

$(\text{NH}_4)_2\text{S}_2\text{O}_8/\text{AC}$ 氧化改性电极材料的制备及性能表征

吴沁如,李海红*,张腾

(西安工程大学环境与化学工程学院,陕西 西安 710048)

摘要:以煤质活性炭(AC)为研究对象,通过 $(\text{NH}_4)_2\text{S}_2\text{O}_8$ 氧化改性提高其电吸附性能。将活性炭材料制备成电极并在电容去离子技术(EST)下进行实验,对改性前后活性炭的表面形貌、表面官能团、孔结构变化进行对比分析。结果表明,活性炭经过 1.5 mol/L 的 $(\text{NH}_4)_2\text{S}_2\text{O}_8$ 改性后比电容最大;改性后的活性炭电极比电容增大,改性后相比改性前孔容、平均孔径均下降;改性后的材料表面光滑、杂质较少、孔隙结构发达、含氧官能团增多;利用单因素和 Box-Behnken 响应面法得到改性后材料制备的最佳工艺为:1.59 g 的 AC 在 54.22°C 下氧化改性 4.93 h,电极比电容为 259.850 F/g ,改性后电极的 CV 曲线证明由于其含有赝电容从而使电化学性能得到提高。

关键词:电容去离子;电极制备;活性炭;氧化改性;响应面优化

中图分类号:TQ424.1

文献标志码:A

文章编号:0253-4320(2024)03-0168-07

DOI:10.16606/j.cnki.issn0253-4320.2024.03.030

Preparation and characterization of $(\text{NH}_4)_2\text{S}_2\text{O}_8/\text{AC}$ oxidation-modified electrode materials

WU Qin-ru, LI Hai-hong*, ZHANG Teng

(School of Environmental and Chemical Engineering, Xi'an Polytechnic University, Xi'an 710048, China)

Abstract: Coal-based activated carbon is oxidatively modified by $(\text{NH}_4)_2\text{S}_2\text{O}_8$ to improve its electrosorption performance. The activated carbon materials are prepared into electrodes for experiments under EST technique. The changes in surface morphology, surface functional groups and pore structure of the activated carbon before and after modification are compared and analyzed. Results show that the activated carbons modified by $1.5\text{ mol}\cdot\text{L}^{-1}$ $(\text{NH}_4)_2\text{S}_2\text{O}_8$ exhibits the largest specific capacitance value. The specific capacitance of the activated carbon electrode increases after modification, but its pore capacity and average pore size decrease. The modified material has a smooth surface, less impurities, a developed pore structure and more oxygen-containing functional groups. Through using the single-factor and Box-Behnken response surface methods, the best process conditions for the preparation of the modified material are as follows: 1.59 g of activated carbon has been oxidatively modified at 54.22°C for 4.93 h. The specific capacitance of the electrode is $259.850\text{ F}\cdot\text{g}^{-1}$. The CV curves of the electrode proves that its electrochemical properties are improved because it contains pseudo capacitance.

Key words: capacitive deionization; electrode preparation; activated carbon; oxidation modification; response surface optimization

随着世界经济的高速发展,在许多工业生产过程中产生了不同盐度和营养负荷的高强度废水,如沿海地区的水产养殖、核工业、石油、天然气开采以及皮革制造^[1]。高盐废水的 pH 一般呈中性或碱性,处理难度极大。目前处理高盐废水的技术有电解法、膜分离法、焚烧或深井灌注等^[2],而电吸附技术具有低能耗、低成本、寿命长、容易再生等特点,其原理是在吸附过程中施加电位,将吸附元件与电化学结合在一个有电极连接到外部电路的系统中^[3],通过静电力将溶液中的离子储存在电极表面,断开电路后被吸附的离子又回到溶液中,重复循环。其

中电极是电吸附装置的核心原件,因此选用电极材料至关重要。

笔者选取的电极材料为煤质活性炭,与其他材料相比具有容易获得、丰富的孔隙结构、比表面积大、化学性质稳定等优点,并且含有少量 N、H、S 等化学元素^[4]。未经改性的煤质活性炭孔隙结构堵塞、表面官能团数量少、吸附性能差。而经过改性后的活性炭会增加一系列新的表面官能团并且孔隙结构发生变化,作为电极其电吸附能力得到大大提高。表面氧化改性是一种有效提高活性炭电极材料的电化学性能方法,其是利用不同的氧化剂作用于活性

收稿日期:2023-05-12;修回日期:2024-01-02

基金项目:陕西省科技厅社会发展领域项目(2020SF-435);榆林市科技计划(CXY-2020-054);西安工程大学博士科研启动基金(BS201922)

