

**С. М. Азаров<sup>1</sup>, Д. Н. Балыдко<sup>2</sup>**<sup>1</sup>*Белорусский национальный технический университет, Минск, Республика Беларусь*  
<sup>2</sup>*ООО «АГАТ-СИСТЕМ», Минск, Республика Беларусь***ФОРМИРОВАНИЕ МЕМБРАННОГО СЛОЯ С КАРБИДОМ КРЕМНИЯ  
НА АЛЮМОСИЛИКАТНОЙ ПОДЛОЖКЕ**

**Аннотация.** Представлены результаты исследования особенностей формирования на крупнопористой подложке SiC-содержащего слоя из предварительно обработанных в бисерной мельнице продуктов размола фарфорового боя с антрацитом (10 мас.%). Показано, что легирование алюмосиликатного порошка углеродом приводит к образованию в спеченном материале карбида кремния кубической и гексогональной модификации (муассанит). Основным источником кремния для образования SiC при спекании легированного порошка  $Al_2O_3-SiO_2$  является кварц. Процесс образования SiC при температурах 850–950 °C становится возможным благодаря формированию структурных дефектов на поверхности и в объеме механоактивированных частиц фарфора; частичному переходу в более активное, аморфное состояние хрупкого  $SiO_2$  (всегда присутствующего в виде зерен в структуре размалываемых алюмосиликатных частиц) при легировании углеродом. Процесс изготовления многослойных образцов-трубок включал в себя прессование и спекание крупнопористой алюмосиликатной подложки при температуре 1200–1250 °C с последовательным нанесением и термообработкой промежуточного и мембранного слоев. Установлено, что при 950 °C формирование мембранного слоя из механически активированного порошка  $Al_2O_3-SiO_2-C$  с размером частиц менее 1 мкм сопровождается образованием SiC в количестве 36 %. Определены структурные и фильтрующие характеристики полученных трехслойных трубчатых образцов с SiC-содержащим мембранным слоем: размер пор 0,4–0,5 мкм; производительность по воде 0,012 м<sup>3</sup>/м<sup>2</sup>·с; степень задерживания частиц размером менее 0,5 мкм, в том числе микроорганизмов, – 100 %. Экспериментально показано, что при фильтрации трехслойные образцы характеризуются практически постоянным фильтроциклом.

**Ключевые слова:** алюмосиликатная керамика, карбид кремния, мембранный слой, крупнопористая подложка, характеристики

**Для цитирования:** Азаров, С. М. Формирование мембранного слоя с карбидом кремния на алюмосиликатной подложке / С. М. Азаров, Д. Н. Балыдко // Вест. Нац. акад. наук Беларусі. Сер. фіз.-тэхн. навук. – 2020. – Т. 65, №3. – С. 299–309. <https://doi.org/10.29235/1561-8358-2020-65-3-299-309>

**Siarhei M. Azarau<sup>1</sup>, Denis N. Balydka<sup>2</sup>**<sup>1</sup>*Belarusian National Technical University, Minsk, Republic of Belarus*  
<sup>2</sup>*JSC “AGAT-SISTEM”, Minsk, Republic of Belarus***FORMATION OF A MEMBRANE LAYER WITH SILICON CARBIDE ON AN ALUMINOSILICATE  
SUBSTRATE**

**Abstract.** The paper presents the results of a study of the formation features on a large-pore substrate of a SiC-containing layer of pre-processed in a bead mill products of grinding porcelain fight with anthracite (10 wt.%). It is shown that the alloying of aluminosilicate powder with carbon leads to the formation of cubic and hexagonal silicon carbide (moissanite) in the sintered material. The main source of silicon for the formation of SiC when sintering doped powder  $Al_2O_3-SiO_2$ , is quartz. The process of SiC formation at temperatures of 850–950 °C becomes possible due to the formation of structural defects on the surface and in the volume of mechanically activated porcelain particles; partial transition to a more active, amorphous state of brittle  $SiO_2$  (always present as grains in the structure of milled aluminosilicate particles) when doped with carbon. The process of manufacturing multilayer tube samples included pressing and sintering of a large-pore aluminosilicate substrate at a temperature of 1200–1250 °C with successive application and heat treatment of the intermediate and membrane layers. It was found that at 950 °C, the formation of a membrane layer from a mechanically activated  $Al_2O_3-SiO_2-C$  powder with a particle size of less than 1 μm is accompanied by the formation of SiC in an amount of 36 %. The structural and filtering characteristics of the obtained three-layer tubular samples with a SiC-containing membrane layer were determined: the pore size of 0.4–0.5 microns; water capacity of 0.012 m<sup>3</sup>/m<sup>2</sup>·s; the degree of retention of particles smaller than 0.5 microns, including microorganisms, – 100 %. It is shown experimentally that three-layer samples are characterized by an almost constant filter cycle during filtration.

**Keywords:** aluminosilicate ceramics, silicon carbide, membrane layer, large-porous substrate, characteristics

**For citation:** Azarau S. M., Balydko D. N. Formation of a membrane layer with silicon carbide on an aluminosilicate substrate. *Vestsi Natsyonal'nai akademii navuk Belarusi. Seryya fizika-technichnykh navuk = Proceedings of the National Academy of Sciences of Belarus. Physical-technical series*, 2020, vol. 65, no. 3, pp. 299–309 (in Russian). <https://doi.org/10.29235/1561-8358-2020-65-3-299-309>

**Введение.** Прогресс пищевой и фармацевтической отраслей промышленности сопряжен с развитием микрофльтрационных процессов, обеспечивающих стерилизацию и осветление всех видов напитков и лекарственных препаратов.

Микрофльтрация – процесс наиболее близкий к обычной фильтрации. Фильтрующие материалы с размерами пор 0,05–20,0 мкм используются для отделения частиц в эмульсиях и суспензиях. Микрофльтрация позволяет эффективно задерживать частицы размером от 0,01 до 1,0 мкм, которые практически не осаждаются в поле гравитационных сил [1].

Карбид кремния является одним из базовых компонентов для создания керамических материалов, используемых в микрофльтрационных процессах. Это связано с характерным для SiC сочетанием свойств: химическая инертность, высокая температура плавления, механическая прочность, абразивная стойкость и др. В то же время стоимость карбидокремниевых фильтроэлементов в виде труб высока и составляет 250–300 долл. США за штуку. Стоимость в основном определяется сложностью и энергоемкостью технологических операций формирования SiC (температуры выше 1400 °С в сочетании с динамическим вакуумом и др. [2]). Поэтому для уменьшения энергетических затрат и упрощения технологических приемов представляется перспективным использование реакционного спекания микрофльтрационных слоев с формированием SiC на дешевой крупнопористой подложке.

