8B之矽-石墨烯複合物展示石墨烯830之層內之可見矽粒子820。

圖9繪示可用於實施與本發明一起使用之一運算裝置之一例示性運算系統900。一運算裝置可與器皿一起用於產生粒子，且自動控制相對圖1至圖8B所描述之製程。圖9之運算系統900包含一或多個處理器910及記憶體920。主記憶體920部分儲存由處理器910執行之指令及資料。主記憶體920可在處於操作中時儲存可執行程式碼。圖9之系統900進一步包含一大容量儲存裝置930、(若干)可攜式儲存媒體驅動器940、輸出裝置950、使用者輸入裝置960、一圖形顯示器970及周邊裝置980。

將圖9中所展示之組件描繪成經由一單一匯流排990來連接。然而，可透過一或多個資料傳輸構件來連接組件。例如，可經由一區域微處理器匯流排來連接處理器單元910及主記憶體920，且可經由一或多個輸入/輸出(I/O)匯流排來連接大容量儲存裝置930、(若干)周邊裝置980、可攜式儲存裝置940及顯示系統970。

可使用一磁碟機或一光碟機來實施之大容量儲存裝置930係用於儲存供處理器單元910使用之資料及指令之一非揮發性儲存裝置。大容量儲存裝置930可儲存用於實施本發明之實施例之系統軟體以將該軟體載入至主記憶體920中。

可攜式儲存裝置940與諸如軟碟、光碟或數位視訊光碟之一可攜式非

揮發性儲存媒體一起操作以將資料及程式碼輸入至圖9之電腦系統900及自圖9之電腦系統900輸出資料及程式碼。用於實施本發明之實施例之系統軟體可儲存於此一可攜式媒體上且經由可攜式儲存裝置940來輸入至電腦系統900。

輸入裝置960提供一使用者介面之一部分。輸入裝置960可包含諸如一鍵盤之一字母數字小鍵盤(其用於輸入字母數字及其他資訊)或諸如一滑鼠、一軌跡球、一觸控筆或遊標方向鍵之一指標裝置。另外，圖9中所展示之系統900包含輸出裝置950。適合輸出裝置之實例包含揚聲器、印表機、網路介面及監視器。

顯示系統970可包含一液晶顯示器(LCD)或其他適合顯示裝置。顯示系統970接收文字及圖形資訊且處理待輸出至顯示裝置之資訊。

周邊裝置980可包含任何類型之電腦支援裝置以將額外功能添加至電腦系統。例如，(若干)周邊裝置980可包含一數據機或一路由器。

含於圖9之電腦系統900中之組件係可適於與本發明之實施例一起使用之電腦系統中常見之組件且意欲表示此項技術中已熟知之此等電腦組件之一廣泛類別。因此，圖9之電腦系統900可為一個人電腦、手持式運算裝置、電話、行動運算裝置、工作站、伺服器、迷你電腦、大型電腦或任何其他運算裝置。電腦亦可包含不同匯流排組態、網路平台、多處理器平台等等。可使用包含Unix、Linux、Windows、Android OS、iOS及其他適合作業系統之各種作業系統。

已為了繪示及描述而呈現本發明之以上詳細描述。其不意欲具窮舉性或將本發明限制於所揭示之精確形式。可鑑於上述教示來進行諸多修改及變動。選擇所描述之實施例來最佳解釋本發明之原理及其實際應用以藉

此使其他熟習技術者能夠最佳利用各種實施例中之技術且實現適於預期特定用途之各種修改。本發明之範疇意欲由申請專利範圍界定。

【符號說明】

| | |
|---|---|
| 110 | 反應性氣體輸入件 |
| 115 | 氣體沖洗輸入件/沖洗管線 |
| 120 | 流化床反應器 |
| 125 | 碳固體輸入件 |
| 130 | 廢氣輸出件 |
| 135 | 連接機構 |
| 140 | 真空管線 |
| 145 | 沖洗氣體輸入管線 |
| 150 | 儲集器 |
| 160 | 複合物輸出件 |
| 165 | 流化氣體輸入件/沖洗管線 |
| 170 | 矽前驅物氣體輸入件 |
| 210 | 步驟 |
| 215 | 步驟 |
| 220 | 步驟 |
| 225 | 步驟 |
| 230 | 步驟 |
| 235 | 步驟 |
| 240 | 步驟 |
| 245 | 步驟 |

| | |
|---|---|
| 250 | 步驟 |
| 255 | 步驟 |
| 260 | 步驟 |
| 301 | 器皿/腔室 |
| 302 | 開口 |
| 303 | 固體進給器 |
| 304 | 導管 |
| 305 | 氣密閥 |
| 306 | 導管 |
| 307 | 氮氣管線 |
| 308 | 排氣管線 |
| 310 | 反應器 |
| 311 | 氣體入口 |
| 312 | 氣體出口 |
| 400 | 沈積反應器 |
| 401 | 粒子床 |
| 402 | 固體入口 |
| 403 | 氣體出口 |
| 404 | 氣體入口 |
| 405 | 氣體分配器 |
| 406 | 固體出口 |
| 407 | 固體沖洗管線 |
| 408 | 外部加熱器 |

| | |
|---|---|
| 409 | 出口冷卻套 |
| 410 | 冷卻劑入口 |
| 411 | 冷卻劑出口 |
| 420 | 儲集器/器皿 |
| 421 | 粒子床 |
| 422 | 固體入口 |
| 423 | 氣體出口 |
| 424 | 氣體入口 |
| 425 | 氣體分配器 |
| 426 | 固體出口 |
| 427 | 閥沖洗管線 |
| 428 | 儲集器冷卻套 |
| 429 | 冷卻劑入口/冷卻線圈 |
| 430 | 冷卻劑出口 |
| 431 | 內部線圈 |
| 432 | 冷卻劑入口 |
| 433 | 冷卻劑出口 |
| 434 | 出口冷卻套 |
| 435 | 冷卻劑入口 |
| 436 | 冷卻劑出口 |
| 437 | 固體閥 |
| 438 | 氣密閥 |
| 440 | 產物容器/器皿 |

| | |
|---|---|
| 441 | 粒子床 |
| 442 | 固體入口 |
| 443 | 氣體出口 |
| 444 | 氣體入口 |
| 445 | 固體隔離閥 |
| 446 | 氣體出口隔離閥 |
| 447 | 氣體入口隔離閥 |
| 501 | 器皿 |
| 502 | 導管 |
| 503 | 第一儲集器皿 |
| 504 | 出口導管 |
| 505 | 解聚結裝置 |
| 506 | 導管 |
| 507 | 第二沈積反應器 |
| 508 | 導管 |
| 509 | 第二儲集器 |
| 510 | 導管 |
| 511 | 產物容器 |
| 610 | 器皿 |
| 611 | 導管 |
| 612 | 第一解聚結裝置 |
| 613 | 出口導管 |
| 614 | 第二沈積反應器 |