作者简介:吴沁如(1999-),女,硕士生,研究方向为电化学,516647200@qq.com;李海红(1971-),女,硕士,教授,主要从事土壤微生物研究,通讯联系人,1624116019@qq.com。

炭表面的官能团,使其在活性炭表面能够产生新的含氧官能团,增强活性炭表面的亲水性^[5]。在对市售商用活性炭进行氧化改性处理后将制成活性炭电极,并探究其电化学吸附性能^[6]。

1 实验部分

1.1 材料与仪器

活性炭(市售粉末煤质活性炭);磷酸(A.R)、盐酸(分析纯)、硫酸(分析纯)、过硫酸铵,天津市盛奥化学试剂生产;聚偏氟乙烯(分析纯)、*N,N*-二甲基乙酰胺(分析纯)、石墨烯微片,成都艾科达化学试剂生产。

FlexSEM1000 扫描电子显微镜,日本日立高新技术那珂事业所生产; Nicolet 5700 智能傅里叶变换红外光谱仪,美国赛默飞世尔科技公司生产; ASAP 2460 全自动比表面积及孔径分析仪,麦克默瑞提克(上海)仪器有限公司生产; DDS-11A 数显电导率仪,上海雷磁·创益仪器仪表有限公司生产; CHI760E 电化学工作站,上海辰华仪器有限公司生产; MS-1201D 直流稳压电源,东莞市迈豪电子科技有限公司生产; HH-6 数显恒温水浴锅,常州德欧仪器制造有限公司生产。

1.2 实验方法

1.2.1 预处理

首先用煮沸的去离子水对活性炭进行浸渍、过滤;再将烘干后的材料进行研磨,干燥保存备用;准确称取 50 g 活性炭,加入 1 000 mL 盐酸(5%),不断搅拌使其充分混合,浸渍 24 h 后过滤;用煮沸的蒸馏水反复清洗过滤后的活性炭,直到清洗后的滤液电导率小于 10 $\mu\text{S}/\text{cm}$,对滤样进行干燥得到预处理的活性炭,将其命名为 AC。

1.2.2 氧化改性

称取 1.6 g 的 AC 置于 100 mL 烧杯中,加入 40 mL $(\text{NH}_4)_2\text{S}_2\text{O}_8$ 氧化剂,用玻璃棒进行搅拌;将烧杯置于一定温度的恒温水浴锅内,浸渍改性一定时间后进行过滤;用煮沸去离子水清洗改性后的滤样,使电导率小于 10 $\mu\text{S}/\text{cm}$ 后,将其于 80 $^\circ\text{C}$ 下干燥。 $(\text{NH}_4)_2\text{S}_2\text{O}_8$ 改性后的活性炭记为 APS-AC。

1.2.3 电极制备

以活性炭:聚偏氟乙烯:导电剂质量比为 8:1:1 进行配比。将设定好质量的 PVDF 加入烧杯中,加入适量 *N,N*-二甲基乙酰胺,让其在超声下完全溶解;然后向其中加入导电剂,继续超声完全溶解;最后加入改性后的活性炭,将烧杯放于磁力搅拌器上,

使其中的混合物均匀混合;将混合物均匀涂覆在石墨纸表面,最后将涂有混合物的石墨纸置于烘箱中烘干,得到电吸附电极^[7]。

1.2.4 比电容测定

利用电化学工作站对电极进行循环伏安测试,其中电解液浓度为 0.5 mol/L NaCl 溶液,扫描速率为 0.005 V/s,并计算电极比电容^[8]:

$$C_s = [1/mv(U_f - U_i)] \int_{U_i}^{U_f} I(U) dU \quad (1)$$

式中: C_s 为电极的质量比电容, F/g; m 为活性组分的质量, g; v 为扫描速率, V/s; I 为电流强度, A; U_i 和 U_f 分别为扫描的起始电压和终止电压, V; U 为扫描电压, V。

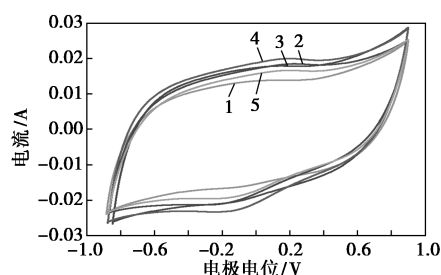
2 结果与讨论

2.1 改性剂浓度比选

以 AC 为电极原材料,采用不同的 $(\text{NH}_4)_2\text{S}_2\text{O}_8$ 按照 1.2 的步骤对其进行氧化改性,并制备成电极,以比电容为评价指标,对比筛选出最佳改性的 $(\text{NH}_4)_2\text{S}_2\text{O}_8$ 进行后续实验。 $(\text{NH}_4)_2\text{S}_2\text{O}_8$ 不同改性下 APS-AC 的比电容值如表 1 所示。不同 $(\text{NH}_4)_2\text{S}_2\text{O}_8$ 水平下的 CV 曲线如图 1 所示。