Известно, что образование карбида кремния в условиях промышленного получения происходит при достаточно сложном взаимодействии углерода с диоксидом кремния. Существует ряд технологических приемов, позволяющих существенно снизить температуру формирования SiC [3–5]. Одним из способов образования карбидокремниевой матрицы при пониженных температурах является реакционное спекание исходных компонентов, прошедших предварительную импульсную обработку взрывом, механоактивацию [6] и др., причем характерным признаком такого процесса является отсутствие усадки [7].

*Целью работы* явилось изучение влияния SiC, образующегося при спекании мелкодисперсного алюмосиликатного порошка, легированного углеродом, на структурные и фильтрующие характеристики получаемой пористой керамики.

В ходе исследования авторами решались следующие задачи:

изучить особенности формирования SiC в процессе спекания мембранных слоев из легированного углеродом алюмосиликатного порошка;

определить структурные и фильтрующие характеристики получаемой многослойной керамики.

**Материалы и методики исследований.** Для приготовления шихты в качестве алюмосиликата использовали продукт размола фарфорового боя ЗАО «Добрушский фарфоровый завод». Источником углерода служил антрацит (фильтрующая загрузка, используемая для очистки воды). Исходные компоненты обрабатывали в бисерной мельнице. Содержание антрацита в смеси составляло 10 мас.%. После размола частицы размером более 1 мкм удаляли седиментацией для того, чтобы при спекании получить материал с размером пор менее 0,5 мкм [8]. Распределение частиц по размерам после измельчения определяли на фотоседиментометре ФСХ-4. Для измерения величин объемной усадки, прочности на сжатие и пористости использовали экспериментальные образцы в виде цилиндров диаметром 16 мм и высотой 16 мм. Коэффициент проницаемости, размер пор, качество очистки жидкостей определяли на многослойных трубках диаметром 12 мм, длиной 100 мм с толщиной стенки 2 мм. Длительность межрегенерационных циклов исследовали на трубках диаметром 65 мм и длиной 70 мм. Многослойную структуру трубок формировали нанесением на предварительно спеченную крупнопористую алюмосиликатную подложку промежуточного слоя из алюмосиликатного порошка ( $Al_2O_3-SiO_2$ ) и мембранных слоев из алюмосиликатных частиц, легированных углеродом ( $Al_2O_3-SiO_2-C$ ). Спекание экспериментальных образцов проводили в лабораторной печи на воздухе.

Способ получения, давление прессования экспериментальных образцов и температуры их спекания представлены в табл. 1.

Т а б л и ц а 1. **Технологические режимы изготовления образцов**

Table 1. **Technological modes of sample production**

Вид образца	Способ получения	Давление прессования, МПа	Температура спекания/термообработки, °С
Цилиндр	Прессование с последующим спеканием	40	850, 900, 950
Крупнопористая подложка трубки		30	1200–1250
Промежуточный слой трубки	Окунание с последующей термообработкой	–	1050, 1100, 1150
Мембрана трубки			850, 900, 950

Рентгенофазовый анализ проводили на образцах мембранных слоев, снятых с экспериментальных трубок. Характеристики образцов (пористость, коэффициент проницаемости и др.), дифференциально-термический (ДТА), рентгеноспектральный, рентгенофазовый анализы и морфологию поверхности разрабатываемых материалов исследовали по стандартным методикам, принятым в порошковой металлургии и материаловедении. Изучение элементного состава проводили на аттестованном сканирующем электронном микроскопе высокого разрешения Miра фирмы Tescan (Чехия) с микрорентгеноспектральным анализатором INCA Energy 350 фирмы Oxford Instruments Analytical (Великобритания). Погрешность метода составила 10–15 %.

**Экспериментальные результаты и их обсуждение.** Совместный размол компонентов в бисерной мельнице позволил установить следующее. Времени размолта 60 мин, как и 180 мин, недостаточно, так как остается большой процент частиц размером более 2 мкм (рис. 1, *a, b*), что является препятствием для создания пористой структуры с порами менее 0,5 мкм. При размолте в течение 360 мин (рис. 1, *c*) количество частиц с размером ~ 2 мкм минимально.

Значения объемной усадки при спекании, прочности при сжатии, пористости образцов исследуемых материалов представлены в табл. 2.

Результаты рентгенофазового анализа исходного порошка и мембранных слоев, спеканных при температуре 950 °С, приведены на рис. 2 и в табл. 3.

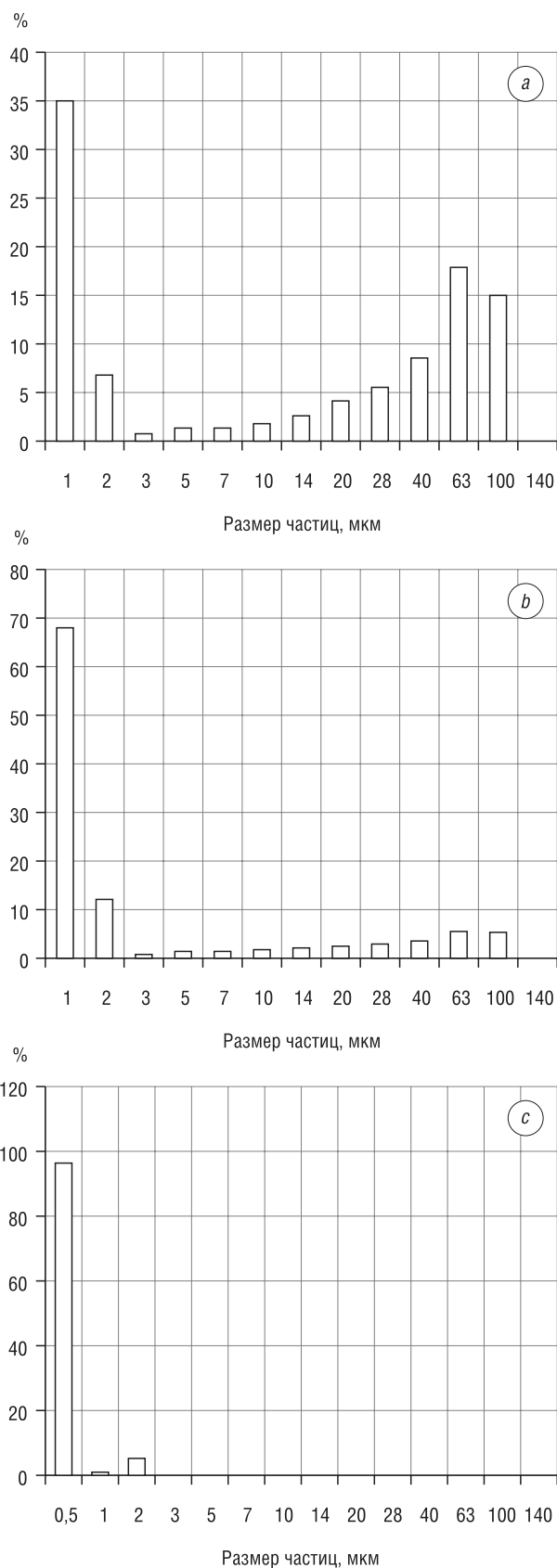


Рис. 1. Распределение частиц по размерам при размолте в течение 60 мин (*a*), 180 мин (*b*), 360 мин (*c*)

