

(19)



**Евразийское
патентное
ведомство**

(11) **034118**(13) **B1**(12) **ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ЕВРАЗИЙСКОМУ ПАТЕНТУ**

(45) Дата публикации и выдачи патента
2019.12.30

(21) Номер заявки
201890541

(22) Дата подачи заявки
2016.08.24

(51) Int. Cl. **C04B 35/573** (2006.01)
B01J 35/04 (2006.01)
C04B 41/50 (2006.01)
F01N 3/022 (2006.01)
F23J 15/02 (2006.01)
B01D 46/24 (2006.01)

(54) СПОСОБ ПОЛУЧЕНИЯ ПРОДУКТА НА ОСНОВЕ ПОРИСТОГО КАРБИДА КРЕМНИЯ(31) **15182296.2**(32) **2015.08.25**(33) **EP**(43) **2018.07.31**(86) **PCT/DK2016/050285**(87) **WO 2017/032382 2017.03.02**

(71)(73) Заявитель и патентовладелец:
**СЮДАНСК УНИВЕРСИТЕТ;
ДИНЕКС А/С (DK)**

(72) Изобретатель:
**Хвам Жанетт, Варнер Теренс Эдвин
(DK), Вольфф Томас (DE)**

(74) Представитель:
Носырева Е.Л. (RU)

(56) JP-A-2010105861
US-A1-2014311111
DE-A1-102013005390
WO-A1-2011027083
JP-A-2004189576
US-B1-7658781

Drammensveien et al.: "Elkem AS Silicon Materials Product Data Sheet Silgrain® xF6DA; HQ MicronCut", 1 December 2015 (2015-12-01), page 30, XP055312944, Retrieved from the Internet: URL: <https://www.elkem.com/documents/esm/product-sheets/silicon/silgrain-microncut.pdf> [retrieved on 2016-10-21], the whole document

HVAM JEANETTE ET AL.: "The effect of trace amounts of copper on the microstructure, stability and oxidation of macroporous silicon carbide", JOURNAL OF THE EUROPEAN CERAMIC SOCIETY, ELSEVIER SCIENCE PUBLISHERS, BARKING, ESSEX, GB, vol. 36, no. 14, 11 March 2016 (2016-03-11), pages 3279-3284, XP029622590, ISSN: 0955-2219, DOI: 10.1016/J.JEURCERAMSOC.2016.02.054, page 3283, last paragraph; table 1

US-A1-2007032370

(57) Изобретение относится к способу получения продукта на основе пористого карбида кремния, включающему следующие этапы: получение смеси, содержащей кремний, углерод, по меньшей мере одно обеспечивающее образование силицида и образование карбида средство, содержащее Al, и по меньшей мере одно обеспечивающее образование сплава средство, представляющее собой Cu; получение монолитной структуры посредством экструзии или посредством приложения давления по отношению к указанной смеси; применение нагревания по отношению к указанной монолитной структуре, включающее осуществление пиролиза указанной полученной монолитной структуры в контролируемой атмосфере при температуре от 700 до 1000°C в течение периода от 1 до 24 ч; при этом после осуществления указанного пиролиза указанное по меньшей мере одно обеспечивающее образование сплава средство присутствует в концентрации от 0,1 до 0,9 ат.%.

B1**034118****034118 B1**

Область техники изобретения

Настоящее изобретение относится к способу получения продукта на основе пористого карбида кремния.

Уровень техники изобретения

Материалы на основе SiC используют во множестве различных применений, в частности, где необходимы высокая стабильность при высокой температуре или высокая стойкость к коррозии. Высокопористую, облегченную по весу керамику на основе SiC все чаще используют в качестве подложек для катализаторов и в качестве фильтрующих материалов для очистки отходящих газов при высокой температуре.

В частности, фильтры используют, например, для снижения доли сажи в отходящем газе дизельного двигателя.

Фильтры также могут быть покрыты катализатором как для способствования сгоранию сажи и окислению остаточных углеводородов и монооксида углерода, так и для селективного каталитического восстановления (SCR) для восстановления NO_x .

Фильтры могут находиться в форме монолитов с проточными стенками.

Керамические монолиты с проточными стенками являются наиболее распространенным типом носителя фильтра для дизеля. Среди других конструкций фильтров для дизеля они отличаются высокой площадью поверхности на единицу объема и высокими значениями эффективности фильтрации. Монолитные фильтры для дизеля состоят из множества небольших параллельных каналов, которые обеспечивают проталкивание дизеля в виде аэрозоля через пористые стенки, которые служат в качестве механического фильтра. Чтобы отобразить этот режим потока, носители называют монолитами с проточными стенками.

Стенки фильтров с проточными стенками характеризуются распределением мелких пор, которое следует тщательно регулировать в процессе изготовления. Общая доступная пористость материала обычно составляет от 45 до 50% или больше. Механизм фильтрации через монолитные фильтры с проточными стенками представляет собой комбинацию поверхностной и глубинной фильтрации. Обычно монолитные фильтры характеризуются эффективностью фильтрации от приблизительно 70 до 95% всех твердых частиц (ТРМ).

Монолиты с проточными стенками обычно получают из пористых керамических материалов. Два материала, используемые наиболее часто в коммерческих фильтрах, включают кордиерит и карбид кремния (SiC).

Коммерческие высокопористые фильтры, такие как с доступной пористостью выше 55%, обычно являются очень хрупкими и, таким образом, очень непрочными.

Современные методы получения фильтров на основе SiC также являются очень энергоемкими, поскольку они работают при высокой температуре и требуют нескольких стадий, что делает стоимость получения очень высокой.

Таким образом, фильтр на основе высокопористого карбида кремния с повышенной механической прочностью также будет преимущественным.

Кроме того, улучшенный способ получения фильтра на основе высокопористого карбида кремния, который является менее энергоемким, уменьшает число необходимых стадий и, таким образом, уменьшает его стоимость, будет преимущественным.

Цель изобретения

Цель настоящего изобретения заключается в обеспечении способа получения продукта на основе высокопористого карбида кремния, который является менее дорогостоящим, уменьшает число необходимых стадий и снижает стоимость по сравнению с обычными способами получения продукта на основе пористого карбида кремния.

Также можно рассматривать в качестве цели настоящего изобретения обеспечение продукта на основе высокопористого карбида кремния с высокой механической прочностью путем получения продукта на основе высокопористого карбида кремния, который характеризуется минимальным количеством нежелательных кристаллов побочных продуктов, большим количеством ангедральных кристаллов с высоким уровнем взаимосвязей между кристаллами и узким распределением пор по размерам и кристаллов по размерам и с толстым стабилизирующим слоем оксида кремния, выращенным *in situ*.

Краткое описание изобретения

Таким образом, подразумевается, что вышеуказанная цель и несколько других целей обеспечены в аспекте настоящего изобретения путем обеспечения способа получения продукта на основе пористого карбида кремния, при этом способ включает

получение смеси, содержащей кремний, углерод, по меньшей мере одно обеспечивающее образование силицида и образование карбида средство и по меньшей мере одно обеспечивающее образование сплава средство; при этом указанное по меньшей мере одно обеспечивающее образование силицида и образование карбида средство содержит Al; при этом указанное по меньшей мере одно обеспечивающее образование сплава средство представляет собой Si;

получение монолитной структуры посредством экструзии или посредством приложения давления по отношению к указанной смеси;

применение нагрева по отношению к указанной монолитной структуре, при этом указанное применение нагрева включает осуществление пиролиза указанной полученной монолитной структуры в контролируемой атмосфере при температуре от 700 до 1000°C в течение периода от 1 до 24 ч; и при этом после осуществления указанного пиролиза указанное по меньшей мере одно обеспечивающее образование сплава средство присутствует в концентрации от 0,1 до 0,9 ат. %.

В еще одном варианте заявленного изобретения указанное применение нагрева дополнительно включает применение по отношению к указанной полученной монолитной структуре по меньшей мере трех температурных обработок, при этом температуру изменяют от комнатной температуры до 2100°C, при этом указанная комнатная температура составляет от приблизительно 20 до 26°C со средним значением 23°C, при этом указанные по меньшей мере три температурные обработки включают

первую температурную обработку от 850 до 1500°C в течение периода от 1 до 24 ч в инертной атмосфере или в вакууме;

вторую температурную обработку от 1500 до 2100°C и обратно до комнатной температуры в течение периода от 1 до 24 ч в контролируемой атмосфере;

третью температурную обработку от комнатной температуры до 1150°C и обратно до комнатной температуры в окислительной атмосфере.

В еще одном варианте заявленного изобретения способ дополнительно включает обработку подвергнутого термообработке продукта на основе пористого карбида кремния кислотой.

