



Investigation of acetone adsorption characteristics of activated carbons obtained from Zonguldak-Karadon coal at room temperature

Fatma Oğuz Erdoğan^{ID}, Türkan Kopaç*^{ID}

Department of Chemistry, Zonguldak Bülent Ecevit University, Zonguldak, 67100, Turkey

Highlights:

- Evaluation of Zonguldak-Karadon coal
- Acetone adsorption behavior
- Highest acetone adsorption capacity by KOH activation at 700 and 800°C

Keywords:

- Coal
- Activated carbon
- Chemical activation
- Volatile organic carbons
- Acetone adsorption

Article Info:

Research Article
Received:07.02.2020
Accepted: 19.05.2020

DOI:

10.17341/gazimmfd.686415

Acknowledgement:

This work was supported by Zonguldak Bülent Ecevit University (BEUN BAP 2008-13-02-02) and State Planning Organization (DPT2003K121110). The authors wish to thank Prof. Dr. Gülşen DOĞU, Gazi University, and Prof. Dr. Timur DOĞU, Middle East Technical University, Ankara-Turkey for their invaluable comments and contributions.

Correspondence:

Author: Türkan Kopaç
e-mail:
turkankopac@yahoo.com
phone:+90 372 251 1383

Graphical/Tabular Abstract

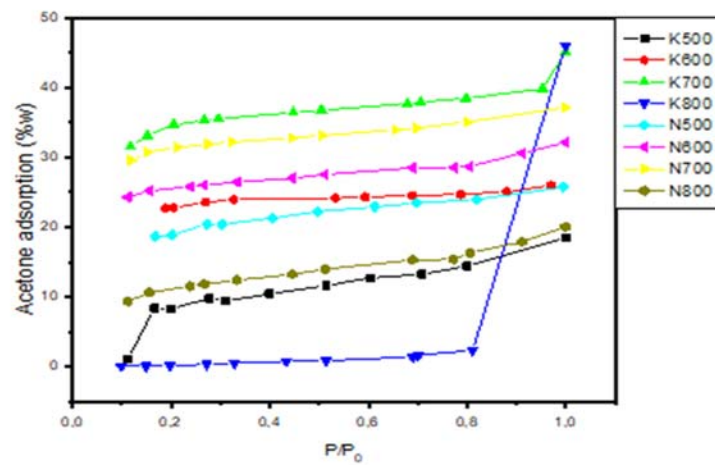


Figure A. Acetone adsorption capacities of activated carbons at room temperature obtained from Zonguldak-Karadon coal by KOH and NaOH activation.

Purpose: The purpose of the study is to investigate the acetone adsorption characteristics of activated carbons at room temperature obtained from Zonguldak-Karadon coal by physical and chemical methods; to investigate the effects of the adsorbent preparation technique, type of activating agent and activation temperature on acetone adsorption; and to evaluate the adsorption process through the use of different adsorption isotherm models.

Theory and Methods:

Acetone adsorption behavior of activated carbons from Zonguldak-Karadon coal obtained by treatments with different activating agents (NaOH, KOH, ZnCl₂ or H₃PO₄) and temperatures (400-800°C) were investigated. Experimental adsorption isotherms of acetone vapors at room temperature were measured using a volumetric technique following the data recorded as volume of acetone (*V*) adsorbed versus relative pressures (*P/P*₀) in the range 0-1.0. Adsorption equilibrium data were compared with different isotherm models in order to investigate the acetone adsorption mechanism on various activated carbons. The relation between the acetone adsorption behavior and the surface characteristics of activated carbons were analysed.

Results:

The Langmuir model constant *W_m* that gives the maximum adsorption capacity was found in the range 0,12-0,63 g/g. Adsorption characteristic energies *E₀* evaluated from the Dubinin-Radushkevich model were found in the range 2,87-29,80 kJ/mol. The activated carbons obtained by chemical treatment had higher acetone adsorption capacities than the physically activated ones, and that the adsorption capacity increased proportionally with the total pore volume. The activated carbons obtained by KOH activation of Karadon coal at 700 ve 800°C were found to have the highest acetone adsorption capacities.

Conclusion:

The activated carbons obtained by KOH activation of Zonguldak-Karadon coal at 700 and 800°C were found to have the highest acetone adsorption capacities as 45 and 45,99 %, respectively. The results have shown that the activated carbons obtained by chemical activation were highly efficient for acetone adsorption and could have high commercial potential for use in the removal of acetone vapors.



Zonguldak-Karadon kömüründen elde edilen aktif karbonların oda sıcaklığında aseton adsorpsiyon özelliklerinin incelenmesi

Fatma Oğuz Erdoğan^{ID}, Türkan Kopaç*^{ID}

Zonguldak Bülent Ecevit Üniversitesi, Fen-Edebiyat Fakültesi, Kimya Bölümü, 67100 Zonguldak, Türkiye

Ö N E Ç İ K A N L A R

- Zonguldak-Karadon kömürünün değerlendirilmesi
- Aseton adsorpsiyon davranışı
- 700 ve 800°C'de KOH aktivasyonu ile en yüksek aseton adsorpsiyon kapasitesi

Makale Bilgileri

Araştırma Makalesi

Geliş: 07.02.2020

Kabul: 19.05.2020

DOI:

10.17341/gazimmfd.686415

Anahtar Kelimeler:

Kömür,
aktif karbon,
kimyasal aktifleştirme,
uçucu organik bileşikler,
aseton adsorpsiyonu

ÖZET

Zonguldak, Türkiye'nin en büyük taşkömürü yataklarının bulunduğu, sınırları içerisinde bir çok kömür maden ocağının yer aldığı Batı Karadeniz kıyısının önemli bir kömür kentidir. Bu çalışmada Zonguldak- Karadon kömür ocağından alınan bitümlü kömür örneklerinden fiziksel ve kimyasal yöntemlerle elde edilen aktif karbonların oda sıcaklığındaki aseton adsorpsiyon özelliklerinin incelenmesi amaçlanmıştır. Aseton adsorpsiyonuna adsorbent hazırlama yöntemi, aktifleştirme ajanı (KOH, NaOH, ZnCl₂ ve H₃PO₄) ve aktifleştirme sıcaklığının (400-800°C) etkileri incelenmiştir. Karadon kömüründen elde edilen farklı aktif karbonlar üzerinde aseton adsorpsiyon mekanizmasının açıklanması amacıyla, aseton adsorpsiyon denge verileri Brunauer-Emmett-Teller, Langmuir, Freundlich, Harkins-Jura, Dubinin-Radushkevich, Dubinin-Astakhov, Henderson, Halsey ve Smith olmak üzere farklı adsorpsiyon izoterm modelleriyle değerlendirilmiş, model parametreleri belirlenmiştir. Maksimum adsorpsiyon kapasitesini veren Langmuir adsorpsiyon modeli sabiti W_m 0,12-0,63 g/g değer aralığında bulunmuştur. Dubinin-Radushkevich modelinden hesaplanan adsorpsiyon karakteristik enerjisi E_0 'ın 2,87-29,80 kJ/mol aralığında olduğu belirlenmiştir. Kimyasal yöntemle elde edilen aktif karbonların fiziksel aktifleştirme yöntemiyle elde edilen aktif karbonlardan daha yüksek aseton adsorpsiyon kapasitesine sahip oldukları, aseton adsorpsiyon kapasitesinin genellikle toplam gözenek hacmi ile arttığı görülmüştür. Zonguldak-Karadon kömürünün KOH ile 700 ve 800°C'de aktifleştirilmesiyle elde edilen aktif karbonların sırasıyla %45 ve %45,99 ile en yüksek aseton adsorpsiyon kapasitesine sahip oldukları belirlenmiştir. Zonguldak-Karadon kömürünün kimyasal aktifleştirilmesiyle elde edilen aktif karbonların aseton adsorpsiyonu için oldukça etkin oldukları ve aseton buharlarının arıtılmasında ticari olarak yüksek bir potansiyele sahip adsorbentler olabilecekleri belirlenmiştir.