Fig. 1. Particle size distribution during milling for 60 min (*a*), 180 min (*b*), 360 min (*c*)

Таблица 2. Характеристики цилиндрических алюмосиликатных образцов

Table 2. Characteristics of cylindrical aluminosilicate samples

Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -SiO <sub>2</sub>			
Температура спекания, °С	1050	1100	1150
Прочность при сжатии, МПа	7,5	9,6	12,9
Пористость, %	35,3	32,4	28,6
Объемная усадка, %	10,9	14,1	17,3
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -SiO <sub>2</sub> -C			
Температура спекания, °С	850	900	950
Прочность при сжатии, МПа	5,1	7,4	10,1
Пористость, %	37,3	36,8	36,1
Объемная усадка, %	4	6	6,5

ном материале карбида кремния кубической модификации в количестве 31 % и гексогональной (муассанит) – 4 %. Присутствие некоторого количества карбида кремния в спеченном материале из исходного алюмосиликатного порошка можно объяснить использованием органического пластификатора (5 % поливинилового спирта), используемого при формовании образцов и в процессе формирования мембранного слоя на крупнопористой подложке.

Как следует из данных табл. 3, основным источником кремния для образования SiC при спекании легированного порошка Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub> является кварц. В спеченном материале Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub>-C его содержание уменьшилось на 35,7 % при мало изменившейся концентрации орторомбического силлиманита (≈ 11 %).

Дифрактограмма порошка, легированного углеродом, не отличается от дифрактограммы исходного порошка (см. рис. 2). Это связано с аморфностью антрацита. В [9] доказано, что составляющие каменных углей представляют собой смесь различных рентгеноаморфных компонентов, присутствие и количество которых меняется в ряду метаморфизма.

Изображения микроструктур поверхностей исходного порошка и мембранного слоя из Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-SiO<sub>2</sub>-C с данными микрорентгено-спектрального анализа (МРСА) представлены на рис. 3, 4.

Анализ результатов рентгенофазового анализа, представленных в табл. 3, показывает, что легирование алюмосиликатного порошка углеродом приводит к образованию в спечен-

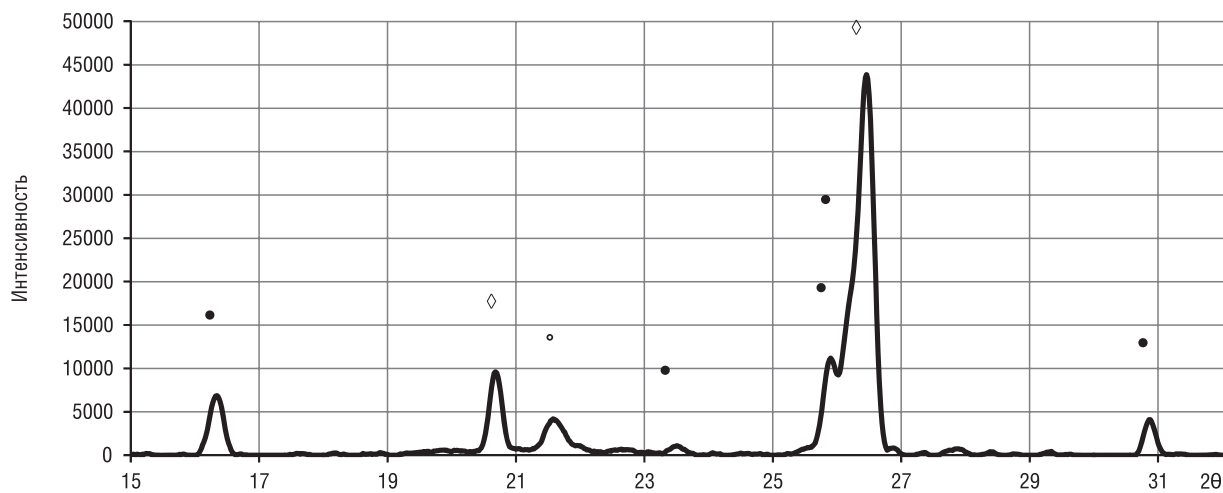


Рис. 2. Дифрактограмма исходного алюмосиликатного порошка (● – муллит, ◇ – кварц, ○ – кристобалит)

Fig. 2. Diffraction pattern of the original aluminosilicate powder (● – mullite, ◇ – quartz, ○ – cristobalite)

Таблица 3. Фазовый состав мембранных слоев после спекания при 950 °С

Table 3. Phase composition of membrane layers after sintering at 950 °С

Образец	Фазовый состав, %			
	Кварц SiO <sub>2</sub> (гексогональный)	Силлиманит Al <sub>2</sub> SiO <sub>5</sub> (орторомбический)	Корунд Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (ромбоэдрический)	Карбид кремния SiC
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> -SiO <sub>2</sub>	56	27	10	7 гексогональный
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> - SiO <sub>2</sub> -C	36	24	5	4 гексогональный (муассанит)      31 кубический (муассанит)