615 導管

620 第三沈積反應器

621 導管

622 第二解聚結器/第二解聚結裝置

623 出口導管

624 第四沈積反應器

625 導管

630 單獨儲集器

640 產物容器

710 石墨烯層

720 矽粒子

810 晶體

820 矽粒子

830 石墨烯

900 運算系統/電腦系統

910 處理器/處理器單元

920 記憶體

930 大容量儲存裝置

940 可攜式儲存媒體驅動器/可攜式儲存裝置

950 輸出裝置

960 使用者輸入裝置

970 圖形顯示器/顯示系統

980 周邊裝置

990 匯流排

# 【發明申請專利範圍】

【第1項】

一種用於產生一矽-碳複合物之方法，其包括：

對一反應器-儲集器(reservoir)系統之一反應器中之一第一碳基材執行控制矽負載(silicon loading)，該第一碳基材上之該控制矽負載生產一矽-碳複合物；

將該矽-碳複合物自該反應器轉移至該反應器-儲集器系統之一儲集器，轉移該矽-碳複合物係經由連接該反應器及該儲集器之一連接機構而發生；

在轉移該矽-碳複合物至該儲集器之後，關閉在該反應器及該儲集器之間之該連接機構；及

當該矽-碳複合物在該儲集器中冷卻時，對該反應器-儲集器系統之該反應器中之一第二碳基材執行一控制矽負載，