В еще одном варианте заявленного изобретения способ дополнительно включает осаждение катализатора на указанную термически обработанную монолитную структуру.

В еще одном варианте заявленного изобретения указанное по меньшей мере одно обеспечивающее образование силицида и образование карбида средство дополнительно содержит элемент группы 13.

В еще одном варианте заявленного изобретения указанное по меньшей мере одно обеспечивающее образование силицида и образование карбида средство дополнительно содержит элемент группы 12.

В еще одном варианте заявленного изобретения указанное по меньшей мере одно обеспечивающее образование силицида и образование карбида средство дополнительно содержит Zr.

В еще одном варианте заявленного изобретения указанное по меньшей мере одно обеспечивающее образование силицида и образование карбида средство дополнительно содержит элемент группы 2.

В еще одном варианте заявленного изобретения указанное по меньшей мере одно обеспечивающее образование силицида и образование карбида средство дополнительно содержит Mg.

В еще одном варианте заявленного изобретения после осуществления указанного пиролиза указанное по меньшей мере одно обеспечивающее образование сплава средство присутствует в концентрации 0,5 ат. %.

Таким образом, в способе по настоящему изобретению объединяют по меньшей мере одно обеспечивающее образование силицида и образование карбида средство и по меньшей мере одно обеспечивающее образование сплава средство в смеси с получением продукта на основе пористого карбида кремния.

Данное объединение является критически важным для получения продукта на основе пористого карбида кремния, имеющего необходимую кристаллическую структуру и необходимые свойства.

Обеспечивающее образование силицида и образование карбида средство выполняет функцию действия силицированию путем образования сплава с кремнием и, таким образом, снижения температуры, необходимой для силицирования.

Однако применение обеспечивающего образование силицида и образование карбида средства имеют недостаток, заключающийся в содействии аномальному росту кристаллов и образовании больших кристаллов тройных карбидов, которые делают структуру очень хрупкой и могут нарушать любой процесс нанесения протравной грунтовки.

Столкнувшись с данной проблемой, авторы настоящего изобретения разработали настоящее изобретение, предусматривающее добавление к смеси, содержащей кремний и углерод и одно обеспечивающее образование силицида и образование карбида средство, по меньшей мере одного обеспечивающего образование сплава средства.

Присутствие обеспечивающего образование сплава средства предупреждает аномальный рост кристаллов и уменьшает образование тройных карбидов. Обеспечивающее образование сплава средство сплавляют с обеспечивающим образование силицида и образование карбида средством, и это поддерживает нахождение обеспечивающего образование силицида и образование карбида средства в жидкой форме, в свою очередь препятствуя образованию больших кристаллов, в частности тройных карбидов.

Следовательно, обеспечивающее образование сплава средство может выполнять функцию сплавления с обеспечивающим образование силицида и образование карбида средством, предотвращая его испарение при высокой температуре.

По меньшей мере одно обеспечивающее образование сплава средство может представлять собой средство, способствующее окислению карбида кремния, например, способствующее окислению поверх-

ности карбида кремния.

Средство, способствующее окислению карбида кремния, может выполнять функцию содействия ограниченному окислению поверхности карбида кремния и, таким образом, содействовать образованию защитного слоя оксида кремния на поверхности карбида кремния. Защитный слой оксида кремния может иметь оптимальную толщину в диапазоне от 50 до 100 нм.

По меньшей мере одно обеспечивающее образование сплава средство может представлять собой обеспечивающее образование сплава средство, способствующее окислению карбида кремния.

Таким образом, в комбинации с первой функцией сплавления с обеспечивающим образование силицида и образование карбида средством обеспечивающее образование сплава средство могут выполнять вторую функцию содействия ограниченному окислению поверхности карбида кремния и, таким образом, содействия образованию защитного слоя оксида кремния на поверхности карбида кремния.

Конечный продукт на основе карбида кремния характеризуется присутствием слоя диоксида кремния на структуре альфа-SiC и характерной микроструктурой, которая обеспечивает повышенную механическую прочность.

Объединение по меньшей мере одного обеспечивающего образование силицида и образование карбида средства и по меньшей мере одного обеспечивающего образование сплава средства, таким образом, необходимо для достижения необходимой структуры согласно настоящему изобретению, характеризующейся отсутствием больших кристаллов, присутствием высокого процентного содержания ангедральных кристаллов и присутствием слоя диоксида кремния с оптимальной толщиной.

Объединение по меньшей мере одного обеспечивающего образование силицида и образование карбида средства и по меньшей мере одного обеспечивающего образование сплава средства обеспечивают характерную микроструктуру, которая характеризуется

- узким распределением зерен по размерам;
- отсутствием аномального роста зерен;
- присутствием высокого процентного содержания ангедральных кристаллических форм;
- высоким уровнем взаимосвязи между кристаллами;
- присутствием толстого слоя диоксида кремния;
- высокой механической прочностью;
- отсутствием больших кристаллов побочных продуктов.

По меньшей мере одно обеспечивающее образование силицида и образование карбида средство может содержать элемент-металл.

По меньшей мере одно обеспечивающее образование сплава средство может содержать элемент-металл.

Таким образом, смесь может содержать первый металл и второй металл, т.е. может представлять собой биметаллическую смесь.

Первый металл может иметь функцию поддержания более низкой температуры силицирования, таким образом, может иметь функцию снижения температуры силицирования.

Второй металл может иметь функцию предотвращения испарения первого металла и содействия образованию диоксида кремния на внешней поверхности продукта на основе карбида кремния.

Смесь может также содержать другие соединения, такие как полимеры.

Смесь может также содержать средства, содействующие образованию пор, например порообразующие вещества, которые могут представлять собой вещества на основе полимеров.

Смесь, содержащая кремний, углерод, по меньшей мере одно обеспечивающее образование силицида и образование карбида средство и по меньшей мере одно обеспечивающее образование сплава средство, можно также называть исходной смесью или начальной смесью.

Обработку смеси, обеспечивающую монолитную структуру, осуществляют посредством экструзии или путем прикладывания давления по отношению к смеси.

Смесь можно экструдировать с получением монолитной структуры или монолита.

Применение нагревания включает осуществление пиролиза полученной монолитной структуры в контролируемой атмосфере при температуре от 700 до 1000°C в течение периода от 1 до 24 ч.

Пиролиз является термохимическим разложением органического материала при повышенных температурах, обычно проводимым в отсутствие кислорода или воздуха. Он включает одновременное изменение химического состава и физической фазы и является необратимым. В способе по настоящему изобретению пиролиз проводят в контролируемой атмосфере. Контролируемая атмосфера может представлять собой инертную атмосферу.

Инертная атмосфера относится к газообразной смеси, которая содержит небольшое количество или не содержит кислород и главным образом состоит из неактивных газов или газов, которые имеют высокий порог, перед тем как они вступают в реакцию.

Например, инертная атмосфера может содержать газообразный азот, аргон или гелий.

Контролируемая атмосфера может также представлять собой не инертную атмосферу.

Например, контролируемая атмосфера может содержать газообразный азот, который может быть реакционноспособным при повышенной температуре.

После температурной обработки пиролизом применяют по меньшей мере три дополнительные температурные обработки.

Таким образом, в некоторых вариантах осуществления стадия применения нагревания также включает применение по отношению к полученной монокристаллической структуре по меньшей мере трех температурных обработок, где температуру изменяют от комнатной температуры до 2100°C.

Комнатная температура определена как составляющая приблизительно 20-26°C, в среднем 23°C.

Температурная обработка может представлять собой резкое повышение или градиент температуры, такой как плавный градиент температуры, таким образом, по отношению к монокристаллической структуре применяют ступенчатое изменение температуры. Температурную обработку можно также называть температурным градиентом.

В некоторых вариантах осуществления по меньшей мере три температурные обработки включают первую температурную обработку от 850 до 1500°C в течение периода от 1 до 24 ч в инертной атмосфере или вакууме

вторую температурную обработку от 1500°C до 2100°C и обратно до комнатной температуры в течение периода от 1 до 24 ч в контролируемой атмосфере;

третью температурную обработку от комнатной температуры до 1150°C и обратно до комнатной температуры в окислительной атмосфере.

Первая температурная обработка может происходить в инертной атмосфере, как, например, в газообразном аргоне, или в вакууме.

Вторая температурная обработка может происходить в контролируемой атмосфере, как, например, в газообразном аргоне.

Третья температурная обработка может происходить в окислительной атмосфере, таким образом, в условиях, которые будут обеспечивать окисление полученной поверхности SiC с наращиванием защитного слоя диоксида кремния. Например, она может происходить в присутствии окисляющего средства, такого как газообразный кислород, или газа, содержащего кислород, такого как воздух.