表 1 不同改性剂下的比电容值

$c[(\text{NH}_4)_2\text{S}_2\text{O}_8]/$ ($\text{mol}\cdot\text{L}^{-1}$)	0.2	0.5	1.0	1.5	2.0
比电容/($\text{F}\cdot\text{g}^{-1}$)	160.516	180.140	190.889	204.445	177.813



1—0.2 mol/L; 2—0.5 mol/L; 3—1.0 mol/L;
4—1.5 mol/L; 5—2.0 mol/L

图 1 不同 $(\text{NH}_4)_2\text{S}_2\text{O}_8$ 浓度下 APS-AC 电极的 CV 曲线

从图 1 中可以看出,不同浓度 $(\text{NH}_4)_2\text{S}_2\text{O}_8$ 进行改性后 APS-AC 循环曲线积分面积较大,形状对称、规整,有较为明显的氧化还原峰,说明该电极材料具有较高的析氢电位,发生了电解反应并且改性后 AC 表面出现了含氧官能团。其中 1.5 mol/L 的 $(\text{NH}_4)_2\text{S}_2\text{O}_8$ 改性后的 APS-AC 电极的 CV 曲线所

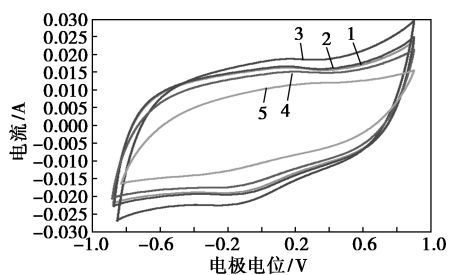
围面积更大,电化学性能更好,原因是随着 $(\text{NH}_4)_2\text{S}_2\text{O}_8$ 浓度的增大,AC 被完全氧化,与表 1 结论符合,最终选取 1.5 mol/L 的 $(\text{NH}_4)_2\text{S}_2\text{O}_8$ 进行后续实验。

2.2 APS-AC 材料制备

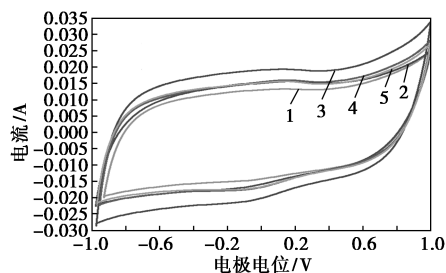
利用单因素实验对 APS-AC 的制备条件进行初步确定。实验中各因素水平对应的比电容值如表 2 所示,不同炭量、时间、温度 CV 图像(扫描速率为 5 mV/S,电位范围为 -1.0~1.0 V)如图 2 所示。

表 2 实验因素与对应比电容水平表

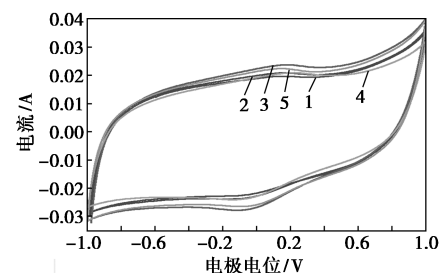
炭量/g	0.8	1.2	1.6	2.0	2.4
比电容/(F·g ⁻¹)	172.446	177.165	193.948	154.164	142.472
时间/h	1	3	5	7	9
比电容/(F·g ⁻¹)	146.777	166.663	218.110	173.441	172.116
温度/°C	30	40	50	60	70
比电容/(F·g ⁻¹)	218.858	226.313	252.730	233.960	213.814



1—0.8 g; 2—1.2 g; 3—1.6 g; 4—2.0 g; 5—2.4 g
(a) 炭量不同



1—1 h; 2—3 h; 3—5 h; 4—7 h; 5—9 h
(b) 浸渍时间



1—30°C; 2—40°C; 3—50°C; 4—60°C; 5—70°C
(c) 改性温度

图 2 不同条件下 APS-AC 电极的 CV 曲线

从图 2(a)中可以看出,以炭量为变量制备的 APS-AC 的 CV 曲线接近于矩形,说明其内部具有双电层电容,从 CV 曲线的形状和积分面积可以看出,当添加质量为 1.6 g 时,APS-AC 的比电容值最高,这与表 2 中结果相符合。原因是随着炭量的逐渐增加,AC 表面活性位点与 $(\text{NH}_4)_2\text{S}_2\text{O}_8$ 充分接触反应形成新的化学键,而当炭量过多时,AC 表面活性位点不能与 $(\text{NH}_4)_2\text{S}_2\text{O}_8$ 充分接触反应形成新的化学键,因此 APS-AC 电极的比电容降低。