其中該第二碳基材上之該控制矽負載及該矽-碳複合物之冷卻依一半連續方式產生矽-碳複合物。

【第2項】

如請求項1之方法，其中該反應器-儲集器系統包含一流化床(fluidized bed)反應器。

【第3項】

如請求項1之方法，其進一步包括：自該第一碳基材生產一矽-碳複合物及/或矽-石墨烯複合物。

【第4項】

如請求項3之方法，其中使用化學氣相沈積來生產該矽-碳複合物及

該矽-石墨烯複合物。

【第5項】

如請求項3之方法，其中使用熱沈積來生產該矽-碳複合物及該矽-石墨烯複合物。

【第6項】

如請求項1之方法，其中該矽-碳複合物係藉由經由化學氣相沈積或熱沈積分解一氣體材料前驅物而產生。

【第7項】

如請求項2之方法，其進一步包括：

接收碳粉進入該反應器-儲集器系統之該反應器；

提供一惰性氣體進入該反應器-儲集器系統之該反應器；

在該惰性氣體流入該反應器-儲集器系統之該反應器之期間，加熱該反應器；

在該反應器-儲集器系統之該反應器中引入一反應性氣體及一矽前驅物；

執行該第一碳基材上之該控制矽負載達一預定時間週期；及

在執行該第一碳基材上之該控制矽負載之後，將用於該第一碳基材上之該控制矽負載之該反應性氣體及該矽前驅物自該反應器-儲集器系統之該反應器移除。

【第8項】

如請求項7之方法，其進一步包括：

當執行該第二碳基材上之該控制矽負載時，冷卻該儲集器中之該矽-碳複合物。