Investigation of acetone adsorption characteristics of activated carbons obtained from Zonguldak-Karadon coal at room temperature

H I G H L I G H T S

- Evaluation of Zonguldak-Karadon coal
- Acetone adsorption behavior
- Highest acetone adsorption capacity by KOH activation at 700 and 800°C

Article Info

Research Article

Received:07.02.2020

Accepted: 19.05.2020

DOI:

10.17341/gazimmfd.686415

Keywords:

Coal,
activated carbon,
chemical activation,
volatile organic compounds,
acetone adsorption

ABSTRACT

Zonguldak is a major center of coal mines situated on the western BlackSea coast which has largest reserves of hard coal of Turkey, possessing many coal mines in the territory. In this study the investigation of acetone adsorption characteristics of activated carbons at room temperature obtained from Zonguldak-Karadon coal by physical and chemical methods is aimed. The effects of the adsorbent preparation technique, type of activation agent (KOH, NaOH, ZnCl₂ ve H₃PO₄) and activation temperature (400-800°C) on acetone adsorption were investigated. Acetone adsorption equilibrium data were compared with different adsorption isotherm models such as, the Brunauer-Emmett-Teller, Langmuir, Freundlich, Harkins-Jura, Dubinin-Radushkevich, Dubinin-Astakhov, Henderson, Halsey and Smith, in order to investigate the acetone adsorption mechanism on various activated carbons obtained from Karadon coal, and the model parameters were determined. The Langmuir model adsorption constant W_m that gives the maximum adsorption capacity was found with the values in the range 0,12-0,63 g/g. Adsorption characteristic energies E_0 evaluated from the Dubinin-Radushkevich model were found in the range 2,87-29,80 kJ/mol. The activated carbons obtained by chemical treatment were found to have higher acetone adsorption capacities than the physically activated ones, and that the adsorption capacity increased proportionally with the total pore volume. The activated carbons obtained by KOH activation of Zonguldak-Karadon coal at 700 ve 800°C were found to have the highest acetone adsorption capacities as 45% and 45,99%, respectively. The results of the study have shown that the activated carbons obtained by chemical activation were highly efficient for acetone adsorption and have high commercial potential for use in the removal of acetone vapors.

*Sorumlu Yazar/Corresponding Author: foguzer@gmail.com, *turkan.kopac@beun.edu.tr / Tel: +90 372 251 1383

1. GİRİŞ (INTRODUCTION)

Uçucu organik bileşikler (UOB) iç mekanlar, endüstriyel süreçler ve ulaşım faaliyetlerinden ortama yayılırlar. Bu bileşiklerin çok düşük derişimleri bile kirletici özellik göstererek çevreyi ve insan sağlığını tehdit edebilir [1]. Oksijenli uçucu organik kirleticilerden biri olan aseton plastik, kauçuk ve ilaç endüstrisinde yaygın olarak kullanılan bir çözücü olup, merkezi sinir sistemi, böbrek ve pankreasa son derece zararlı etkileri olduğu bilinmektedir. Bu nedenle aseton yayılımının kontrol altına alınmasına gereksinim duyulmaktadır. Uçucu organik bileşiklerin ortam havasındaki derişimlerinin azaltılması için uygulanan yöntemler arasında biyolojik bozunma, fotokataliz, katalitik oksidasyon, adsorpsiyon gibi yöntemler sayılabilir [1, 2]. Bu yöntemler arasında adsorpsiyonun uçucu organik kirletici bileşiklerin giderilmesi ve geri kazanılmasında etkili bir yöntem olduğu kabul edilmiştir [3, 4]. Aktif karbonlar geniş yüzey alanı, geniş gözenek hacmi, uygun gözenek boyutu dağılımı ve kimyasal kararlılığa sahip gözenekli adsorbentler olup [5, 6], bu özellikleri nedeniyle uçucu organik kirletici bileşiklerin gideriminde etkin bir şekilde kullanılmaktadırlar [7, 8]. Aktif karbonlar kömür [9, 10], meyve çekirdekleri [11, 12], meyve kabukları, endüstriyel ve tarımsal atıklar [13] gibi organik malzemelerden sentezlenebilirler [14, 15]. Aktif karbonun uçucu organik kirleticiyi adsorplama kapasitesi; başlangıç malzemesi, gözenek yapısı, yüzey özellikleri, aktifleştirme yöntemi, aktifleştirme koşulları (aktifleştirme ajanı, sıcaklığı ve süresi) gibi özelliklere bağlıdır [16, 17]. Aktifleştirme işlemi fiziksel veya kimyasal aktifleştirme teknikleriyle gerçekleştirilebilir [18, 19]. Fiziksel aktifleştirme yönteminde başlangıç maddesi önce karbonizasyon işlemine tutulur, sonrasında ise su buharı, hava veya CO₂ kullanılarak aktifleştirme tamamlanır. Kimyasal aktifleştirme yöntemi ise başlangıç maddesinin NaOH, KOH [20, 21], LiOH [22], K₂CO₃, Na₂CO₃ [23, 24], H₂SO₄ [25], HNO₃, H₃PO₄ [26], ZnCl₂ [27] ve AlCl₃ [27] gibi çeşitli kimyasal aktifleştirme ajanları ile belirli oranlarda karıştırılmasıyla tek aşamada gerçekleştirilir.

Uçucu organik bileşiklerin farklı türden adsorbentlere adsorpsiyonu ile ilgili birçok araştırma gerçekleştirilmiştir. Sui vd. [28] uçucu organik bileşiklerden aseton ve etil asetatın silikajel üzerine adsorpsiyonu ve desorpsiyonunu incelemişler, çalışmalarında etil asetatın silikajel üzerine adsorpsiyonunun aseton adsorpsiyonundan daha güçlü olduğunu belirtmişlerdir. Zhang vd. [29] ahşap ve yer fıstığı kabuğunun H₃PO₄ ve KOH ile aktifleştirilmesiyle geliştirdikleri adsorbentleri, polar yapıda olan aseton ile polar yapıda olmayan sikloheksan uçucu organik bileşiklerinin adsorpsiyonunda kullanmışlardır. Çalışmalarında, H₃PO₄ ile elde edilen aktifleştirilmiş örneklerin KOH ile aktifleştirilmiş örneklere göre daha geniş yüzey alanı verdiklerini belirtmişlerdir. Aktifleştirilmemiş örnekler üzerine aseton ve sikloheksan adsorpsiyon kapasitelerinin 25,36 mg/g'dan daha düşük iken, aktifleştirilmiş örnekler için adsorpsiyon kapasitesinin 159,66 mg/g'a ulaştığını göstermişlerdir [29]. Ushiki vd.

[30] aseton, toluen, n-hekzan, n-oktan, n-dekan, metanol, etanol, 2-propanol ve propilen glikol monometil eter gibi uçucu organik bileşiklerin aktif karbon üzerine adsorpsiyonunu Dubinin-Astakhov izotermi ile incelemişlerdir. Wang vd. [31] hindistan cevizi kabuğundan elde edilen aktif karbon üzerine asetaldehit/aseton adsorpsiyonunu inceledikleri çalışmalarında adsorpsiyon verilerini Langmuir, Freundlich ve Sips modellerini kullanarak değerlendirmişler, Freundlich izoterm modelinin en uygun izoterm modeli olduğunu açıklamışlardır. Ma vd. [32] KOH kullanarak oldukça yüksek yüzey alanı (2940 m²/g) olan gözenekli karbon adsorbent hazırlamışlar, 25°C ve 18 kPa koşullar altında 16,91 mmol/g aseton adsorpsiyon kapasitesi elde ettiklerini açıklamışlardır. Zhou vd. [6] aseton, toluen ve metanol adsorpsiyonu için dört farklı aktif karbon/metal oksit kompoziti (AC/MgO, AC/ZnO, AC/CuO, AC/ZrO₂) sentezlemişler, çalışmalarında ZnO nanoparçacıklarının aktif karbonun UOB adsorplama yeteğini en fazla arttıran parçacıklar olduğunu belirtmişlerdir. Zhou vd. [33] başka bir çalışmada ise hazırladıkları bir aktif karbon/MgO kompoziti ile aseton adsorpsiyonunu çalışmışlar, aktif karbon üzerindeki MgO nano parçacıklarının aseton adsorpsiyon kapasitesine olumlu etkisi olduğunu ve aseton adsorpsiyon kapasitesinin 432,7 mg/g olduğunu rapor etmişlerdir. Li vd. [34] tütün dallarından hazırladıkları gözenekli yapıdaki karbon/metal organik kafes kompozitleri üzerinde aseton adsorpsiyonu davranışlarını incelemişler, hazırladıkları 2 kompozit örneğinin adsorpsiyon kapasitesinin metal organik kafes yapılara göre artmış olduğunu belirtmişlerdir. Özellikle MIL-101/TC40 kompozitinin 288 K sıcaklıkta ve 18,9 kPa basınçta aseton adsorpsiyon kapasitesinin 1137 mg/g olarak bulunduğunu bildirmişlerdir. Zhang vd. [35] 15 farklı biyolojik kökenli adsorbentler üzerine aseton, sikloheksan ve toluen adsorpsiyonunu incelemişler, bu biyolojik adsorbentlerin UOB'yi adsorplama kapasitelerinin 5.58-91.16 mg/g aralığında olduğunu ve UOB adsorpsiyonuna, adsorbentin yüzey alanının ve karbonize edilmemiş organik madde içeriğinin etkili olduğunu belirtmişlerdir. Yu vd. [36] aseton adsorpsiyonuna gözenek yapılarının ve fonksiyonel grupların etkisini incelemek için farklı özelliklere sahip aktif karbonları yüzey modifikasyonu ile elde etmişlerdir. Mikro gözeneklerin aseton adsorpsiyonuna olumlu etki gösterdiğini ve adsorbent yüzeyindeki karboksilik grupların artırılması ile aseton adsorpsiyonunun artabileceğini bildirmişler, AC-N örneğinin aseton desorpsiyon aktivasyon enerjisinin 81.6 kJ/mol olduğunu rapor etmişlerdir. Hu vd. [37] aseton ve metanol adsorpsiyonu için esnek etoksi grupları takılmış metal organik kafes yapıları sentezlemişler; bu yapıların aseton için tip I izotermi gösterirken, metanol için ise tip V izotermi sergilediğini belirtmişlerdir. Blommaerts vd. [38] aseton, metanol, toluen, izohekzan ve izopentan olmak üzere beş farklı uçucu organik bileşiğin, üç farklı zeolit ve 2 silikajel üzerine adsorpsiyonunu FTIR kullanarak araştırmışlardır.

