

## 烧结制度对碳化硅微滤膜性能的影响

刘 为<sup>1</sup>, 牛淑锋<sup>2</sup>, 谢 凯<sup>1</sup>, 漆 虹<sup>1</sup>

(1. 材料化学工程国家重点实验室, 南京工业大学膜科学技术研究所, 南京 210009;  
2. 南京翊翌陶瓷纳滤膜有限公司, 翊翌陶瓷膜研究院, 南京 210009)

**摘 要:** 以平均粒径为 0.8  $\mu\text{m}$  的碳化硅为原料、聚甲基丙烯酸铵为分散剂, 采用浸渍提拉法在平均孔径为 1.4  $\mu\text{m}$  的管式碳化硅载体上制备碳化硅微滤膜, 研究了 pH 值和分散剂含量对悬浮液稳定性的影响, 以及烧结温度和烧结气氛(空气、氩气和氮气)对碳化硅微滤膜性能的影响。结果表明: 当 pH=10、分散剂含量为 0.6%(质量分数)时, 可制备得到分散均匀、稳定性好的悬浮液。当烧结气氛为氮气、烧结温度为 1200  $^{\circ}\text{C}$  时, 碳化硅微滤膜的综合性能最优, 其平均孔径为 78 nm, 膜厚约 10  $\mu\text{m}$ , 纯水渗透率为 860  $\text{L}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}\cdot\text{bar}^{-1}$ 。

**关键词:** 碳化硅微滤膜; 悬浮液; 烧结制度; 平均孔径; 纯水渗透率

中图分类号: TQ174; TQ050.4 文献标志码: A 文章编号: 0454-5648(2020)12-0000-08

网络出版时间:

## Effect of Sintering Conditions on Performance of Silicon Carbide Microfiltration Membranes

LIU Wei<sup>1</sup>, NIU Shufeng<sup>2</sup>, XIE Kai<sup>1</sup>, QI Hong<sup>1</sup>

(1. State Key Laboratory of Materials-Oriented Chemical Engineering, Membrane Science and Technology Research Center, Nanjing Tech University, Nanjing 210009, China; 2. Nanjing Hongyi Ceramic Nanofiltration Membranes Co., Ltd. Hongyi Ceramic Membranes Research Institute, Nanjing 210009, China)

**Abstract:** Silicon carbide (SiC) microfiltration membranes were fabricated *via* dip-coating on tubular SiC supports with an average pore size of 1.4  $\mu\text{m}$  with SiC powder (the average particle size of 0.8  $\mu\text{m}$ ) as a raw material and PMAA-NH<sub>4</sub> as a dispersant. The effects of pH value and dispersant amount on the stability of SiC suspensions, as well as the effects of sintering temperature and atmosphere (*i.e.*, Air, Ar and N<sub>2</sub>) on the properties of SiC microfiltration membranes were investigated. The results show that the stable slurry can be obtained when pH value is 10 and PMAA-NH<sub>4</sub> amount is 0.6% (in mass fraction). The SiC microfiltration membrane sintered in N<sub>2</sub> at 1200  $^{\circ}\text{C}$  shows the optimized performance (*i.e.*, the average pore size of 78 nm, the membrane thickness of 10  $\mu\text{m}$  and the pure water permeability of 860  $\text{L}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{h}^{-1}\cdot\text{bar}^{-1}$ ).

**Keywords:** silicon carbide microfiltration membranes; suspension; sintering conditions; average pore size; pure water permeability

随着我国工业化和城市化进程的加快, 工业废水和生活污水排放量日益增加, 废水处理已经成为亟待解决的环境问题。传统的水处理方法主要有沉淀法、生物处理法、臭氧法、光催化法等, 基于膜的处理技术是过去二十年来处理废水的新兴技术之一<sup>[1-2]</sup>。目前, 有机膜和陶瓷膜都可以用于水处理过程<sup>[3]</sup>。其中, 有机膜的商品化程度高, 技术成熟, 已在很多领域得到广泛应用。然而, 其在水处理过

程中易发生溶胀和生物污染, 加上有机材料的热稳定性和化学稳定性较差, 限制了其在苛刻环境中的应用<sup>[4]</sup>。陶瓷膜具有机械强度高、化学稳定性好、对环境友好、易清洗和寿命长等优点, 可应用于生活用水、游泳池水、工业废水和油田废水等水处理领域中<sup>[5-8]</sup>。

多孔 SiC 材料具有机械强度高、化学稳定性好、导热系数高、热膨胀系数低和抗热震性能好等优点,

收稿日期: 2020-04-28。 修订日期: 2020-05-19。

基金项目: 国家自然科学基金项目(21490581); 中国石油化工股份有限公司资助项目(317008-6)。

第一作者: 刘 为(1996—), 男, 硕士研究生。

通信作者: 漆 虹(1974—), 男, 博士, 研究员。

Received date: 2020-04-28. Revised date: 2020-05-19.

First author: LIU Wei(1996-), male, Master candidate.

E-mail: 1716632883@qq.com

Correspondent author: QI Hong(1974-), male, Ph.D., Professor.

E-mail: hqi@njtech.edu.cn

已被广泛应用于柴油机颗粒过滤器<sup>[9]</sup>、高温高压半导体电子设备<sup>[10]</sup>、熔融金属过滤器<sup>[11]</sup>及气固分离<sup>[12-14]</sup>等领域。由于 SiC 颗粒表面存在薄的 SiO<sub>2</sub> 层,产生的 Si-OH 基团增加了材料的亲水性,静态水接触角低至 5°<sup>[15]</sup>,将 SiC 膜应用在水处理过程中通常具有较高的渗透通量。Wit 等<sup>[16]</sup>制备的平均孔径约 1.5 μm 的 SiC 中空纤维膜纯水渗透率高达 50 000 L·m<sup>-2</sup>·h<sup>-1</sup>·bar<sup>-1</sup>; Zsirai 等<sup>[17]</sup>分别用相同孔径的多通道 SiC 和 TiO<sub>2</sub> 微滤/超滤膜过滤油田产水,发现在相同的操作条件下, SiC 膜的稳态通量远高于 TiO<sub>2</sub> 膜。另外, SiC 基质表面荷较强的负电荷,其等电点低至 pH=2.5<sup>[18]</sup>,而应用体系中许多引起污染的杂质同样荷负电,两者之间相互排斥,污染物难以吸附在膜表面<sup>[19]</sup>,使得 SiC 膜具有优异的抗污染能力。Hofs 等<sup>[20]</sup>比较了 Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、TiO<sub>2</sub>、ZrO<sub>2</sub>、SiC 及 PES/PVP 聚合物膜的抗可逆/不可逆污染的能力以及对污染物的去除率,发现 SiC 膜抗可逆/不可逆污染的能力最强,同时其对污染物的去除率与其它膜相当。上述 SiC 膜所具有的亲水性好、通量高以及抗污染能力强等优于传统氧化物(Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、TiO<sub>2</sub>、ZrO<sub>2</sub>)膜的特点,使其在水处理体系中具有广阔的应用前景。