【第9項】

如請求項1之方法，其中該矽-碳複合物具有來自於聚結矽-石墨烯薄片之一二級球形形狀。

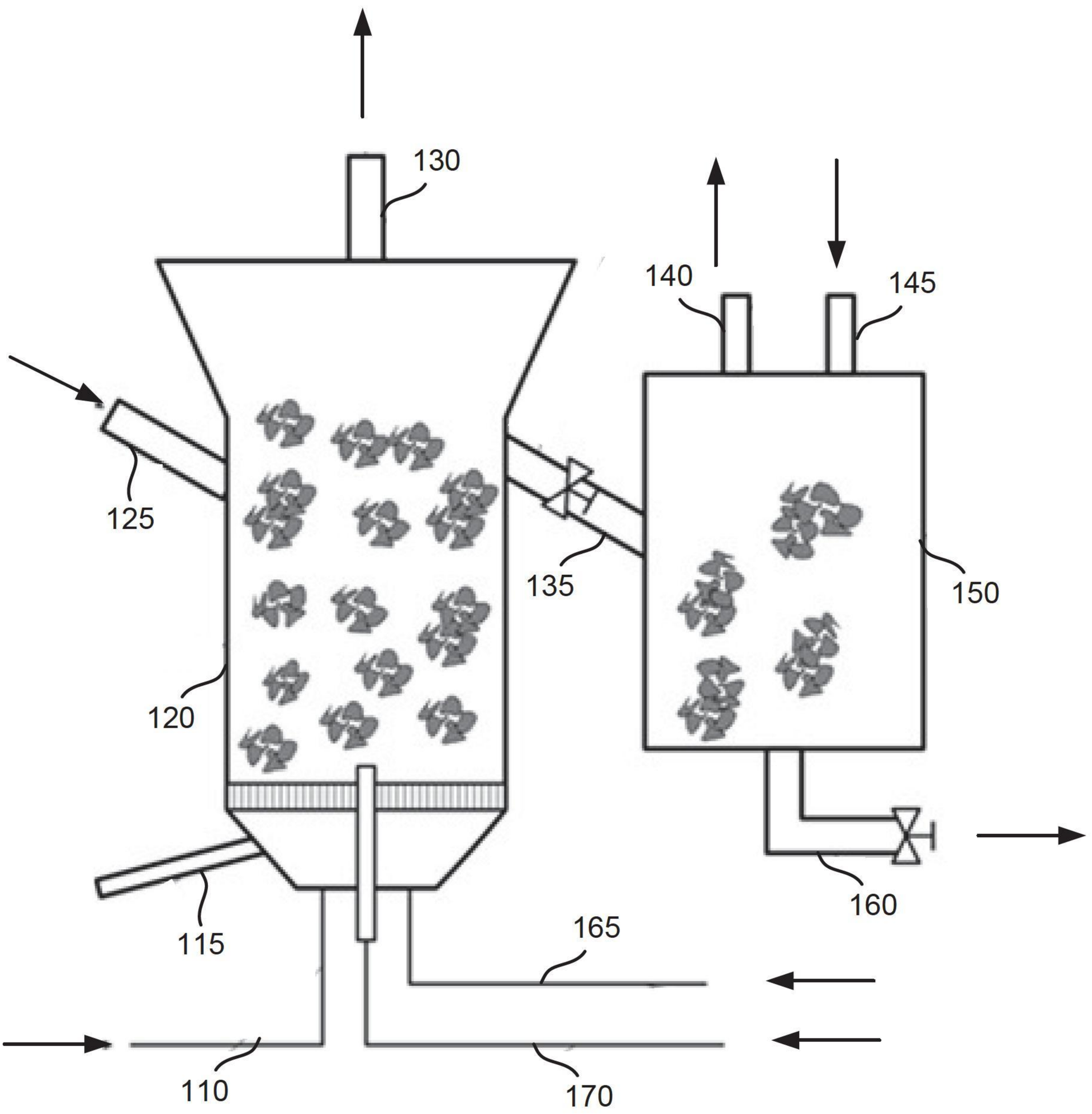
【第10項】

如請求項9之方法，其中該二級球形形狀係在該矽-碳複合物在被冷卻時自該反應器轉移進入該儲集器之後形成於該儲集器內部。

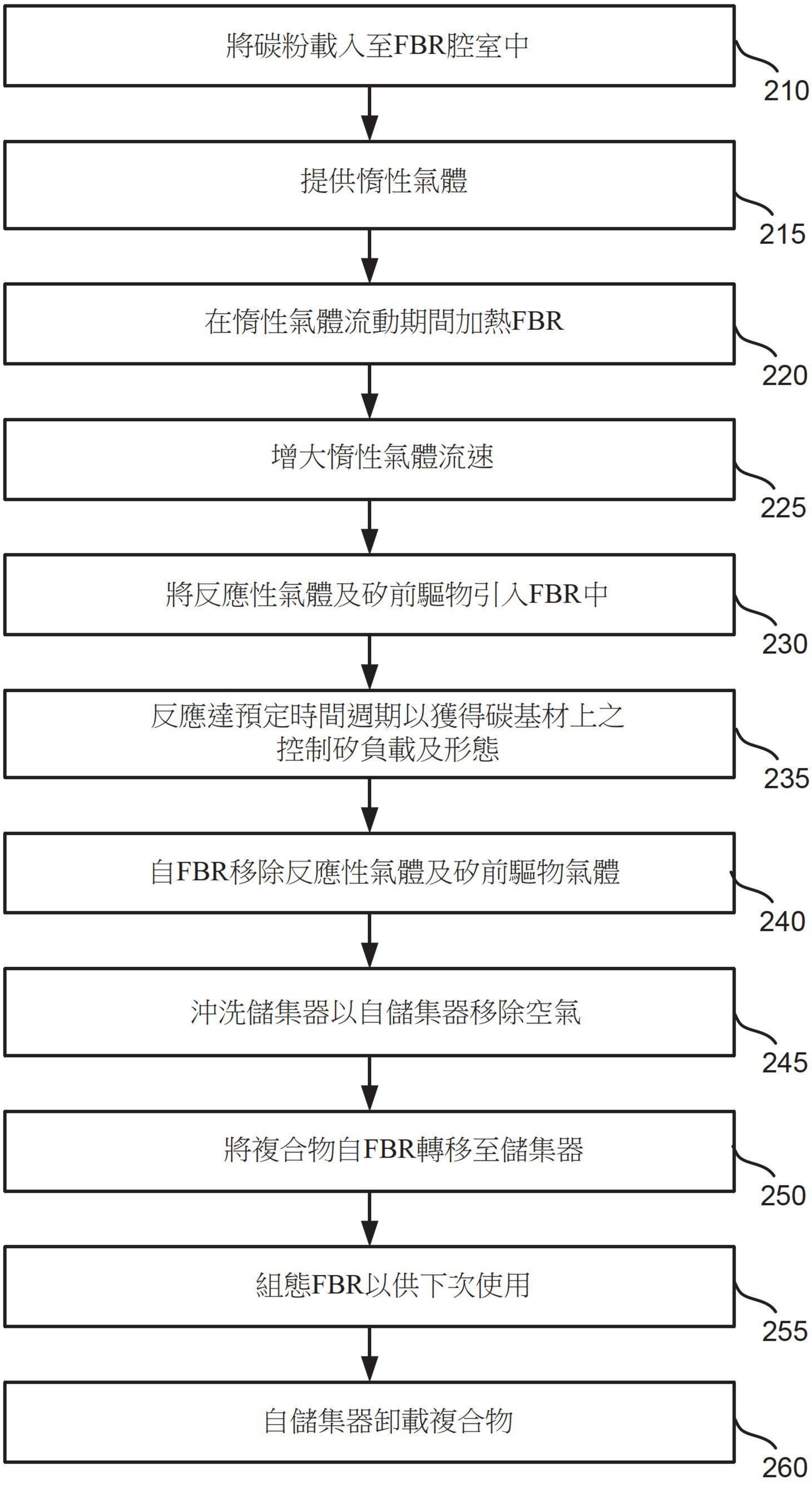
【第11項】

如請求項10之方法，其中該二級球形形狀矽-碳複合物被轉移進入用於矽沈積之反應器以進一步增加該控制矽負載。

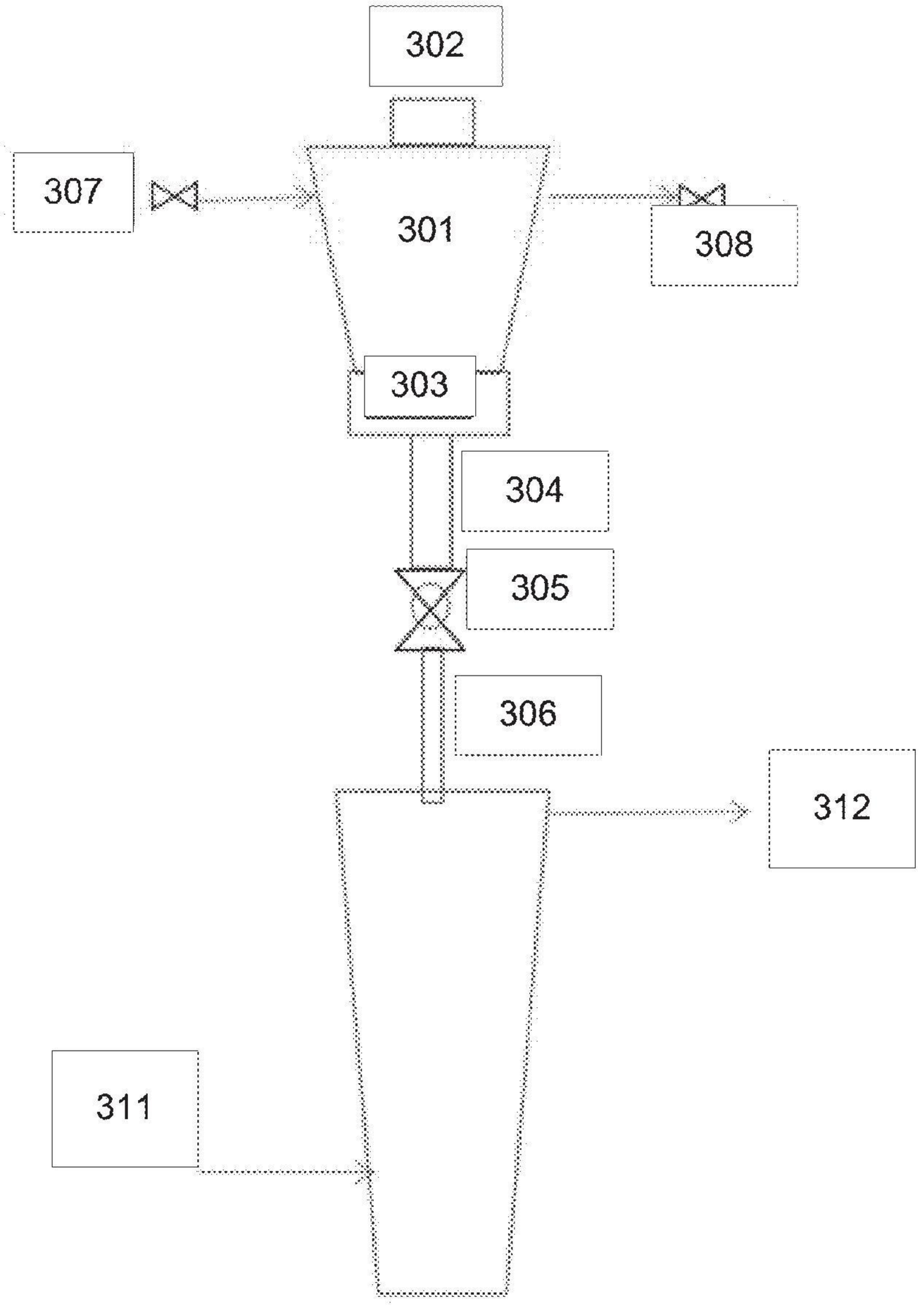
# 【發明圖式】



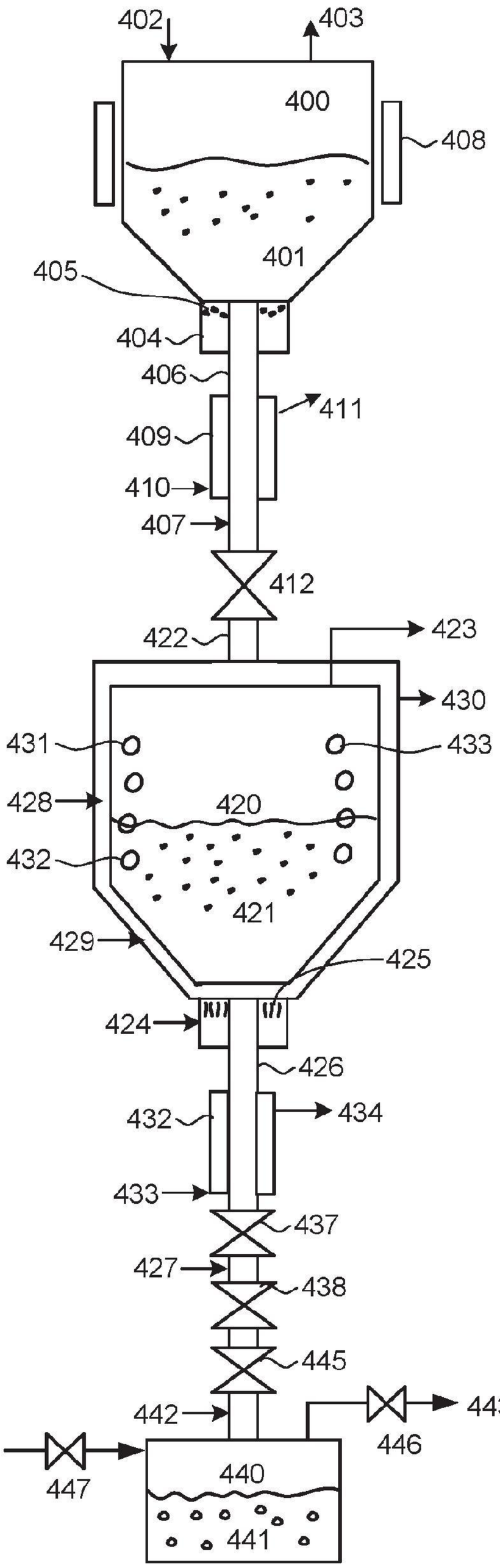

【圖1】


將碳粉載入至FBR腔室中
210
提供惰性氣體
215
在惰性氣體流動期間加熱FBR
220
增大惰性氣體流速
225
將反應性氣體及矽前驅物引入FBR中
230
反應達預定時間週期以獲得碳基材上之
控制矽負載及形態
235
自FBR移除反應性氣體及矽前驅物氣體
240
沖洗儲集器以自儲集器移除空氣
245
將複合物自FBR轉移至儲集器
250
組態FBR以供下次使用
255
自儲集器卸載複合物
260

