

Фукучи К., Кобучи С., Фуруя Т., Араи Ю.  
K. Fukuchi, S. Kobuchi, T. Furuya, Yu. Arai

25.00.07

**ПРОГНОЗИРОВАНИЕ РАВНОВЕСИЯ АДсорБИРОВАНИЯ МНОГОКОМПОНЕНТНЫХ  
РАЗЖИЖЕННЫХ ВОДНЫХ РАСТВОРОВ АКТИВИРОВАННЫМ УГЛЕМ  
ПРИ ПОМОЩИ МОДЕЛИ НЕИДЕАЛЬНОГО АДсорБИРОВАНИЯ РАСТВОРОВ  
И РАСШИРЕННОЙ ФОРМУЛЫ РАДКЕ-ПРАУЗНИЦА**

**PREDICTION OF ADSORPTION EQUILIBRIA FOR MULTI-SOLUTE DILUTE AQUEOUS  
SOLUTIONS ON ACTIVATED CARBON USING THE MODEL OF NON-IDEAL ADSORPTION  
OF SOLUTIONS AND THE EXTENDED RADKE-PRAUSNITZ EQUATION**

**Фукучи К.** — д. т. н., профессор, Убского национального технического университета (г. Убе, Япония).

**K. Fukuchi** — Doctor in Engineering, Professor at the Ube National Technical University (Ube, Japan).

**Кобучи С.** — д. т. н., Университет Ямагучи (Япония).

**S. Kobuchi** — Doctor in Engineering, Yamaguchi University (Japan).

**Фуруя Т.** — д. т. н., Национальный институт передовых научных и производственных технологий (Япония).

**T. Furuya** — Doctor in Engineering, National Institute for Innovative Scientific and Industrial Technologies (Japan).

**Араи Ю.** — д. т. н., профессор Университета Киушу (г. Убе, Япония).

**Yu. Arai** — Doctor in Engineering, Professor at the Kiushu University (Ube, Japan).

Технический перевод — **Анисимова Е. С.**, к. ф. н., доцент.

Technical translation — **Ms. E. S. Anisimova**, PhD in Philology, Associate Professor.

**Аннотация:** Равновесие при адсорбировании органических однокомпонентных и многокомпонентных растворов необходимо при проектировании очистительных аппаратов, используемых для удаления органических примесей из отработанной воды с помощью активированного угля. Несмотря на значимость равновесия при адсорбировании, процесс адсорбирования многокомпонентных растворов мало изучен. Более того, мало изучен метод прогнозирования и корреляции равновесия при адсорбировании многокомпонентных растворов. В предыдущих работах мы использовали две модели прогнозирования для вычисления равновесия при адсорбировании многокомпонентных водных растворов при помощи активированного угля. Это модели неидеального адсорбирования растворов и расширенная формула Радке-Праузница (Radk—Prausnitz (R-P)).

**Summary:** Adsorption equilibria of organic single-solutes and multi-solutes are required in the design of purification facilities for removing organic pollutants from waste waters by activated carbon. In spite of its importance, few experimental data and studies have been made on multisolute adsorption equilibria. Furthermore, there are few studies on the method of prediction and correlation of multisolute adsorption equilibria. In our previous works, we had two predictive models for calculating the adsorption equilibria of organic multi-solute aqueous solutions on activated carbon. They are the non-ideal adsorbed solution and the extended Radke-Prausnitz (Radke — Prausnitz (R-P)) equation.

**Ключевые слова:** Адсорбирование, раствор, многокомпонентный водный раствор, модель, прогнозирование, активированный уголь.

**Keywords:** adsorption, solution, multi-solute aqueous solution, model, prediction, activated carbon.

**Модель неидеального адсорбирования растворов**

Модель неидеального адсорбирования растворов была предложена для равновесия адсорбирования (адсорбированная доля ( $n_i$ ) против концентрации ( $c_i$ )) разжиженного водного раствора при помощи активированного угля [1]. Для многокомпонентного раствора модель неидеального адсорбирования представлена следующим образом:

$$c_i = \gamma_i z_i nT (n_{mi,o} \Lambda_{iw}/n_{mT} H_i(w)) \exp(\Lambda_{wi} - 1) \exp(\pi a_i/RT), (1)$$

$$\pi a_i/RT = -(1 + (n_{mT} - n_{mi,o})/nT) \ln \gamma_w z_w, (2)$$

$$\ln \gamma_i = 1 - \ln(\sum_j x_j \Lambda_{ij}) - \sum_k (x_k \Lambda_{ki} / \sum_j x_j \Lambda_{kj}), (3)$$

$$n_{mT} = \sum_i z_i n_{mi,o}, nT = \sum_i n_i, z_i = n_i/nT, x_i = n_i/n_{mT}, (4)$$