目前, SiC 微滤膜(孔径>50 nm)的制备方法主要是固态粒子烧结法,即将 SiC 粉体颗粒在介质中通过搅拌、超声或加入适当表面活性剂的方法分散形成稳定的悬浮浆料,采用浸浆法或喷涂法涂覆在大孔载体表面,经干燥及高温烧结后得到 SiC 微滤膜<sup>[21]</sup>。该方法操作简单,是传统的制备陶瓷微滤膜的方法,可用于 SiC 微滤膜的规模化制备。其中 SiC 微滤膜的烧结方式主要有以下 2 种:一是采用惰性气体保护在高温下烧结。Wit 等<sup>[16]</sup>在 2 050 °C 氮气或氩气气氛中烧结得到平均孔径约 1.5 μm 的 SiC 中空纤维膜; Li 等<sup>[22]</sup>在 1 850 °C 真空气氛下烧结得到平均孔径为 500 nm、纯水渗透率为 2 650 L·m<sup>-2</sup>·h<sup>-1</sup>·bar<sup>-1</sup> 的纯 SiC 微滤膜; Eray 等<sup>[21]</sup>在 1 500~1 900 °C 氩气气氛下烧结得到平均孔径约 440 nm 的纯 SiC 微滤膜。

上述 SiC 微滤膜具有较好的化学稳定性和热稳定性,但均在高温的真空气氛或惰性气氛下烧结,属于重结晶 SiC 微滤膜,制备成本高,工业化难度大。另一种是在低于 1 500 °C 的温度下烧结。如郁苏俊等<sup>[23]</sup>在 1 400 °C 先空气后氩气气氛下烧结得到综合性能较好的多孔 SiC 载体。Bukhari 等<sup>[24]</sup>在 1 100 °C 空气气氛中烧结得到平均孔径为 93 nm、纯水渗透率为 210 L·m<sup>-2</sup>·h<sup>-1</sup>·bar<sup>-1</sup> 的 SiC 微滤膜,并且发现不同的热处理条件会直接影响 SiC 颗粒的氧化过程,进而影响 SiC 微滤膜的孔结构以及膜的渗透性能。以上研究表明,烧结制度的改变在很大程度上会影响膜的微观结构及渗透性能。由于重结晶 SiC 微滤膜的制备难度较大,如何在较低温度下实现高性能 SiC 微滤膜的制备,目前缺乏系统的研究。

以平均孔径为 1.4 μm 的管式 SiC 多孔陶瓷为载体,采用浸渍提拉法在其内表面涂膜,然后在不同的气氛中以较低的温度烧结得到 SiC 微滤膜,系统研究了亚微米 SiC 悬浮液的稳定性及成膜性能,以及烧结制度对 SiC 微滤膜性能的影响。

## 1 实验

### 1.1 样品制备

第 1 组悬浮液:称取 10 g 亚微米 SiC 粉( $D_{50}=0.8 \mu\text{m}$ ),加入到 90 g 去离子水中,滴加 0.06 g 分散剂(聚甲基丙烯酸铵, PMAA-NH<sub>4</sub>),然后加入硝酸或氨水分别调节悬浮液的 pH 至 3、5、7、9、10、11 和 12,磁力搅拌 6 h 后,分别取 25 mL 悬浮液于试管中,静置于试管架上,观察沉降情况并测定沉降高度。第 2 组悬浮液:基本步骤同第 1 组,不同之处为滴加不同含量(与 SiC 粉体的质量比分别为 0、0.2%、0.4%、0.6%、0.8%和 1.0%)的 PMAA-NH<sub>4</sub>,用氨水调节 pH 至 10。

选择最优的 pH 值和分散剂含量制备 SiC 悬浮液,经超声处理后,加入 20 g 聚乙烯醇(PVA)水溶液并剧烈搅拌,制得分散均匀、稳定性好的涂膜液,其中 SiC 粉体、去离子水和聚乙烯醇水溶液的质量比

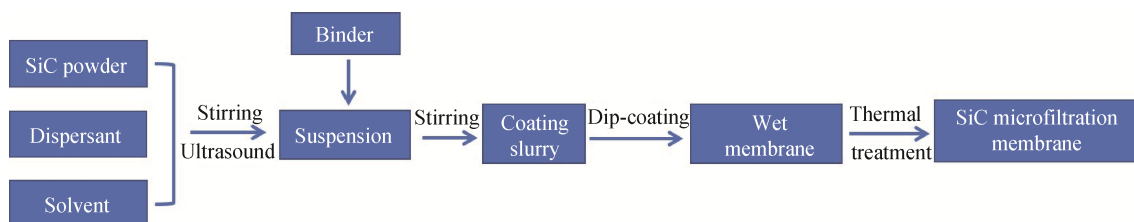


图 1 SiC 微滤膜制备流程示意图

Fig. 1 Schematic diagram of fabrication process of SiC micro filtration membranes

为 1:7:2。采用浸渍提拉法,保持提拉速率为 0.5 cm/s,浸浆时间为 90 s,将涂膜液涂覆在平均孔径为 1.4  $\mu\text{m}$  的管式 SiC 载体(实验室自制,内外径分别为 8 mm 和 12.8 mm)内表面。在 40  $^{\circ}\text{C}$  烘箱中干燥 24 h 后,放入气氛炉中以 3  $^{\circ}\text{C}/\text{min}$  升温至 900~1 200  $^{\circ}\text{C}$ ,烧结气氛分别为空气、氩气和氮气,保温 1 h,待样品降至室温后取出。具体制备过程如图 1 所示。

