

# ピリジン、フェノールを含む二、三および四溶質希薄水溶液から活性炭への吸着平衡

福地賢治・三吉克己・小渕茂寿・荒井康彦\*

## Adsorption Equilibria from Two, Three, and Four Solutes Dilute Aqueous Solutions Containing Pyridine and Phenol on Activated Carbon

Kenji FUKUCHI, Katsumi MIYOSHI, Shigetoshi KOBUCHI, and Yasuhiko ARAI

### Abstract

Adsorption equilibria of two solutes(pyridine+phenol), three solutes(acetone+pyridine+phenol and 1-butanol+pyridine+phenol), and four solutes(acetone+1-butanol+pyridine+phenol) from dilute aqueous solutions on activated carbon were measured at 25°C. The concentration range of solute interested was up to 100mmol·dm<sup>-3</sup> while the initial concentration of coexisting components were adjusted as 20mmol·dm<sup>-3</sup>.

Key Words : Adsorption Equilibria, Adsorption Isotherm, Activated Carbon, Dilute Aqueous Solution, Organic Multi Solute

### 1. 緒言

吸着装置の最適設計には吸着平衡関係が重要となる。しかしながら、広い濃度範囲にわたり精度よく満足に吸着平衡を表現できる吸着等温式は少なく、さらに、実際に問題となる多溶質水溶液系の吸着平衡の推算法には、最近の吸着関係の著書<sup>2,3,24)</sup>を見ても有力なものが少ないのが現状である。吸着平衡推算法の分類と解説は、すでに著者ら<sup>1,3,17)</sup>によって紹介されている。とくに、著者らによって提案された拡張Radke-Prausnitz式<sup>4,5)</sup>と非理想吸着溶液モデル<sup>2,7,8)</sup>は、活性炭-有機化合物水溶液系の吸着平衡の推算に有用である<sup>4-22)</sup>。

一方、実測値に関しては、活性炭による単一溶質系水溶液の吸着平衡データは、多くの研究者によって測定されているが、二溶質系以上の多溶質系の報告は、きわめて少ないのが現状であり、系統的に測定された吸着平衡

データが要望されている。また、最近の「吸着平衡データハンドブック」<sup>25)</sup>にも水溶液系の吸着平衡データは、報告されていない。

著者らは、現在まで、25°Cにおいて吸着剤に活性炭(カルゴン社製のFiltrisorb 400)を用いた約20の単一溶質水溶液系吸着平衡データを100mmol·dm<sup>-3</sup>の濃度域で報告している。二溶質系の実験データは、フェノール+安息香酸、アセトン+1-ブタノール、アセトン+フェノール、1-ブタノール+フェノール、アセトン+ピリジン、1-ブタノール+ピリジンを報告し、さらに三溶質系としてアセトン+1-ブタノール+フェノール、アセトン+1-ブタノール+ピリジンを系統的に測定した。それぞれ吸着平衡データの数値表として報告されている<sup>4,12,14,15)</sup>。

本研究では、ピリジン+フェノール、アセトン+ピリジン+フェノール、1-ブタノール+ピリジン+フェノール、アセトン+1-ブタノール+ピリジン+フェノールの二溶質から四溶質系を含む希薄水溶液からの活性炭への吸着平衡を25°Cで測定し、すでに報告したが、その測定結果を数表の形式で提出し、資料として供することを目的としている。

\* 宇部工業高等専門学校物質工学科

\*\* 山口大学工学部応用化学工学科

\*\*\* 九州大学工学部化学機械工学科

## 2. 実 験

### 2.1 実験方法

多溶質系の実験方法については、前報<sup>14,15)</sup>に詳しいので、詳細は省略する。使用した活性炭は市販のFiltratorb 400 を200/300メッシュに粉碎したものであり、前処理後200cm<sup>3</sup>スクリューキャップ付きの三角フラスコに1.0g精秤した。仕込み方法は、アセトン、1-ブタノール、

