



多级串联膜电容去离子装置的脱盐性能

陈瑞程^{1,2}, 谷佳蓉^{1,2}, 余铭浩^{1,2}, 马俊俊^{1,2,✉}, 牛建瑞^{1,2}, 李耘科^{1,2}, 刘春^{1,2}

1. 河北科技大学环境科学与工程学院, 石家庄 050018; 2. 河北省污染防治生物技术实验室, 石家庄 050018

摘要 膜电容去离子 (membrane capacitive deionization, MCDI) 技术具有的装置简单、易操作、易再生、成本低、无污染、节能等优势, 使其成为一种新型的脱盐技术。为了提升 MCDI 的脱盐性能, 将多个装置的进水串联, 对每个装置单独加电来探究脱盐率, 平均脱盐速率、单位能量脱盐量等指标对多级串联的影响。结果表明, 在进水盐质量浓度、水力停留时间、电压等不同操作条件下, 二、三级 MCDI 串联脱盐率都提高了约 2、3 倍, 三级串联较二级串联的脱盐速率提升较小, 但具有更高的能耗。综合比较, 二级 MCDI 串联的脱盐性能更优, 并获得了最佳的操作条件为 $1.5 \text{ g}\cdot\text{L}^{-1}$, 0.375 min , 1.2 V 。在连续脱盐过程中, 多级串联能够连续稳定的去除盐离子, 并且具有较高的吸附容量, 表明了连续脱盐的可行性。研究结果对多级 MCDI 脱盐工程化应用具有指导意义。

关键词 膜电容去离子; 多级串联; 脱盐性能; 参数优化; 连续脱盐

在全球的水资源储量中, 淡水只占 2.53%, 而在这些淡水资源中, 只有 13% 可被人类直接利用^[1]。为了解决淡水资源紧缺问题, 除了对现有的水资源保护、合理利用, 还应积极开发利用其它水资源^[2]。膜电容去离子是一种无需加入任何化学物质的新型脱盐技术, 其原理是通过在电极两端施加电压, 进水中的盐离子在电场力的作用下通过离子交换膜吸附在电极表面的双电层 (electric double layer, EDL) 上, 出水得到净化, 从而达到脱盐的目的^[3]。与反渗透^[4]、电渗析^[5-6]、膜蒸馏^[7]、离子交换^[8]等传统脱盐方法相比, MCDI 表现出装置简单、易操作、电极易再生、成本低、无污染、节能等优势, 尤其是在低盐度盐水淡化中的优势更明显。离子交换膜具有高选择性的特点, 能够阻碍反离子的通过, 可有效避免同离子效应, 提高电荷效率^[9], 且电极上不易发生有机污染^[10-11]。除了脱盐, MCDI 还实现了选择性去离子、资源回收等功能。目前对 MCDI 的研究主要集中在以下几个方面: 离子迁移储存机制与模型、电极材料^[12]、加电方式以及装置构型等^[13]。

MCDI 为低电压驱动运行, 单级装置运行下, 脱盐效率低, 且出水水质难以达标。为了解决这一难题, 很多学者采用了电极堆叠和膜堆叠的方法。LEE 等^[14]通过对多个电极堆叠的方式, 进行了对每个电极都加电的单级和只对边缘电极加电的双极脱盐实验的研究, 结果表明双极性堆叠的 (capacitive deionization, CDI) 电极具有较高的脱盐速率和能量损耗。MA 等^[15]组建了多对膜装置, 比较了 1 对、2 对和 3 对离子交换膜装置的脱盐性能, 研究发现, 2 对膜的脱盐速率约为一对膜的 2 倍, 3 对膜装置的脱盐速度反而不如两对膜装置的, 结果表明了靠无限制的膜堆叠提高脱盐性能的方法行不通。电极堆叠^[16]和膜堆叠都能够提高脱盐速率, 但受到单级装置的限制, 其脱盐性能受限。还有一些学者通过 MCDI 装置串、并联的方法来提高脱盐性能, SALEEM 等^[17]将 CDI 技术与反电渗析技术 (reverse electrodialysis, RED) 相结合, 对 4 个 CDI 装置进行了串联和并联操作, 吸附过程中 4 个装置并联连接, 解吸过程中 4 个装置串联连接。该工艺通过 RED 产生的能量能再次用于 CDI 脱盐, 该系统将产水能耗从 $1.5 \text{ kJ}\cdot\text{L}^{-1}$ 降低到了 $0.58 \text{ kJ}\cdot\text{L}^{-1}$ 。CHENG 等^[18]将多个 CDI 装置串联, 提高了电极的吸附性能。MCDI 与传统脱盐技术相比, 在适度脱盐上具有明显优势, 在其他多级串联 MCDI 研究中, 未曾对体系中的单级装置的脱盐过程进行单独调控, 本工作创新性地提出通过对体系中的装置单独加电降低运行能耗, 并从多角度对脱盐性能进行了优化研究。而且多装置在维护方面也更有优势, 且单级装置维修时又不影响其它装置的运行, 多级串联对于 MCDI 脱盐工程化具有深远意义。

收稿日期: 2023-08-11; 录用日期: 2023-10-20

基金项目: 国家重点实验室专项基金课题 (22K05ESPCT); 河北省高等学校科学技术研究项目 (QN2022038)

第一作者: 陈瑞程 (1998—), 男, 硕士研究生, RcChen365@163.com; ✉通信作者: 马俊俊 (1991—), 女, 博士, 讲师, majj16@163.com