从图 2(b)中可以看出,伏安曲线形状近似矩形,随着浸渍时间的增加,APS-AC 的循环伏安曲线的面积逐渐增大,当浸渍时间为 5 h 时达到最大,与表 2 中的结论相同。这是因为随着接触时间的增加,二者之间形成的化学键数量增加,AC 被充分被氧化。CV 曲线中的氧化还原峰不明显,说明该电极材料具有一定的稳定性。

从图 2(c)可知,不同的改性温度下 APS-AC 的循环伏安曲线呈现良好的对称性,在 -0.2~+0.4 V 出现了氧化还原峰,说明 APS-AC 在温度改性后储能方式发生改变,由之前的方式变成了氧化还原化学储能,代表 APS-AC 电极内部出现了赝电容。

APS-AC 的 CV 曲线都具有矩形特性,表明该电极具有一定内阻,并且内部存在离子扩散与电子传递现象。曲线基本都关于中心对称,说明电极在应用过程中可逆性良好。改性后的 APS-AC 电极整体都发生了改变,其中内部通过化学反应、渗透作用等来造孔;外部是丰富其表面的含氧官能团,说明表面氧化改性使 APS-AC 具有了更加稳定的结构、可逆性也变的更好。

2.3 BBD 响应面优化

利用 Box-Behnken Design(BBD) 响应面法优化 APS-AC 材料制备工艺,并对因素间交互作用进行分析。BBD 响应面优化实验因素编码如表 3 所示。

表 3 BBD 实验因素水平表

因素	各因素水平取值		
	-1	0	1
炭量(A)/g	1.2	1.6	1.8
温度(B)/°C	40	50	60
时间(C)/h	3	5	7

2.3.1 实验结果

利用 Design-Expert V8.0.6 对 APS-AC 制备的 3 个影响因素进行 BBD 实验设计,共 17 组,中心组

重复 3 次。BBD 实验测试结果如表 4 所示。

表 4 BBD 实验测试结果

编号	炭量/g	温度/°C	时间/h	比电容/(F·g ⁻¹)
1	1.2	40	5	212.218
2	1.6	40	7	208.826
3	1.6	40	3	190.842
4	2.0	40	5	179.421
5	1.2	50	3	206.034
6	1.2	50	7	190.111
7	1.6	50	5	268.213
8	1.6	50	5	243.390
9	1.6	50	5	264.866
10	1.6	50	5	260.649
11	1.6	50	5	249.213
12	2.0	50	3	176.465
13	2.0	50	7	187.683
14	1.2	60	5	206.936
15	1.6	60	7	226.675
16	1.6	60	3	233.904
17	2.0	60	5	218.768

2.3.2 方差分析

通过对实验结果进行拟合建立回归模型,得到电极比电容值 Y 与炭量(A)、温度(B)与时间(C)的方程如下:

$$Y = -714.38174 + 580.76544A + 12.27109B + 73.14944C + 2.78931AB + 8.48156AC - 0.31516BC - 243.49672A^2 - 0.13971B^2 - 7.05837C^2$$

比电容值 Y 的回归方程方差分析结果如表 5 所示。

表 5 比电容函数的方差分析

参数	平方和	自由度	均方	F 值	P 值	
模型	13914.42	9	1546.05	18.61	0.0004	显著
A	350.62	1	350.62	4.22	0.0790	
B	1127.56	1	1127.56	13.57	0.0078	
C	4.58	1	4.58	0.055	0.8212	
AB	497.94	1	497.94	5.99	0.0442	
AC	184.16	1	184.16	2.22	0.1802	
BC	158.92	1	158.92	1.91	0.2092	
A^2	6390.91	1	6390.91	76.92	<0.0001	
B^2	821.84	1	821.84	9.89	0.0163	
C^2	3356.33	1	3356.33	40.40	0.0004	

残差	581.61	7	83.09		
失拟项	135.18	3	45.06	0.40	0.7589 不显著
误差	446.44	4	111.61		
总误差	14496.04	16			

注: $R^2 = 0.9599$; $R^2_{\text{Adj}} = 0.9083$; $R^2_{\text{Pred}} = 0.8027$; 信噪比 = 11.812。