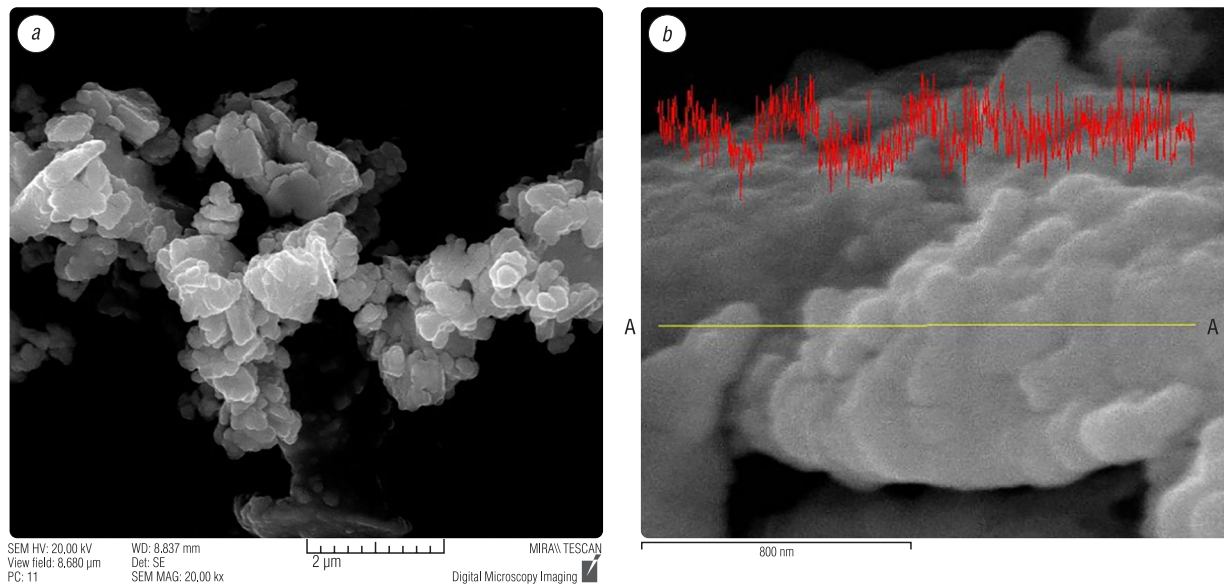
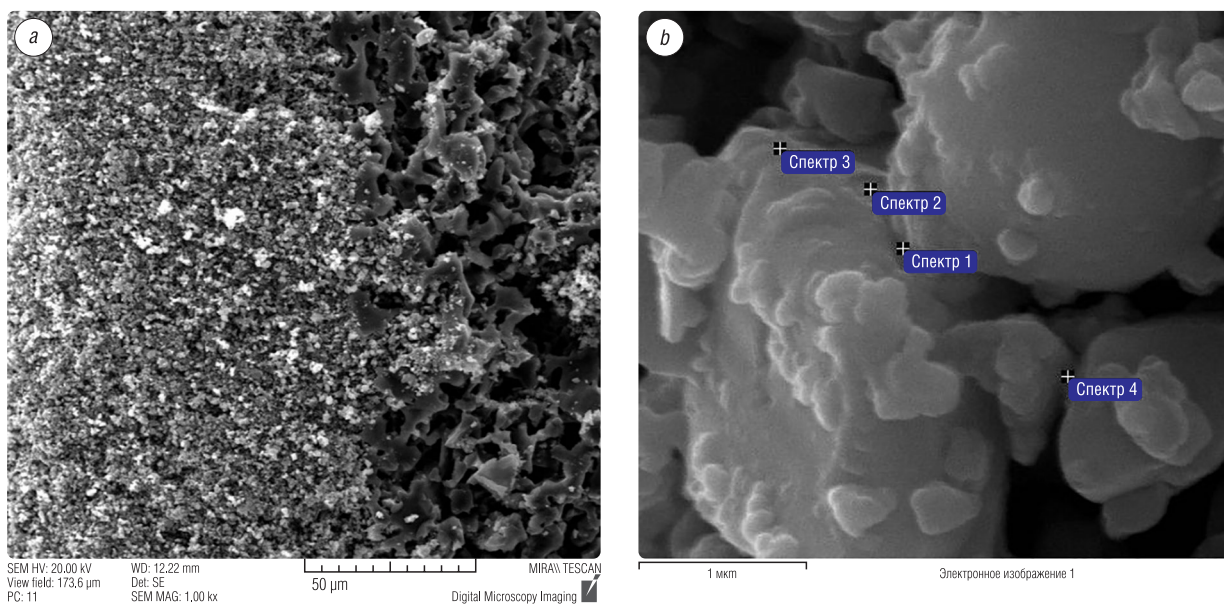


Рис. 3. Структура поверхности порошка  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ , легированного углеродом, после размола и седиментации (a) с распределением концентрации углерода на отрезке AA (b)

Fig. 3. Surface structure of powder  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ , doped with carbon, after grinding and sedimentation (a) with carbon concentration distribution on the segment AA (b)



Содержание элементов, %	C	O	Mg	Al	Si	K	Ca	Fe
Спектр 1	10,36	Остальное	0,16	8,74	22,06	1,24	0,40	0,17
Спектр 2	5,48	—//—	0,16	8,61	19,80	1,11	0,35	0,19
Спектр 3	11,33	—//—	0,08	8,77	18,87	0,95	0,38	0,12
Спектр 4	10,10	—//—	0,16	7,97	23,67	1,22	0,57	0,50

Рис. 4. Структура излома мембранного слоя, спеченного из порошка  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2\text{-C}$  (a), с расположением точек МРСА на поверхности (b) и содержанием элементов (таблица)

Fig. 4. Fracture structure of the membrane layer sintered from  $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2\text{-C}$  powder (a), with the location of MRSA points on the surface (b) and the content of elements (table)

Можно предположить, что процесс образования SiC при температурах спекания мембранного слоя (850–950 °C) становится возможным благодаря формированию структурных дефектов на поверхности и в объеме механоактивированных частиц фарфора; частичному переходу в более активное, аморфное состояние хрупкого  $\text{SiO}_2$  (всегда присутствующего в виде зерен в структуре

размалываемых алюмосиликатных частиц) при легировании углеродом [10]. Кроме того, представляется вероятным образование микрочастиц карбида кремния уже в процессе длительной обработки в бисерной мельнице по механизму твердофазного взаимодействия компонентов.

На рис. 5 представлены результаты дифференциально-термического анализа при спекании исходного алюмосиликатного порошка ( $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$ ) и алюмосиликатного порошка, легированного углеродом ( $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2\text{-C}$ ). Кривые ТГ и ДТГ измерялись по стандартизированным методикам.

Дефектность алюмосиликатных частиц облегчает их взаимодействие с молекулами  $\text{CO}_2$  при спекании. Дифференциально-термический анализ (см. рис. 5) свидетельствует, что при