本研究采用多级串联 MCDI 的方法, 通过将各级进出水连接, 不仅可以达到深度脱盐的目的, 而且还能收集不同浓度的出水, 以期适应不同需求。还能针对不同盐度的盐水采用不同的处理方式, 避免脱盐不充分, 能源浪费等问题。也可根据脱盐过程的具体要求, 对不同级 MCDI 装置进行单独加电控制, 以节省能耗。实验研究了一级、二级、三级串联 MCDI 装置出水水质的脱盐性能, 从电压、水力停留时间和盐水质量浓度等方面进行了优化, 最后又分析了多级串联 MCDI 连续脱盐的稳定性。

1 材料与方法

1.1 实验材料

超级电容活性炭 (activated carbon, AC), 购自福州益环碳素有限公司 YEC-200D。炭黑 (carbon black, CB), 购自阿法埃莎 (中国) 化学有限公司; 聚四氟乙烯 (polytetrafluoroethylene, PTFE), 购自东莞市展阳高分子材料有限公司; 无水乙醇和氯化钠, 购自天津市永大化学试剂有限公司, 所用试剂均为分析纯, 且未经二次处理。

1.2 电极制备

活性炭电极按 AC:CB:PTFE=8:1:1 的比例构成, PTFE 作为材料粘结剂。分别称取 0.288 g AC 和 0.036 g CB 放入 25 mL 烧杯中, 加入 0.036 μL 的 PTFE 和适量无水乙醇搅拌均匀, 材料粘结成橡皮泥状后均匀涂覆在 45 mm \times 50 mm 导电钛网上, 用压片机 (压力 0.2 MPa) 对电极材料进行压片, 最后置于 50 $^{\circ}\text{C}$ 烘箱中干燥 5 min。

1.3 实验装置

图 1 为多级串联 MCDI 示意图, 本实验将 3 个 MCDI 装置进行串联, 每个 MCDI 装置由一个中间腔室 (45 mm \times 50 mm \times 0.5 mm), 5 个密封硅胶垫片, 一对钛片, 一对活性炭电极 (45 mm \times 50 mm) 和一对聚氯乙烯 (poly vinyl chloride, PVC) 塑料板组成。为了使盐水溶液在腔室中分布均匀, 将 100 目尼龙片 (45 mm \times 50 mm \times 0.5 mm) 作为布水分隔。电极片与离子交换膜的有效接触面积为 22.5 cm^2 。离子交换膜之间、PVC 塑料板与钛片之间、钛片与离子交换膜之间都用硅胶垫隔开, 装置末端用 PVC 塑料板固定。

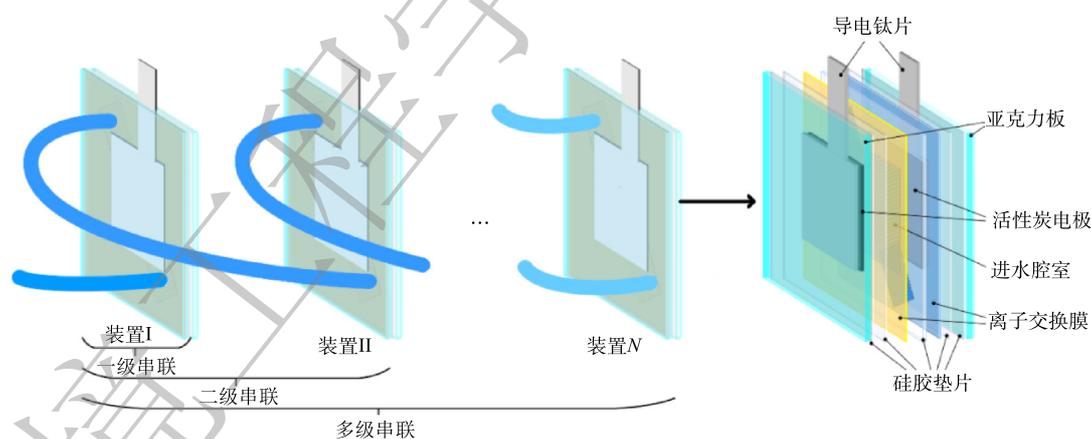


图 1 多级串联 MCDI 示意图

Fig. 1 Schematic diagram of multi-stage series MCDI

1.4 实验步骤

实验系统如图 2 所示, 所有的实验的进水采用单向流 (single pass) 模式^[9], 进水流采用下进上出式, 盐水经蠕动泵 (BT100-1L, 保定兰格恒流源有限公司) 依次流入装置 I、II、III, 每个装置分别由电源单独控制。从装置 III 流出的水与电导率仪 (S475-UMIX, 梅特勒 seven excellence) 探头连接, 用于实时监测出水的电导率变化。装置 I、II 和装置 II、III 之间加入三通, 分别在 3、7、11、15、19 min 时取约 1 mL 水样于 10 mL 离心管中, 用于测定一级出水和二级出水时的电导率。装置电压通过电化学工作站 (3605H, 深圳市艾维泰科仪器仪表有限公司) 调节, 对三级装置施加相同的直流恒定电压 (constant voltage, CV)。所有装置同时加电 180 s 后, 断电 60 s, 循环 5 次, 总时间 1 200 s, 实际加电时间为 900 s。水力停留时间通过调节蠕动