Zonguldak, yakın çevresinde bir çok kömür madenini içinde bulunduran Batı Karadeniz Bölgesinin önemli bir kömür

şehridir. Önceki çalışmalarımızda, Zonguldak çevresindeki farklı kömür ocaklarından alınan kömür örneklerine farklı yöntemler uygulanmasıyla aktif karbonlar üretilmesi [14], üretilen aktif karbonların hidrojen gazının adsorpsiyon özellikleri [16,18]; atık sularındaki boyar maddelerin adsorpsiyonla giderilmesi [17, 19] konularında çeşitli çalışmalar yapılmıştır. Bu çalışmalarda Kilimli, Armutçuk, Rat kömür ocaklarının örnekleri kullanılmıştır. Diğer bir çalışmada ise Kozlu kömürünün 800°C'de KOH aktifleştirilmesiyle 1904 m²/g yüzey alanına sahip oldukça etkin aktif karbonlar üretilmiş [8] ve izopropil alkol, etil alkol ve aseton organik buhar adsorpsiyonu çalışılmıştır [8]. Daha sonraki bir çalışmada ise Zonguldak Karadon bitümlü kömürlerinden tek basamaklı kimyasal aktifleştirme ile NaOH, KOH, ZnCl₂ veya H₃PO₄ kullanılmasıyla aktif karbonlar üretilmiş ve alkol buharlarının adsorpsiyonu araştırılmıştır [9]. Bu çalışmada ise Zonguldak-Karadon kömüründen önceki çalışmamızda üretim yöntemleri ve yüzey özellikleri detaylı bir şekilde analiz edilerek, 2 farklı alkolün (izopropil alkol ve etil alkol) adsorpsiyonunda kullanılan [9] 17 farklı yapısal özelliğe sahip aktif karbon numunelerinin, Karadon kömürünün aktifleştirilmemiş örneklerinin ve bu kömürden fiziksel yöntemlerle elde edilen farklı yapıdaki aktif karbonların aseton adsorpsiyon özelliklerinin araştırılması amaçlanmıştır. Yapılan çalışma ile aktif karbon üretim yöntemi, kimyasal aktivasyon ajanının ve aktif karbonların yapısal özellikleri gibi faktörlerin aseton adsorpsiyon davranışına etkilerinin incelenmesi ve aydınlatılması amaçlanmaktadır. Aseton adsorpsiyon denge verileri Brunauer-Emmett-Teller (BET), Langmuir, Freundlich, Harkins-Jura (HJ), Dubinin-Radushkevich (DR), Dubinin-Astakhov (DA), Henderson, Halsey ve Smith olmak üzere farklı adsorpsiyon izoterm modelleriyle değerlendirilmiş, çalışılan adsorpsiyon izoterm modellerinin parametreleri hesaplanarak Karadon Kömüründen elde edilen farklı aktif karbonlar üzerinde aseton adsorpsiyon mekanizmasının açıklanması amaçlanmıştır. Bölgemizde bol olarak bulunan ve kolay ulaşılabilir yerel doğal kaynaklarımızla, düşük maliyetli ve hızlı uygulanabilir yöntemlerin uygulanmasıyla etkin adsorpsiyon performansına sahip aktif karbonların elde edilmesi ve aseton buharlarının adsorpsiyonla arıtımı alanında değerlendirilmesi çalışmanın önemini ve orijinallliğini oluşturmaktadır.

2. MATERYAL VE METOD (MATERIAL AND METHOD)

2.1 Materyal (Material)

Aseton adsorpsiyonu için Zonguldak Karadon kömüründen farklı aktifleştirme ajanları (KOH, NaOH, ZnCl₂ ve H₃PO₄) ile elde edilen 17 farklı yapıdaki aktif karbonla birlikte, aktifleştirilmemiş Karadon kömürü ve Karadon kömüründen fiziksel aktivasyonla elde edilen aktif karbon olmak üzere 19 adsorbent kullanılmıştır. Kimyasal aktifleştirme yöntemiyle elde edilen aktif karbonların üretim yöntemi önceki çalışmamızda detaylı olarak anlatılmıştır [9]. Elde edilen aktif karbonlar kullanılan aktifleştirme ajanının baş harfi ve

üretilme sıcaklığının birleştirilmesi ile isimlendirilmiştir (Örneğin: K500, 500°C'de KOH kullanılarak kimyasal aktifleştirmeye elde edilen aktif karbon; N700, 700°C'de NaOH kullanılarak kimyasal aktifleştirmeye elde edilen aktif karbon). Aktif karbon elde etmek için kullanılan fiziksel aktifleştirme yöntemi de önceki çalışmamızda ayrıntılı olarak açıklanmıştır [8]. Karadon kömür ocağından alınan ham kömür öncelikle 106-300 µm parçacık boyutuna getirilmiştir. Kül oranları ve uçucu madde miktarları sırasıyla ASTM D 3175 ve ASTM D 3174 standartları kullanılarak belirlenmiştir. Karadon kömürünün kül içeriğinin %11,6 olduğu belirlendikten sonra, kül oranının azaltılması için 24 saat boyunca 60°C'de 5 N HCl ile işleme sokulmuş; elde edilen çözelti süzülüş ve süzüntü içerisindeki klorür iyonlarının giderilmesi için 80°C'de saf su ile yıkanmıştır. Elde edilen numune sonrasında 2 saat boyunca 22 N HF ile 60°C'de işleme tutulmuş ve tekrar yıkanmıştır. Bu işlem sonunda elde edilen Karadon kömürünün (K) kül içeriğinin %0,4 olduğu belirlenmiştir [9]. Kül oranı düşürülen Karadon kömürü sıcaklık kontrollü bir tüp fırında azot gazı akışı altında 5°C/dakika ısıtma hızıyla 1 saat süreyle 600°C'de tutulmuş, ardından yine azot gazı akışı altında soğumaya bırakılmıştır. Bu işlem sonucunda elde edilen aktif karbon, fiziksel yöntemle elde edilen aktif karbon (FAK) olarak tanımlanmıştır. Kül içeriği azaltılan Karadon kömürü farklı aktifleştirme ajanlarıyla (NaOH, KOH, ZnCl₂ ve H₃PO₄) 4/1 oranında (aktifleştirme ajanı/kömür) fiziksel olarak karıştırılmıştır. Bu oran, daha önce yapılan deneysel çalışmalar sonucunda en iyi etkinin gözlemlendiği oran olduğu için seçilmiştir [9]. Karışımlar tüp fırında 500-800°C sıcaklık aralığında, 5°C/dak ısıtma hızıyla N₂ ortamında 60 dakika ısıtılmıştır. Tüp fırından alınan her örnek katran yapının uzaklaştırılması amacıyla, önce derişik HCl ile, sonrasında örnekte klor iyonu kalmayana dek saf su ile yıkanmıştır. Süzüntüye AgNO₃ eklenerek, AgCl çökmeyene kadar işleme devam edilmiştir. Elde edilen aktif karbonlar 120°C'de kurutulmuş ve isimlendirilmiştir. XY şeklinde yapılan isimlendirme işleminde, X aktifleştirme ajanının ilk harfini (Örneğin: NaOH için N, KOH için K, ZnCl₂ için Z ve H₃PO₄ için H), Y ise aktifleştirme sıcaklığını göstermektedir [9].