## 1.2 样品表征

使用 Mastersizer 3000 型激光粒度分析仪测定粉体的粒径分布。用 Zetasizer Nano ZS90 型纳米粒度及 Zeta 电位仪测定 SiC 悬浮液在不同 pH 下的 Zeta 电位。通过沉降高度表征悬浮液的稳定性。用 PSDA-20 型孔径分析仪测定膜层的平均孔径。用 S4800 型场发射扫描电镜表征膜层的微观形貌及膜表面的元素含量。用 D8 ADVANCE 型 X 射线衍射仪(XRD)分析物相组成,扫描速率为 5( $^{\circ}$ )/min,扫描范围 5 $^{\circ}$ ~80 $^{\circ}$ 。使用实验室自制的管式膜错流过滤装置<sup>[25]</sup>测定 SiC 微滤膜的纯水渗透率,操作温度为 20  $^{\circ}\text{C}$ ,膜面流速为 1.3 m/s,操作压力为 1 bar。

## 2 结果与讨论

### 2.1 pH 值及分散剂含量对悬浮液稳定性的影响

图 2 为 SiC 粉体在不同 pH 下的 Zeta 电位图。由图 2 可知, SiC 粉体的等电点约为 pH=3.9,在 pH=2.5~4.0 之间,与文献[20]报道一致。pH 大于 3.9 时,随着 pH 值增大,Zeta 电位绝对值逐渐增大,当 pH=11 时,达到最大值 62.5 mV。此时, SiC 颗

粒表面的双电层厚度增大,颗粒间的静电排斥力增加,悬浮液的分散性较好;pH 继续增大,溶液中的离子浓度过大,颗粒的双电层被压缩,导致 Zeta 电位绝对值降低,颗粒在范德华力的作用下发生团聚现象,悬浮液的分散性变差<sup>[26]</sup>。

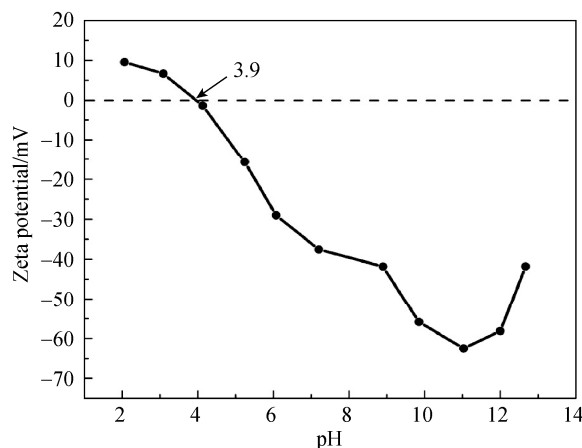
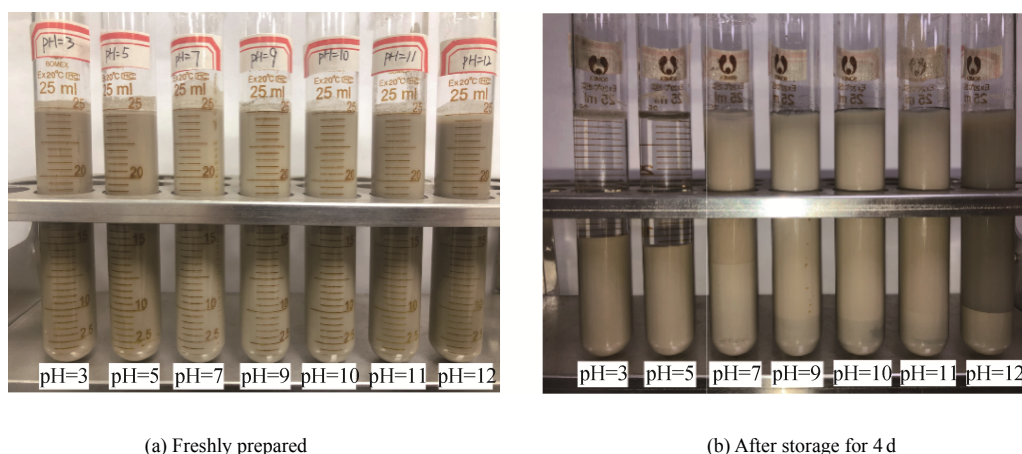


图 2 SiC 粉体的 Zeta 电位和 pH 关系曲线

Fig. 2 zeta potential of SiC powders as a function of pH

图 3 为不同 pH 下 SiC 悬浮液静置 4 d 前后的光学照片。由图 3b 可知, pH=3、5、12 的悬浮液沉降速度快,沉降 4 d 后分层现象明显,颗粒间形成了较多的团聚体,稳定性较差。pH=7、9、10、11 的悬浮液沉降 4 d 后的沉降高度分别为 3.85、1.9、1.7 和 2 cm(试管中悬浮液的总高度为 9.6 cm)。当 pH=10 时,沉降高度最小,此时分散效果较好,与图 2 中 pH=11 左右 Zeta 电位绝对值较大相一致。



(a) Freshly prepared

(b) After storage for 4 d

图 3 不同 pH 下 SiC 悬浮液的光学照片

Fig. 3 Optical photographs of SiC suspensions with different pH value

图 4 为 pH=10、不同分散剂含量下悬浮液沉降 1 d 后的沉降高度。由图 4 可知,随着分散剂含量的

增加,悬浮液的沉降高度呈现先减小后增大的趋势。当分散剂含量为 0.6% 时,悬浮液沉降高度最小,此



时悬浮液稳定性最好。

### 2.2 烧结制度对 SiC 微滤膜微观形貌的影响

采用 pH=10、分散剂含量为 0.6%条件下制备的涂膜液在管式 SiC 载体上涂膜，在空气气氛中不同温度下烧结得到的 SiC 微滤膜的 SEM 照片如图 5 所示。由图 5 可知，当烧结温度为 900 °C 时，SiC 颗粒呈不规则形状，棱角分明。随着烧结温度由 900 °C 增加到 1 200 °C，SiC 颗粒逐渐增大。当烧结温度为 1 200 °C 时，颗粒表面光滑度提高，颗粒间颈部连接增加。这是因为小颗粒相较于大颗粒更易被氧化，这些高度氧化的小颗粒表面存在较多无定形 SiO<sub>2</sub> 相，熔融 SiO<sub>2</sub> 相的存在促进了颗粒间的相互连接，并且其流动性使颗粒表面光滑度提高。