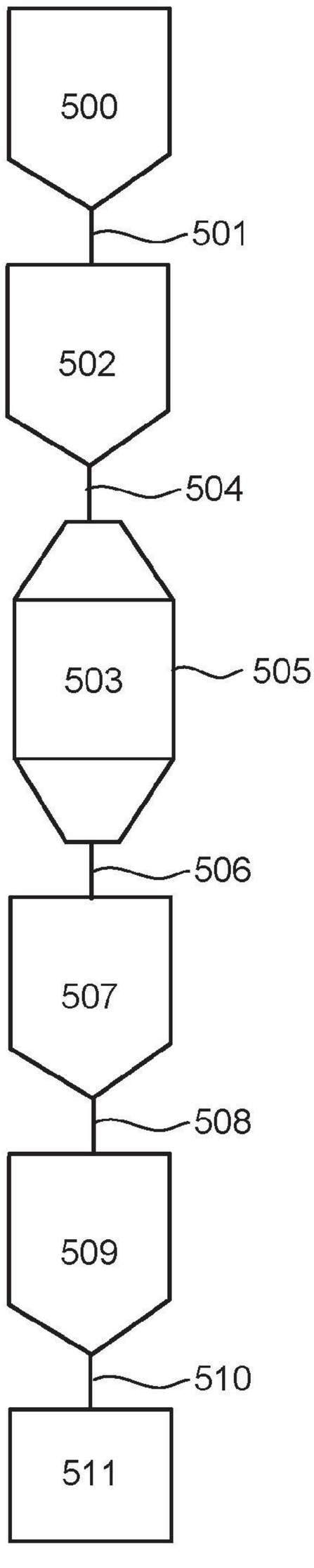
【圖2】



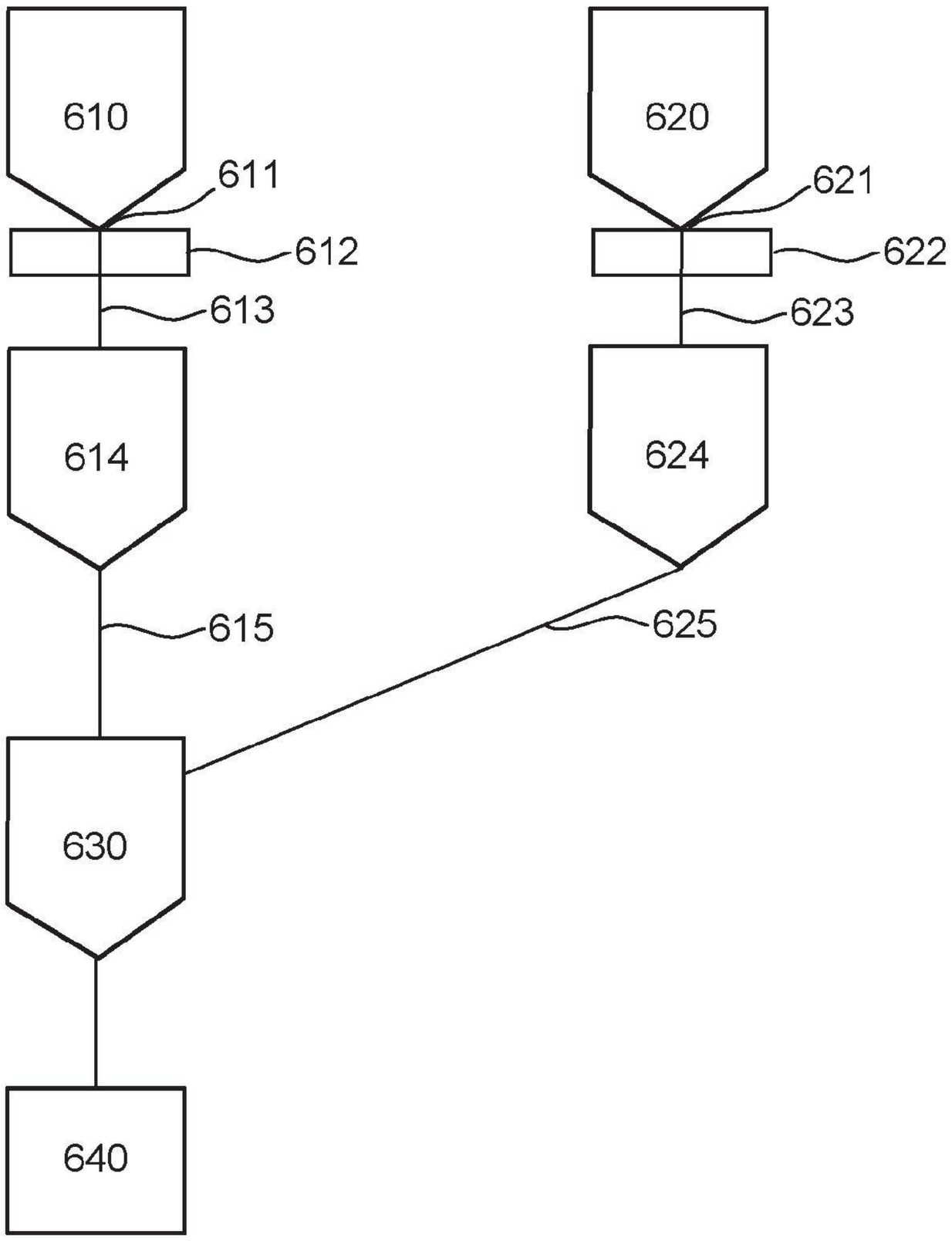

【圖3】


402
403
400
408
401
405
404
406
411
409
410
407
412
422
423
430
431
433
428
420
432
421
429
425
424
426
432
434
433
437
427
438
445
442
443
444
446
447
440
441