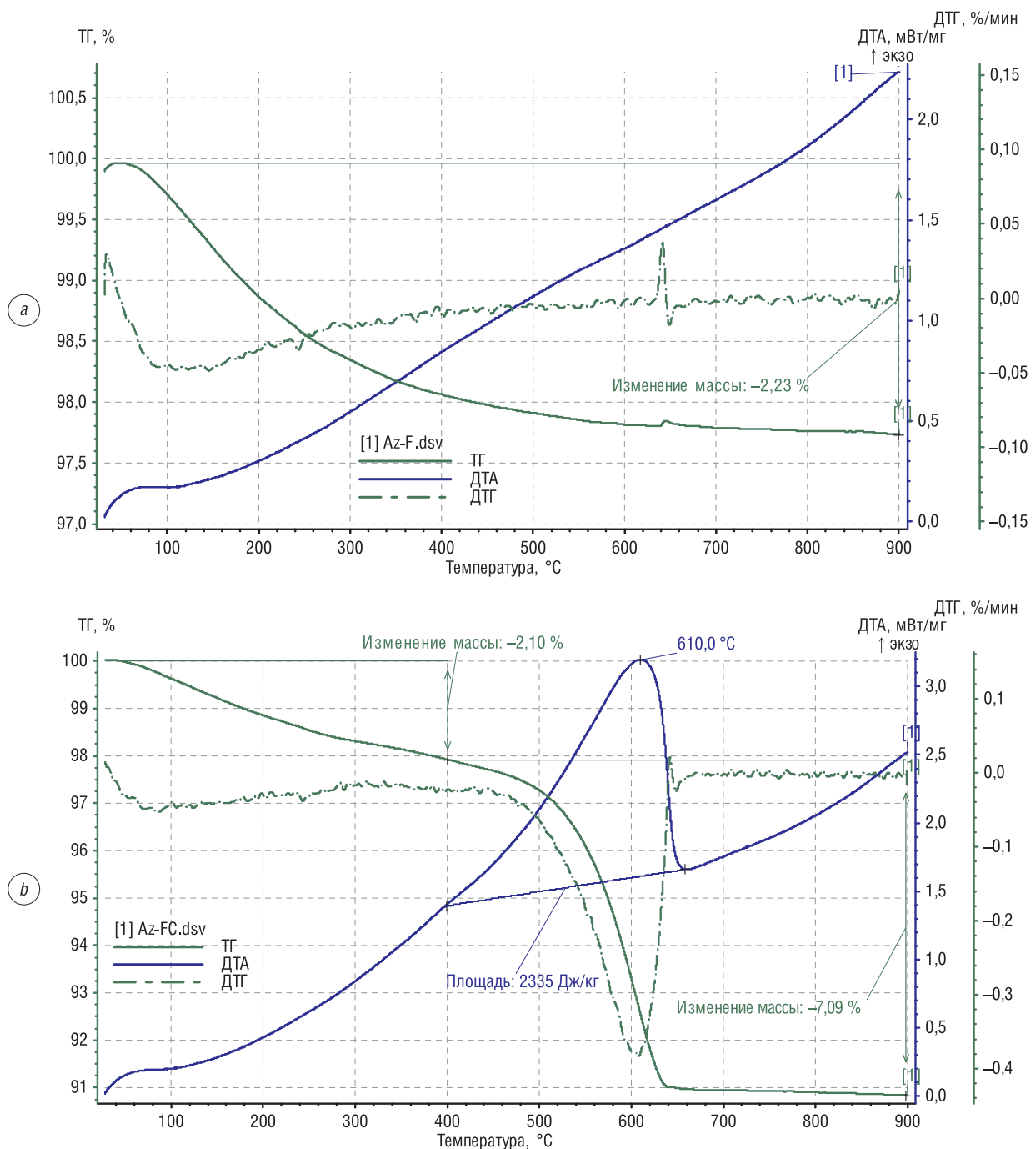


Рис. 5. Дифференциально-термический анализ исследуемых материалов: исходного алюмосиликатного порошка (a) и алюмосиликатного порошка, легированного углеродом (b)

Fig. 5. Differential thermal analysis of the materials under study: initial aluminosilicate powder (a) and aluminosilicate powder doped with carbon (b)

температуре 610 °С наблюдается экзотермический пик, сопровождающийся уменьшением массы на 7 %, обусловленный сгоранием углерода и, следовательно, формированием CO<sub>2</sub>. Выделенное при этом в порах значительное количество энергии 2335 Дж/г создает локальный перегрев на поверхности частиц и повышает вероятность формирования карбида кремния, который достаточно равномерно распределен по поверхности пор спеченного мембранного слоя.

Судя по кривой ТГ, убыль массы в образце без углерода составляет 2 %, а в образце с углеродом ~ 9 % при их нагреве до 800 °С. Из этого можно сделать вывод, что в общей сложности выгорает ~ 7 % углерода, а ~ 3 % оставшегося вступает в реакцию с оксидом кремния с образованием карбида кремния. Если учесть, что образец без углерода до 610 °С теряет до 2 % массы, корректно говорить о выгорании 5 % до экзотермического пика при 610 °С и еще в диапазоне температур 610–650 °С

Об этом свидетельствует и эндотермический пик в интервале 630–650 °С, сопровождающийся локальным увеличением плотности (рис. 5, *b*, пик на кривой ДТГ в этом же диапазоне температур). Если учесть, что плотность карбида кремния составляет 3,2 г/см<sup>3</sup>, а фарфора – 2,15–2,36 г/см<sup>3</sup>, то образование SiC является следствием экзотермической реакции образования CO<sub>2</sub> в порах мембранного слоя по механизму, описанному выше.

В [11] установлено, что при спекании алюмосиликатных порошков с размерами частиц менее 5 мкм движущей силой процессов контактообразования является поверхностная энергия, которая определяет достаточно большую усадку. Согласно данным табл. 2, спекание алюмосиликатных порошков, легированных углеродом, в исследуемом диапазоне температур (850–950 °С) сопровождается объемной 4–6%-ной усадкой, а промежуточных слоев без легирования – 10–17%-ной усадкой. При этом пористость мембранных слоев достигает 36–37 %. Следовательно, структурные образования карбида кремния затрудняют усадку и создают условия для формирования достаточно высокой пористости.

Нанесение окунанием суспензии из порошка Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>–SiO<sub>2</sub>–C на предварительно спеченную при температуре 1200–1250 °С крупнопористую алюмосиликатную основу с промежуточным слоем из порошка Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>–SiO<sub>2</sub> приводит к формированию трехслойной структуры с мембранным слоем (рис. 6) без образования трещин.

Сравнение характеристик двуслойных и трехслойных экспериментальных образцов в виде труб диаметром 16 мм, длиной 40–70 и толщиной стенки 4 мм представлено в табл. 4.

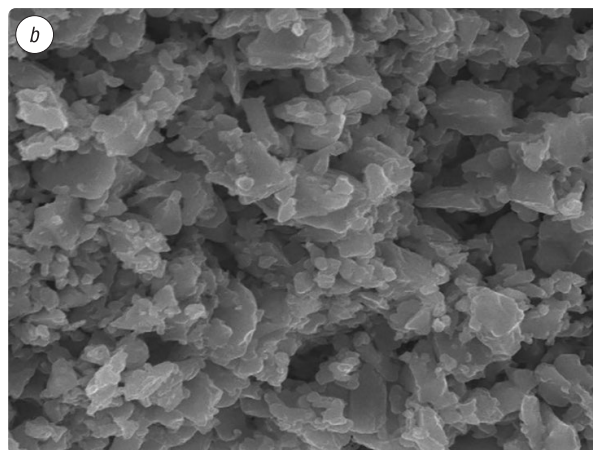
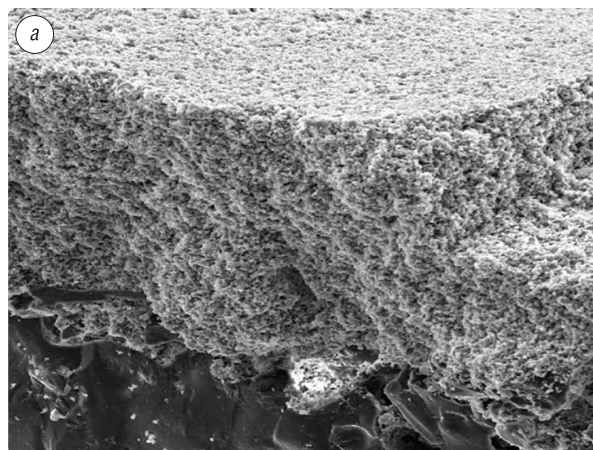