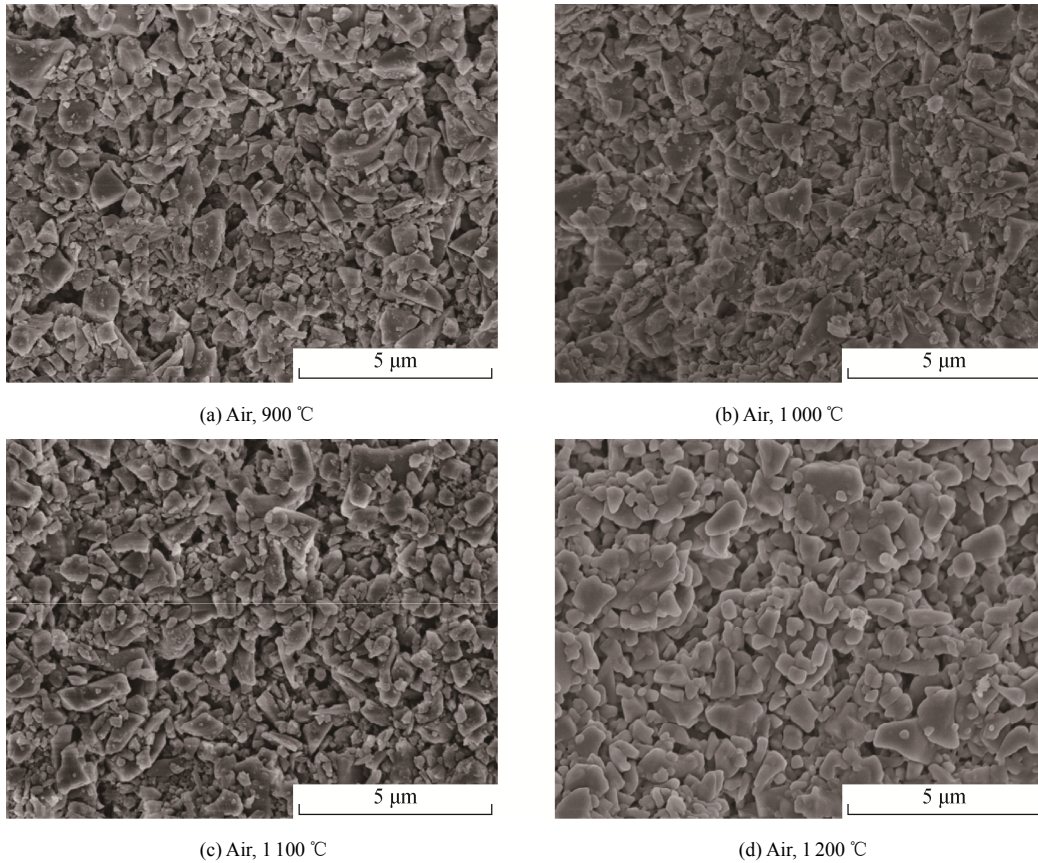
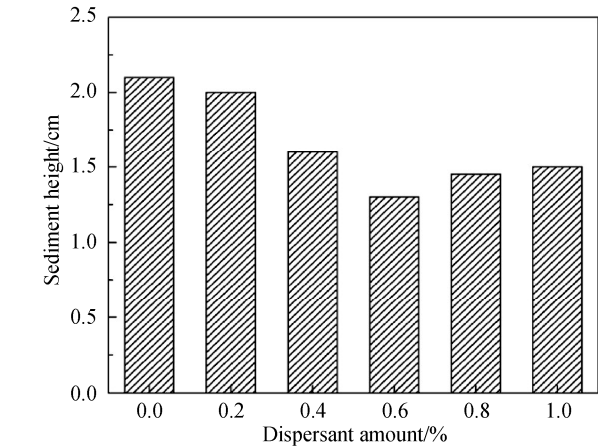


图 5 空气气氛中不同温度下烧结得到的 SiC 微滤膜的 SEM 照片

Fig. 5 SEM photographs of SiC microfiltration membranes sintered at different temperatures in air

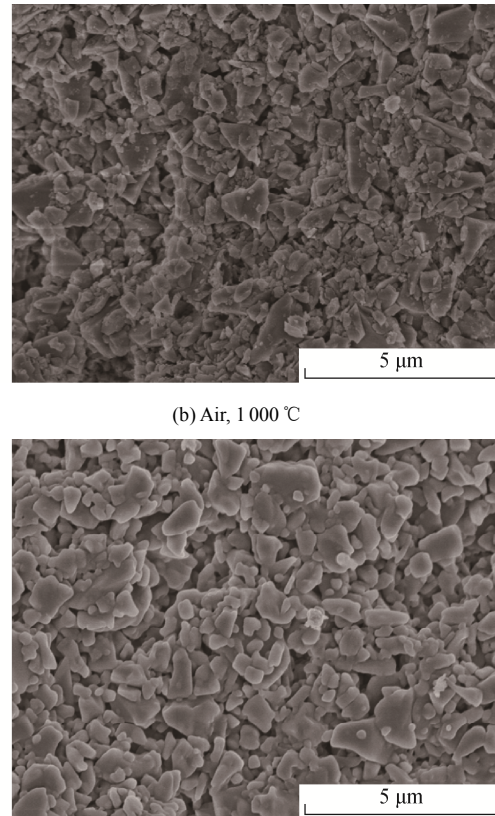
图 6 为在不同气氛下 1 200 °C 烧结的 SiC 微滤膜的 SEM 照片。由图 6a~图 6c 可以看出，不同气氛下制备的膜层表面均完整无缺陷，膜层可有效覆盖载体表面。由图 6a~图 6c 中局部放大的 SEM 照片可以看出，SiC 颗粒相互堆积成孔，相较于氩气和氮气气氛，空气气氛下烧结制备的膜层，颗粒表面更光滑，颗粒间堆积紧密，膜层较致密，孔隙率



pH=10.