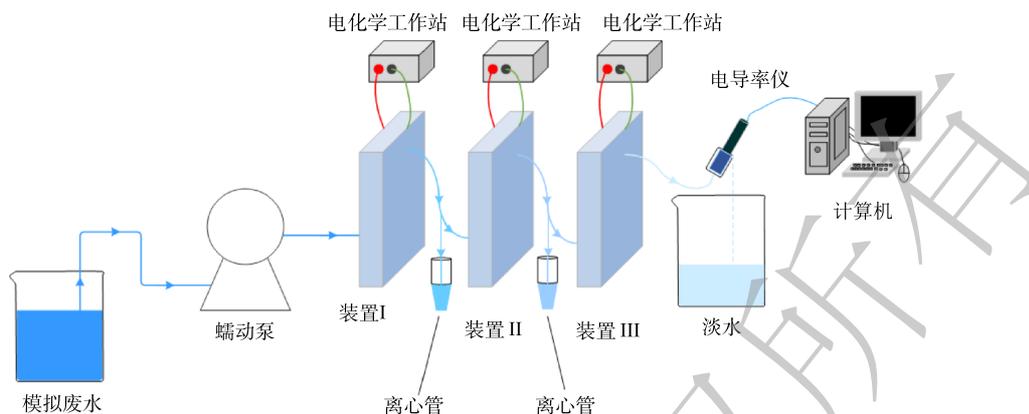


图 2 实验系统

Fig. 2 Experimental system

泵的转速来实现。为确保实验数据的可靠性，每组实验至少进行 2 次平行实验。对比一、二、三级串联下脱盐性能的实验条件：电压 0.8~1.2 V，水力停留时间 0.25~0.5 min，进水质量浓度 0.5~2.0 g·L⁻¹。连续脱盐实验条件：电压 1.2 V，水力停留时间 1.125 min，进水溶液 0.5 g·L⁻¹。在连续脱盐过程中，不进行断电操作，不单独取样。

1.5 实验计算

脱盐率 (salt removal efficiency, SRE)、平均脱盐速率 (average salt removal rate, ASRR)、单位能量脱盐量 (energy normalization removal salt, ENRS) 和吸附容量 (salt adsorption capacity, SAC) 等是衡量脱盐性能的几个重要指标。在低质量浓度时，NaCl 质量浓度与电导率呈正比关系^[20]。SRE 根据式 (1) 计算；ASRR 为单位腔室面积和单位时间内盐的去除量，根据式 (2) 计算；ENRS 为每焦耳去除的离子量，根据式 (3) 计算；SAC 为单位质量电极可以吸附盐的总量，根据式 (4) 计算。

$$\eta = \frac{C_0 - C_t}{C_0} \times 100\% \quad (1)$$

式中： η 为脱盐率，%； C_0 为进水溶液质量浓度，g·L⁻¹； C_t 为 t 时刻出水溶液质量浓度，g·L⁻¹。

$$\alpha = \frac{1\,000(C_0 - C_t)V}{58.5St} \quad (2)$$

式中： α 为平均脱盐速率， $\mu\text{mol}\cdot(\text{cm}^2\cdot\text{min})^{-1}$ ； S 为参与吸附的电极片的面积，cm²； V 为脱盐溶液的体积，mL； t 为实际加电时间，min。

$$\beta = \frac{1\,000(C_0 - C_t)V}{58.5U \int Idt} \quad (3)$$

式中： β 为单位能量脱盐量， $\mu\text{mol}\cdot\text{J}^{-1}$ ； U 为施加恒定电压的大小，V； I 为加电时的感应电流，A。

$$q_e = \frac{(C_0 - C_t)V}{m} \quad (4)$$

式中： q_e 为吸附容量，mg·g⁻¹； m 为电极片的质量，g。

2 结果与讨论

2.1 NaCl 质量浓度对串联 MCDI 脱盐性能的影响

在吸附过程中，电极的孔径只有大于临界孔径时，离子才会被储存在电极孔隙中，从而达到脱盐的目的。而进水浓度直接影响了临界孔径值，进水浓度越高，临界孔径值越小，参与吸附的孔隙越多，离子吸附就越多^[21]。图 3 反映了进水盐质量浓度对各级串联 MCDI 脱盐性能的影响。将 3 个装置的进水腔室串联，串联 MCDI 在不同 NaCl 质量浓度下的 SRE 如图 3(a) 所示。由图 3(a) 中可以看出，随着 NaCl 质量浓度的升高，各级串联 MCDI 的 SRE 都在下降。虽然进水 NaCl 质量浓度的升高增加了离子吸附量，但由于初始质量浓度的升高最终导致了 SRE 的降低。离子吸附量的增加可由图 3(b) 中的 ASRR 来反映，进水 NaCl 质