Рис. 6. Излом (*a*) и поверхность (*b*) мембранного слоя из алюмосиликатного порошка, легированного углеродом  
Fig. 6. Fracture (*a*) and surface (*b*) of the aluminosilicate membrane layer from carbon-doped powder

Т а б л и ц а 4. Фильтрующие характеристики образцов

Table 4. Filter characteristics of samples

Характеристика	Трубки	
	дву- слойные	трех- слойные
Максимальный размер пор, мкм	25–30	0,8–1,0
Средний размер пор, мкм	5–8	0,4–0,5
Производительность ( <i>Q</i> )*, м <sup>3</sup> /м <sup>2</sup> ·с	0,07	0,012
Задерживание частиц до 0,5 мкм, %	92	100

\* – по водопроводной воде.



Таблица 5. Характеристики сывотки крови до и после фильтрации алюмосиликатными трубками

Table 5. Characteristics of blood serum before and after filtration with aluminosilicate tubes

Образец	Размер пор, мкм	Оптическая плотность	Объем пропущенной сывотки до забивания фильтра, мл
Сыворотка крови до фильтрации	–	0,518	–
Подложка	15	0,348	> 50
Двуслойный	5–8	0,328	> 50
Трехслойный	0,4–0,5	0,222	20
Millipore	0,22	0,220	3

Из данных, представленных в табл. 4, следует, что двуслойный образец имеет средний размер пор 5–8 мкм, производительность по воде до 0,07 м<sup>3</sup>/(м<sup>2</sup>·с) и степень задерживания частиц до 92 %. Образец с мембранным слоем характеризуется средним размером пор 0,4–0,5 мкм, производительностью по воде 0,012 м<sup>3</sup>/(м<sup>2</sup>·с) и степенью задерживания частиц 100 %.

Результаты осветляющей фильтрации сывотки крови через исследуемые образцы в сравнении с сертифицированным бактерицидным фильтром Millipore (Германия) представлены в табл. 5 и на рис. 7. Эксперименты по тестированию проведены в НИИ экспериментальной ветеринарии им. С. Н. Вышелесского.

Для оценки способности фильтра задерживать микроорганизмы (стерилизующая фильтрация) в качестве физиологического раствора был использован смыв

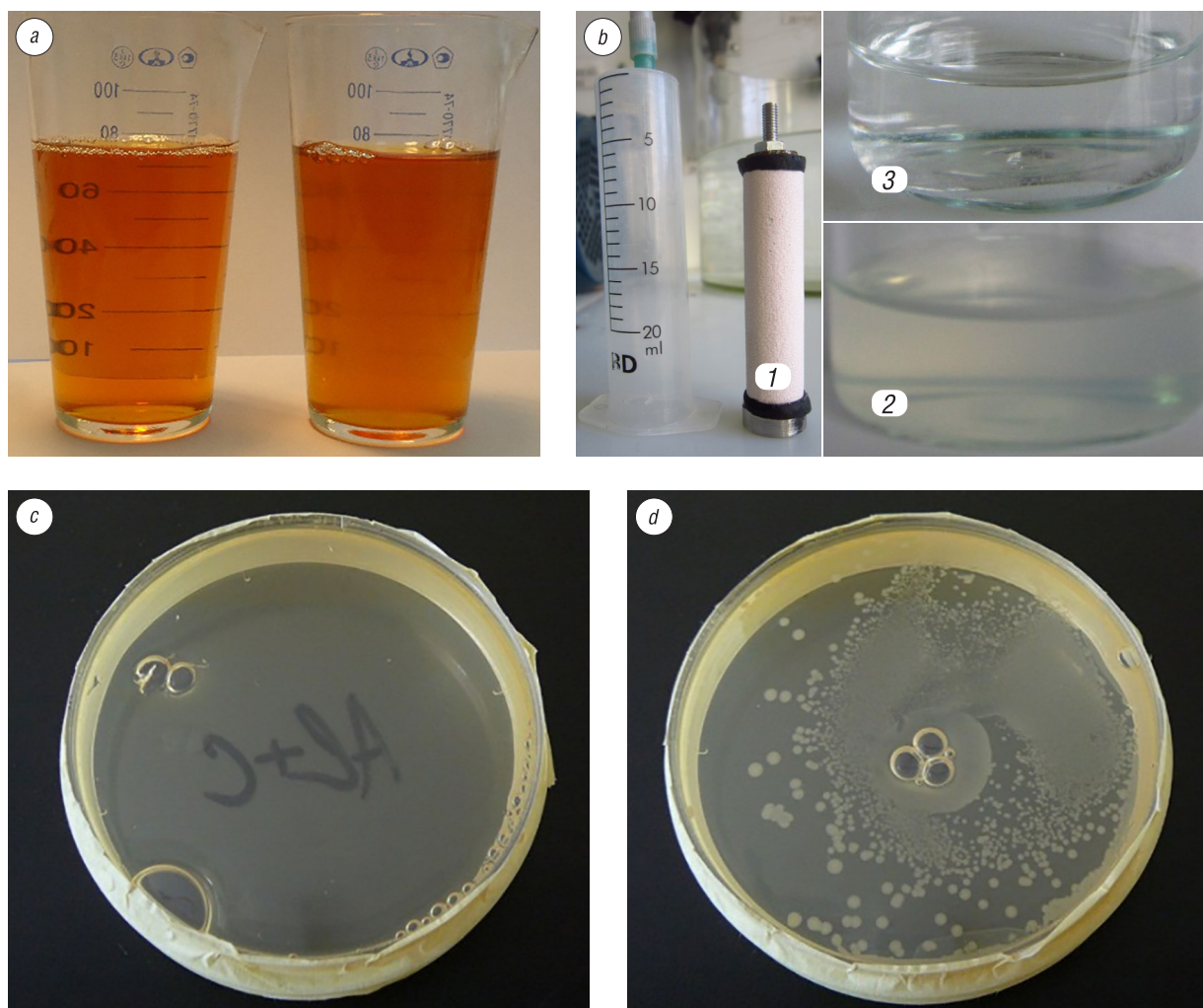


Рис. 7. Биологические жидкости после очистки многослойными трубками: *a* – сывотка крови после трехслойного (слева) и двуслойного (справа) образцов; *b* – трехслойный фильтроэлемент для бактерицидной очистки (1); физиологический раствор до (2) и после (3) фильтрации; рост колоний бактерий в физиологическом растворе после фильтрации двуслойным (*c*) и трехслойным (*d*) образцами