ピリジン、フェノールの各水溶液の初濃度を20, 40, 60, 80, 100mmol・dm<sup>-3</sup>となるように調製した。二溶質系の実験では、共存成分の初濃度を20mmol・dm<sup>-3</sup>として、10種類のデータを測定した。三溶質系では、第二、第三成分の初濃度20mmol・dm<sup>-3</sup>に対して、第一成分の初濃度を20~100mmol・dm<sup>-3</sup>と変化させて、15種類のデータを得た。四溶質系では、第二、第三、第四成分の初濃度20mmol・dm<sup>-3</sup>に対して、第一成分の初濃度を20~80mmol・dm<sup>-3</sup>と変化させて、16種類のデータを得た。

表1 二溶質系吸着平衡データ (Pyridine(3)+Phenol(4))

$c_3$ [mmol・dm <sup>-3</sup> ]	$c_4$ [mmol・dm <sup>-3</sup> ]	$n_3$ [mmol・g <sup>-1</sup> ]	$n_4$ [mmol・g <sup>-1</sup> ]
$c_4 = 20 \text{ mmol} \cdot \text{dm}^{-3}$			
10.5	3.22	0.947	1.66
25.2	3.48	1.47	1.63
43.2	3.88	1.66	1.60
59.7	4.22	2.01	1.56
77.4	4.58	2.23	1.52
$c_3 = 20 \text{ mmol} \cdot \text{dm}^{-3}$			
10.4	3.03	0.954	1.68
11.1	15.3	0.889	2.44
11.4	30.9	0.855	2.86
11.6	47.2	0.836	3.23
12.3	64.9	0.762	3.45

表2 三溶質系吸着平衡データ (Acetone(1)+Pyridine(3)+Phenol(4))

$c_1$ [mmol・dm <sup>-3</sup> ]	$c_3$ [mmol・dm <sup>-3</sup> ]	$c_4$ [mmol・dm <sup>-3</sup> ]	$n_1$ [mmol・g <sup>-1</sup> ]	$n_3$ [mmol・g <sup>-1</sup> ]	$n_4$ [mmol・g <sup>-1</sup> ]
$c_3 = c_4 = 20 \text{ mmol} \cdot \text{dm}^{-3}$					
18.7	9.62	2.80	0.115	1.03	1.70
37.6	9.93	2.80	0.220	0.996	1.70
57.1	10.1	2.90	0.258	0.977	1.69
73.9	10.4	3.28	0.556	0.950	1.65
93.5	10.5	3.12	0.587	0.944	1.67
$c_1 = c_4 = 20 \text{ mmol} \cdot \text{dm}^{-3}$					
18.5	9.50	2.60	0.136	1.04	1.73
18.6	25.9	3.02	0.121	1.38	1.68
18.9	44.0	3.39	0.0829	1.55	1.64
19.6	61.3	4.30	0.0270	1.84	1.55
19.7	79.0	4.91	0.0178	2.07	1.49
$c_1 = c_3 = 20 \text{ mmol} \cdot \text{dm}^{-3}$					
18.6	10.4	2.62	0.121	0.943	1.72
18.8	11.6	13.2	0.0968	0.819	2.65
19.1	11.6	29.2	0.0717	0.821	3.03
19.3	11.6	46.4	0.0495	0.819	3.30
19.3	11.9	65.0	0.0473	0.799	3.42

表3 三溶質系吸着平衡データ (1-Butanol(2)+Pyridine(3)+Phenol(4))

$C_2$	$C_3$	$C_4$	$n_2$	$n_3$	$n_4$
[mmol·dm <sup>-3</sup> ]	[mmol·dm <sup>-3</sup> ]	[mmol·dm <sup>-3</sup> ]	[mmol·g <sup>-1</sup> ]	[mmol·g <sup>-1</sup> ]	[mmol·g <sup>-1</sup> ]
$c^{\circ}_3=c^{\circ}_4=20\text{mmol}\cdot\text{dm}^{-3}$					
15.4	11.3	4.29	0.444	0.861	1.56
31.4	12.2	4.84	0.817	0.762	1.50
47.5	12.9	5.31	1.19	0.691	1.45
65.7	13.3	5.88	1.34	0.657	1.40
83.8	13.7	6.25	1.51	0.615	1.36
$c^{\circ}_2=c^{\circ}_4=20\text{mmol}\cdot\text{dm}^{-3}$					
15.5	10.5	3.46	0.434	0.934	1.64
15.5	27.3	4.98	0.430	1.24	1.48
15.9	44.2	5.63	0.390	1.54	1.42
16.5	62.9	6.01	0.327	1.66	1.38
16.5	80.9	6.06	0.327	1.84	1.37
$c^{\circ}_2=c^{\circ}_3=20\text{mmol}\cdot\text{dm}^{-3}$					
14.8	10.2	2.97	0.499	0.973	1.69
16.4	11.2	14.3	0.348	0.868	2.54
16.8	11.0	29.9	0.330	0.902	3.02
17.1	11.0	47.2	0.278	0.889	3.24
17.6	11.1	66.3	0.226	0.883	3.32