由表 5 的方差分析结果可知, F 值为 18.61, P 值小于 0.001, 说明模型整体显著性良好, 失拟项不显著 ($P = 0.7589 > 0.05$), 模型的拟合度较好, 代表该方差分析具有统计学意义。决定系数 $R^2 = 0.9599$, 调整决定系数 $R^2_{\text{Adj}} = 0.9083$, 预测决定系数 $R^2_{\text{Pre}} = 0.8027$, 说明预测值与实测值相关度极高, 与拟合度高的结论相同。信噪比为 11.812, 说明此方差分析的可信度较高^[9]。各因素对比电容值的影响为: 温度(B) > 炭量(A) > 时间(C), 另外, 通过方差分析结果还可以看出, 3 个因素的一次项及平方项均对比电容值影响为显著^[10]。

2.3.3 交互作用

对 APS-AC 材料制备中各因素间的交互作用进行分析。改性 5 h 的条件下, 炭量和温度对 APS-AC 电极比电容的交互作用如图 3 所示。

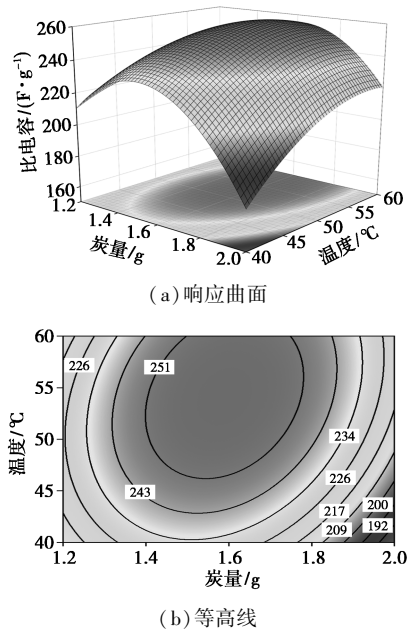


图 3 炭量与温度的响应曲面和等高线

从图 3 中可以看出, 等高线图趋于椭圆形且响应曲面陡峭, 说明炭量与温度两因素交互影响作用较强。由图 3(a) 可以看出, 当温度一定时, 曲面整体坡度受炭的添加量影响波动较大。

在改性温度为 50°C 的条件下, 活性炭添加量和改性时间对 APS-AC 电极比电容的交互作用如图 4

所示。

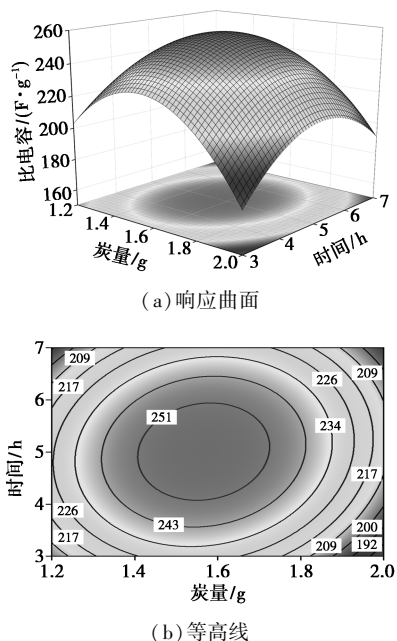


图 4 炭量与时间的响应曲面和等高线

从图 4 中可以看出,碳量与时间交互作用等高线图十分接近正圆,表明炭量与时间交互作用对比电容值有影响,但影响作用并不强。从图 4(a)可知,反应时间不变时,电极比电容值随着碳添加量的升高先增高后降低。这也与方差分析中的 P 值结果一致。在炭量为 1.4~1.8 g、时间为 4~6 h 时,APS-AC 电极比电容较大,与图 2 的结论符合。

在炭量为 1.60 g 的条件下,改性温度和时间对 APS-AC 电极比电容交互作用如图 5 所示。

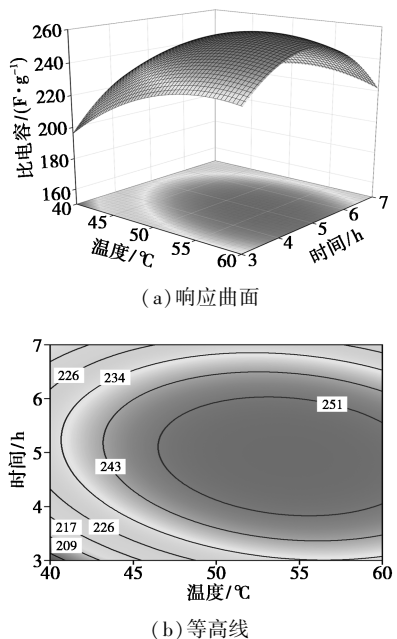


图 5 温度与时间的响应曲面和等高线

由图 5 可见,当改性时间达到中间值,响应曲面平整顺滑且等高线近似于圆形,表明温度与反应时间对电极比电容值有一定的影响但交互影响较弱^[11]。由等高线图可以看出,随着温度和时间增大,APS-AC 电极的比电容值先升高后降低,与图 2 的结论一致。