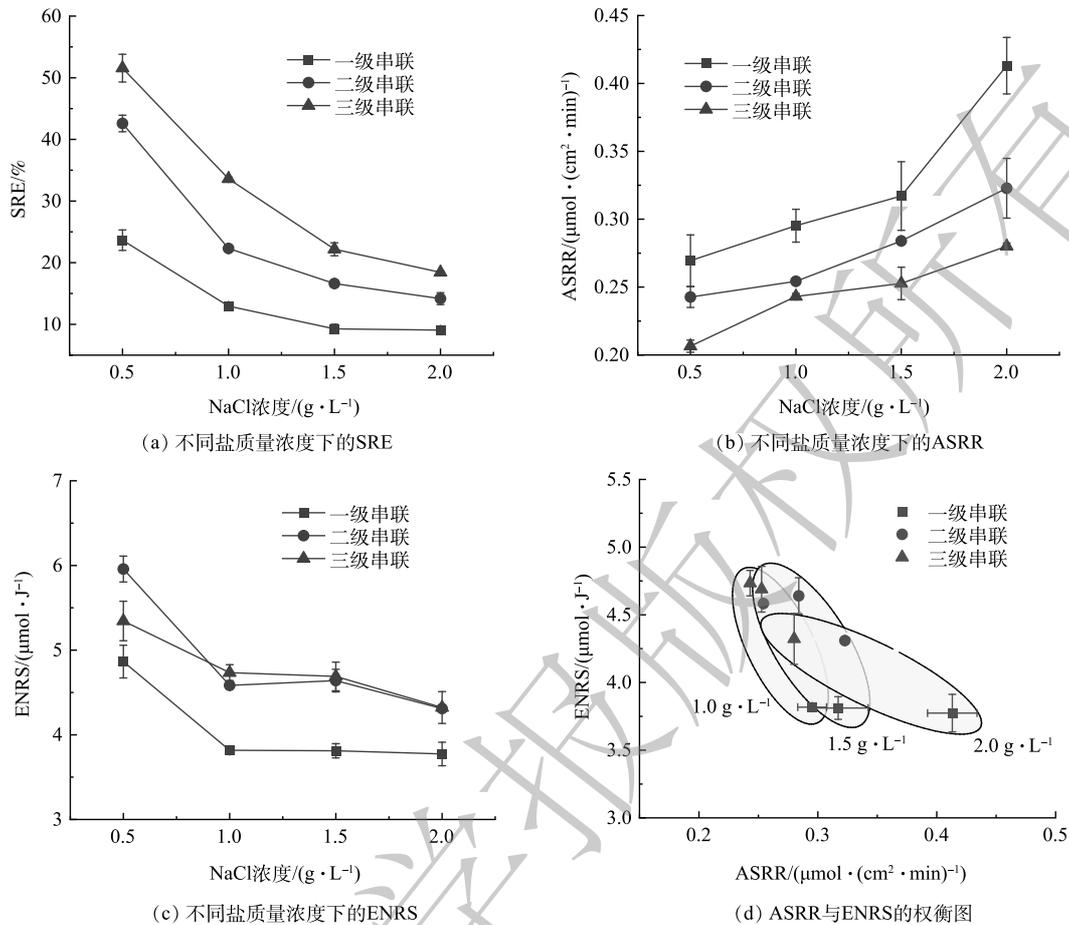


图3 不同 NaCl 质量浓度下的脱盐性能

Fig. 3 Desalination performance at different NaCl concentrations

量浓度越高, ASRR 越高, 表明离子吸附量越高。ENRS 反映了单位能量去除的盐量, ENRS 越高, 装置越节能。不同进水盐质量浓度的下的 ENRS 如图 3(c) 所示, 随着浓度的升高, 串联 MCDI 的 ENRS 在上升。造成这一结果的原因可能是, NaCl 浓度越高, 参与吸附的孔隙越多, 吸附离子所需的能量越多。

在相同进水质量浓度 (0.5~2.0 g·L⁻¹) 下, 随着串联级数的增加, SRE 和 ENRS 值增高, ASRR 值下降。说明串联 MCDI 能够有效提高脱盐率, 节省能量。而 ASRR 下降的原因可能是, 在吸附过程中, 盐水在流出前一个装置时质量浓度下降, 进入后续装置时质量浓度较低, 吸附离子量下降。因为进水浓度越高, 离子吸附越多, 所以这种差距在浓度越高时越明显。而 ENRS 上升的原因可能是, 后续装置进水浓度的下降使参与离子吸附的孔隙变少, 离子吸附所消耗的能量减少。在进水质量浓度为 0.5 g·L⁻¹ 时, 三级串联 ENRS 低于二级串联, 原因可能是, 装置 III 的进水质量浓度过低, 导致了临界孔径值过大, 参与吸附的孔隙过少, 吸附离子量过少^[22]。

不同进水浓度应按照串联级数严格控制, 使脱盐速率和能耗达到最优, 避免脱盐不充分和装置闲置等问题。利用进水质量浓度在 1.0~2.0 g·L⁻¹ 下数据构建了图 3(d) 的 ASRR 和 ENRS 的权衡图, 权衡图反映了 ASRR 与 ENRS 的权衡关系, 图中 ASRR 越高, 其 ENRS 越低。图 3(d) 结果显示, 二级串联和三级串联具有相似的 ENRS, 但二级串联的 ASRR 较高, 而一级串联虽然具有更高的 ASRR, 但其 ENRS 过低。在 1.5 g·L⁻¹ 时, 二级串联的 ENRS 最高, 其 ASRR 也较高。研究结果表明, 进水质量浓度的升高, 会使 ASRR 升高, ENRS 下降。不同串联级数在不同盐质量浓度下也会表现出不同的脱盐性能, 串联级数的增加, 会导致 ASRR 降低。而二级串联和三级串联的 ENRS 相差很小 (甚至在 0.5 g·L⁻¹ 时二级串联高于三级串联)。所以, 二级串联 MCDI 在能耗方面表现出更优异的性能, 比起三级串联更节省了装置成本与运行成

本, 尤其是在进水质量浓度为 $1.5 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$ 时。

2.2 水力停留时间对串联 MCDI 脱盐性能的影响

图 4 反映了水力停留时间对串联 MCDI 脱盐性能的影响。图 4(a) 随着水力停留时间的增加, SRE 也增加, 这是因为在相同时间内, 离子在腔室内停留时间越长, 离子从溶液中转移到电极材料表面的时间就越长, 电极表面吸附的离子吸附量就越多^[23], 这也会导致 ASRR 和 ENRS 的升高。相同时间内, 水力停留时间越长会导致流经腔室的溶液体积变少, 这也会使 SRE 升高。如图 4(b) 和图 4(c) 所示, ASRR、ENRS 的变化趋势相同, 均是在 0.375 min 时最高, 在 0.5 min 时最低, 可见水力停留时间过短和过长都不利于脱盐。水力停留时间过短时, 盐水更新速度快, 离子还未吸附到电极表面就流出腔室, 导致了离子吸附量的下降。水力停留时间太长时脱盐性能差的原因可能有 2 点: 一是水力停留时间太长时, 盐水更新速度慢, 溶液中过多的离子被转移到电极表面上, 导致溶液浓度较低, 临界孔径值较大, 参与吸附的离子孔隙变少, 电极吸附离子减少; 二是随着反应的进行, 电极表面的孔隙内已经堆积了大量的盐离子, 相同浓度的溶液再流入腔室后, 离子因没有吸附位点而无法被吸附^[22]。