2.2 Adsorpsiyon Deneyleri (Adsorption Experiments)

Adsorpsiyon deneyleri öncesinde, adsorbentlerin içeriğindeki nem ve gazların giderilmesi amacıyla tüm örneklerin 12 saat süreyle 250°C'de vakum altında tutulması sağlanmıştır. Quantachrome Autosorb-1 cihazı kullanılarak tüm örnekler için -196°C'de elde edilen N₂ adsorpsiyon/desorpsiyon izoterm verileri, örneklerin yüzey alanı, gözenek hacmi ve gözenek boyutu dağılımlarının belirlenmesi için kullanılmıştır [8, 9]. Tüm örnekler üzerinde aseton buharlarının adsorpsiyon izotermi yine aynı cihazın standart buhar adsorpsiyon ünitesi kullanılarak volumetrik yöntemle 25°C'de elde edilmiştir. Her ölçüm için cihazın buhar örnek haznesi yüksek saflıkta aseton (Sigma-Aldrich) ile doldurulmuş ve bağıl basınç $P/P_0 \approx 0-1$ aralığında adsorplanan asetonun hacmi (V) kaydedilmiştir.

2.3. Adsorpsiyon İzoterm Modelleri (Adsorption Isotherm Models)

Tüm adsorbentler için aseton adsorpsiyon izotermi, asetonun adsorplanan hacminin (V) bağıl basınç (P/P_0) değişimine göre çizilmiştir. Asetonun oda sıcaklığındaki deneysel adsorpsiyon izoterm verilerinin değerlendirilmesi için Brunauer-Emmett-Teller, Langmuir, Freundlich, Harkins-Jura, Dubinin-Radushkevich, Dubinin-Astakhov, Henderson, Halsey ve Smith adsorpsiyon izoterm modelleri olmak üzere 9 farklı izoterm modelinin kullanımı seçilmiştir. Adsorpsiyon modellerindeki parametreler hesaplanarak, korelasyon katsayısı (r^2) değerleriyle birlikte sunulmuştur. r^2 nin 1'e yakın yüksek değerleri, deneysel verilerle modellerin uyumunun iyi olduğunu göstermektedir.

BET Modeli [39] (Eş. 1)

$$\frac{1}{W((P_0/P)-1)} = \frac{1}{W_m C} + \frac{C-1}{W_m C} \left(\frac{P}{P_0}\right) \quad (1)$$

Langmuir Modeli [40] (Eş. 2)

$$\frac{P/P_0}{W} = \frac{1}{C W_m} + \frac{P/P_0}{W_m} \quad (2)$$

BET ve Langmuir modellerinde, W asetonun P/P_0 bağıl basıncındaki kütlelerini, W_m ise asetonun tek tabaka kütlelerini göstermektedir. C terimi adsorpsiyon enerjisiyle ilgili olup, değeri adsorbent/aseton etkileşimlerinin şiddetinin göstergesidir. BET modeli, Langmuir tek tabaka modelinin çok tabaka adsorpsiyonuna uzantısıdır [39, 40].

Freundlich Modeli [41] (Eş. 3)

$$\log V = \log k + \frac{1}{n} \log P \quad (3)$$

Freundlich izotermi heterojen yüzeylerdeki ideal olmayan adsorpsiyon ve çok tabaka adsorpsiyonu için uygulanabilen bir bağıntıyı ifade eder. Freundlich denklemi k (cm^3/g) adsorpsiyon kapasitesini, $1/n$ de adsorpsiyon şiddetini göstermektedir. $1/n$ değeri adsorpsiyon sürecinin anlaşılmasını sağlamakta, değerlerinin 0 ve 1 arasındaki değişimi kimyasal adsorpsiyonla ilgili olup, tersinmez işlemi gösterirken, değerlerinin sıfıra yaklaşması heterojenliğin daha fazla olduğunu göstermektedir. $1/n$ nin 1 den büyük değerleri kooperatif adsorpsiyonla uyumludur [41].

Harkins-Jura Modeli [42] (Eş. 4)

$$\ln \frac{P}{P_0} = A - \frac{B}{W^2} \quad (4)$$

Harkins-Jura Modeli çok tabaka adsorpsiyonunu gözönüne alır ve gözeneklerin heterojen dağılımıyla açıklanabilir. HJ izoterm parametresi A çok tabaka adsorpsiyonuyla ilgili olup, heterojen gözenek dağılımı varlığını gösterir, B de izoterm sabitidir [42].

Dubinin-Radushkevich Modeli [43] (Eş. 5)

$$\log V = \log V_0 - 2.303 \left(\frac{RT}{\beta E_0}\right)^2 \log \left(\frac{P_0}{P}\right)^2 \quad (5)$$

Dubinin-Astakhov Modeli [44] (Eş. 6)

$$W = W_0 \exp \left[- \left(\frac{-RT}{E} \ln \frac{P}{P_0} \right)^n \right] \quad (6)$$

Dubinin-Radushkevich [43] ve Dubinin-Astakhov [44] denklemleri adsorbent mikrogözenek hacminin dolması teorisine dayanmaktadır. Denklemlerde E ve E_0 karakteristik enerjiyi, V_0 mikrogözenek hacmini, ve β affinite katsayısını göstermektedir. DR modeli mikrogözenek hacminin adsorplanan moleküllerle dolduğunu gözönüne alır. Bu teoriye göre E_0 değeri küçüldükçe, moleküllerin adsorbentler üzerine adsorlanması daha kolay hale gelir [43].

Henderson Modeli [45] (Eş. 7)

$$\ln \left[- \ln \left(1 - \frac{P}{P_0} \right) \right] = \ln k + n \ln W \quad (7)$$

Halsey Modeli [46] (Eş. 8)

$$\ln W = \left[\frac{1}{n} \ln C - \frac{1}{n} \ln \left(\ln \frac{P_0}{P} \right) \right] \quad (8)$$

Smith Modeli [47] (Eş. 9)

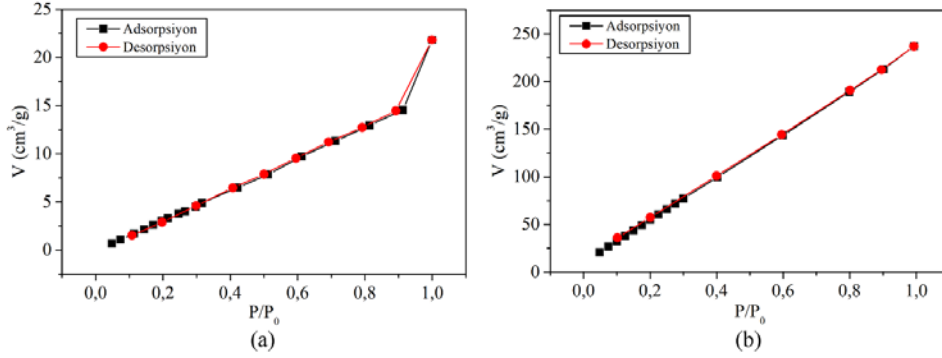
$$W = V_b - V \ln \left(1 - \frac{P}{P_0} \right) \quad (9)$$

Henderson [45], Halsey [46] ve Smith [47] izoterm modelleri V ve P/P_0 arasındaki üstel veya logaritmik ilişkinin varlığını ifade ederken, adsorplanan moleküllerin çok tabakalı adsorpsiyonuna karşılık gelir. Her bir model heterojen yüzeydeki adsorpsiyon süreciyle uyumludur. Henderson modeli termodinamik yollardan türetilmiş yarı-empirik bir model [45], Halsey modeli [46] ise düzgün olmayan bir yüzeyden bağıl olarak çok uzak mesafelerdeki çok tabakalı yoğunlaşmayı ifade eder. Smith modelinde, yüzey üzerine adsorplanan miktar alt sınırlara ve normal olarak yoğunlaşan kesirlere ayrılmıştır [47].

3. SONUÇLAR VE TARTIŞMALAR (RESULTS AND DISCUSSIONS)

3.1. Azot adsorpsiyon/desorpsiyon izotermi (Nitrogen adsorption/desorption isotherms)

Karadon kömürünün (K) -196°C 'deki N_2 adsorpsiyon/desorpsiyon izotermi Şekil 1a'da, Karadon kömüründen fiziksel yöntemle elde edilen aktif karbonun (FAK) -196°C 'deki N_2 adsorpsiyon/desorpsiyon izotermi ise Şekil 1b'de gösterilmiştir. FAK örneğinin adsorpsiyon/desorpsiyon izotermi IUPAC sınıflandırmasına göre Tip II ve Tip III izotermi karışımına benzemektedir. Grafiğe bakıldığında adsorpsiyon histerezisinin bulunmadığı açıkça görülmekte, bu durum yapıda mezo gözeneklerin bulunmadığını düşündürmektedir. Kül oranı azaltılmış Karadon kömürünün



Şekil 1. N₂ adsorpsiyon/desorpsiyon izotermi (-196°C) (a) Karadon kömürü (K) (b) Karadon kömüründen fiziksel yöntemle elde edilen aktif karbon (FAK)
(N₂ adsorption/desorption isotherms (-196°C) (a) Karadon coal (K) (b) Activated carbon obtained from Karadon coal by physical activation (FAK))

BET yüzey alanı 29 m²/g iken, kömürün 600°C’de ısı ile işleme fiziksel olarak aktifleştirilmesiyle (FAK) BET yüzey alanı 311 m²/g’a ulaşmıştır. Karadon kömüründen kimyasal aktivasyonla elde edilen aktif karbonların yapısı, N₂ adsorpsiyon-desorpsiyon izotermi, yoğunluk, elementel analiz, TG ve DTG analizleri önceki çalışmamızda detaylı olarak açıklanmış olup, her bir aktifleştirme ajanının kullanımıyla elde edilen en yüksek yüzey alanlı (BET) aktif karbonlar ve yüzey alanları sırasıyla K700, N700, Z400 ve H700 için 1659, 1335, 926 ve 767 m²/g olarak bulunmuştur [9]. KOH, NaOH ve H₃PO₄ aktifleştirme ajanlarıyla en yüksek yüzey alanı 700°C’de bulunurken, ZnCl₂ için en yüksek yüzey alanı oldukça düşük bir sıcaklık olan 400°C’de elde edilmiştir [9].