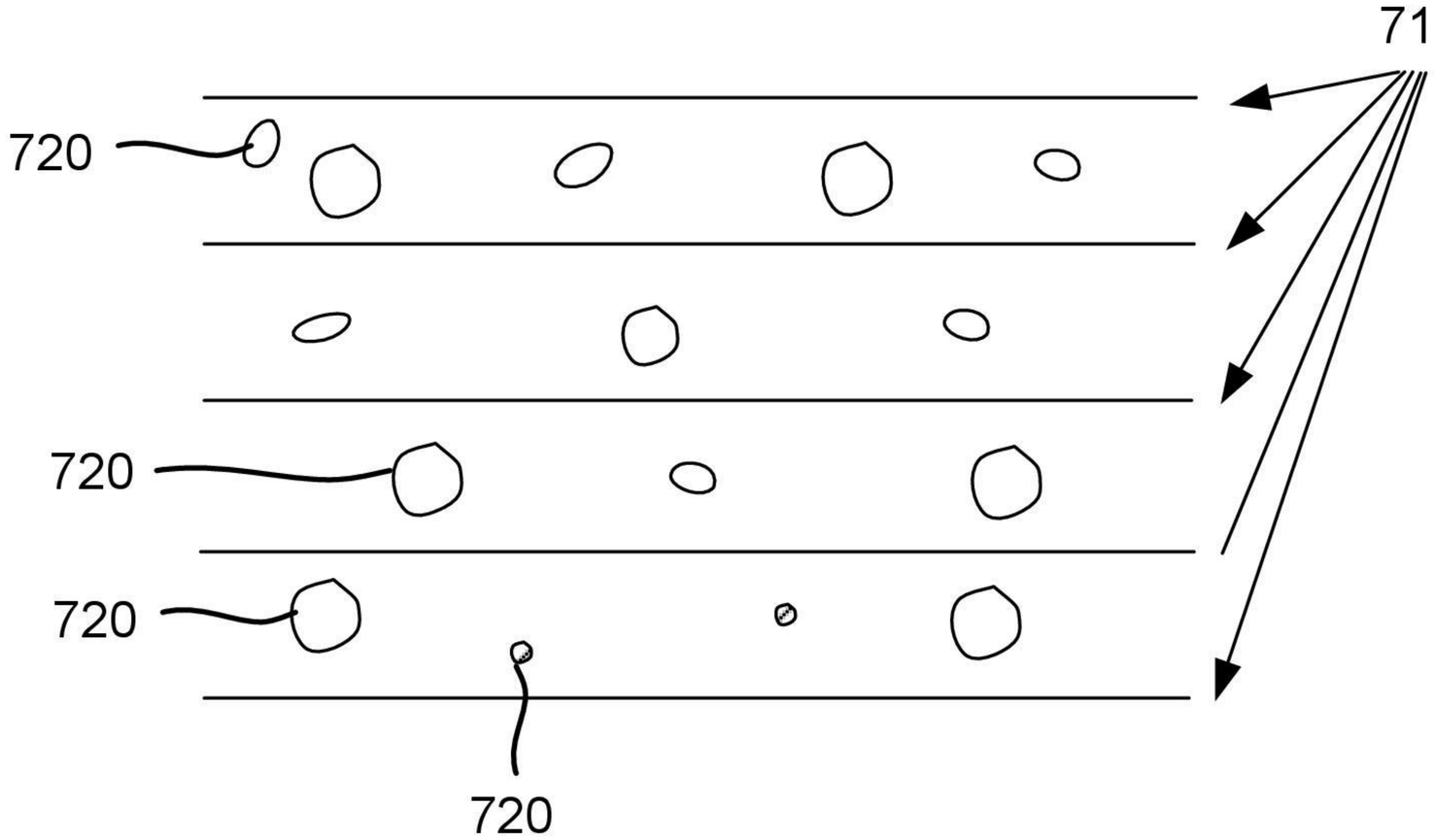
【圖4】



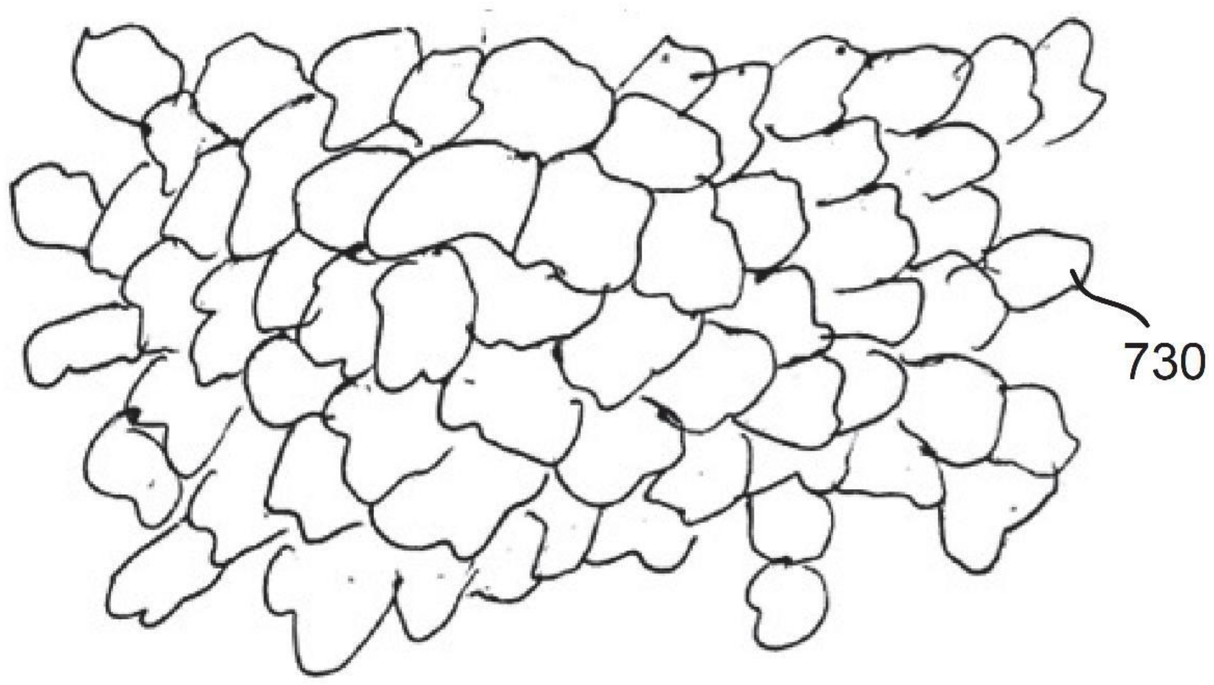