Третью температурную обработку можно также называть окислительной стадией.

Можно отметить, что присутствие по меньшей мере одного обеспечивающего образование сплава средства вызывает значительно большее повышение веса после третьей температурной обработки или окислительной стадии, чем когда по меньшей мере одно обеспечивающее образование сплава средство отсутствует.

В некоторых вариантах осуществления способ согласно заявленному изобретению дополнительно включает воздействие кислотной средой на подвергнутый термообработке продукт на основе пористого карбида кремния.

Воздействие кислотной средой можно обеспечить путем, например, обработки подвергнутого термообработке продукта на основе пористого карбида кремния кислотой или кислой средой.

Кислая среда, подходящая для данной обработки, может представлять собой минеральную, органическую или неорганическую кислоту.

Кислая среда может также содержать дополнительные окисляющие средства, которые могут растворять соединения или сплавы, которые включают элемент-металл, содержащийся в обеспечивающем образование сплава средстве.

Примеры данных кислых сред представляют собой HNO₃, HCl или лимонную кислоту.

Обработка подвергнутого термообработке продукта на основе пористого карбида кремния после по меньшей мере трех температурных стадий может происходить при различных температурах, например от 50 до 100°C, и в течение нескольких часов, например от 1 до 5 ч.

Обработка кислой средой оказывает действие, состоящее в удалении, по меньшей мере частично, нежелательных оксидов, чтобы избежать получения нежелательных побочных продуктов при использовании продукта на основе пористого карбида кремния или для соответствия национальным стандартам.

В некоторых вариантах осуществления способ согласно заявленному изобретению дополнительно включает осаждение катализатора на термически обработанную монокристаллическую структуру.

Способ согласно некоторым вариантам осуществления настоящего изобретения может обеспечивать продукт на основе пористого карбида кремния, который выполняет функцию подложки для катализатора. Путем осаждения катализатора на термически обработанную монокристаллическую структуру преимущественно получают подложку для катализатора.

В некоторых вариантах осуществления по меньшей мере одно обеспечивающее образование силицида и образование карбида средство содержит элемент-металл, такой как Al.

По меньшей мере одно обеспечивающее образование силицида и образование карбида средство может дополнительно содержать элемент-металл, например элемент группы 12, 13 или 2, согласно новым обозначениям IUPAC, такой как Zn, Al или Mg.

Присутствие по меньшей мере одного из данных элементов в обеспечивающем образование силицида и образование карбида средстве обеспечивает снижение температуры силицирования.

В некоторых вариантах осуществления по меньшей мере одно обеспечивающее образование силицида и образование карбида средство дополнительно содержит элемент группы 12, такой как Zn.

В некоторых вариантах осуществления по меньшей мере одно обеспечивающее образование силицида и образование карбида средство дополнительно содержит элемент группы 2, такой как Mg.

По меньшей мере одно обеспечивающее образование сплава средство представляет собой Cu.

В некоторых вариантах осуществления после проведения пиролиза по меньшей мере одно обеспечивающее образование сплава средство присутствует в концентрации от 0,1 до 0,9 ат.%, например 0,5 ат.%.

Было обнаружено, что концентрация по меньшей мере одного обеспечивающего образование сплава средства от 0,1 до 0,9 ат.% (атомное процентное содержание), например 0,5 ат.%, является предпочтительной для образования продукта на основе карбида кремния, имеющего необходимую структуру и свойства.

Количество обеспечивающего образование сплава средства больше, чем процентное содержание в данном диапазоне, может приводить к получению продукта на основе карбида кремния с меньшей механической прочностью.

Количество обеспечивающего образование сплава средства меньше, чем процент в данном диапазоне, может приводить к получению продукта на основе карбида кремния с аномальным ростом кристаллов и высоким содержанием тройных карбидов.

Необходимая концентрация по меньшей мере одного обеспечивающего образование сплава средства, представляющего собой Cu, от 0,1 до 0,9 ат.% является оптимальным диапазоном концентрации. В данном оптимальном диапазоне концентрации можно получить необходимую структуру продукта на основе пористого карбида кремния.

Эти и другие аспекты и варианты осуществления настоящего изобретения будут очевидны и пояснены со ссылкой на варианты осуществления, описанные далее в данном документе.

Краткое описание графических материалов

Фильтры на основе карбида кремния и способ согласно некоторым аспектам настоящего изобретения будут теперь описаны более подробно, принимая во внимание прилагаемые графические материалы. На графических материалах показан один способ осуществления настоящего изобретения, и они не должны рассматриваться как ограничивающие другие возможные варианты осуществления, находящиеся в пределах объема прилагаемой формулы изобретения.

На фиг. 1 показано визуальное сравнение между DPF после стадии окисления, когда начальная смесь не содержит обеспечивающего образование сплава средства (1) и когда смесь содержит Cu (2).

На фиг. 2 представлен график, показывающий профиль температуры и атмосферы для способа получения фильтров на основе пористого альфа-карбида кремния, например фильтры на основе SiC с 58% доступной пористостью, имеющие средний размер пор 18 мкм. Линия отображает различные стадии.

На фиг. 3A, 3B представлены изображения SEM, показывающие микроструктуру монолита перед окислением (фиг. 3A), когда обеспечивающее образование сплава средство отсутствует в начальной смеси и когда Cu присутствует в следовых количествах в начальной смеси (фиг. 3B). Микроструктура является очевидно различной: как форма, так и размер кристаллов отличаются, и степень взаимосвязанности намного более выражена в содержащем Cu монолите.

На фиг. 4A, 4B представлены изображения SEM с большим увеличением монолита, содержащего следовые количества Cu, перед окислением (фиг. 4A) и после него (фиг. 4B). Можно отметить, что после стадии окисления получен толстый поверхностный слой, заполняющий небольшие углубления в микроструктуре и, таким образом, повышающий общую механическую прочность фильтра.

На фиг. 5A-5F показаны изображения SEM с различными значениями увеличения, сравнивающие микроструктуру окисленных монолитов, полученных со следовыми количествами Cu, добавленной в начальную смесь (фиг. 5B, 5D и 5F), и без следовых количеств обеспечивающего образование сплава средства, добавленного в начальную смесь (фиг. 5A, 5C и 5E). Очевидно, что Cu снижает образование тройных карбидов и приводит к более взаимосвязанной микроструктуре с намного меньшим числом эвтектических кристаллов. После окисления поверхность кристаллов покрыта толстым слоем диоксида кремния.

На фиг. 6 представлено графическое изображение, показывающее значения прочности стенок, определенные согласно ASTM 1674-08, для монолитов, полученных из начальной смеси, содержащей Cu, и монолитов, где отсутствует Cu.

На фиг. 7 показаны распределения пор по размерам перед окислением и после него для монолита, полученного из начальной смеси, содержащей Cu.

На фиг. 8A-8C представлены графические изображения, показывающие удельный вес перед окислением и после каждой стадии окисления, т.е. фиг. 8A, дифференциальное повышение после каждой стадии, т.е. фиг. 8B, и первые две накопленные стадии окисления по сравнению с фиг. 8B, т.е. фиг. 8C, соответственно.

На фиг. 9A представлено графическое изображение, показывающее измеренные значения пористости различных образцов после каждой стадии окисления.

На фиг. 9B представлено графическое изображение, показывающее общие объемы пор, соответствующие измеренным значениям пористости на фиг. 9A.

На фиг. 10 представлено графическое изображение измеренных количеств частиц в массовом расходе выхлопа за европейский цикл испытаний в переходных режимах с фильтрами и без них.

На фиг. 11 представлена блок-схема способа согласно одному аспекту настоящего изобретения.

Подробное описание вариантов осуществления

Пример 1.

Партию начальной смеси для экструзии получали согласно следующему составу.

Материал	Вес. %
Графитовый электрод, 0-40 мкм	17%
Жидкий крахмал	8,35%
Металлический кремний, 20-75 мкм	44%
Алюминий в виде хлопьевидных частиц	4,8%
Металлическая медь, 0-50 мкм	1,15%
Метилловый эфир целлюлозы	3,8%
Вода	20,4%
Полиоксиэтилен	0,5%

Графитовый электрод представлял собой коммерчески доступный Elektrodengraphit от Richard Anton; жидкий крахмал представлял собой продукт CS76 от Zschimmer & Schartz; металлический кремний представлял собой Silgrain HQ от Elkem с размером 20-75 мкм; алюминий в виде хлопьевидных частиц представлял собой Exoandit BE 1160 от Grimm Metallpulver; порошок меди также был получен от Grimm Metallpulver и имел коммерческое название Rogal Kupfer 50, а метиловый эфир целлюлозы представлял собой Methocel K15M от Dow. Полиоксиэтилен также был получен от Zschimmer & Schwartz и имел коммерческое наименование Zusoplast G72.