图 4 SiC 悬浮液的沉降高度与分散剂加入量关系曲线

Fig. 4 Sediment height of SiC suspensions as a function of doping amount of dispersant



较低。由图 6d 断面 SEM 照片可以看出，膜层与载体分层明显，基本无内渗，膜层厚度约 10 μm。在 1 200 °C 不同气氛下烧结的 SiC 微滤膜的光学照片如图 7 所示。由图 7 可知，在空气气氛中烧结的 SiC 微滤膜表面被氧化呈灰白色，而在氮气和氩气气氛中烧结的 SiC 微滤膜未发生氧化反应，表面呈与 SiC 载体相同的深灰色。

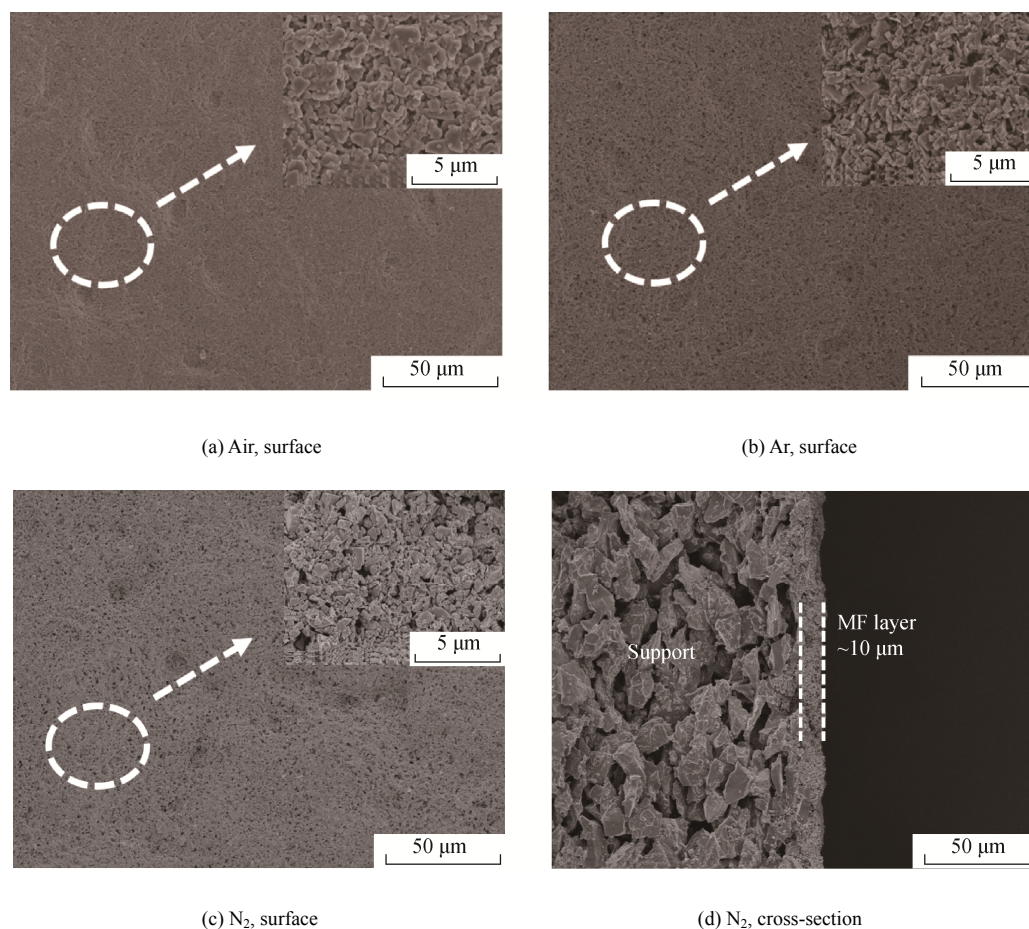


图 6 不同气氛下烧结的 SiC 微滤膜的 SEM 照片  
 Fig. 6 SEM photographs of SiC microfiltration membranes sintered in different atmospheres

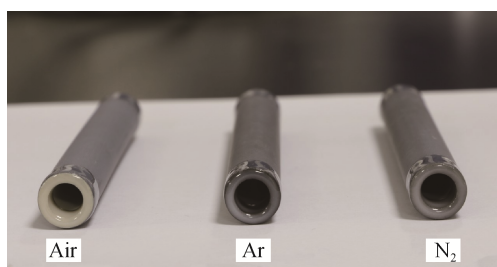


图 7 不同气氛下烧结的 SiC 微滤膜的光学照片  
 Fig. 7 Optical photograph of SiC microfiltration membranes sintered in different atmospheres

### 2.3 烧结制度对 SiC 微滤膜孔径和纯水通量的影响

不同烧结制度下制备的 SiC 微滤膜的平均孔径如图 8 所示。由图 8 可知，在空气气氛中，随着烧结温度从 900 °C 上升至 1 200 °C，SiC 微滤膜的平均孔径从 95 nm 逐渐下降到 60 nm。采用 XRD 表征了 SiC 粉体在不同烧结温度和气氛下的物相组成，如图 9 所示。图 9b 中， $2\theta=22^\circ$ 附近出现的宽峰表明，在空气气氛中当烧结温度小于 1 200 °C 时，SiO<sub>2</sub> 以无定形相存在；结合图 9a 可知，随着

温度由 900 °C 升高至 1 200 °C，无定形 SiO<sub>2</sub> 峰强度增加，SiC 峰强度下降。说明 SiC 颗粒在空气中的氧化程度逐渐增强，颗粒表面的 SiO<sub>2</sub> 层厚度增加，而无定形 SiO<sub>2</sub> 相的密度较 SiC 低，颗粒体积膨胀，占据了原本 SiC 颗粒间的缝隙，致使膜层