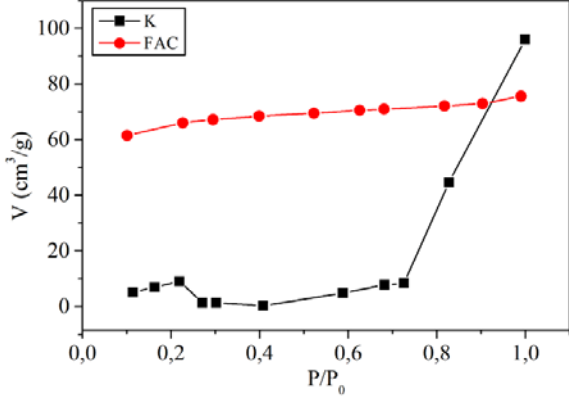
3.2. Aseton adsorpsiyon izotermi (Acetone adsorption isotherms)

Asetonun Karadon kömürü, FAK ve kimyasal aktivasyonla elde edilen 17 farklı aktif karbon üzerinde oda sıcaklığındaki deneysel adsorpsiyon izoterm verileri, bağıl basınca (P/P₀) karşı adsorplanan aseton hacminin (V) değişiminin çizilmesiyle elde edilen grafiklerden oluşturulmuştur. Şekil 2, Karadon kömürü (K) ve bu kömürden fiziksel yöntemle elde edilen aktif karbonun (FAK) oda sıcaklığındaki aseton adsorpsiyon izotermi göstermektedir. Şekil 3a ve Şekil 3b ise sırasıyla, Karadon kömüründen KOH ve NaOH kullanılarak hazırlanan aktif karbonların oda sıcaklığındaki aseton adsorpsiyon izotermi ve aseton adsorpsiyon kapasitelerini göstermektedir. Şekil 3c ve Şekil 3d’de, Karadon kömüründen ZnCl₂ ve H₃PO₄ kullanılarak hazırlanan aktif karbonların oda sıcaklığındaki aseton adsorpsiyon izotermi ve aseton adsorpsiyon kapasiteleri, sırasıyla sunulmuştur.

Asetonun deneysel adsorpsiyon izoterm verileri Brunauer-Emmett-Teller, Langmuir, Freundlich, Harkins-Jura, Dubinin-Radushkevich, Dubinin-Astakhov, Henderson, Halsey ve Smith izoterm modelleriyle karşılaştırılmış ve her bir modelin içerdiği izoterm parametreleri belirlenmiştir. Asetonun tüm adsorbentler üzerindeki adsorpsiyon izoterm modellerine ait parametreler Tablo 1-Tablo 4’de sunulmuştur. BET izoterm modeline ait korelasyon

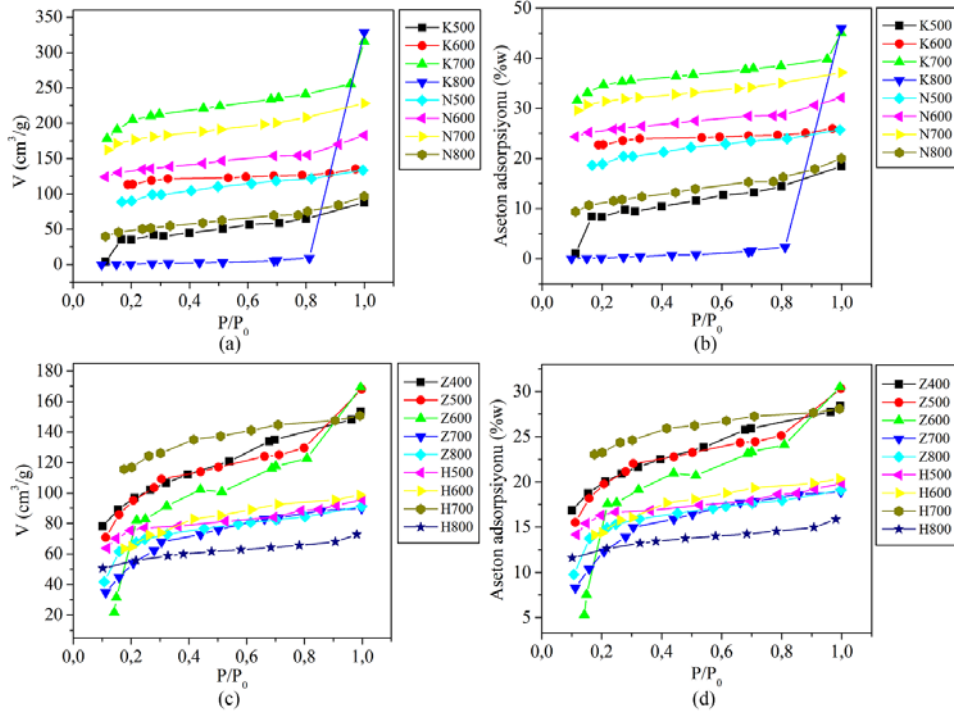
katsayılarının 2 aktif karbon hariç oldukça yüksek değerde olduğu bulunmuştur. KOH kullanarak 600, 700 ve 800°C’de hazırlanan aktif karbonlar için korelasyon katsayıları 0,99 iken, Karadon kömürü için 0,88 değerindedir. KOH ile 500°C’de hazırlanan aktif karbon (K500) üzerine aseton adsorpsiyonu için BET izoterm modeline ait korelasyon katsayısı oldukça düşüktür ($r^2=0,52$). Korelasyon katsayıları, NaOH ve H₃PO₄ kullanarak elde edilen tüm aktif karbonların 0,99; ZnCl₂ kullanarak 400, 500, 700 ve 800°C’de hazırlanan aktif karbonların ise 0,97-0,99 aralığındaki değerlerde, 600°C’de hazırlanan aktif karbonun (Z600) ise 0,51 değerindedir. Aseton/adsorbent etkileşimlerinin derecesini gösteren C değerleri Z400, H600 ve H800 örnekleri için daha yüksek bulunmuştur. BET modelinin adsorpsiyon kapasitesi (W_m) en yüksek değerlere K700 ve K800 örneklerinde, sırasıyla 0,38 ve 0,38 g/g olarak ulaşmıştır. Deneysel verilerin, Langmuir modeline yine K500 (KOH ile 500°C’de hazırlanan aktif karbon) ve Z600 (ZnCl₂ ile 600°C’de hazırlanan aktif karbon) örnekleri hariç 0,97-0,99 aralığı ile yüksek oranda korelasyon sağladığı, Karadon kömürü üzerine aseton adsorpsiyonu için korelasyon katsayısının 0,88 olduğu Tablo 1- Tablo 4’den görülmektedir. Langmuir izoterm modeli adsorpsiyon kapasiteleri (W_m) Z500, K700 ve K800 örnekleri için sırasıyla 0,40, 0,61 ve 0,63 g/g olarak hesaplanmıştır. Önceki bir çalışmamızda karşılaştırma amaçlı kullandığımız ticari aktif karbonun (AC) aynı şartlarda aseton adsorpsiyon kapasitesi (W_m) BET izotermine göre 0,19 g/g bulunurken, Langmuir izotermine göre 0,32 g/g olarak belirlenmiştir [8]. Bu ticari aktif karbonun BET yüzey alanı, Langmuir yüzey alanı, ortalama gözenek çapı ve toplam gözenek hacmi değerleri, sırasıyla 745 m²/g, 1132 m²/g, 21,7 Å ve 0,49 cm³/g’tür [10]. Karadon kömüründen kimyasal aktivasyonla elde ettiğimiz aktif karbonların bazıları ticari aktif karbona göre oldukça iyi aseton adsorpsiyon kapasitesi vermişlerdir. Tang vd. [48] yaptıkları çalışmada aseton adsorpsiyonu için modifiye edilmiş aktif karbon kullanmışlar ve adsorplanan aseton miktarının Langmuir izoterm modeline göre 0,33-0,37 g/g aralığında olduğunu belirtmişlerdir. Zhou vd. [33] yaptıkları çalışmada, aseton adsorpsiyonu için aktif karbonu magnezyum oksitle modifiye etmişler ve en yüksek adsorpsiyon kapasitesinin Langmuir izoterm modeline göre 0,43 g/g olduğunu rapor etmişlerdir. Bu çalışmada en yüksek

adsorpsiyon kapasitelerine sırasıyla 0,63 g/g ve 0,61 g/g değerleriyle, KOH ile hazırladığımız aktif karbonlardan K700 ve K800 ile ulaşılmıştır. NaOH ile hazırladığımız aktif karbon (N700) için bu değer 0,51 g/g olduğu belirlenmiştir.