Сначала сухие компоненты смешивали, а затем добавляли влажные компоненты. Вся смесь была готова после времени смешивания, составляющего 3 ч в Z-лопастном смесителе.

Эту начальную смесь загружали в поршневого экструдера и подвергали экструзии под давлением 70 бар с получением формы сот с плотностью ячеек 200 cpsi и толщиной стенки 16 мил/400 мкм. Их нарезали до длины 220 мм.

Эти монолиты со структурой сот высушивали в непрерывном потоке воздуха 0,9 м/с в течение 5 ч.

После высушивания монолиты подвергали ступенчатой термообработке, включающей пиролиз и три дополнительные стадии нагревания (I-II-III), как описано ниже и показано графически на фиг. 2.

Пиролиз происходил в потоке газообразного азота (N_2) 16,5 л/мин с чистотой 99,8% при 850° в течение 1 ч в 240 л трубчатой печи.

На следующей стадии реакции монолиты помещали в графитовый тигель в 70 л высокотемпературную печь (максимум 2500°С); на стадии реакции при 1450°С в течение 2 ч, а затем при 1600°С в течение еще 1 ч в атмосфере аргона (Ar) (99%) со скоростью потока 4 л/мин, обеспечивали взаимодействие Si и C с получением 3C-SiC.

Перед стадией перекристаллизации атмосферу обновляли без охлаждения. На стадии перекристаллизации монолиты нагревали от 1600 до 1960°С и выдерживали в течение 2 ч, а 3C-SiC превращался в альфа-SiC, и вследствие перекристаллизации происходило открытие пор в микроструктуре. Затем монолиты охлаждали, все еще под аргоном, путем выключения печи.

После стадии перекристаллизации осуществляли окисление монолитов на воздухе при 1100°С в течение 4 ч в электрической печи во время стадии окисления. Охлаждение обеспечивали путем выключения печи.

Монолиты вынимали для определения характеристик перед этой последней стадией окисления и после нее.

Определяли характеристики образцов с помощью рентгеновской дифрактометрии (XRD), сканирующего электронного микроскопа (SEM), аргонного ионного распыления вместе с оже-электронной спектроскопией (AES), энергодисперсионной спектроскопии (EDS) и измерения пористости путем внедрения ртути (MIP). Кроме того, механическую прочность тестировали на тестовых полосках с 7×7 ячейками и длиной 120 мм согласно ASTM 1674-08.

Кроме того, монолиты со структурой сот брали и резали до длины 203 мм. Каналы на каждой стороне закрывали альтернативно на каждой стороне цементом на основе состава с 64,5 вес.% SiC, 1 вес.% метилового эфира целлюлозы, 23,5 вес.% золя диоксида кремния с 45% содержанием твердых веществ и 11 вес.% воды таким образом, что каждый открытый впускной канал был закрыт на выходе и наоборот.

Эти сегменты фильтров размером 49×49 мм и длиной 203 мм тестировали относительно противодавления при объемных скоростях потока 1000 л/мин. при 23°С (гидравлическое испытание).

Пример 2.

Партию начальной смеси для экструзии получали согласно следующему составу.

Материал	Вес. %
Графитовый электрод, 0-40 мкм	15,5%
Жидкий крахмал	7,25%
Металлический кремний, 20-75 мкм	40,2%
Алюминий в виде хлопьевидных частиц	4,4%
Металлическая медь, 0-50 мкм	1,05%
Метиловый эфир целлюлозы	5,6%
Вода	19,3%
Порошок полиамида	3,0%
Порошок полипропилена	3,2%
Полиоксиэтилен	0,5%

Последовательность смешивания была такой же, как в примере 1. Однако в примере 2 полимерные порошки полиамида и полипропилена добавляли в сухие компоненты в качестве порообразующих средств.

Порошок полиамида представлял собой коммерческий продукт Vestamelt 730 P1 от Evonik; порошок полипропилена представлял собой коммерчески доступный PropyolTex 270S со средним диаметром частиц 15-25 мкм от Micro Powders Inc.

Такой же тип закрытых сегментов фильтров получали для проверки противодействия, а также такой же тип тестовых полос с 7×7 каналами для тестирования предела прочности при изгибе согласно ASTM 1674-08.

Сравнительные примеры 1b и 2b.

Кроме примеров 1 и 2 проводили сравнительные примеры 1b и 2b. Монолиты со структурой сот получали точно согласно составу, приведенному в двух примерах, 1 и 2, за исключением того факта, что в обоих случаях медь исключали.

Оценка примеров 1, 1b, 2 и 2b.

Путем сравнения монолитов со следовыми количествами обеспечивающего образование сплава средства (примеры 1 и 2) и без него (примеры 1b и 2b) можно отметить очевидное отличие в морфологии кристаллов, микроструктуре, механической прочности, образовании кристаллов побочных продуктов и образовании *in situ* слоя диоксида кремния.

Монолиты, полученные посредством способа, описанного в примерах 1 и 2 и представленного на фиг. 2, согласно одному аспекту настоящего изобретения, имеют некоторые явно отличительные признаки из-за присутствия обеспечивающего образования сплава средства, такого как Cu, в следовых количествах, таких как 0,5 ат. % (после пиролиза 1 вес. % ранее) в начальной смеси.

На фиг. 1 показано визуальное сравнение между DPF-монолитами после стадии окисления, когда начальная смесь не содержит обеспечивающего образование сплава средства (называемая 1), и когда смесь содержит Cu (называемая 2) (примеры 1 и 2).

Между окисленными монолитами, полученными без Cu, фиг. 1-1, и полученного со следовыми количествами Cu, фиг. 1-2, существует видимая разница. Монолит, полученный из начальной смеси, которая не содержит Cu, является хрупким, синевато-черным по цвету и блестящим, тогда как монолит, полученный из начальной смеси, которая содержит Cu, не имеет ни одного из этих свойств.

Подвергнутые термообработке монолиты явно демонстрируют отдельные ангедральные взаимосвязанные кристаллы 4H-SiC, сравнение неокисленной микроструктуры, полученных монолитов без Cu, фиг. 3A, и с Cu в следовых количествах, фиг. 3B.

Когда обеспечивающее образование сплава средство отсутствует в начальной смеси (примеры 1b и 2b), побочный продукт в виде больших кристаллов тройных карбидов сростается с микроструктурой SiC, что может быть обнаружено человеческим глазом как эффект блеска на поверхности фильтра или монолита. Этот эффект отсутствует, когда Cu добавлена в начальную смесь (примеры 1 и 2). Таким образом, значительная разница, привнесенная вследствие добавления Cu, заключается в подавлении или уменьшении образования кристаллов тройных карбидов.

Монолиты, полученные без Cu (примеры 1b и 2b), содержат большие содержащие алюминий кристаллы тройных карбидов, главным образом с составом Al_3SiC_4 и $Al_4Si_2C_5$ (или изоструктурный эквивалент Al_3NC_3 и $Al_6N_2C_3$) и твердые растворы, которые могут существовать между этими составами. Эти кристаллы имеют полупрозрачный желтый цвет и пластинчатую шестиугольную форму. Эти желтые полупрозрачные кристаллы отличительной шестиугольной и пластинчатой формы могут осаждаться на стенках печи и поверхности монолитов при конденсации из пара и могут выступать на поверхности монолитов. Обычно эти кристаллы состоят из смеси Al_3SiC_4 и $Al_4Si_2C_5$ и выглядят как вросшие в микроструктуру 4H-SiC, фиг. 5A. При добавлении в начальную смесь следовых количеств Cu (примеры 1 и 2) эти кристаллы побочных продуктов являются меньшими и не нарушают микроструктуру, фиг. 5B.

При добавлении в начальную смесь следовых количеств Cu (примеры 1 и 2) микроструктура 4H-SiC характеризуется узким распределением зерен по размеру (GDS) небольших зерен, характеризующихся

нормальным ростом зерна, фиг. 5C и 5D.

Из этого можно также наблюдать, что размер зерен меньше, и они являются менее пластинчатыми при добавлении следовых количеств Cu в начальную смесь. Из этого следует, что вязкость сплава Al-Si-Cu повышается с повышением содержания Cu. В свою очередь, большая вязкость соответствует меньшему коэффициенту диффузии содержащей Cu жидкости. Поскольку эвгедральные формы зависят от коэффициента диффузии, низкий коэффициент диффузии при добавлении Cu в сплав Al-Si будет приводить к меньшему количеству кристаллов эвгедральных форм, что также наблюдается. Кроме того, в данной вязкой жидкой фазе вероятнее всего присутствует сплав Al-Cu-Si, поскольку добавление Cu либо к Al, либо к Si или к их комбинации снижает температуру плавления сплава, а присутствие Cu вводит эвтектическую точку в систему.