【圖5】



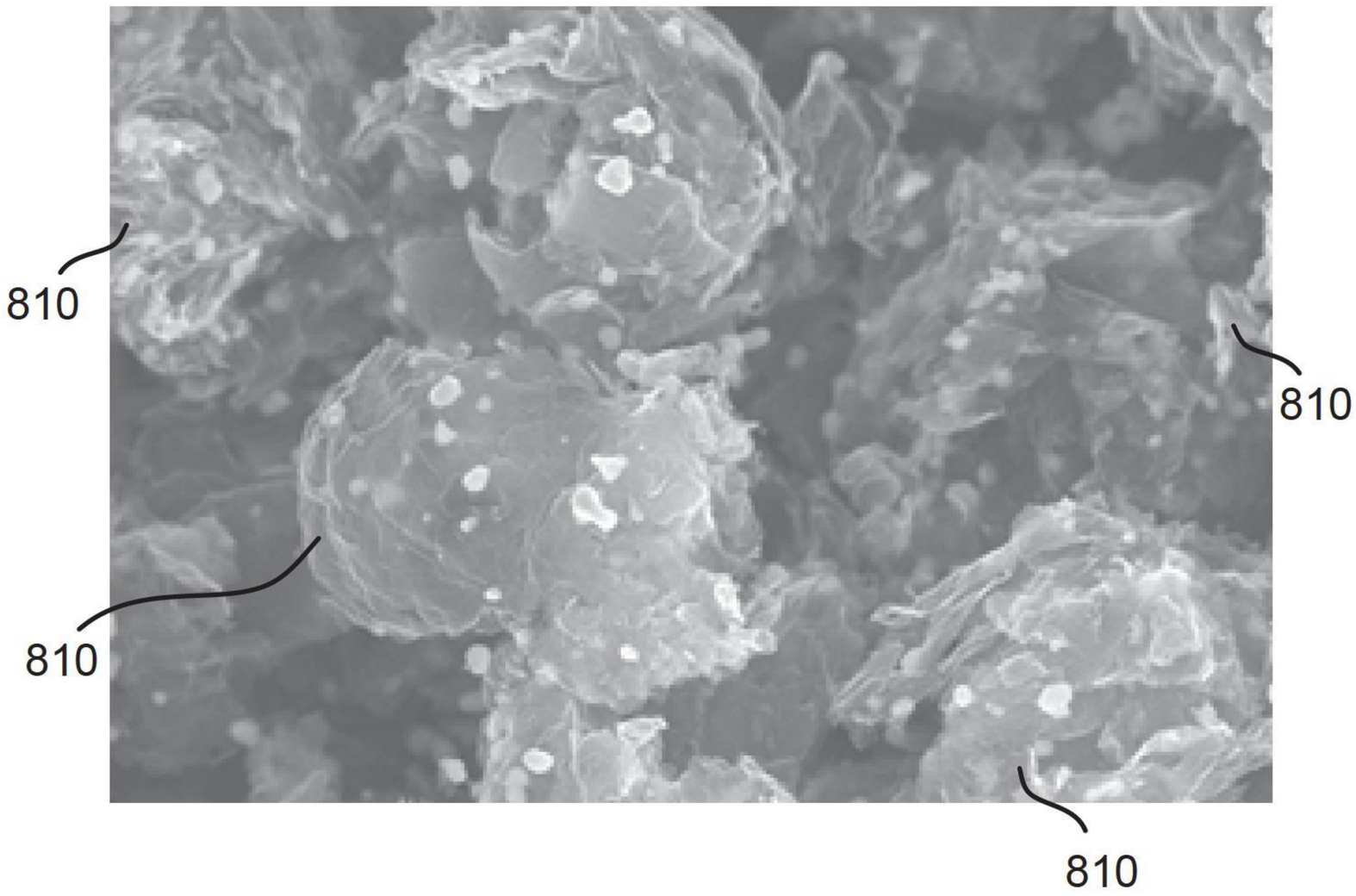

【圖6】



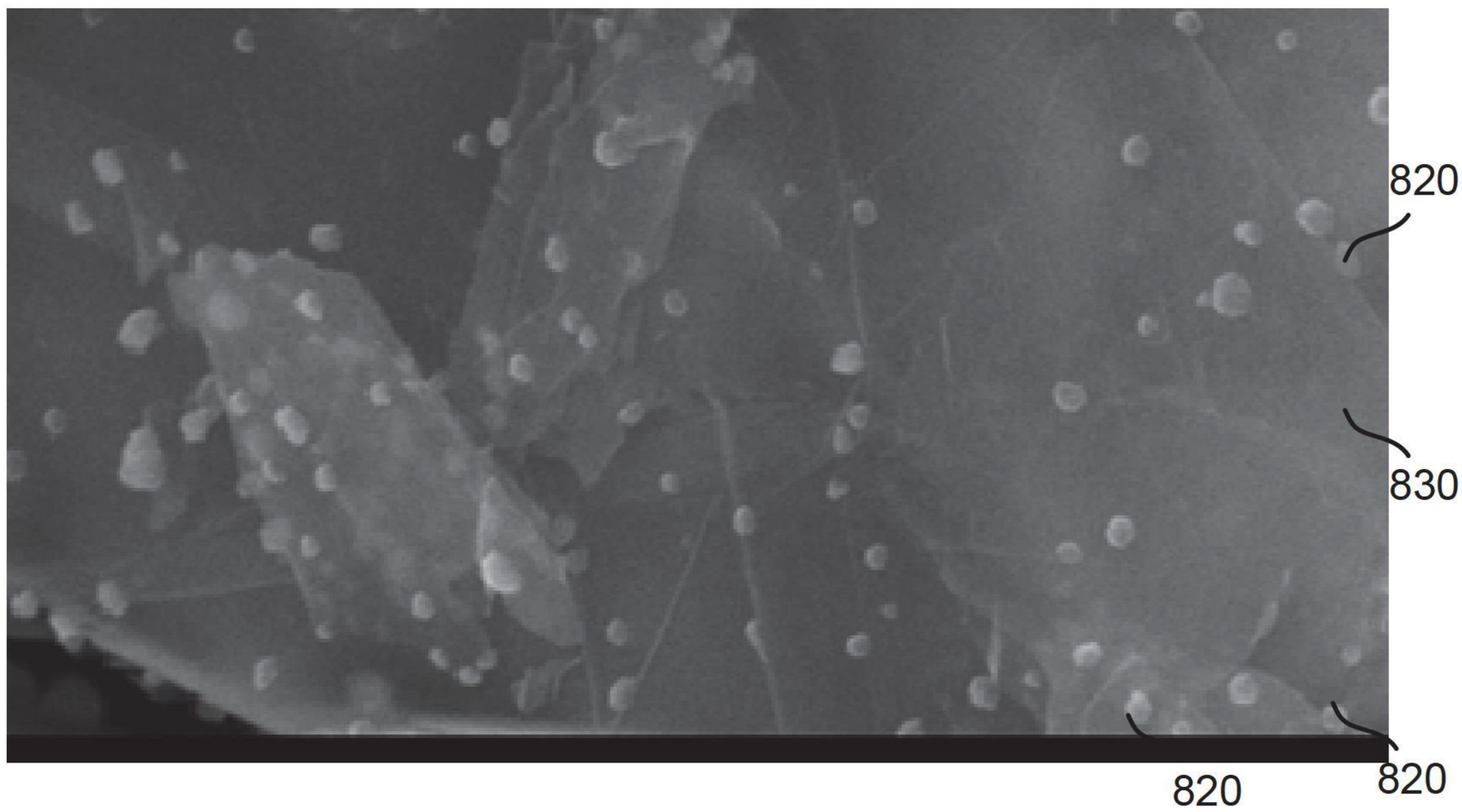