Şekil 2. Karadon kömürü (K) ve bu kömürden fiziksel yöntemle elde edilen aktif karbonun (FAK) oda sıcaklığındaki aseton adsorpsiyon izotermi (Acetone adsorption isotherms at room temperature of Karadon coal (K) and the activated carbon obtained from Karadon coal by physical activation (FAK))

Genel olarak Freundlich izoterm modelinden elde edilen korelasyon katsayılarının, BET ve Langmuir modellerinin korelasyon katsayılarından daha küçük olduğu görülmektedir. Adsorpsiyon işleminin uygunluğunu gösteren Freundlich izoterm sabiti $1/n$ Z800, FAK ve Karadon kömürü örnekleri hariç 0,09-0,93 aralığında bulunmuştur. Tablo 1- Tablo 4'deki değerler incelendiğinde, Karadon kömürü hariç olmak üzere, Harkins-Jura izotermine oldukça yüksek uyum görülmektedir. DR izoterm modeli korelasyon katsayıları 0,96-0,99 aralığında değişmektedir. Mikro gözenek hacmini veren V_0 değerinin en yüksek değerleri Z600, K700 ve K800 örnekleri için elde edilmiş, sırasıyla 1,86, 0,79 ve 0,80 cm^3/g olarak bulunmuştur. Aynı adsorbentler üzerinde izopropil alkol ve etil alkol adsorpsiyonunun incelendiği önceki çalışmamızda, izopropil alkol ve etil alkol adsorpsiyonu için V_0 değerleri en yüksek sırasıyla 0,70 (K700 örneği için) ve 14,52 cm^3/g (N700 örneği için) olarak bulunmuştur [9]. DR izoterm modeli karakteristik enerjisini veren E_0 değerleri; K600, N500, H700, H800, N600, N700, H600, FAK, K800, K700, Z400, N800, H500 ve Z500 örnekleri için sırasıyla 29,80, 19,30, 18,91, 15,99, 17,30, 14,70, 14,06, 12,30, 12,10, 11,40, 10,80, 10,24, 10,19 ve 8,25 kJ/mol olarak hesaplanmıştır. Diğer adsorbentler için (K500, K, Z600, Z700 ve Z800) bu değerlerin 8 kJ/mol'den daha düşük olması, bu adsorbentler üzerinde asetonun olası fiziksel adsorpsiyonuna işaret



Şekil 3. Karadon kömüründen elde edilen aktif karbonların oda sıcaklığındaki aseton adsorpsiyon izotermi ve adsorpsiyon kapasiteleri (a) KOH ve NaOH kullanılarak hazırlanan aktif karbonların aseton adsorpsiyon izotermi, (b) KOH ve NaOH kullanılarak hazırlanan aktif karbonların aseton adsorpsiyon kapasiteleri, (c) ZnCl_2 ve H_3PO_4 kullanılarak hazırlanan aktif karbonların aseton adsorpsiyon izotermi, (d) ZnCl_2 ve H_3PO_4 kullanılarak hazırlanan aktif karbonların aseton adsorpsiyon kapasiteleri (Acetone adsorption isotherms and adsorption capacities at room temperature of activated carbons obtained from Karadon coal (a) Acetone adsorption isotherms of activated carbons obtained using KOH and NaOH, (b) Acetone adsorption capacities of activated carbons obtained using KOH and NaOH, (c) Acetone adsorption isotherms of activated carbons obtained using ZnCl_2 and H_3PO_4 , (d) Acetone adsorption capacities of activated carbons obtained using ZnCl_2 and H_3PO_4)

etmektedir. Bu değer, Kozlu kömürünün KOH kullanılarak kimyasal aktifleştirilmesi yoluyla elde ettiğimiz aktif karbonlar üzerine aseton adsorpsiyonunun incelendiği daha önceki çalışmamızda 6,17-15,60 kJ/mol olarak bulunmuştur [8]. Aseton adsorpsiyonu karakteristik enerjisi için benzer sonuçlar Li vd. [49] tarafından da bildirilmiştir. Lee ve Reucroft [50] yaptıkları çalışmada aseton adsorpsiyonu için kömür ve odundan aktif karbonlar hazırlamışlar ve 9,2-23,6 kJ/mol aralığında karakteristik adsorpsiyon enerjisi rapor etmişlerdir. Hsieh ve Chen [51] aseton adsorpsiyonu için heterojen karbon yapıları adsorbentler kullanmışlar ve karakteristik adsorpsiyon enerjisinin 16-42 kJ/mol aralığında olduğunu belirtmişlerdir.

Jiun-Horng vd. [52] tarafından aseton adsorpsiyonu için çeşitli adsorbentlerin kullanıldığı çalışmada ise karakteristik adsorpsiyon enerjisinin 16,9-21,5 kJ/mol aralığında olduğu belirtilmiştir. Li vd. [49] yaptıkları çalışmada gözenekli karbon ilave edilen MIL-101 adsorbentinin aseton adsorpsiyonu azami izosterik ısısının 52 kJ/mol olduğunu

bildirmişlerdir. Bu çalışmamızda ise, DA izoterm modelinden hesaplanan E sabitinin en yüksek değerleri K600, N600, H700, H800 ve H600 örnekleri için 76,40, 30,60, 29,90, 18,79, 16,60 kJ/mol olarak belirlenmiştir. Ayrıca, yine DA izoterm modelinden hesaplanan ve Tablo 1-Tablo 4’de verilen W_0 sabitinin 0,18-0,79 cm³/g aralığında olduğu görülmektedir. Fuertes vd. [53] aseton adsorpsiyonu için kullanılan aktif karbonların mikro gözenek hacmini veren bu sabitin değerini 0,41 cm³/g olarak rapor etmişlerdir.

Tablo 1-Tablo 4’den de görüldüğü gibi, Henderson ve Halsey izoterm modelleri Karadon kömürü hariç tüm adsorbentler için iyi bir uyum göstermiştir. Smith izoterm modeline ait korelasyon katsayıları 0,70-0,97 aralığında bulunmuştur.

Karadon kömürü (K) ve bu kömürden fiziksel yöntemle elde edilen aktif karbonun (FAK) oda sıcaklığındaki aseton adsorpsiyon izotermi Şekil 2’de verilmiştir. Karadon kömürünün izoterminde iniş-çıkış gözlemlenmekte, FAK

Tablo 1. Karadon kömürü ve kimyasal yöntemle KOH kullanılarak üretilen aktif karbonların aseton adsorpsiyonu izoterm sabitleri ve adsorplanan aseton miktarları (Adsorption isotherm constants and the amount of acetone adsorbed on Karadon coal and the activated carbons obtained by chemical activation with KOH)

Adsorpsiyon Modelleri	Model Parametreleri	K500	K600	K700	K800	K
BET	C	-1,3	22,33	68,21	69,24	6,45
	$W_m(g/g)$	-	0,19	0,38	0,38	8,5E-4
	r^2	0,54	0,99	0,99	0,99	0,88
Langmuir	C	-2,82	26,33	24,06	23,67	-7,67
	$W_m(g/g)$	-	0,35	0,63	0,61	1,1E-3
	r^2	0,61	0,99	0,99	0,99	0,88
Freundlich	K	0,25	0,34	0,63	0,63	0,04
	$1/n$	0,93	0,09	0,18	0,18	1,03
	r^2	0,66	0,91	0,81	0,98	0,19
Harkins-Jura	A	7,4E-3	0,26	0,57	0,60	0,42
	B	0,15	2,28	1,35	1,43	0,19
	r^2	0,98	0,89	0,98	0,99	0,03
DR	$V_0(cm^3/g)$	2,37	0,38	0,79	0,80	0,05
	$E_0(kJ/mol)$	2,87	29,80	11,40	12,10	6,15
	r^2	0,96	0,99	0,99	0,99	0,99
DA	$W_0(cm^3/g)$	0,49	0,39	0,77	0,79	-
	n	3,50	1	2,30	2,35	-
	$E(kJ/mol)$	3,72	76,4	9,09	9,78	-
Henderson	K	493,7	4,8E+8	60,81	61,23	0,39
	n	3,22	17,73	8,32	8,99	0,45
	r^2	0,99	0,94	0,93	0,94	0,57
Halsey	C	7,2E-4	2,5E-14	1,7E-5	1,7E-5	8,11
	n	3,31	26,80	19,14	18,74	1,89
	r^2	0,96	0,91	0,97	0,99	0,53
Smith	V_b	0,09	0,30	0,55	0,54	-1,50
	V	0,05	0,01	0,04	0,04	13,43
	r^2	0,96	0,88	0,97	0,97	0,91
^a P/P ₀ = 0.9	W^a (%)	18,48	25,97	45,00	45,99	19,93
^b P/P ₀ = 0.3	W^b (%)	-	16,25	27,59	28,60	0,09