表4 四溶質系吸着平衡データ (Acetone(1)+1-Butanol(2)+Pyridine(3)+Phenol(4))

$C_1$	$C_2$	$C_3$	$C_4$	$n_1$	$n_2$	$n_3$	$n_4$
[mmol·dm <sup>-3</sup> ]	[mmol·dm <sup>-3</sup> ]	[mmol·dm <sup>-3</sup> ]	[mmol·dm <sup>-3</sup> ]	[mmol·g <sup>-1</sup> ]	[mmol·g <sup>-1</sup> ]	[mmol·g <sup>-1</sup> ]	[mmol·g <sup>-1</sup> ]
$c^{\circ}_2=c^{\circ}_3=c^{\circ}_4=20\text{mmol}\cdot\text{dm}^{-3}$							
18.6	15.0	10.8	3.18	0.120	0.480	0.901	1.66
37.4	15.1	11.1	3.18	0.207	0.468	0.871	1.66
55.6	15.2	11.2	3.45	0.367	0.459	0.867	1.64
74.4	16.4	11.5	3.89	0.468	0.335	0.837	1.59
$c^{\circ}_1=c^{\circ}_3=c^{\circ}_4=20\text{mmol}\cdot\text{dm}^{-3}$							
18.6	15.0	10.9	3.28	0.121	0.480	0.896	1.65
18.9	31.6	11.8	3.69	0.0907	0.804	0.804	1.61
19.0	50.0	12.3	3.65	0.0940	0.976	0.759	1.62
19.0	66.1	12.5	4.66	0.0768	1.30	0.730	1.51
$c^{\circ}_1=c^{\circ}_2=c^{\circ}_4=20\text{mmol}\cdot\text{dm}^{-3}$							
18.5	15.3	10.7	3.06	0.135	0.461	0.921	1.67
18.6	15.5	26.7	3.86	0.113	0.427	1.29	1.59
18.7	15.9	44.3	3.94	0.105	0.390	1.52	1.59
18.9	16.2	63.9	4.26	0.0832	0.352	1.55	1.55
$c^{\circ}_1=c^{\circ}_2=c^{\circ}_3=20\text{mmol}\cdot\text{dm}^{-3}$							
18.4	14.9	10.9	3.18	0.139	0.488	0.895	1.66
18.6	15.3	11.9	15.4	0.120	0.451	0.798	2.42
18.9	15.7	11.9	30.6	0.0900	0.401	0.796	2.88
19.3	16.3	12.1	47.5	0.0438	0.348	0.775	3.18

## 2. 2 実験結果および考察

アセトン+ピリジン, ピリジン+フェノール, アセトン+ピリジン+フェノール, 1-ブタノール+ピリジン+フェノール, アセトン+1-ブタノール+ピリジン+フェノールの二溶質から四溶質を含む希薄水溶液からの活性炭への吸着平衡を25°Cで系統的に測定した。実験結果を表1~表4に示す。

多溶質系吸着平衡では、共存する他の溶質によって、吸着量が単独の時より減少し、吸着力の弱い成分は、吸着力の強い成分により大きく影響される。表に示されるようにアセトン, 1-ブタノール, ピリジン, フェノールの順で吸着力が強くなり、他の成分によってアセトンの吸着量が大きく減少している。一般にこれを阻害効果と呼び、多溶質系の吸着平衡を推算する際に問題となる。