不同水力停留时间下的 ASRR 与 ENRS 的权衡图如图 4(d), 水力停留时间在 0.375 min 时一、二、三级均具有更高的 ASRR 和 ENRS, 说明了水力停留时间在 0.375 min 时的脱盐性能更优。结果表明, 二级串联具有更好的脱盐性能。多级串联 MCDI 实验中水力停留时间对脱盐性能影响较大, 选择合适的水力停留时间才能发挥装置的最大性能, 实现高脱盐率, 低能耗的目标。

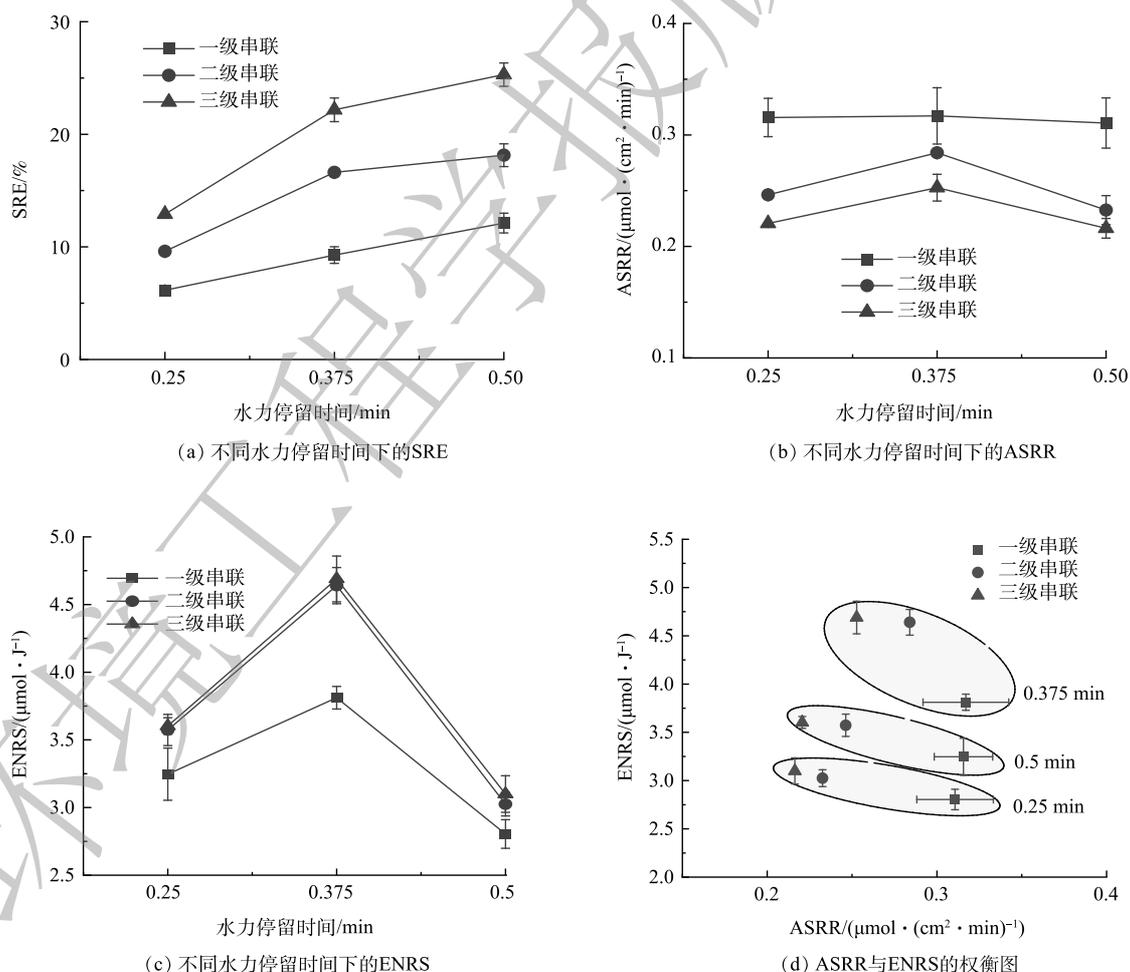


图 4 不同水力停留时间下的脱盐性能

Fig. 4 Desalination performance at different hydraulic retention times

2.3 电压对串联 MCDI 脱盐性能的影响

电压对串联 MCDI 装置的脱盐性能如图 5 所示, 由图 5(a)、图 5(b) 和图 5(c) 可以看出, SRE 和 ASRR 随电压升高而变高, ENRS 随电压升高而变低。可能的原因是, 电压作为 MCDI 装置中的驱动力, 电压的增加会增加双电层的厚度, 使参与吸附的有效孔隙增加, 增加了离子吸附量^[24]。MCDI 装置的充电过程也是能量储存过程, 而能量被储存到 MCDI 装置中伴随着能量的损失, 根据能量守恒定律, 当电压增加, MCDI 装置能够吸收储存的能量也增加, 能量损失也增加。在 MCDI 的装置中电压的不宜过高, 这是因为当电压超过 1.23 V 时, 就会产生水解作用, 影响电极吸附, 降低盐去除效率, 还会腐蚀电极板和离子交换膜^[22]。