Tablo 2. Karadon kömüründen fiziksel (FAK) ve kimyasal yöntemle NaOH kullanılarak üretilen aktif karbonların aseton adsorpsiyonu izoterm sabitleri ve adsorplanan aseton miktarları

(Adsorption isotherm constants and the amount of acetone adsorbed on the activated carbons obtained by physical (FAK) and chemical activation with NaOH)

Adsorpsiyon Modelleri	Model Parametreleri	N500	N600	N700	N800	FAK
BET	C	53,98	31,39	33,36	334	34,52
	$W_m(g/g)$	0,17	0,23	0,31	0,09	0,10
	r^2	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99
Langmuir	C	15,80	47,93	41,58	13,94	56,86
	$W_m(g/g)$	0,31	0,38	0,51	0,17	0,12
	r^2	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99
Freundlich	K	0,33	0,43	0,56	0,21	0,13
	$1/n$	0,22	0,15	0,13	0,35	4,32
	r^2	0,98	0,87	0,92	0,94	0,97
Harkins-Jura	A	0,08	0,19	0,39	0,02	0,07
	B	0,64	1,01	1,25	0,30	2,34
	r^2	0,98	0,91	0,93	0,98	0,95
DR	$V_0(cm^3/g)$	0,31	0,47	0,64	0,20	0,33
	$E_0(kJ/mol)$	19,30	17,30	14,70	10,19	12,30
	r^2	0,99	0,99	0,99	0,99	0,99
DA	$W_0(cm^3/g)$	0,33	0,45	-	0,18	0,28
	n	1	3,50	-	3,50	1
	$E(kJ/mol)$	30,60	10,20	-	7,54	8,37
Henderson	K	3292	14771	6130,7	2180	9875
	n	6,69	10,25	13,00	4,39	6,46
	r^2	0,97	0,98	0,99	0,99	0,97
Halsey	C	6,3E-5	8,6E-12	2,3E-11	3,0E-5	3,1E-10
	n	7,25	25,67	34,05	5,39	12,34
	r^2	0,90	0,82	0,80	0,97	0,98
Smith	V_b	0,24	0,37	0,48	0,01	0,20
	V	0,05	0,02	0,02	0,04	0,01
	r^2	0,87	0,80	0,78	0,97	0,85
^a P/P ₀ = 0.9	W^a (%)	25,73	32,15	37,14	20,05	16,86
^b P/P ₀ = 0.3	W^b (%)	14,82	18,70	23,55	8,76	10,87

örneğin izotermi IUPAC sınıflandırmasına göre Tip I izotermine benzemektedir. Şekil 2 incelendiğinde, bağıl basıncın 0-0,83 aralığında FAK'nun daha fazla, K örneğinin ise daha az adsorplandığı; daha yüksek basınçlarda ise K örneğinin daha fazla adsorplandığı görülmektedir. Bağıl basıncın 0,99 olduğu noktada K örneğinin adsorpsiyon kapasitesinin (%19,93), FAK örneğinin adsorpsiyon kapasitesinden (%16,86) daha yüksek olduğu Tablo 1 ve Tablo 2'deki sonuçlardan da görülmektedir. Bağıl basıncın 0,3 olduğu noktada K örneğinin adsorpsiyon kapasitesi %0,09 iken, FAK örneğinkisi %10,87 olarak bulunmuştur. Önceki çalışmamızda Kozlu kömürünün aseton adsorpsiyon kapasitesi bağıl basıncın 0,99 olduğu noktada %8,59 olarak belirlenmişti [8].

Karadon kömüründen KOH ve NaOH kullanarak kimyasal yöntemle 500, 600, 700 ve 800°C'de elde edilen aktif karbonların oda sıcaklığındaki aseton adsorpsiyon izotermi Şekil 3a'da verilmiştir. K800 örneği hariç, bu izotermilerin Tip I izotermine benzediği söylenebilir. K800 örneği de, Karadon kömüründe olduğu gibi düşük bağıl

basınçlarda, diğer 7 adsorbentten daha az aseton adsorplamışken, yüksek basınçta adsorplanan aseton miktarı daha fazla olmuştur. K700 ve N700 örneklerinin düşük bağıl basınçlarda daha fazla aseton adsorpsiyon kapasitesi göstermeleri ise, daha gelişmiş bir mikro gözenekli yapının varlığı ile açıklanabilir. KOH ve NaOH kullanılarak farklı sıcaklıklarda elde edilen aktif karbonların oda sıcaklığındaki aseton adsorpsiyon kapasiteleri Şekil 3b'de gösterilmiştir. En yüksek adsorpsiyon kapasiteleri K700 ve K800 örneklerinde sırasıyla %45 ve %45,99 olarak belirlenmiştir. Karşılaştırma yapabilmek için belirlediğimiz ticari aktif karbonun aseton adsorpsiyon kapasitesi önceki çalışmamızda %28,80 olarak belirlenmişti [8]. NaOH ile elde edilen aktif karbonlardan K600 ve K700 örnekleri de sırasıyla %32,15 ve %37,14 değerleriyle oldukça yüksek adsorpsiyon kapasitesi göstermişlerdir. Önceki çalışmamızda [8] Kozlu kömüründen KOH ile farklı sıcaklıklarda aktif karbonlar elde etmiş ve izopropil alkol, aseton ve etil alkol adsorpsiyonu kapasitelerini karşılaştırmıştık. O çalışmamızda 600, 700 ve 800°C'de elde ettiğimiz aktif karbonların aseton adsorpsiyon kapasiteleri

Tablo 3. Karadon kömüründen kimyasal yöntemle $ZnCl_2$ kullanarak üretilen aktif karbonların aseton adsorpsiyon izoterm sabitleri ve adsorplanan aseton miktarları (Adsorption isotherm constants and the amount of acetone adsorbed on the activated carbons obtained from Karadon coal by chemical activation with $ZnCl_2$)

Adsorpsiyon Modelleri	Model Parametreleri	Z400	Z500	Z600	Z700	Z800
BET	C	738,1	35,12	-0,48	9,45	31,73
	$W_m(g/g)$	0,19	0,21	-	0,15	0,14
	r^2	0,99	0,99	0,51	0,99	0,97
Langmuir	C	15,1	7,85	-2,02	2,88	6,74
	$W_m(g/g)$	0,33	0,39	-	0,37	0,29
	r^2	0,99	0,99	0,69	0,99	0,97
Freundlich	K	0,39	0,39	0,37	0,25	0,24
	$1/n$	0,28	0,31	0,40	0,41	3,67
	r^2	0,99	0,93	0,88	0,94	0,85
Harkins-Jura	A	0,07	0,08	0,04	0,02	0,05
	B	0,44	0,51	-0,28	0,35	-0,90
	r^2	0,99	0,93	0,97	0,90	0,99
DR	$V_0(cm^3/g)$	0,38	0,43	1,86	0,28	0,35
	$E_0(kJ/mol)$	10,80	8,25	3,23	6,78	6,86
	r^2	0,99	0,99	0,99	0,99	0,98
DA	$W_0(cm^3/g)$	0,40	0,36	0,67	0,40	0,27
	n	1,70	3,30	3,50	1,30	3,50
	$E(kJ/mol)$	9,03	6,82	3,81	4,47	6,10
Henderson	K	1131,5	1026,2	178,9	808	589423
	n	6,22	6,08	4,21	4,28	8,50
	r^2	0,98	0,98	0,99	0,94	0,99
Halsey	C	8,1E-8	8,5E-8	1,4E-5	1,0E-4	4,6E-7
	n	13,18	12,99	7,97	5,24	8,78
	r^2	0,76	0,89	0,91	0,83	0,94
Smith	V_b	0,28	0,27	0,23	0,15	0,18
	V	0,03	0,03	0,04	0,05	0,03
	r^2	0,75	0,90	0,92	0,81	0,90
^a $P/P_0 = 0.9$	W^a (%)	28,45	30,33	30,49	18,90	19,13
^b $P/P_0 = 0.3$	W^b (%)	16,04	17,35	-	13,12	12,51

sırasıyla %32,53, 36,84 ve 44 olarak bulunmuştu [8]. Bu durumda, KOH ve NaOH'in aseton adsorpsiyonu için aktif karbon üretiminde etkin aktivasyon ajanları oldukları söylenebilir.