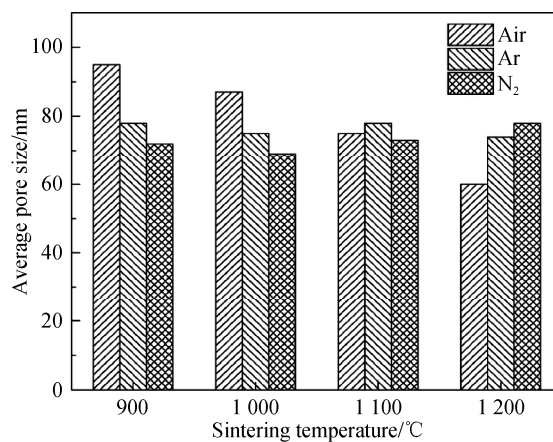


图 8 不同烧结温度和气氛下制备的 SiC 微滤膜的平均孔径  
 Fig. 8 Average pore size of SiC microfiltration membranes sintered at different temperatures and atmospheres



的平均孔径逐渐减小。当烧结气氛为氩气或氮气时，随着烧结温度从 900 °C 上升至 1 200 °C，膜层的平均孔径均维持在 75 nm 左右。由图 9c、9d 可知，在氩气和氮气气氛中，随着温度的升高， $2\theta=22^\circ$ 附近均未出现明显的宽峰，表明样品中无 SiO<sub>2</sub> 相或 SiO<sub>2</sub> 相含量低于仪器的检测下限；随着温度的升高，SiC 峰强度没有明显变化，表明在惰

性和中性气氛下 SiC 颗粒比较稳定，物相组成未发生明显变化。而 Si-C 共价键需要 2 000 °C 左右的高温才能使 SiC 颗粒自身发生蒸发凝聚从而发生微观结构的改变<sup>[27]</sup>。在 900~1 200 °C 范围内，SiC 颗粒未发生蒸发凝聚，颗粒间相互堆积成孔，随着烧结温度的升高，物相组成和微观结构未发生明显变化，因此平均孔径基本保持不变。

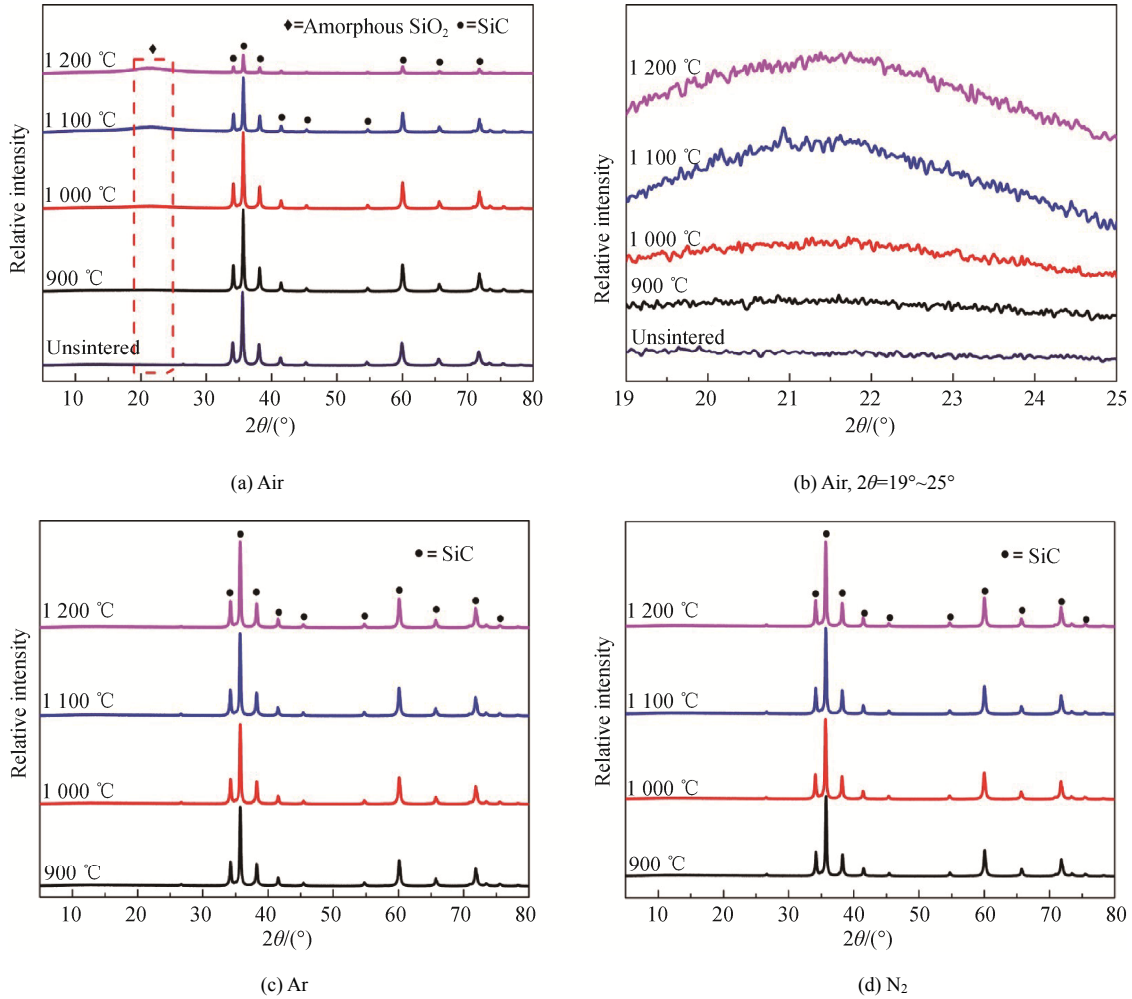


图 9 SiC 粉体的 XRD 谱  
Fig. 9 XRD patterns of SiC powders

图 10 为不同烧结温度和气氛下制备的 SiC 微滤膜的纯水渗透率。从图 10 可以看出，随着烧结温度从 900 °C 上升到 1 200 °C，当烧结气氛为空气时，SiC 微滤膜的纯水渗透率由 676 L·m<sup>-2</sup>·h<sup>-1</sup>·bar<sup>-1</sup> 逐渐下降至 124 L·m<sup>-2</sup>·h<sup>-1</sup>·bar<sup>-1</sup>；当烧结气氛为氩气时，膜的纯水渗透率几乎保持不变，维持在 630 L·m<sup>-2</sup>·h<sup>-1</sup>·bar<sup>-1</sup> 左右；而烧结气氛为氮气时，膜的纯水渗透率由 680 L·m<sup>-2</sup>·h<sup>-1</sup>·bar<sup>-1</sup> 逐渐上升至 860 L·m<sup>-2</sup>·h<sup>-1</sup>·bar<sup>-1</sup>。这是由于在空气气氛中，SiC 颗粒氧化生成 SiO<sub>2</sub> 使得颗粒体积膨胀，占据了原本颗粒间的缝隙，膜层的孔隙率和孔径均减小，导致纯