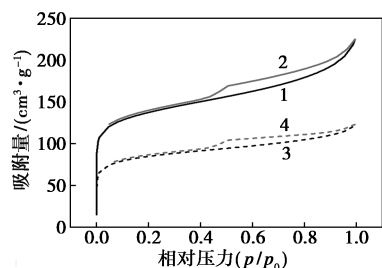
2.3.4 模型预测及验证

利用回归方程预测 APS-AC 材料制备的最佳条件为:炭量为 1.59 g、温度为 54.22℃、改性时间为 4.93 h,此时理论电极比电容为 259.850 F/g。为了验证此模型的准确性,通过前述条件进行 3 组平行实验。实验结果表明,APS-AC 电极的平均比电容为 252.489 F/g,因此,用该模型来优化 APS-AC 材料制备工艺是可靠的。

3 APS-AC 表征

3.1 比表面积及孔径分析测试

分别对 AC 和 APS-AC 材料进行 BET 测试,其氮气吸脱附等温线如图 6 所示,电极材料孔结构参数如表 6 所示。



1—AC 吸附;2—AC 脱附;3—APS-AC 吸附;4—APS-AC 脱附

图 6 氮气吸脱附等温线

表 6 AC 与 APS-AC 孔结构参数

样品	比表面积/ ($\text{m}^2 \cdot \text{g}^{-1}$)	总孔容/ ($\text{cm}^3 \cdot \text{g}^{-1}$)	微孔孔容/ ($\text{cm}^3 \cdot \text{g}^{-1}$)	平均孔径/ nm
AC	833.329	0.314	0.1287	5.167
APS-AC	485.722	0.181	0.0834	4.480

由图 6 可知,改性前后 AC 在 $p/p_0 < 0.1$ 范围内吸附量增大且吸附速率快,说明改性前后的 AC 都含有大量的微孔且集中分布; $p/p_0 > 0.1$ 后,此时 AC 的吸附方式主要依靠介孔,导致活性炭吸附速率减慢,这是由于脱附过程中 AC 的孔径或孔数量发生改变导致脱附等温线出现滞后环。

由表6可知,AC的微孔孔容为 $0.1287\text{ cm}^3/\text{g}$;而改性后的APS-AC微孔孔容仅为 $0.0834\text{ cm}^3/\text{g}$ 。经过预处理的AC在比表面积和总孔容上与APS-AC相比具有明显优势,这是由于在第1阶段的盐酸预处理中,AC中稳定性低的组分形成挥发性组分逸出,从而在AC内部形成了新的孔隙结构。当对AC继续改性时,受到温度、时间的影响,使APS-AC形成多级孔结构^[12]。总孔容有所下降是由于改性剂堵塞了AC表面少部分孔隙,在焙烧过程中平均孔径变小,这是因为有部分微孔被烧毁^[7]。这与 N_2 吸-脱附等温线中吸附量的结果一致。

3.2 扫描电镜测试

分别对AC、APS-AC进行SEM测试,结果如图7所示。

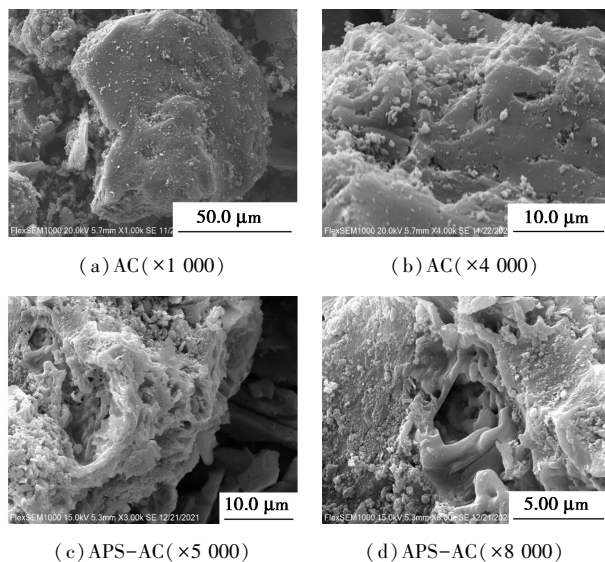


图7 AC和APS-AC扫描电镜图

由图7(a)和图7(b)中可以看出,经过预处理的AC表面杂质较少,孔隙堵塞现象较少,含有各种大小和形状的宏观和微观孔隙,提供了有效吸附位点和空间^[13],这更有利于提升其在电吸附中的吸附效果^[14];由图7(c)和图7(d)中可以看出,APS-AC边缘变的更加紧密和规则,杂质较少,孔隙结构发达,说明盐离子可以在电吸附过程中更好地转移和吸附^[15]。