图 5(d) 为不同电压下 ASRR 和 ENRS 的权衡图。可见, 当电压在 0.8~1.2 V 时, ASRR 越高, ENRS 越低。结果表明, 电压的增加会使 MCDI 装置吸附更多的离子, 但也要消耗更多的能量。串联级数的增加虽然会使脱盐总量上升, 但会降低其脱盐速率, 而二级串联和三级串联的能耗相似, 均比一级串联更节能。

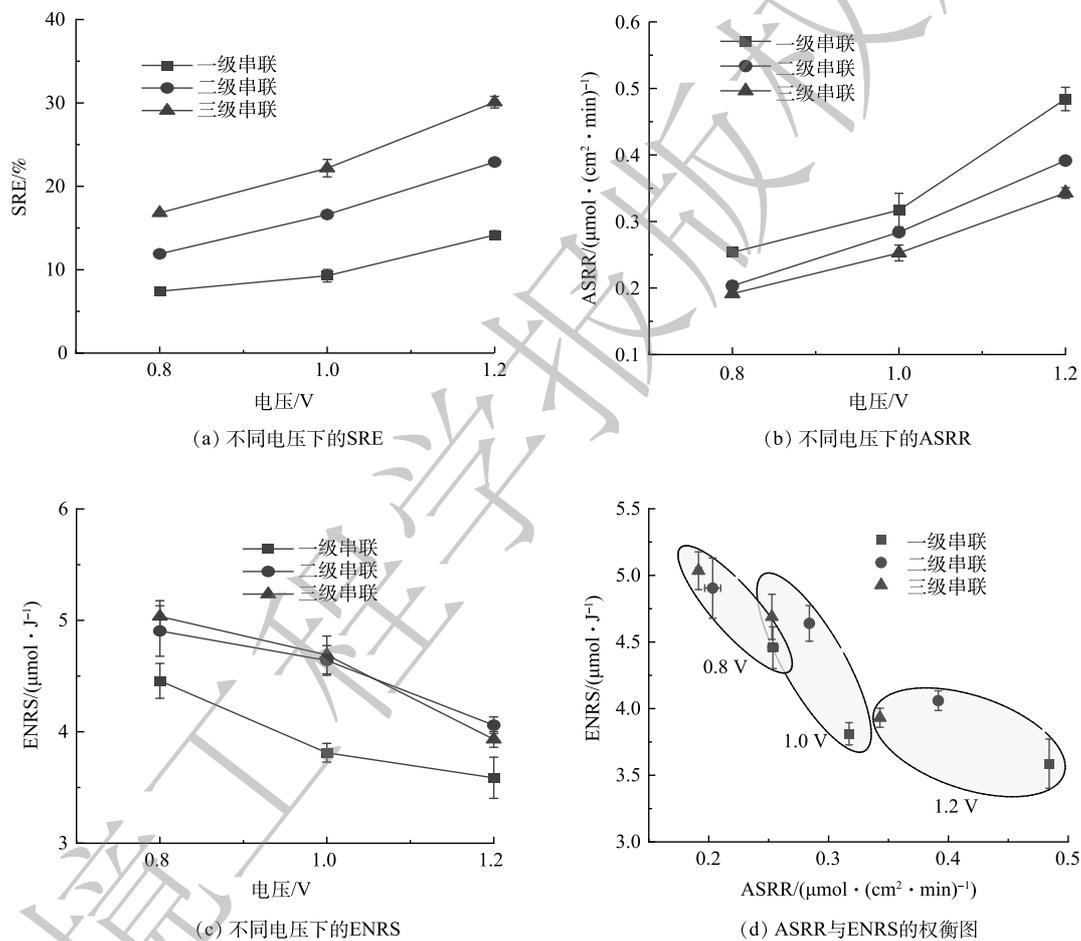


图 5 不同电压下的脱盐性能

Fig. 5 Desalination performance at different voltages

2.4 多级串联 MCDI 装置的连续脱盐性能

对多级串联 MCDI 装置进行了连续脱盐实验, 一、二、三级 ASRR 和 SAC 计算区域为 0~4 580、0~5 440、0~9 990 s, 此时进、出水的盐质量浓度相同, 表明电极吸附的离子已经饱和。图 6(a) 为多级串联 MCDI 装置出水的电导率图。二级串联相较于一级, 能够有效降低出水的电导率, 从 $481.75 \mu\text{S} \cdot \text{cm}^{-1}$ 下降到 $79.72 \mu\text{S} \cdot \text{cm}^{-1}$, 到三级串联电导率下降到了 $31.57 \mu\text{S} \cdot \text{cm}^{-1}$, 表明多级串联 MCDI 装置能够得到含盐量更低的出水。三级串联虽然也能够降低出水的浓度, 但 ASRR 较低。如图 6(b) 所示, 二级串联装置性能最佳, 比单级装置的 SAC 和 ASRR 分别提升了 30% 和 11%, 而三级串联的 SAC 只提升了 6%, ASRR 却降低了