где  $\gamma$  — коэффициент активности фазы адсорбции;  $z$  — молярная фракция обезвоженного основания;  $\omega$  — распределение давления;  $a$  — отдельная молярная

**Фукучи К., Кобучи С., Фуруя Т., Арай Ю. ПРОГНОЗИРОВАНИЕ РАВНОВЕСИЯ АДсорБИРОВАНИЯ МНОГОКОМПОНЕНТНЫХ РАЗЖИЖЕННЫХ ВОДНЫХ РАСТВОРОВ АКТИВИРОВАННЫМ УГЛЕМ ПРИ ПОМОЩИ МОДЕЛИ НЕИДЕАЛЬНОГО АДсорБИРОВАНИЯ РАСТВОРОВ И РАСШИРЕННОЙ ФОРМУЛЫ РАДКЕ-ПРАУЗНИЦА**

область поверхности;  $R$ —газовая постоянная;  $T$ —абсолютная температура;  $x$ —молярная фракция фазы адсорбции; подстрочные знаки  $o$  и  $T$  обозначают одно- и многокомпонентные растворы. Четыре основных характеризующих параметра ( $n_{mi,o}$ ,  $H_i(w)$ ,  $\Lambda_{iw}$ ,  $\Lambda_{wi}$ ) могут быть соотнесены с точкой кипения при нормальных условиях  $t_b$ , молекулярным весом  $M$  и молекулярной областью  $A_m$  каждого раствора [2].

Далее параметры Уилсона между раствором  $i$  и  $j$  адсорбированными молекулами ( $\Lambda_{ij}$ ,  $\Lambda_{ji}$ ) могут быть соотнесены с точками кипения раствора следующим образом [2; 3]:

$$\ln \Lambda_{ij} = -4.33 + 0.0226 (t_b, i + t_b, j), \quad (5)$$

$$\ln \Lambda_{ji} = 2.17 - 0.0123 (t_b, i + t_b, j), \quad (6)$$

**Расширенная формула Радке-Праузница**

Радке и Праузниц [7] предложили полуэмпирическую формулу для вычисления равновесия адсорбирования однокомпонентных разжиженных водных растворов при помощи активированного угля:

$$n = ac/[1 + (a/b) c^{1-\beta}] \quad (7)$$

Где  $n$ ,  $a$ ,  $b$  и  $\beta$ —эмпирические константы;  $c$ —молярная концентрация раствора;  $n$ —доля адсорбции в растворе;  $a$  обозначает константу Генри для адсорбции при низкой концентрации, и  $b$  соответствует формуле Фрейндлиха при высокой концентрации. Таким образом,  $a$  и  $b$  означают интенсивность взаимодействия между адсорбатом и адсорбентом.  $\beta$ —это эмпирический параметр, отражающий зависимость концентрации от доли адсорбции. Формула Лэнгмуира может быть получена при допущении  $\beta = 0$ .

Формула Радке-Праузница была расширена для многокомпонентных растворов [4; 5; 6]:

$$n_i = a_i c_i / (1 + \sum_j a_{ij} c_j b_{ij}), \quad (8)$$

Для двухкомпонентных растворов в расширенной формуле Радке-Праузница (1) и (2) соответствуют  $i$  и  $j$ . Для четырехкомпонентных растворов в расширенной формуле Радке-Праузница (1), (2), (3) и (4) соответствуют  $i$  и  $j$ . Подстрочный знак  $o$  обозначает однокомпонентный водный раствор. Параметры  $a_{io}$ ,  $a_{ii}$  и  $b_{ii}$  ( $i = 1, 2$ ) могут быть представлены следующим соотношением [4].

$$a_{io} = a, a_{ii} = a/b, b_{ii} = 1 - \beta, \quad (9)$$

Для прогнозирования равновесия адсорбции для двухкомпонентных растворов необходимы параметры шести однокомпонентных и четырех двухкомпонентных растворов. В предыдущей работе [5] параметры однокомпонентных растворов  $a$ ,  $b$  и  $\beta$  могли быть соотнесены с точкой кипения при нормальных условиях  $t_b$  и молекулярным весом  $M$  раствора.