Вышеописанные эффекты способствуют более механически прочной микроструктуре и, таким образом, более механически прочному монолиту даже перед окислением, и данный эффект даже более выражен после окисления, как показано на фиг. 4. Поскольку монолит окислен на воздухе, толстый поверхностный слой диоксида кремния образуется на микроструктуре, повышая механическую прочность еще больше. Окисленные монолиты со следовыми количествами Cu (примеры 1 и 2) и без них в начальной смеси (примеры 1b и 2b) показаны на фиг. 5F и 5E соответственно. В монолите со следовыми количествами Cu в начальной смеси слой диоксида кремния заполняет небольшие пустоты в микроструктуре, стабилизируя всю структуру и, таким образом, повышая механическую прочность.

Более шероховатая морфология поверхности возникает в результате образования диоксида кремния, что является преимуществом, если необходимо добавление катализатора, поскольку адгезия катализатора к поверхности улучшается, если поверхность имеет шероховатую морфологию поверхности.

Слой диоксида кремния заполняет глубокие полости, обеспечивая дополнительное преимущество, если необходимо добавление катализатора. Отфильтрованная жидкость не вступает в непосредственный контакт с катализатором, расположенным в глубоких полостях в микроструктуре, таким образом их заполнение диоксидом кремния предотвращает осаждение катализатора в этих полостях и, таким образом, снижает необходимое количество катализатора для покрытия микроструктуры.

Удельный вес структур в виде сот, полученных согласно описанным примерам, перечислен вместе с противодавлением при скорости потока 1000 л/мин в табл. 1.

Таблица 1

Пример	Вес перед окислением, г/л	Вес после окисления, г/л	Увеличение веса, %	Противодавление при 1000 л/мин., мбар
Пример 1	506	539	6,52%	20
Пример 1b	509	515	1,18%	20,8
Пример 2	441	469	6,35%	19,7
Пример 2b	441	443	0,45%	19,9

Можно явно отметить, что увеличение веса значительно выше для примеров 1 и 2, полученных путем добавления меди в исходную смесь.

Прочность стенки, определенная согласно ASTM 1674-08, показана на графике на фиг. 6.

Результаты для анализа пор с помощью измерения пористости путем внедрения ртути показаны в табл. 2.

Таблица 2

Пример	Доступная пористость, %	Модальный диаметр пор, мкм
Пример 1, перед окислением	62,5	19,9
Пример 1, после окисления	57,5	19,8
Пример 1b, перед окислением	63	20,5
Пример 1b, после окисления	61	19,6
Пример 2, перед окислением	67,1	23,1
Пример 2, после окисления	62,35	22,55
Пример 2b, перед окислением	65,8	23,1
Пример 2b, после окисления	65,5	22,65

Повышение механической прочности для примеров с более низкой пористостью не является очень высоким, но для примеров с более 65% пористостью оно значительно. Это означает, что для уровня пористости 62% или меньше механическая прочность является главным образом результатом взаимосвязанности самой микроструктуры 4H-SiC, а для более высокого уровня пористости механическая прочность может значительно повышаться с помощью слоя SiO₂. Слой SiO₂ является более толстым в примерах, полученных путем добавления меди в начальную смесь. Это подтверждается значительным увеличением удельного веса и значительным снижением пористости после окисления. Образование слоя SiO₂ приводит к уменьшению ширины распределений пор по размерам, поскольку диоксид кремния заполняет очень мелкие поры. Таким образом, образование слоя SiO₂ обеспечивает сужение распределения пор по размерам. Это можно увидеть в таблице 3, в которой значения D10, D50 и D90 перечислены показаны

перед окислением и после него для примеров 1 и 2.

Таблица 3

Пример	D10, мкм	D50, мкм	D90, мкм
Пример 1, перед окислением	13,8	19,14	24,28
Пример 1, после окисления	14,65	19,1	22,1
Пример 2, перед окислением	17,62	22,7	27,25
Пример 2, после окисления	17,13	21,57	24,85

Распределения пор по размерам показаны на графике для примера 2 перед окислением и после него на фиг. 7.

В частности, присутствие обеспечивающего образование сплава средства, содержащего С_ц, в начальной смеси обеспечивает продукт на основе пористого альфа-карбида кремния, характеризующегося модальным диаметром пор от 19 до 24 мкм, защитным слоем оксида кремния с толщиной от 50 до 100 нм, с увеличением веса после стадии окисления от 6 до 7%, значительным повышением механической прочности, если пористость более 65% после стадии окисления и с отсутствием или с ограниченным присутствием больших кристаллов тройных карбидов.

Влияние меди на окисление SiC и обусловленное этим наращивание слоя SiO₂ оценивали с помощью испытаний с окислением. Образцы структур в виде сот, полученные согласно примерам 2 и 2b, брали после температурной стадии III, т.е. после стадии силицирования и перекристаллизации. Эти образцы окисляли на различных стадиях и после каждой стадии оценивали изменение удельного веса, пористости и объема пор. Проводили следующие стадии окисления:

- 1) 4 ч при 950°C;
- 2) 4ч при 1100°C;
- 3) 4 ч при 1100°C.

Удельный вес перед окислением и после каждой стадии окисления показан на фиг. 8А, дифференциальное увеличение после каждой стадии показано на фиг. 8В, а на фиг. 8С показаны вместе первые две стадии окисления по сравнению с фиг. 8В.

Можно ясно увидеть, что в конце стадии при 950°C получено значительное увеличение веса для содержащего медь примера 2 по сравнению с примером 2b без меди. Без меди значительное увеличение веса можно наблюдать на второй стадии окисления при 1100°C. На этой стадии окисления содержащий медь образец показывает более высокое увеличение веса. Данные результаты явно показывают, что медь сильно способствует окислению SiC. Дифференциальное увеличение удельного веса между различными стадиями окисления, как показано на фиг. 8С, показывает, что это ускоренное окисление также уменьшается при последующем окислении.

Измеренные значения пористости различных образцов после каждой стадии окисления показаны на фиг. 9А. Соответствующие общие объемы пор показаны на фиг. 9В. Данные результаты очень хорошо соответствуют результатам, показанным на фиг. 8А-8С. Общая доступная пористость и соответствующий общий объем пор снижается с каждой стадией окисления.

Пример 3.

Партию смеси для экструзии получали согласно составу примера 1.

Графитовый электрод, 0-40 мкм	17%
Жидкий крахмал	8,35%
Металлический кремний, 20-75 мкм	44%
Алюминий в виде хлопьевидных частиц	4,8%
Металлическая медь, 0-50 мкм	1,15%
Метилловый эфир целлюлозы	3,8%
Вода	20,4%
Полиоксиэтилен	0,5%

Данную смесь загружали в поршневого экструдера и подвергали экструзии под давлением 70 бар в экструзионной головке в форму в виде сот с плотностью ячеек 200 cpsi и толщиной стенок 12 мил/305 мкм. Их нарезали до длины 220 мм.

Высушивание и полная процедура термообработки для получения конечного сегмента в виде сот из окисленного SiC были такими же, как описано для примера 1.

После завершения стадий термообработки образцы брали для МПР.

Сегменты в виде сот брали и нарезали до длины 203 мм. Каналы на каждой стороне закрывали альтернативно на каждой стороне цементом на основе состава с 64,5 вес.% SiC, 1 вес.% метилового эфира целлюлозы, 23,5 вес.% золя диоксида кремния с 45% содержанием твердых веществ и 11 вес.% воды таким образом, что каждый открытый впускной канал был закрыт на выходе и наоборот.

Данные сегменты фильтров размером 49×49 мм и длиной 203 мм использовали для сборки блоков фильтров 3×3 сегмента. Для приклеивания сегментов друг к другу использовали коммерческий цемент IsoFrax DPF от компании UniFrax. Данный блок фильтров затем вырезали до круглой формы с диаметром 143,5 мм. Внешнюю поверхность герметизировали с помощью такого же цемента, как и для сборки. По-

сле высушивания весь блок фильтров подвергали отверждению при 700°C в течение 2 ч.

Полученный фильтр имел диаметр 144 мм и длину 203 мм.

Сравнительный пример 3b.

Помимо примеров 3 осуществляли сравнительный пример 3b. Образцы структуры в виде сот получали точно согласно составам, приведенным в примере 3, за исключением того факта, что исключали медь.

Полученные сегменты собирали и вырезали таким же образом, что и в примере 3, с получением фильтра с диаметром 144 мм и длиной 203 мм.

Оценка примеров.