水渗透率下降；而在氮气气氛中，虽然未发生氧化行为，但膜层中的残余碳在高温下逐渐分解，释放了小部分孔隙，使得膜层孔隙率变大，纯水渗透率上升。

在相同的烧结温度下，SiC 微滤膜的平均孔径与纯水渗透率之间的关系与烧结气氛密切相关。当烧结温度为 900 °C 时，3 种烧结气氛下制得的 SiC 微滤膜的平均孔径  $d(\text{air}) > d(\text{Ar}) \approx d(\text{N}_2)$ ，而纯水渗透率却是  $J(\text{air}) \approx J(\text{Ar}) \approx J(\text{N}_2)$ 。这是因为当烧结气氛为空气时，颗粒氧化变大，大颗粒间相互堆积形成较大的孔，而氩气气氛和氮气气氛下颗粒没有发生氧

化反应仍保持原来的状态, 平均孔径  $d(\text{air}) > d(\text{Ar}) \approx d(\text{N}_2)$ ; 另一方面, 空气气氛下颗粒的氧化膨胀会导致膜层孔隙率的减小, 渗透阻力增大, 因此纯水渗透率  $J(\text{air}) \approx J(\text{Ar}) \approx J(\text{N}_2)$ 。当烧结温度为 1 000 °C 时, 虽然 SiC 微滤膜的平均孔径  $d(\text{air}) > d(\text{Ar}) \approx d(\text{N}_2)$ , 但是在空气气氛中烧结时, SiC 颗粒急剧氧化, 颗粒间发生反应烧结, 膜层逐渐致密化, 膜层中存在较多的闭孔, 孔隙率急剧下降, 导致纯水渗透率  $J(\text{air}) < J(\text{Ar}) < J(\text{N}_2)$ 。当烧结温度为 1 100 °C 和 1 200 °C 时, 在空气气氛中烧结得到的 SiC 微滤膜的平均孔径略小于或等于在氩气气氛和氮气气氛下烧结得到的 SiC 微滤膜, 在孔径和孔隙率的共同作用下, 纯水渗透率  $J(\text{air}) \ll J(\text{Ar}) < J(\text{N}_2)$ 。

表 1 为 SiC 微滤膜的平均孔径以及纯水渗透率与文献<sup>[24, 28-31]</sup>中的对比。从表 1 可以看出, 相同孔径下本工作制备的 SiC 微滤膜具有较高的纯水渗透率。

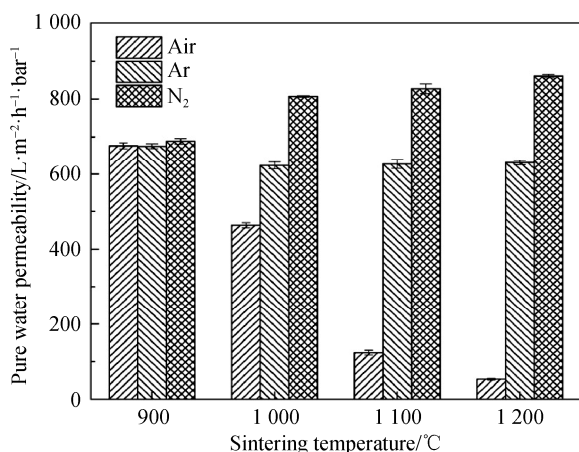


图 10 不同烧结温度和气氛下制备的 SiC 微滤膜的纯水渗透率

Fig. 10 Pure water permeability of SiC microfiltration membranes sintered at different temperatures and atmospheres

表 1 陶瓷微滤膜的平均孔径和纯水渗透率

Table 1 Average pore size and pure water permeability of ceramic microfiltration membranes

Membrane materials	Average pore size/nm	Pure water permeability / (L·m <sup>-2</sup> ·h <sup>-1</sup> ·bar <sup>-1</sup> )	Reference
SiC	93	210	[24]
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	270	441	[28]
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	180	1 000	[29]
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	100	645	[30]
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	100	450	[31]
SiC	78	860	This work

### 3 结论

以亚微米级的 SiC 为原料, 添加分散剂和粘结

剂制备 SiC 悬浮液。当 pH=10、分散剂加入量为 0.6% 时, 制备得到分散均匀、稳定性好的 SiC 悬浮液。将此悬浮液涂覆在管式 SiC 载体内表面, 经干燥烧结后得到 SiC 微滤膜。

烧结温度和气氛的改变会影响 SiC 微滤膜的微观结构和渗透性能。当烧结气氛为氮气、烧结温度为 1 200 °C 时, SiC 微滤膜的膜厚约 10 μm, 平均孔径为 78 nm, 纯水渗透率为 860 L·m<sup>-2</sup>·h<sup>-1</sup>·bar<sup>-1</sup>。