【圖7A】



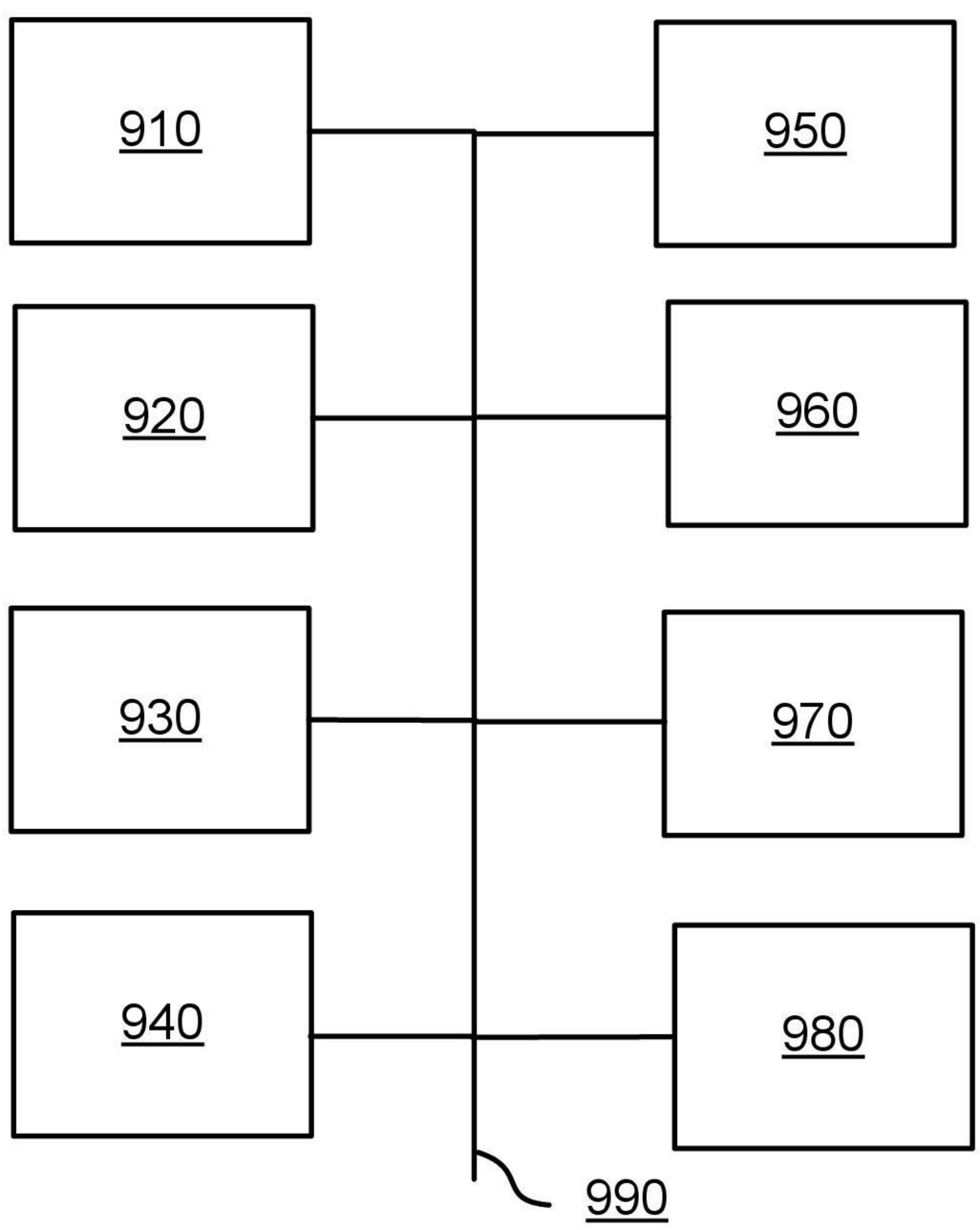

【圖7B】




【圖8A】




【圖8B】




【圖9】