## 3. 結 言

活性炭を用いて、25°Cにおける希薄水溶液からの二溶質(ピリジン+フェノール), 三溶質(アセトン+ピリジン+フェノール, 1-ブタノール+ピリジン+フェノール)および四溶質(アセトン+1-ブタノール+ピリジン+フェノール)の吸着平衡を系統的に測定し、測定結果の数表を提出した。今後の課題として、エーテル類を含む多溶質系の吸着平衡データの蓄積と、より一般性のある推算モデルの開発が必要となる。

(謝辞) 実験にご協力いただいた宇部高専工業化学科の卒業生樹本英嗣, 山本 純, 田中靖也, 松尾彰久, 梅田 剛, 坪井哲也, 山崎尚志, 植野里織, 中村美幸, 富永 崇, 浜村淳, 物質工学科卒業生国田真司の各氏に感謝します。

## 使 用 記 号

c	=	吸着平衡時の溶液濃度	[mmol · dm <sup>-3</sup> ]
c°	=	仕込み時の溶液濃度	[mmol · dm <sup>-3</sup> ]
n	=	吸着量	[mmol · g <sup>-1</sup> ]

(下付添字)

1	=	アセトン
2	=	1-ブタノール
3	=	ピリジン
4	=	フェノール

## 参 考 文 献

1) 荒井康彦, 福地賢治: 分離技術, 13, 221(1983)

- 2) 荒井康彦, 福地賢治: 化学工学, 50, 155(1986)
- 3) 荒井康彦, 福地賢治: ケミカルエンジニアリング, 33, 532(1988)
- 4) Fukuchi, K., H. Hamaoka, and Y. Arai: Mem. Fac. Eng., Kyushu Univ., 40, 107(1980)
- 5) 福地賢治, 荒井康彦: 水処理技術, 21, 339(1980)
- 6) 福地賢治, 山下藤洋, 平山丈二, 荒井康彦: 環境技術, 10, 297(1981)
- 7) 福地賢治, 小淵茂寿, 村田耕一, 荒井康彦: 宇部高専研究報告, No. 28, 15(1982)
- 8) Fukuchi, K., S. Kobuchi, and Y. Arai: J. Chem. Eng. Japan, 15, 316(1982)
- 9) 福地賢治, 荒井康彦: 分離技術, 13, 99(1983)
- 10) 福地賢治, 小淵茂寿, 井原康博, 野田和宏, 荒井康彦: 水処理技術, 24, 789(1983)
- 11) 福地賢治, 荒井康彦: 化学工学論文集, 12, 603(1986)
- 12) 福地賢治, 荒井康彦: 宇部高専研究報告, No. 33, 97(1987)
- 13) 福地賢治, 荒井康彦: 化学工学論文集, 14, 245(1988)
- 14) 福地賢治, 荒井康彦: 宇部高専研究報告, No. 34, 67(1988)
- 15) 福地賢治, 荒井賢治: 宇部高専研究報告, No. 35, 27(1989)
- 16) Fukuchi, K. and Y. Arai: Colloids and Surfaces, 37, 387(1989)
- 17) 福地賢治, 小淵茂寿, 荒井康彦: 水処理技術, 31, 485(1990)
- 18) 福地賢治, 小淵茂寿, 荒井康彦: 水処理技術, 33, 137(1992)
- 19) Fukuchi, K., S. Kobuchi, and Y. Arai: Proc. 4th Int. Conf. on Fundm. of Adsorption (Ed. M. Suzuki), 177, Kodansha(1993)
- 20) 福地賢治, 小淵茂寿, 荒井康彦: 水処理技術, 34, 289(1993)
- 21) Fukuchi, K., S. Kobuchi, and Y. Arai: 3rd Korea-Japan Symp. on Sep. Tech., Abstract A12, p.59(1993)
- 22) 福地賢治, 荒井康彦: Adsorption News(日本吸着学会) 8, No. 3, 6(1994)
- 23) 近藤精一, 石川達雄, 安部郁夫: "吸着の科学", 4章, 丸善(1991)
- 24) 真田雄三, 鈴木基之, 藤本薫編: "新版活性炭 - 基礎と応用", 3章, 講談社サイエンティフィック(1992)
- 25) Valenzuela, D.P. and A.L. Myers: "Adsorption Equilibrium Data Handbook", Prentice Hall Inc.(1989)

(平成7年9月25日受理)