#### 参考文献:

- [1] IGUNNU E T, CHEN G Z. Produced water treatment technologies[J]. Int J Low Carbon Technol, 2014, 9(3): 157-177.
- [2] PENDERGAST M M, HOEK E M V. A review of water treatment membrane nanotechnologies[J]. Energy Environ Sci, 2011, 4(6): 1946-1971.
- [3] LEE A, ELAM J W, DARLING S B. Membrane materials for water purification: design, development, and application[J]. Environ Sci: Water Res Technol, 2016, 2(1): 17-42.
- [4] LALIA B S, KOCHKODAN V, HASHAIKEH R, et al. A review on membrane fabrication: Structure, properties and performance relationship[J]. Desalination, 2013, 326: 77-95.
- [5] SAMAEI S M, GATO-TRINIDAD S, ALTAEE A. The application of pressure-driven ceramic membrane technology for the treatment of industrial wastewaters - A review[J]. Sep Purif Technol, 2018, 200: 198-220.
- [6] CHEN M, ZHU L, CHEN J, et al. Spinel-based ceramic membranes coupling solid sludge recycling with oily wastewater treatment[J]. Water Res, 2020, 169: 115180-115189.
- [7] MOUYA M, ABOURRICHE A, BOUAZIZI A, et al. Flat ceramic microfiltration membrane based on natural clay and Moroccan phosphate for desalination and industrial wastewater treatment[J]. Desalination, 2018, 427: 42-50.
- [8] ZSIRAI T, QIBLAWEY H, BUZATU P, et al. Cleaning of ceramic membranes for produced water filtration[J]. J Petrol Sci Eng, 2018, 166: 283-289.
- [9] ADLER J. Ceramic Diesel Particulate Filters[J]. Int J Appl Ceram Technol, 2005, 2(6): 429-439.
- [10] AGRAFOTIS C C, MAVROIDIS I, KONSTANDOPOULOS A G, et al. Evaluation of porous silicon carbide monolithic honeycombs as volumetric receivers/collectors of concentrated solar radiation[J]. Sol Energy Mater Sol Cells, 2007, 91(6): 474-488.
- [11] TASLICKUR Z, BALABAN C, KUSKONMAZ N. Production of ceramic foam filters for molten metal filtration using expanded polystyrene[J]. J Eur Ceram Soc, 2007, 27(2): 637-640.
- [12] YANG Y, XU W, ZHANG F, et al. Preparation of highly stable porous SiC membrane supports with enhanced air purification performance by recycling NaA zeolite residue[J]. J Membr Sci, 2017, 541: 500-509.
- [13] YANG Y, HAN F, XU W, et al. Low-temperature sintering of porous silicon carbide ceramic support with SDBS as sintering aid[J]. Ceram Int, 2017, 43(3): 3377-3383.
- [14] HAN F, ZHONG Z, YANG Y, et al. High gas permeability of SiC porous ceramics reinforced by mullite fibers[J]. J Eur Ceram Soc, 2016, 36(16): 3909-3917.
- [15] LEE B J, ZHANG Z, BAEK S, et al. Bio-inspired dewetted surfaces

- based on SiC/Si interlocked structures for enhanced-underwater stability and regenerative-drag reduction capability[J]. *Sci Rep*, 2016, 6: 24653–24663.
- [16] DE WIT P, KAPPERT E J, LOHAUS T, et al. Highly permeable and mechanically robust silicon carbide hollow fiber membranes[J]. *J Membr Sci*, 2015, 475: 480–487.
- [17] ZSIRAI T, AL-JAML A K, QIBLAWEY H, et al. Ceramic membrane filtration of produced water: Impact of membrane module[J]. *Sep Purif Technol*, 2016, 165: 214–221.
- [18] ZHANG T, ZHANG Z, ZHANG J, et al. Preparation of SiC ceramics by aqueous gelcasting and pressureless sintering[J]. *Mater Sci Eng: A*, 2007, 443(1): 257–261.
- [19] SKIBINSKI B, MILLER P, UHL W. Rejection of submicron sized particles from swimming pool water by a monolithic SiC microfiltration membrane: Relevance of steric and electrostatic interactions[J]. *J Membr Sci*, 2016, 499: 92–104.
- [20] HOFBS B, OGIER J, VRIES D, et al. Comparison of ceramic and polymeric membrane permeability and fouling using surface water[J]. *Sep Purif Technol*, 2011, 79(3): 365–374.
- [21] ERAY E, BOFFA V, JRGENSEN M K, et al. Enhanced fabrication of silicon carbide membranes for wastewater treatment: From laboratory to industrial scale[J]. *J Membr Sci*, 2020, 606: 118080.
- [22] LI S, WEI C, ZHOU L, et al. Tuning microstructures and separation behaviors of pure silicon carbide membranes[J]. *Ceram Int*, 2019, 45(15): 18788–18794.
- [23] 郁苏俊, 谢凯, 漆虹. 烧成氛围对多孔碳化硅支撑体耐碱性能的影响[J]. *硅酸盐学报*, 2019, 47(12): 1–8.
- YU Sujun, XIE Kai, QI Hong. *J Chin Ceram Soc*, 2019, 47(12): 1–8.
- [24] BUKHARI S Z A, HA J H, LEE J, et al. Oxidation-bonded SiC membrane for microfiltration[J]. *J Eur Ceram Soc*, 2018, 38(4): 1711–1719.
- [25] 王晨颖, 汪菊, 漆虹. 多巴胺接枝的 GO-Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 膜对 Na<sup>+</sup>/Mg<sup>2+</sup> 的分离性能[J]. *膜科学与技术*, 2018, 38(05): 55–61+83.
- WANG Chenying, WANG Ju, QI Hong. *Membrane Science and Technology (in chinese)*, 2018, 38(5): 55–61+83.
- [26] FALLAH-ARANI H, ISAFI S, TABRIZIAN P, et al. A novel gel-cast SiC with potential application in turbine hot section: Investigation of the rheological behavior and mechanical properties[J]. *Ceram Int*, 2019, 45(13): 15996–16001.
- [27] WANG F, YAO D, XIA Y, et al. Porous SiC ceramics prepared via freeze-casting and solid state sintering[J]. *Ceram Int*, 2016, 42(3): 4526–4531.
- [28] QIN W, GUAN K, LEI B, et al. One-step coating and characterization of  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> microfiltration membrane[J]. *J Membr Sci*, 2015, 490: 160–168.
- [29] ZHU J, FAN Y, XU N. Modified dip-coating method for preparation of pinhole-free ceramic membranes[J]. *J Membr Sci*, 2011, 367(1–2): 14–20.
- [30] ZOU D, KE X, QIU M, et al. Design and fabrication of whisker hybrid ceramic membranes with narrow pore size distribution and high permeability via co-sintering process[J]. *Ceram Int*, 2018, 44(17): 21159–21169.
- [31] ZOU D, QIU M, CHEN X, et al. One step co-sintering process for low-cost fly ash based ceramic microfiltration membrane in oil-in-water emulsion treatment[J]. *Sep Purif Technol*, 2019, 210: 511–520.