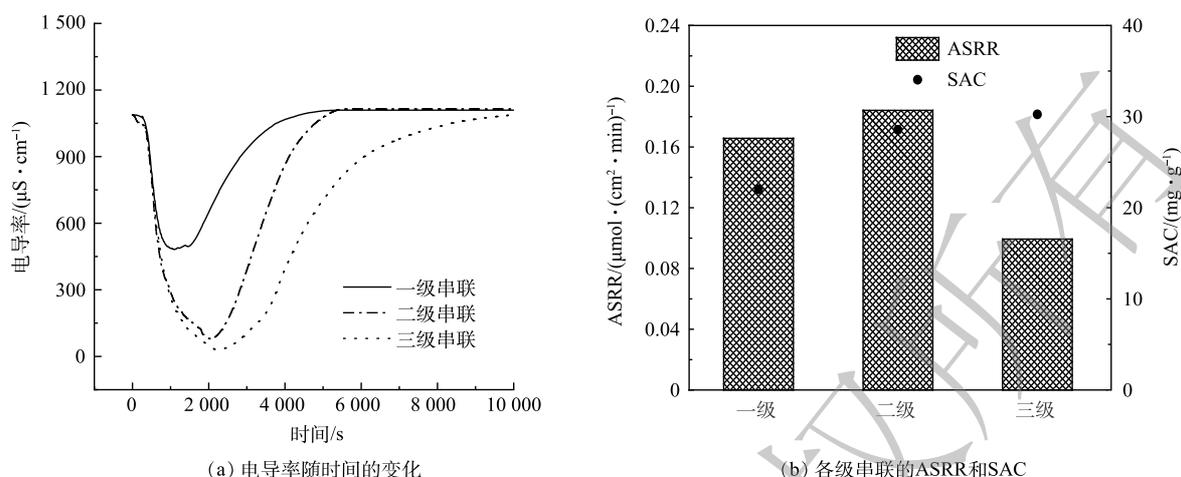


图 6 连续实验的脱盐性能

Fig. 6 Desalination performance of continuous experiments

85%。这一结果可能的原因从脱盐过程分析,大致分为3个阶段。1) 盐水在流出装置 I 和装置 II 后,盐水的浓度经两级装置吸附处理后过低,导致溶液流入装置 III 后的临界孔径值过大,可参与吸附的孔隙过少,离子吸附量过少。此阶段主要依靠装置 I 和装置 II 吸附离子。2) 随着充电时间的增加,装置 I 和装置 II 电极表面的孔隙中已经吸附了一些离子,因吸附位点减少导致离子吸附量减少,此时流入装置 III 的盐水质量浓度升高,临界孔径值减小,参与吸附的孔隙增加,离子吸附量增加。此阶段3个装置同时吸附离子。3) 随着充电时间再增加,装置 III 的表面也吸附了大量离子,这使得吸附离子的孔隙减少。而装置 I 和 II 的电极表面的孔隙先后吸附了大量的离子,离子因没有吸附位点而无法吸附,导致装置 III 的进水盐质量浓度再升高,参与吸附的孔隙增加,延长了 MCDI 吸附时间^[21-22]。此阶段只有装置 III 在吸附离子。所以,在串联 MCDI 脱盐过程中,应尽量避免和减少第 3 阶段。如果要求出水水质要求达到自来水标准 ($500 \mu\text{S} \cdot \text{cm}^{-1}$ 以下),二级串联就能以低电压达到很好的效果。在处理不同浓度的盐水时,应选择合适的 MCDI 串联级数,避免增加装置引来的经济效益和能量效益等问题。

3 结论

1) 研究采用多级串联 MCDI 装置的方法,大幅提高了脱盐性能。在不同操作条件下,二、三级串联的 SRE 都有较大提高,分别提高了约 2 倍和 3 倍。此外,对装置单独控制加电,还能够达到适度脱盐的目的。

2) 考察了一、二、三级 MCDI 串联下进水盐质量浓度、水力停留时间、电压对脱盐性能的影响,通过探究脱盐率,平均脱盐速率、单位能量脱盐量等指标,对 ASRR 与 ENRS 的权衡图进行比较,确定了最佳串联级数为二级串联(二、三级串联脱盐速率更快,但三级串联能耗极大),最佳操作条件为 $1.5 \text{ g} \cdot \text{L}^{-1}$ 的进水盐质量浓度, 0.375 min 的水力停留时间, 1.2 V 的电压。

3) 在连续脱盐实验中,多级串联 MCDI 装置可以连续稳定的去除盐离子,其吸附容量更优。本工作对多级 MCDI 脱盐工程化应用具有指导意义。

参考文献

- [1] FRY L M, MIHELICIC J R, WATKINS D W. Water and non-water related challenges of achieving global sanitation coverage[J]. *Environmental Science Technology*, 2008, 42: 4298-4304.
- [2] SHANNON M A, BOHN P W, ELIMELECH M. et al. Science and technology for water purification in the coming decades[J]. *Nature*, 2008, 452: 301-310.
- [3] ZHAO X Y, WEI H X, ZHAO H C. et al. Electrode materials for capacitive deionization: A review[J]. *Journal of Electroanalytical Chemistry*, 2020, 873: 114416.
- [4] ATIA A A, ALLEN J, YOUNG E. et al. Cost optimization of low-salt-rejection reverse osmosis[J]. *Desalination*, 2023, 551: 116407.
- [5] DOORNBUSCH G J, TEDESCO M, POST J W. et al. Experimental investigation of multistage electrodialysis for seawater desalination[J]. *Desalination*, 2019, 464: 105-114.
- [6] SHI J H, GONG L, ZHANG T. et al. Study of the seawater desalination performance by electrodialysis[J]. *Membranes*, 2022, 12(8): 12080767.
- [7] GOPI G, ARTHANAREESWARAN G, ISMAIL A F. Perspective of renewable desalination by using membrane distillation[J]. *Chemical Engineering Research and Design*, 2019, 144: 520-537.
- [8] ZHAO R J, XU J L, TAO P. et al. Clean water generation with switchable dispersion of multifunctional Fe_3O_4 -reduced graphene oxide particles[J]. *Progress*