Удельный вес структур в виде сот, полученных согласно описанным примерам, перечислен в табл. 4 вместе со значениями из анализа МІР и значениями веса полученных собранных фильтров. Также в табл. 4 перечислено противодействие фильтров в гидравлическом испытании (20°C, 1013 мбар) при скорости потока 800 м³/ч. Неожиданный эффект заключался в том, что противодействие обоих фильтров при 800 м³/ч находится на одинаковом уровне, хотя диаметр пор и пористость примера 3 с медью в качестве добавки значительно ниже.

Таблица 4

Пример	Удельный вес сегментов после окисления, г/л	Вес собранного фильтра, г	Средний диаметр пор, мкм	Пористость, %	Противодействие фильтра при 800 м ³ /ч., мбар
Пример 3	472	1845	12	52	62
Пример 3b	456	1776	17	60	67

Фильтры тестировали на стендовом испытании двигателя.

Установки теста описаны ниже:

двигатель: VM Motori R425 с объемом 2,5 л;

T250 динамометрический стенд для двигателей;

конденсационный счетчик частиц от TSI.

Противодействие тестировали при различных точках подключения нагрузки. Тест проводили со свежими фильтрами, а также с фильтрами с уровнем загрузки сажи 5 г/л. В табл. 5 перечислены результаты для двух примеров.

Таблица 5

Противодействие при различных точках подключения нагрузки для фильтров согласно примерам 3 и 3b, свежих и при уровне загрузки сажи 5 г/л.

Фильтр из примера 3, свежий			Фильтр из примера 3, при загрузке сажи 5 г/л		
T	Массовый расход выхлопа	Противодействие	T	Массовый расход выхлопа	Противодействие
°C	кг/ч.	кПа	°C	кг/ч.	кПа
459,9	233,8	4,0	470,6	214,7	16,0
418,4	210,9	3,4	432,4	195,8	14,0
346,9	184,6	2,6	357,9	175,3	11,4
204,7	153,1	1,6	212,8	150,4	8,0
117,3	60,9	0,3	121,9	60,9	2,7
Фильтр из примера 3b, свежий			Фильтр из примера 3b, при загрузке сажи 5 г/л		
T	Массовый расход выхлопа	Противодействие	T	Массовый расход выхлопа	Противодействие
°C	кг/ч.	кПа	°C	кг/ч.	кПа
452,5	234,6	3,7	524,8	220,1	23,5
411,2	212,2	3,1	462,9	196,8	20,2
342,5	185,8	2,3	375,3	174,7	16,7
202,1	153,8	1,4	220,4	148,9	11,9
117,0	61,8	0,3	121,3	61,6	4,1

Снова оба свежих (без очень низкой загрузки сажи или с ней) фильтра показали аналогичное противодействие, но после загрузки до 5 г/л фильтр из примера 3 показал намного более низкое увеличение при загрузке сажи. Это является следствием различной структуры, вызванной добавлением меди: меньшие поры приводят к сниженной фильтрации в глубоком слое и, таким образом, к более быстрому накоплению слоя сажи на поверхности впускных отверстий каналов фильтра. Сниженная фильтрация в глубоком слое вызывает значительно более низкое противодействие при загрузке сажи по сравнению со структурой без добавки меди примера 3b

Это явное преимущество структуры, полученной с медью в качестве добавки.

После теста на противодействие свежих фильтров эффективность фильтрации тестировали, проводя европейский цикл испытаний в переходных режимах (ETC). Данный тест проводили перед загрузкой сажи до 5 г/л. Измеренные количества частиц в массовом потоке выхлопа с фильтрами и без них показаны на графике на фиг. 10. Можно явно видеть, что фильтр согласно примеру 3 показывает лучшую фильтрацию сразу после начала. Накопленные количества частиц за весь цикл тестирования привели к следующим параметрам для фильтрации:

фильтр из примера 3: 99,9% эффективность фильтрации;

фильтр из примера 3b: 98,3% эффективность фильтрации.

Это означает, что дизельный сажевый фильтр согласно примеру 3 и, таким образом, согласно настоящему изобретению показывает улучшенные параметры для фильтрации и характеристики загрузки сажи по сравнению с соответствующим фильтром без меди в качестве добавки.

На фиг. 11 представлена блок-схема способа согласно одному аспекту настоящего изобретения.

Способ (10) получения продукта на основе пористого карбида кремния включает стадии:

(S1) получение смеси, содержащей кремний, углерод, по меньшей мере одно обеспечивающее образование силицида и образование карбида средство и по меньшей мере одно обеспечивающее образование сплава средство;

(S2) получение монолитной структуры путем обработки смеси;

(S3) применение нагревания по отношению к монолитной структуре.

Способ получения продукта на основе пористого карбида кремния может также включать стадию (S4), т.е. воздействия кислотной средой на подвергнутый термообработке продукт на основе пористого карбида кремния.

Данная стадия (S4) имеет эффект удаления, по меньшей мере частично, нежелательных оксидов.

Например, если обеспечивающее образование сплава средство, содержащее Cu, используют в начальной смеси, может образовываться CuO.

В общем, CuO может иметь необходимую каталитическую активность. CuO в комбинации с CeO₂ может восстанавливать NO_x до N₂ и воды и образовывать аммиак в газовом потоке с высоким содержанием кислорода. Этот эффект является преимущественным, если катализатор SCR осажден на пористый SiC согласно настоящему изобретению. С другой стороны, CuO может также обеспечивать нежелательные побочные продукты, такие как диоксины, если продукт на основе пористого карбида кремния применяют как DPF со специальным типом топлива, таким как биодизель. В этом случае предпочтительно удалять по меньшей мере часть CuO с поверхности пористого SiC.

Удаление по меньшей мере части CuO с поверхности пористого SiC может иметь преимущество, заключающееся в уменьшении работы окисления после исходного окисления при 1100°C (термообработка III). Это может быть необходимо, если пористый SiC используют как DPF в применениях с тяжелыми условиями регенерации, что обеспечивает пики температуры внутри DPF 1100°C или больше. В этом случае будет оптимально снижать количество CuO на поверхности SiC до минимума.

Удаление по меньшей мере части CuO с поверхности SiC не является простым. Согласно настоящему изобретению удаление CuO можно достичь в кислой среде, такой как минеральные или органические кислоты с дополнительными окисляющими средствами или без них.

Например, удаление CuO проводили на образце, полученном согласно примеру 2. После конечной стадии окисления при 1100°C образец помещали в азотную кислоту в концентрации 65% при температуре 65°C в течение 4 ч. После этого образец промывали деминерализованной водой и высушивали. Эта обработка приводила к снижению веса на 0,7%. Затем образец снова окисляли при 1100°C в течение 5 ч. Это окисление приводило к увеличению веса только на 0,5%, т.е. работа окисления снижалась до минимума.

Другие примеры кислой среды могут представлять собой горячую (приблизительно 80°C) водную смесь HCl (водн.) и хлорида меди CuCl₂ (водн.).

Хотя настоящее изобретение было описано совместно с конкретными вариантами осуществления, его не следует рассматривать как ограниченное каким-либо образом представленными примерами. Объем настоящего изобретения изложен в прилагаемой формуле изобретения. В контексте формулы изобретения термины "содержащий" или "содержит" не исключают другие возможные элементы или стадии. Кроме того, указание ссылок в единственном числе не должно рассматриваться как исключительное множественное число. Применение обозначений ссылок в формуле изобретения в отношении элементов, указанных в графических материалах, не должно также рассматриваться как ограничивающее объем настоящего изобретения. Кроме того, отдельные признаки, указанные в различных пунктах формулы, могут, возможно, быть предпочтительно объединены, и указание этих признаков в различных пунктах формулы не исключает, что комбинация признаков не является возможной и выгодной.

ФОРМУЛА ИЗОБРЕТЕНИЯ

1. Способ получения продукта на основе пористого карбида кремния, при этом указанный способ включает

получение смеси, содержащей кремний, углерод, по меньшей мере одно обеспечивающее образование силицида и образование карбида средство и по меньшей мере одно обеспечивающее образование сплава средство; при этом указанное по меньшей мере одно обеспечивающее образование силицида и образование карбида средство содержит Al; при этом указанное по меньшей мере одно обеспечивающее образование сплава средство представляет собой Cu;

получение монолитной структуры посредством экструзии или посредством приложения давления по отношению к указанной смеси;

применение нагрева по отношению к указанной монолитной структуре, при этом указанное применение нагрева включает осуществление пиролиза указанной полученной монолитной структуры в контролируемой атмосфере при температуре от 700 до 1000°C в течение периода от 1 до 24 ч;

при этом после осуществления указанного пиролиза указанное по меньшей мере одно обеспечивающее образование сплава средство присутствует в концентрации от 0,1 до 0,9 ат.%

2. Способ по п.1, где указанное применение нагрева дополнительно включает применение по отношению к указанной полученной монолитной структуре по меньшей мере трех температурных обработок, при этом температуру изменяют от комнатной температуры до 2100°C, при этом указанная комнатная температура составляет от приблизительно 20 до 26°C со средним значением 23°C, при этом указанные по меньшей мере три температурные обработки включают

первую температурную обработку от 850 до 1500°C в течение периода от 1 до 24 ч в инертной атмосфере или в вакууме;

вторую температурную обработку от 1500 до 2100°C и обратно до комнатной температуры в течение периода от 1 до 24 ч в контролируемой атмосфере;

третью температурную обработку от комнатной температуры до 1150°C и обратно до комнатной температуры в окислительной атмосфере.