По аналогии с параметрами однокомпонентного раствора каждый из четырех параметров двухкомпонентного раствора может быть представлен как функция  $t_b$  и  $M$ .

$$\ln a_{ij} = -17.8 - 0.114 t_b, i - 0.0269 t_b, j + 0.267 M_i + 0.208 M_j, \quad (10)$$

$$\ln a_{ji} = -30.7 - 0.0637 t_b, i - 0.0535 t_b, j + 0.315 M_i + 0.278 M_j, \quad (11)$$

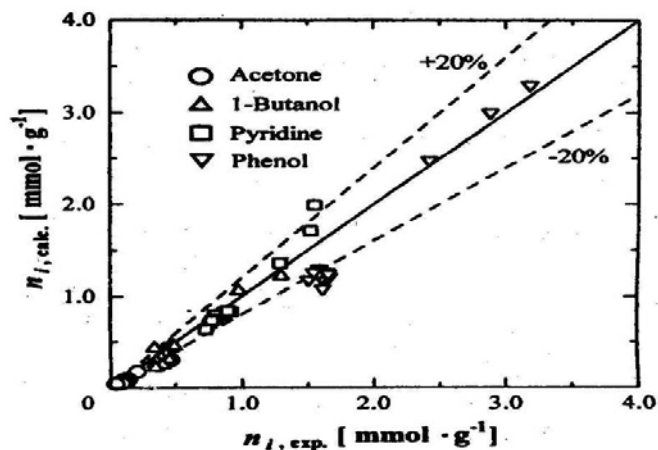


Рис. 1. Сравнение экспериментальных данных с прогнозируемыми результатами адсорбирования четырехкомпонентных растворов

$$\ln b_{ij} = 11.2 + 0.0490 t_b, i + 0.00709 t_b, j - 0.195 M_i - 0.0474 M_j, \quad (12)$$

$$\ln b_{ji} = 9.15 + 0.0506 t_b, i - 0.00334 t_b, j - 0.181 M_i - 0.0153 M_j, \quad (13)$$

Формулы (10)-(13) могут быть применены для вычисления равновесия адсорбирования органических двухкомпонентных разжиженных водных растворов при помощи активированного угля при температуре 25 °C.

**Результаты и обсуждение**

Результаты прогнозирования при помощи обеих моделей соответствуют экспериментальным данным, полученным при адсорбировании четырехкомпонентных водных растворов на рис. 1 [3; 6].

Представленная процедура может быть применима к ограниченному количеству растворов, таких, как низкомолекулярные органические соединения. Применимость данной процедуры для других соединений должна быть изучена в последующей работе.

**ЛИТЕРАТУРА**

1. Fukuchi, K., Kobuchi, S., Arai, Y. Application of vacancy solution theory to adsorption from dilute aqueous solutions. *J. Chem. Eng. Japan*, 1982, 15—pp. 316-318.
2. Fukuchi, K., Arai, Y. Measurement and prediction of adsorption equilibria of organic solutes from dilute aqueous solutions on activated carbon. *Colloids and Surfaces*, 1989, 37—pp. 387-394.
3. Fukuchi, K., Kobuchi, S., Arai, Y. Measurement and prediction of adsorption equilibria of quaternary organic solutes from dilute aqueous solutions on activated carbon. *Fundamentals of Adsorption—Pro. 4th International Conference on Fundamentals of Adsorption*.—Ed. Suzuki, M., Kodansha, Tokyo, 1993—pp. 177-184.
4. Fukuchi, K., Hamaoka, H., Arai, Y. Adsorption equilibria of organic solutes from dilute aqueous solution on activated carbon. *Mem. Fac. Eng., Kyushu Univ.*, 1980, 40—pp. 107-118.
5. Kobuchi, S., Furuya, T., Fukuchi, K., Arai, Y. Prediction of adsorption equilibria for two-solute dilute aqueous solutions on activated carbon using the extended Radke-Prausnitz equation. *J. Chem. Eng. Japan*, 2003, 36—pp. 1123-1126.
6. Kobuchi, S., Furuya, T., Fukuchi, K., Arai, Y. Prediction of adsorption equilibria for multi-solute dilute aqueous solutions on activated carbon using the extended Radke-Prausnitz equation. *J. Chem. Eng. Japan*, 2004, 37—pp. 119-120.
7. Radke, C. J., Prausnitz, J.M. Adsorption of organic solutes from dilute aqueous solution on activated carbon. *Ind. Eng. Chem. Fundam.*, 1972, 11—pp. 445-451.