- in *Natural Science:Materials International*, 2018, 28: 422-429.
- [9] YOON H, JO K, KIM K J. et al. Effects of characteristics of cation exchange membrane on desalination performance of membrane capacitive deionization[J]. *Desalination*, 2019, 458: 116-121.
- [10] TSAI S W, HACKL L, KUMAR A. et al. Exploring the electrosorption selectivity of nitrate over chloride in capacitive deionization (CDI) and membrane capacitive deionization (MCDI)[J]. *Desalination*, 2021, 497: 114764.
- [11] WANG C Y, CHEN L, LIU S S. et al. Nitrite desorption from activated carbon fiber during capacitive deionization (CDI) and membrane capacitive deionization (MCDI)[J]. *Colloids and Surfaces A:Physicochemical and Engineering Aspects*, 2018, 559: 392-400.
- [12] 刘洁, 王晓菊, 沈洁, 等. 活性炭与炭黑混合电极的脱盐性能及相关工艺参数的优化[J]. *环境工程学报*, 2022, 16(3): 875-885.
- [13] FOLARANMI G, BECHELANI M, SISTAT P. et al. Towards electrochemical water desalination techniques: A review on capacitive deionization, membrane capacitive deionization and flow capacitive deionization[J]. *Membranes (Basel)*, 2020, 10(5): 10050096.
- [14] LEE J K, KIM Y E, KIM J. et al. Comparable mono and bipolar connection of capacitive deionization stack in NaCl treatment[J]. *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*, 2012, 18(2): 763-766.
- [15] MA J X, MA J J, ZHANG C Y. et al. Flow-electrode capacitive deionization (FCDI) scale-up using a membrane stack configuration[J]. *Water Research*, 2020, 168: 115186.
- [16] PARK S K, CHOI J H. Desalination characteristics in a membrane capacitive deionization stack with carbon electrodes connected in series[J]. *Separation and Purification Technology*, 2019, 209: 152-158.
- [17] SALEEM M W, JANDE Y A C, KIM W S. Performance optimization of integrated electrochemical capacitive deionization and reverse electrodialysis model through a series pass desorption process[J]. *Journal of Electroanalytical Chemistry*, 2017, 795: 41-50.
- [18] CHENG F, DING B, LI X. Research on double-stage and multi-stage capacitive deionization absorption air-conditioning system[J]. *Processes*, 2021, 9(2): 9020395.
- [19] 王祺, 房阔, 贺慧慧, 等. 流动电极电容去离子技术综述: 研究进展与未来挑战[J]. *化工学报*, 2022, 73(3): 975-989.
- [20] 沈洁, 刘洁, 王晓菊, 等. 膜电容去离子电极中导电剂类型及掺杂比对脱盐性能的影响[J]. *环境科学学报*, 2022, 42(10): 293-302.
- [21] YING T Y, YANG K L, YIACOUMI S. et al. Electrosorption of ions from aqueous solutions by nanostructured carbon aerogel[J]. *Journal of Colloid and Interface Science*, 2002, 250(1): 18-27.
- [22] 郭宁, 郭婷, 陈方方. 电容去离子脱盐影响因素的研究进展[J]. *四川化工*, 2023, 26(3): 11-15.
- [23] MOSSAD M, ZOU L. A study of the capacitive deionisation performance under various operational conditions[J]. *Journal of Hazardous Materials*, 2012, 213-214: 491-497.
- [24] 代凯, 朱光平, 刘忠良, 等. 纳米碳管电吸附氯化钠性能的研究[J]. *化工新型材料*, 2011, 39(3): 70-72.

(责任编辑: 曲娜)

Membrane capacitive deionization technology with multi-stage series connection for brine treatment

CHEN Ruicheng^{1,2}, GU Jiarong^{1,2}, YU Minghao^{1,2}, MA Junjun^{1,2,*}, NIU Jianrui^{1,2}, LI Yunke^{1,2}, LIU Chun^{1,2}

1. School of Environmental Science and Engineering, Hebei University of Science and Technology, Shijiazhuang 050018, China; 2. Hebei Province Pollution Prevention Biotechnology Laboratory, Shijiazhuang 050018, China

*Corresponding author, E-mail: majj16@163.com

Abstract Membrane capacitive deionization (MCDI) technology has the advantages of simple device, easy operation, easy regeneration, low cost, no pollution, energy saving and so on, which makes it a new desalination technology. In order to improve the desalination performance of MCDI, the water influent of multiple devices was connected in series, and each device was charged separately to explore the influence of its salt removal efficiency (SRE), average salt removal rate (ASRR), energy normalization removal salt (ENRS), and other indicators on the multi-stage series connection. The results showed that under different operating conditions such as influent salt concentration, hydraulic retention time, and voltage, the desalination rate of the second and third stage MCDI series increased by about 2 to 3 times. The desalination rate of the third stage series was slightly improved compared to the second stage series, but it had higher energy consumption. Overall comparison, the desalination performance of the two-stage MCDI series connection was better, and the optimal operating conditions were obtained at 1.5 g·L⁻¹, 0.375 min, 1.2 V. In the continuous desalination process, multi-stage series connection can continuously and stably remove salt ions, and has a high adsorption capacity, indicating the feasibility of continuous desalination. The research results have a guiding significance for the desalination engineering application of multi-stage MCDI.

Keywords membrane capacitive deionization; multi-stage series connection; desalination performance; parameter optimization; continuous desalination