3. Способ по любому из предыдущих пп.1, 2, дополнительно включающий обработку подвергнутого термообработке продукта на основе пористого карбида кремния кислотой.

4. Способ по любому из предыдущих пп.1-3, дополнительно включающий осаждение катализатора на указанную термически обработанную монолитную структуру.

5. Способ по любому из предыдущих пп.1-4, где указанное по меньшей мере одно обеспечивающее образование силицида и образование карбида средство дополнительно содержит элемент группы 13.

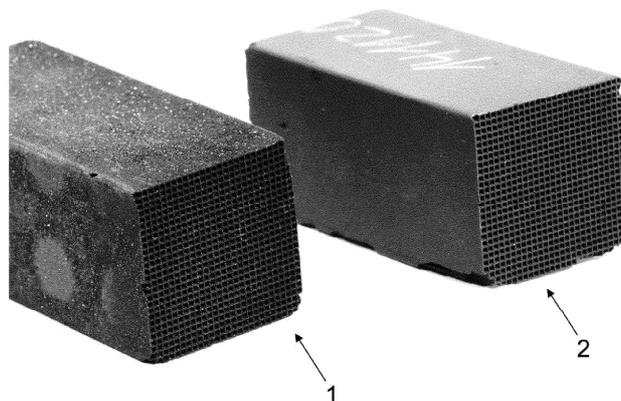
6. Способ по любому из предыдущих пп.1-4, где указанное по меньшей мере одно обеспечивающее образование силицида и образование карбида средство дополнительно содержит элемент группы 12.

7. Способ по любому из предыдущих пп.1-4, где указанное по меньшей мере одно обеспечивающее образование силицида и образование карбида средство дополнительно содержит Zn.

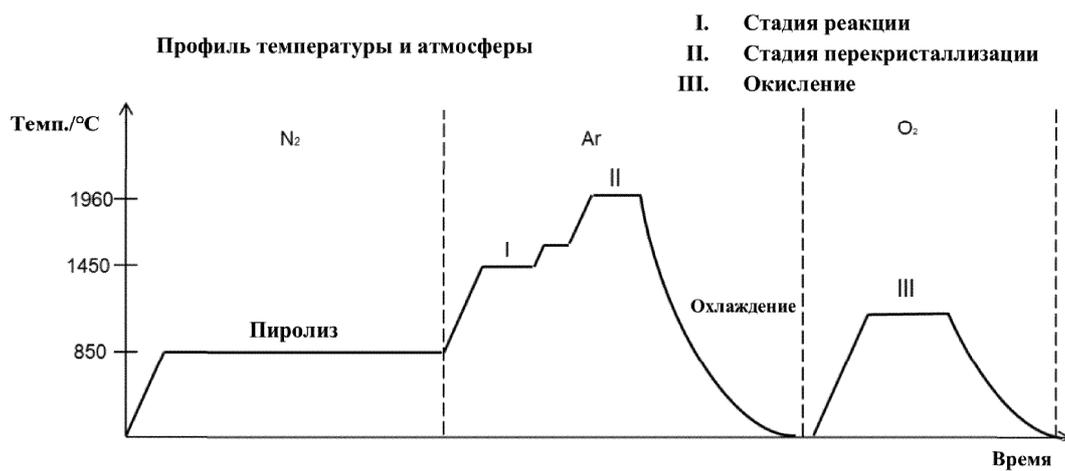
8. Способ по любому из предыдущих пп.1-4, где указанное по меньшей мере одно обеспечивающее образование силицида и образование карбида средство дополнительно содержит элемент группы 2.

9. Способ по любому из предыдущих пп.1-4, где указанное по меньшей мере одно обеспечивающее образование силицида и образование карбида средство дополнительно содержит Mg.

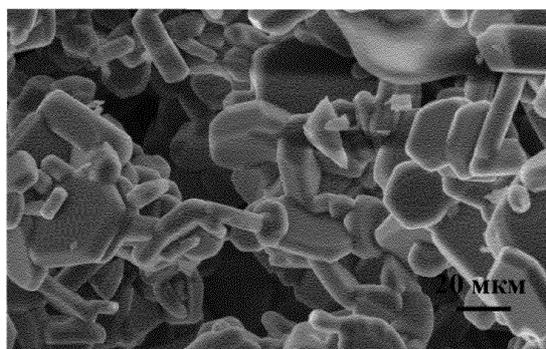
10. Способ по любому из предыдущих пп.1-9, где после осуществления указанного пиролиза указанное по меньшей мере одно обеспечивающее образование сплава средство присутствует в концентрации 0,5 ат.%.