Fig. 7. Biological fluids after cleaning with multilayer tubes: *a* – blood serum after three-layer (left) and two-layer (right) samples; *b* – three-layer filter element for bactericidal cleaning (1); saline solution before (2) and after (3) filtration; growth of bacterial colonies in saline solution after filtration with two-layer (*c*) and three-layer (*d*) samples



24-часовой агаровой культуры бактерий рода *Bacillus*. Бактерии смывали с агара 0,9%-ным раствором NaCl (рН 7,2–7,4). Концентрацию бактериальных клеток в смыве доводили до 1 млрд микробных тел в 1 мл с помощью спектрофотометра Metertech UV/VIS SP 8001, затем осуществляли фильтрацию приготовленной микробной взвеси через трехслойные экспериментальные образцы, конструкция которых представлена на рис. 7, *b* (1). Полученный фильтрат засеивали на плотные питательные среды в объеме 0,1 мл на чашку Петри. Для каждого образца использовали по две чашки. Засеянные чашки помещали в термостат на 24 ч при 36,6 °С, затем проводили подсчет образовавшихся колоний. Чашки, в которых отсутствовал рост, выдерживали в термостате еще 3 сут с последующей проверкой наличия колоний. Результаты экспериментов представлены в табл. 6 и на рис. 7 *c, d*. На рис. 7, *b* приведены вид физиологического раствора до (2) и после (3) стерилизующей фильтрации.

Таблица 6. Оценка стерилизующей способности экспериментальных образцов

Table 6. Evaluation of the sterilizing capacity of experimental samples

Образец	Оптическая плотность		Количество колоний	
	до фильтрации	после фильтрации	1 сут	4 сут
Трехслойный		0,018	Нет	Нет
			--/--	--/--
Двуслойный		0,045	Множественные	--/--
			--/--	--/--
Исходный раствор	0,470		Сплошной рост	

Из представленных результатов следует, что исследуемые трехслойные экспериментальные образцы создают условия для задерживания бактериальных клеток. Установлено, что фильтроэлементы с алюмосиликатными SiC-содержащими мембранными слоями обеспечивают осветление сыворотки крови и стерилизацию физиологического раствора с одновременным увеличением в 1,8–2,5 раза ресурса работы по сравнению с ресурсом работы стерилизующих фильтров Millipore.

Для оценки межрегенерационных периодов (циклограмм) при очистке водопроводной воды использовали экспериментальные образцы трехслойных трубчатых фильтроэлементов диаметром 65 мм и высотой 70 мм. Фильтрация производилась «снаружи–внутри» трубчатого образца, его регенерация – обратным током «изнутри–наружу». Давление при фильтрации и регенерации составляло 0,6 МПа. Регенерацию обратным током осуществляли через определенные промежутки времени. Время регенерации определялось опытным путем и составляло в каждом цикле 25 с.

Результаты экспериментов по регенерации трехслойных образцов сравнивались с результатами по регенерации силикатных двухслойных трубчатых элементов с размером пор 10–20 мкм, традиционно используемых в водоочистке. Сравнение циклограмм позволяет установить, что для трехслойного образца наблюдается практически постоянный фильтроцикл с сохранением производительности, в то время как производительность силикатного фильтроэлемента монотонно убывает. При этом силикатный фильтроэлемент обеспечивает более высокую производительность по сравнению с трехслойным алюмосиликатным.

В то же время наличие мембранного слоя, содержащего карбид кремния, позволяет реализовать качество очистки на уровне стерилизации с возможностью регенерации обратным током. Выявленное преимущество позволит использовать разработанные трехслойные материалы для очистки воды от биологических загрязнений.

**Заключение.** Показана возможность формирования при 950 °С на пористой алюмосиликатной подложке с промежуточным слоем SiC-содержащего мембранного слоя без трещин. Выявлено, что структурные образования карбида кремния затрудняют усадку и создают условия для формирования материала с высокой пористостью ~ 36 %.

Установлено, что предварительная совместная обработка продукта размола фарфорового боя с антрацитом (10 мас.%) в бисерной мельнице (6 ч) приводит к образованию в спеченном при 950 °С материале карбида кремния в количестве 36 %.

Исследованы особенности формирования SiC в процессе спекания мембранных слоев. Выявлено, что основным источником кремния для образования SiC при спекании порошка  $Al_2O_3-SiO_2-C$  является кварц.

Определены структурные и фильтрующие характеристики, полученных трехслойных трубчатых образцов с SiC-содержащим мембранным слоем: размер пор 0,4–0,5 мкм; производительность по воде 0,012 м<sup>3</sup>/(м<sup>2</sup>·с); степень задерживания частиц < 0,5 мкм, в том числе микроорганизмов, – 100 %. При фильтрации воды трехслойные образцы характеризуются практически постоянным фильтроциклом и качеством очистки жидкостей на уровне стерилизации.