3.3 EDS分析

AC和APS-AC的EDS测试及元素分布如图8所示。

由图8中可以看出,APS-AC中的O含量增加是由于含氧官能团的形成,而改性后的活性炭的C含量降低是由于含氧官能团在高温下的热解,修饰

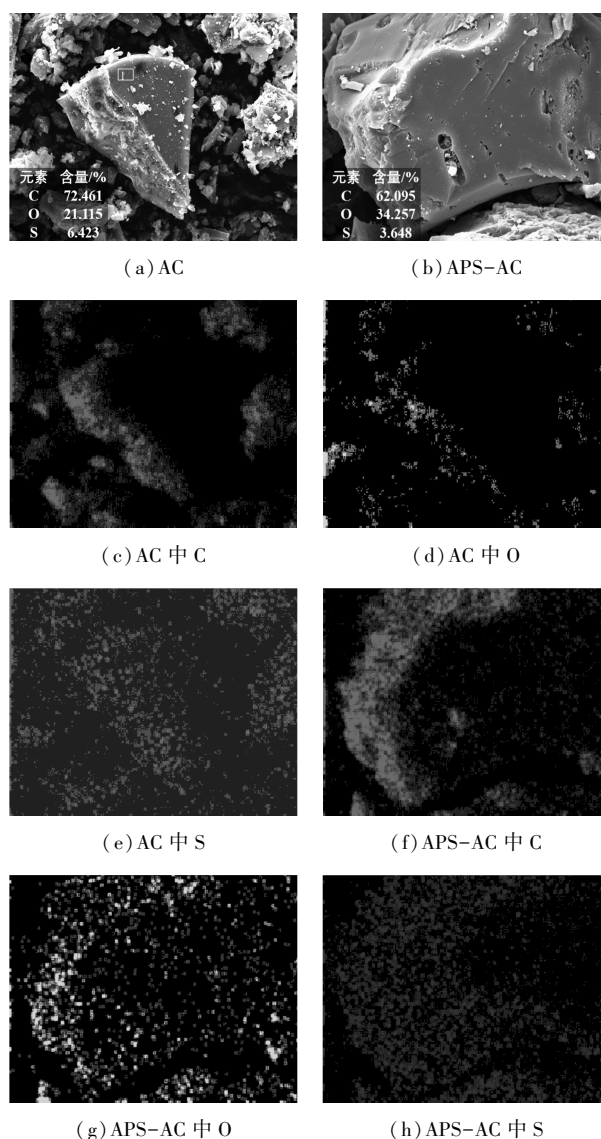


图8 AC和APS-AC的EDS分析及元素分布

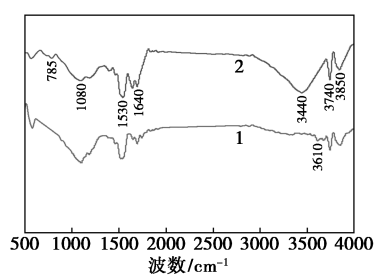
后的碳量减少^[16]。

对比AC与APS-AC可知,AC中O元素不仅含量少,而且在AC表面分布也少,而APS-AC中O和S元素含量增多,并且O元素在APS-AC表面的分布数量明显增多,说明利用 $(\text{NH}_4)_2\text{S}_2\text{O}_8$ 对AC进行改性可以在表面增加O元素的含量,并在其表面引入含氧官能团。

3.4 傅里叶红外光谱测试

AC和APS-AC的FT-IR测试结果如图9所示。

从图9中可以看出, 1080 cm^{-1} 处的吸收峰变小, 3440 cm^{-1} 处的吸收峰变大, 3610 cm^{-1} 处吸收峰消失, 785 cm^{-1} 处出现新的吸收峰,说明APS-AC表面官能团数量发生明显变化。 785 cm^{-1} 处对应的吸收峰为C—H面外弯曲振动; 1080 cm^{-1} 处对应的吸收峰为C—H面内弯曲振动; 1530 cm^{-1} 处吸收峰为



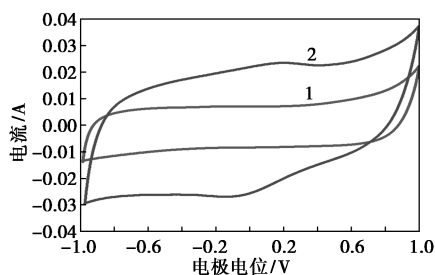
1—AC; 2—APS-AC

图 9 AC 和 APS-AC 的 FT-IR 测试结果

C=C 键伸缩振动; 1 640 cm^{-1} 处吸收峰应为 C=O 伸缩振动; 3 440 cm^{-1} 处吸收峰为 O—H 伸缩振动。综上, APS-AC 表面含有更多含氧官能团, 这使 APS-AC 具有更好的润湿性, 其更容易与溶液接触, 并有利于离子的转移。