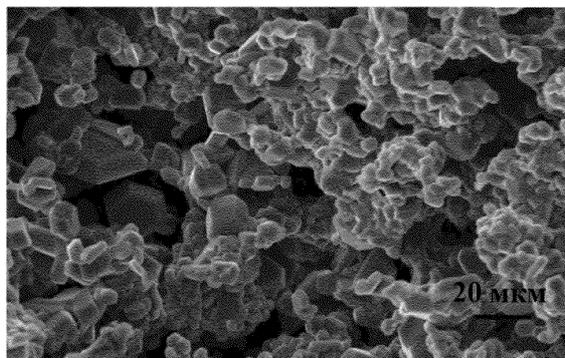
Фиг. 1



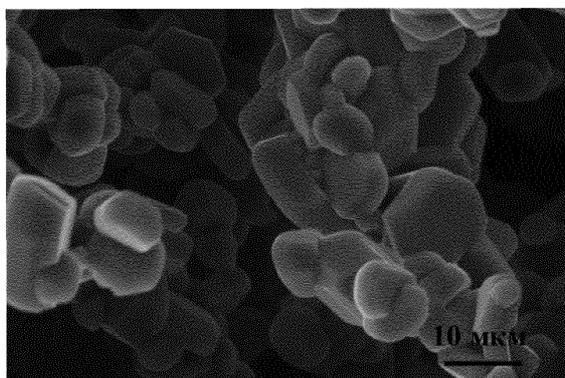
Фиг. 2



Фиг. 3А

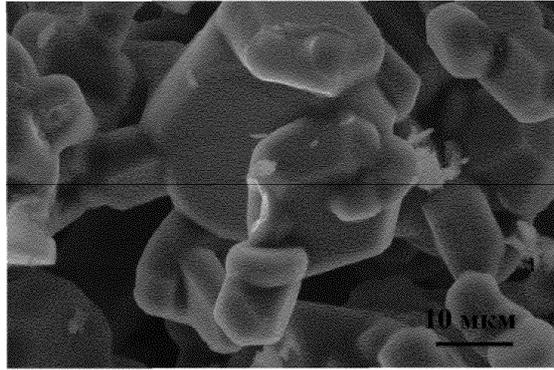


Фиг. 3В

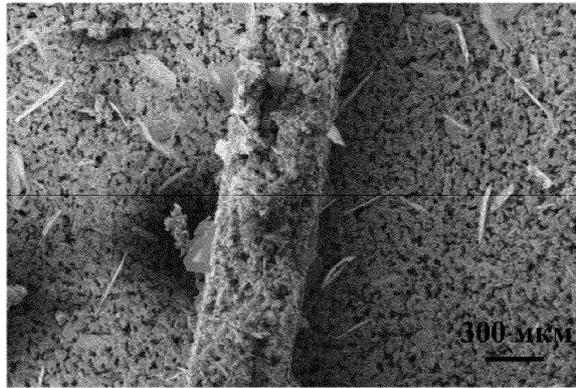


Фиг. 4А

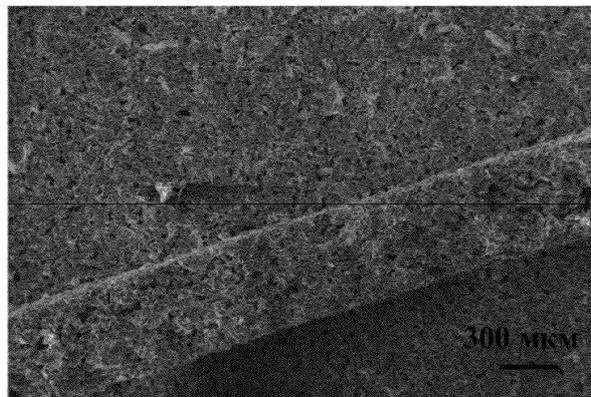
034118



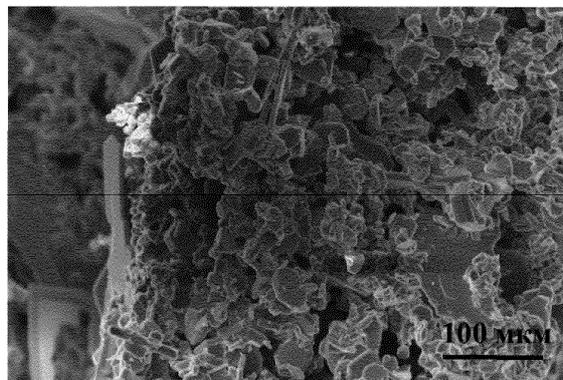
Фиг. 4В



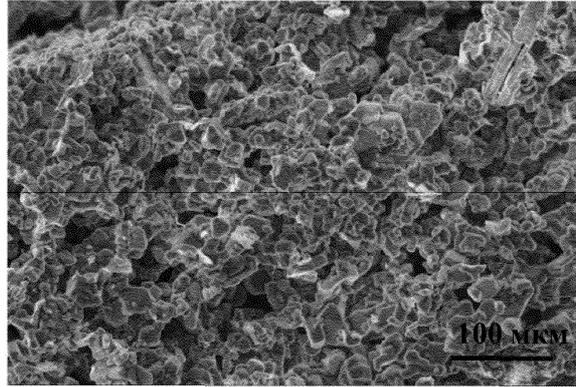
Фиг. 5А



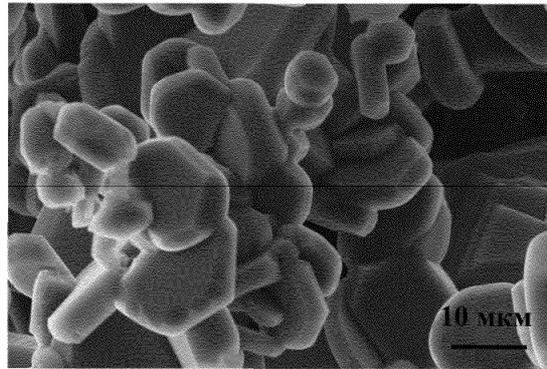
Фиг. 5В



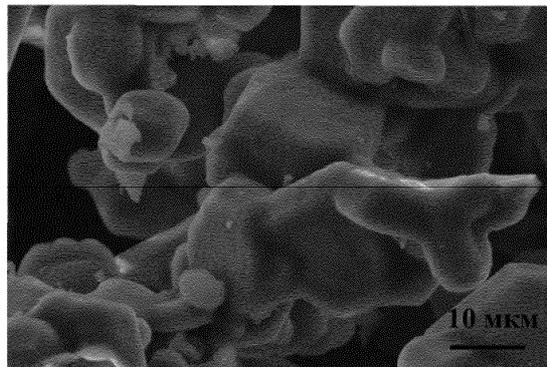
Фиг. 5С



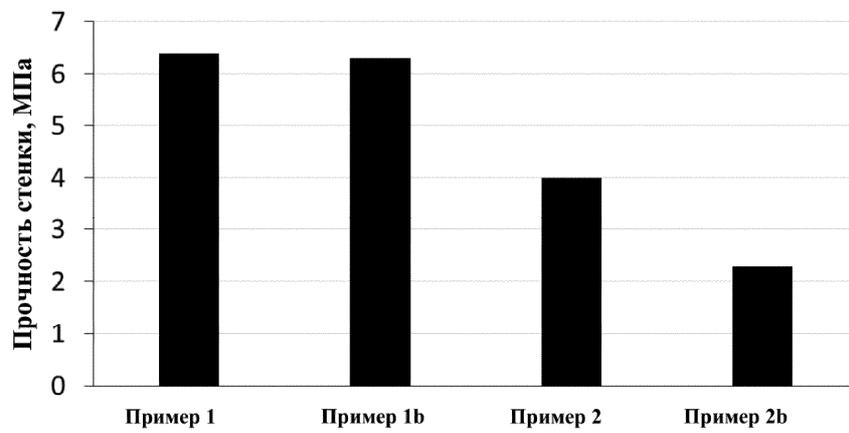
Фиг. 5D



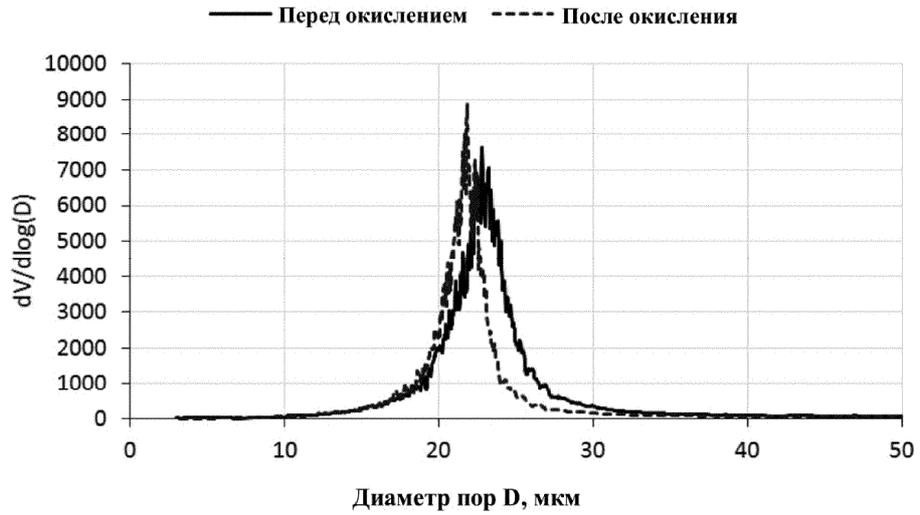
Фиг. 5E



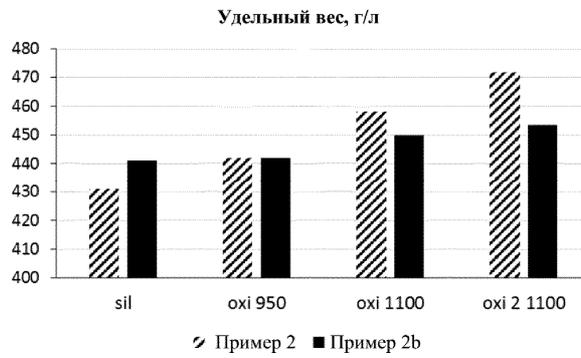
Фиг. 5F



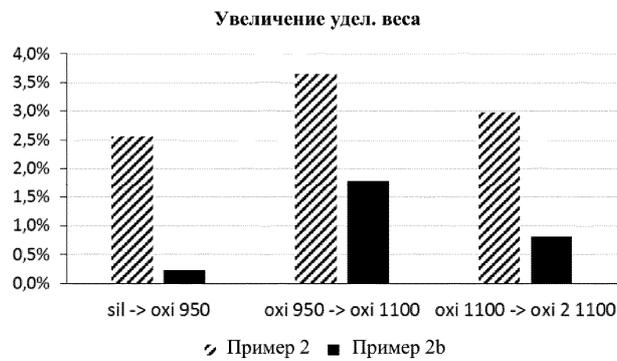
Фиг. 6



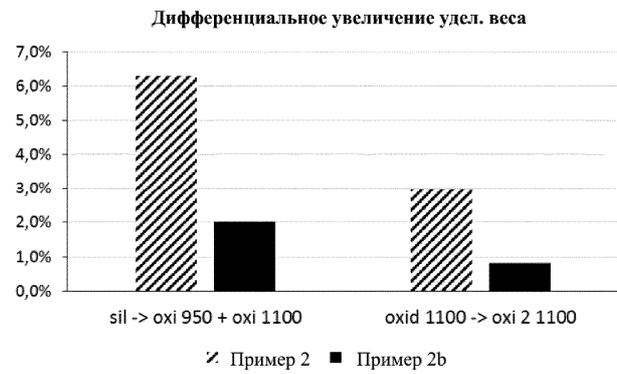
Фиг. 7



Фиг. 8А



Фиг. 8В



Фиг. 8С