### Список использованных источников

1. Мембранные инженерные системы. Микро- и ультрафильтрация [Электронный ресурс]. – Режим доступа: <https://me-system.ru/tehnologii/ultrafiltratsiya>. – Дата доступа: 25.01.2020.
2. Полимерная технология пористой SiC-керамики с использованием измельченных SiO<sub>2</sub>-волокон / Е. П. Симоненко [и др.] // Журн. неорганической химии. – 2018. – Т. 63, № 5. – С. 539–549. <https://doi.org/10.7868/S0044457X18050021>
3. Microstructure and Mechanical Properties of Silicon Carbide Sintered with Yttrium-Aluminum Garnet and Silica / Y. Kim [et al.] // J. Am. Ceram. Soc. – 1999. – Vol. 82, № 2. – P. 441–449. <https://doi.org/10.1111/j.1551-2916.1999.tb20082.x>
4. Зо Е Мо У. Пористая и высокопористая керамика из оксида алюминия и карбида кремния: дис. ... д-ра техн. наук : 05.17.11 / Зо Е Мо У; Рос. хим.-технол. ун-т им. Д. И. Менделеева. – М., 2019. – 253 л.
5. Кхин Маунг Сое. Композиционная керамика на основе карбида кремния с эвтектическими добавками в системах  $Al_2O_3-TiO_2-MnO$ ,  $Al_2O_3-MnO-SiO_2$ ,  $MgO-SiO_2$ ,  $Al_2O_3(MgO)-MgO-SiO_2$ : дис. ... канд. техн. наук : 05.17.11 / Кхин Маунг Сое; Рос. хим.-технол. ун-т им. Д. И. Менделеева. – М., 2019. – 110 л.
6. Investigation of features of phase formation in powders forming the  $Al_2O_3-SiO_2$ ,  $Al_2O_3-SiO_2$  systems at a sintering process [Electronic resource] / Y. Y. Piatsiushyk [et al.] // Euro PM 2017, Congress & Exhibition, 1–5 October, Milan, Italy. – Mode of access: <https://www.epma.com/publications/euro-pm-proceedings/product/ep17-3685391> – Date of access: 15.05.2020.
7. Регулирование открытой пористости и прочности варьированием зернового состава керамики на основе электроплавленного корунда с фарфоровой связкой / А. В. Беляков [и др.] // Новые огнеупоры. – 2016. – № 2. – С. 34–37.
8. Белов, С. В. Пористые проницаемые материалы: справочник / С. В. Белов. – М.: Металлургия, 1987. – 335 с.
9. Королев, Ю. М. Рентгенографические критерии в установлении подобия фазового состава природных и искусственных углеродистых веществ / Ю. М. Королев, Ю. Л. Моисеев, В. Т. Попов // Накопление и преобразование органического вещества современных и ископаемых осадков: сб. науч. ст. – М.: Наука, 1990. – С. 140–145.
10. Preparation of high-porous SiC ceramics from polymeric composites based on diatomite powder / E. P. Simonenko [et al.] // J. Mater. Sci. – 2015. – Vol. 50, № 2. – P. 733–744. <https://doi.org/10.1007/s10853-014-8633-1>
11. Пористая алюмосиликатная керамика / С. М. Азаров [и др.]. – Минск: Ковчег, 2009. – 258 с.

### References

1. *Membrane engineering systems. Micro and ultrafiltration*. Available at: <https://me-system.ru/tehnologii/ultrafiltratsiya> (accessed 25 January 2020) (in Russian).
2. Simonenco E. P., Simonenco N. P., Shembel L. N., Simonov-Emelyanov I. D., Sevostianov W. G., Kusnetzov N. T. Polymer technology of porous SiC ceramics using comminuted SiO<sub>2</sub> fibers. *Russian Journal of Inorganic Chemistry*, 2018, vol. 63, no. 5, pp. 574–582. <https://doi.org/10.1134/s0036023618050030>
3. Kim Y., Kim Y.-W., Mitomo M., Zhan G. D., Lee J. G. Microstructure and Mechanical Properties of Silicon Carbide Sintered with Yttrium-Aluminum Garnet and Silica. *Journal of the American Ceramic Society*, 1999, vol. 82, no. 2, pp. 441–449. <https://doi.org/10.1111/j.1551-2916.1999.tb20082.x>
4. So E Mo U. *Porous and Highly Porous Aluminum Oxide and Silicon Carbide Ceramics*. Moscow, D. Mendeleev University of Chemical Technology of Russia, 2019. 253 sheets (in Russian).
5. Kchin Maung Soe. *Composite Ceramics Based on Silicon Carbide with Eutectic Additives in the Systems  $Al_2O_3-TiO_2-MnO$ ,  $Al_2O_3-MnO-SiO_2$ ,  $MgO-SiO_2$ ,  $Al_2O_3(MgO)-MgO-SiO_2$* . Moscow, D. Mendeleev University of Chemical Technology of Russia, 2019. 110 sheets (in Russian).
6. Piatsiushyk Y. Y., Azarava T. A., Guravleva E. S., Krasochko P. P., Balydko D. N. Investigation of features of phase formation in powders forming the  $Al_2O_3-SiO_2$ ,  $Al_2O_3-SiO_2$  systems at a sintering process. *Euro PM 2017, Congress & Exhibition, 1–5 October, Milan, Italy*. Available at: <https://www.epma.com/publications/euro-pm-proceedings/product/ep17-3685391> (accessed 15 May 2020).
7. Belyakov A. V., So E Mo U, Popova N. A., Ie Aung Min, Shgo Lvin U. Regulation of open porosity and strength by varying the grain size composition of ceramics based on electrofused corundum with a porcelain binder. *Novye огнеупоры = New Refractories*, 2016, no. 2, pp. 34–37 (in Russian).

8. Belov S. V. *Porous Permeable Materials*. Moscow, Metallurgiya Publ., 1987. 335 p. (in Russian).
9. Korolev Y. M., Moiseev Y. L., Popov V. T. X-ray criteria in establishing the similarity of the phase composition of natural and artificial carbonaceous substances. *Nakoplenie i preobrazovanie organicheskogo veshchestva sovremennykh i iskopaemykh osadkov: sbornik nauchnykh statei* [Accumulation and Transformation of Organic Matter in Modern and Fossil Sediments: Collection of Scientific Articles]. Moscow, Nauka Publ., 1990, pp.140–145 (in Russian).
10. Simonenko E. P., Simonenko N. P., Zharkov M. A., Shembel N. L., Simonov-Emel'yanov I. D., Sevastyanov V. G., Kuznetsov N. T. Preparation of high-porous SiC ceramics from polymeric composites based on diatomite powder. *Journal of Materials Science*, 2015, vol. 50, no. 2, pp. 733–744. <https://doi.org/10.1007/s10853-014-8633-1>
11. Azarov S. M., Piatsiushyk E. E., Azarova T. A., Ratko A. I., Reut O. P., Makartshuk D. V. *Porous Aluminosilicate Ceramics*. Minsk, Kovcheg Publ., 2009. 258 p. (in Russian).

### **Информация об авторах**

*Азаров Сергей Михайлович* – доктор технических наук, доцент, профессор кафедры «Технологии и методики преподавания», Белорусский национальный технический университет (пр. Независимости, 65, 220013, Минск, Республика Беларусь). E-mail: [azarov@bntu.by](mailto:azarov@bntu.by)

*Балыдко Денис Николаевич* – исследователь, заведующий сектором ОАО «АГАТ-СИСТЕМ» (ул. Ф. Скорины, 51Б, 220141, Минск, Республика Беларусь). E-mail: [balydka.des@gmail.com](mailto:balydka.des@gmail.com)

### **Information about the authors**

*Siarhei M. Azarau* – D. Sc. (Engineering), Associate Professor, Professor of the Department of Technology and Teaching Methods, Belarusian National Technical University (65, Nezavisimosti Ave., 220013, Minsk, Belarus). E-mail: [azarov@bntu.by](mailto:azarov@bntu.by)

*Denis N. Balydka* – Researcher, Head of the Sector, JSC “AGAT-SISTEM” (51B, F. Scorina Str., 220141, Minsk, Belarus). E-mail: [balydka.des@gmail.com](mailto:balydka.des@gmail.com)