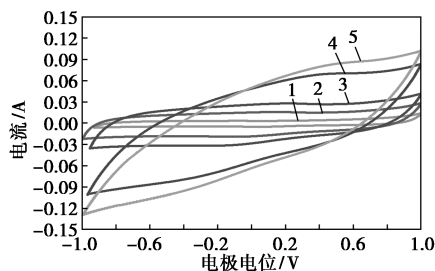
3.5 循环伏安测试

AC 电极和 APS-AC 电极进行 CV 测试结果如图 10 所示。



1—AC 电极; 2—APS-AC 电极

(a) AC 电极和 APS-AC 电极的 CV 曲线



1—1 mV/s; 2—5 mV/s; 3—10 mV/s; 4—50 mV/s; 5—100 mV/s

(b) APS-AC 电极在不同扫描速率(1、5、10、50、100 mV/s)下的 CV 曲线

图 10 AC 电极和 APS-AC 电极循环伏安测试结果

由图 10(a) 中可以看出, AC 电极 CV 曲线循环对称性能良好, 并没有出现明显的氧化还原峰, AC 电极比电容为双电层电容, 无赝电容存在; 但是其曲线所围面积远小于 APS-AC 电极, 表明其电极电化学性能要远逊于 APS-AC 电极。

从图 10(b) 中可以看出, 在 100 mV/s 的扫描速

率下 CV 曲线更接近中心对称图形, 说明 APS-AC 在高扫描速率下更能够快速地形成双电层, 电极材料具有更稳定的电化学性能。当扫描速率过慢时, APS-AC 电极与电解液没有充分接触, 电化学反应不彻底^[17]。

4 结论

(1) 通过对比不同浓度的 $(\text{NH}_4)_2\text{S}_2\text{O}_8$ 改性后 APS-AC 的比电容值, 得到 1.5 mol/L 的 $(\text{NH}_4)_2\text{S}_2\text{O}_8$ 改性后的 APS-AC 比电容最大, 达 204.445 F/g。

(2) 利用单因素分析得到 APS-AC 材料制备的较优工艺条件为: 1.6 g 的 AC 在 50℃ 下改性 5 h, 比电容可达 252.730 F/g。

(3) 利用 Box-Behnken 响应面法优化 APS-AC 材料制备条件, 各因素间的交互作用对电极比电容的影响显著程度由强至弱依次为: AB、AC、BC; 同时预测 APS-AC 电极材料制备的最佳为: 1.59 g 的 AC 在 54.22℃ 下改性 4.93 h, 电极比电容为 259.850 F/g; 经过实际验证, 实测比电容为 252.489 F/g, 误差较小。

(4) BET 测试结果表明, APS-AC 的比表面积相比 AC 降低了 41.71%, 同时总孔容和平均孔径也均下降; FT-IR 测试结果表明, APS-AC 含有更多数量的含氧官能团; SEM 测试结果表明, APS-AC 的表面光滑, 杂质较少, 孔隙结构发达; EDS 能谱分析结果表明, 改性后的 APS-AC 表面氧原子增多, 含氧官能团也增多。循环伏安测试表明, APS-AC 电极的电化学性能要远强于 AC 电极。

参考文献

- [1] Shi J, Huang W, Hanl H. Review on treatment technology of salt wastewater in coal chemical industry of China [J]. Desalination, 2020, 493: 114640.
- [2] 梁丽琛, 李子豪, 潘易, 等. 硼/FeO/H₂O₂ 体系对高盐废水中有机污染物的去除 [J]. 工业水处理, 2023, 43(6): 156-163.
- [3] Zhao X, Wei H, Zhao H, et al. Electrode materials for capacitive deionization: A review [J]. Journal of Electroanalytical Chemistry, 2020, 873: 114416.
- [4] 马清清, 赵世永, 白建国, 等. Mn(NO₃)₂ 改性无烟煤基活性炭电极材料特性 [J]. 应用化工, 2022, 51(1): 98-102.
- [5] 杨颖, 李磊, 孙振亚, 等. 活性炭表面官能团的氧化改性及其吸附机理的研究 [J]. 科学技术与工程, 2012, 12(24): 6132-6138, 47.
- [6] 罗枫, 黄帮福, 李建立, 等. HNO₃ 和 NaOH 改性椰壳活性炭吸附性能研究 [J]. 粉末冶金工业, 2022, 32(3): 81-85.

(下转第 181 页)