Karadon kömüründen $ZnCl_2$ ve H_3PO_4 kullanılarak kimyasal yöntemle farklı sıcaklıklarda elde edilen aktif karbonların oda sıcaklığındaki aseton adsorpsiyon izotermi Şekil 3c'de gösterilmiştir. Z600 örneğinin izoterm grafiği basamaklı bir görünüm sergilerken, diğer örneklerin izotermi ise Tip I izotermine benzemektedir. Bu 9 aktif karbon arasından H800 örneğinin aseton adsorpsiyonunun, tüm bağıl basınçlarda en düşük olduğu grafikten görülmektedir. H800 örneği yüzey alanı, toplam gözenek hacmi ve mikro gözenek hacmi en az olan aktif karbon örneğidir [9]. Yüksek bağıl basınçlarda en fazla aseton adsorpladığı görülen Z500, Z600, Z400 ve H700 aktif karbon örneklerinin sırasıyla 841, 771, 926 ve 767 m^2/g BET yüzey alanlarına sahip olduğu önceki çalışmamızda belirlenmişti. En yüksek yüzey alanına sahip Z400 örneğinin izopropil alkol ve etil alkolü sırasıyla %29,56 ve %38,36 oranlarında adsorpladığı bulunmuştu [9]. $ZnCl_2$ ve H_3PO_4 kullanılarak farklı sıcaklıklarda elde edilen aktif karbonların oda sıcaklığındaki aseton adsorpsiyon kapasiteleri Şekil

3d'de gösterilmiş ve sayısal değerler Tablo 3 ve 4'de verilmiştir. Bu gruptaki aktif karbonlar arasında en yüksek adsorpsiyon kapasiteleri Z500 ve Z600 örneklerinde, sırasıyla %30,33 ve %30,49 olarak belirlenmiştir. Bu durumda, $ZnCl_2$ 'ün aktif karbon üretiminde aseton adsorpsiyonu için KOH ve NaOH'e göre daha düşük sıcaklıklarda etkin olan bir aktifleştirme ajanı olduğu söylenebilir. Daha önceki bir çalışmamızda, ticari aktif karbonun (AC) oda sıcaklığındaki aseton adsorpsiyon kapasitesi %28,80 olarak bulunmuştu [8]. Bu çalışmada ise $ZnCl_2$ ile elde edilen aktif karbonların (Z500 ve Z600) daha yüksek adsorpsiyon kapasitesine sahip oldukları ve H_3PO_4 ile elde edilen aktif karbonun (H700) ise neredeyse ticari aktif karbon kadar adsorplama kapasitesine (%28,09) sahip olduğu belirlenmiştir. Çalışmada kullandığımız Karadon kömürü ve 18 tane aktif karbonun aseton adsorpsiyon sonuçları karşılaştırıldığında; farklı aktifleştirme ajanları kullanılarak kimyasal yöntemle elde edilen K700, K800, N600, N700, Z500 ve Z600 aktif karbonlarının ticari aktif karbondan oldukça yüksek adsorpsiyon kapasitelerine sahip oldukları görülmüştür. Kozlu kömüründen fiziksel yolla elde edilen aktif karbonun (K1_600) oda sıcaklığında aseton adsorpsiyon kapasitesi daha önceki çalışmamızda %11,14 olarak belirlenmiştir [8]. Bu çalışmada Karadon kömüründen

Tablo 4. Karadon kömüründen kimyasal yöntemle H₃PO₄ kullanarak üretilen aktif karbonların aseton adsorpsiyon izoterm sabitleri ve adsorplanan aseton miktarları (Adsorption isotherm constants and the amount of acetone adsorbed on the activated carbons obtained from Karadon coal by chemical activation with H₃PO₄)

Adsorpsiyon Modelleri	Model Parametreleri	H500	H600	H700	H800
BET	<i>C</i>	29,02	643	34,55	138,9
	<i>W_m(g/g)</i>	0,13	0,14	0,22	0,11
	<i>r²</i>	0,99	0,99	0,99	0,99
Langmuir	<i>C</i>	28,10	9,79	20,51	45,87
	<i>W_m(g/g)</i>	0,23	0,26	0,38	0,16
	<i>r²</i>	0,99	0,99	0,99	0,99
Freundlich	<i>K</i>	0,24	0,26	0,39	0,18
	<i>1/n</i>	0,15	0,26	0,15	0,14
	<i>r²</i>	0,94	0,99	0,99	0,96
Harkins-Jura	<i>A</i>	0,08	0,04	0,17	0,04
	<i>B</i>	1,49	0,52	1,07	1,15
	<i>r²</i>	0,94	0,94	0,97	0,96
DR	<i>V₀(cm³/g)</i>	0,31	0,24	0,41	0,20
	<i>E₀(kJ/mol)</i>	10,24	14,06	18,91	15,99
	<i>r²</i>	0,99	0,99	0,99	0,99
DA	<i>W₀(cm³/g)</i>	0,27	0,27	0,44	0,22
	<i>n</i>	3,50	1	1	1
	<i>E(kJ/mol)</i>	7,66	16,6	29,98	18,79
Henderson	<i>K</i>	8,3E+7	3726	1,2E+4	4,7E+8
	<i>n</i>	12,01	5,58	9,30	11,08
	<i>r²</i>	0,97	0,92	0,93	0,99
Halsey	<i>C</i>	1,3E-10	3,5E-6	8,4E-7	2,6E-15
	<i>n</i>	14,31	7,78	12,77	18,00
	<i>r²</i>	0,99	0,76	0,77	0,93
Smith	<i>V_b</i>	0,20	0,19	0,32	0,15
	<i>V</i>	0,02	0,03	0,03	0,01
	<i>r²</i>	0,97	0,70	0,70	0,91
^a P/P ₀ = 0.9	<i>W^a (%)</i>	19,87	20,37	28,09	15,88
^b P/P ₀ = 0.3	<i>W^b (%)</i>	11,11	11,89	17,70	9,91

fiziksel yolla elde edilen aktif karbonun (FAK) aynı şartlarda aseton adsorpsiyon kapasitesi %16,86 olarak bulunmuştur. Daha önceki çalışmada Kozlu kömüründen KOH kullanarak kimyasal yöntemle 700 ve 800 °C'de elde edilen aktif karbonların (K1_K_700 ve K1_K_800) aseton adsorpsiyon kapasiteleri sırasıyla %36,84 ve %44 olarak rapor edilmiştir [8]. Bu çalışmada ise Karadon kömüründen aynı şartlarda elde edilen aktif karbonların yani K700 ve K800'ün aseton adsorpsiyon kapasiteleri sırasıyla %45 ve %45,99 olarak bulunmuştur.

4. SONUÇLAR (CONCLUSIONS)

Zonguldak-Karadon kömür ocağından alınan bitümlü kömür ve bu kömürün fiziksel ve kimyasal aktifleştirme yöntemleriyle elde edilen 18 adet farklı yapısal özelliklere sahip aktif karbonların oda sıcaklığındaki aseton adsorpsiyonu özellikleri incelenmiştir. Kimyasal aktifleştirme için KOH, NaOH, ZnCl₂ ve H₃PO₄ aktifleştirme ajanları kullanılmış ve aktifleştirme işlemi farklı sıcaklıklarda (400, 500, 600, 700 ve 800°C) gerçekleştirilmiştir. Deneysel aseton adsorpsiyon verileri

Brunauer-Emmett-Teller, Langmuir, Freundlich, Harkins-Jura, Dubinin-Radushkevich, Dubinin-Astakhov, Henderson, Halsey ve Smith izoterm modelleriyle karşılaştırılmış ve her bir modelin içerdiği izoterm parametreleri belirlenmiştir. Toplam gözenek hacmi, BET yüzey alanı ve mikro gözenekliliği sırasıyla 0,82 cm³/g, 1659 m²/g ve %93,9 olan K700 örneği tüm bağıl basınçlarda en yüksek (%45) aseton adsorpsiyonu kapasitesi göstermiştir. Elde edilen aktif karbonlar için, Langmuir adsorpsiyon modeli sabiti olan ve maksimum adsorpsiyon kapasitesini veren *W_m* sabitinin 0,12-0,63 g/g aralığında olduğu belirlenmiştir. Aseton adsorpsiyon kapasitesinin genellikle toplam gözenek hacmi ile arttığı belirlenmiştir. Kimyasal yöntemle elde edilen aktif karbonlar fiziksel aktifleştirme yöntemiyle elde edilen aktif karbonlardan daha yüksek adsorpsiyon kapasitesi vermişlerdir. Aktifleştirme ajanının etkisine baktığımızda ise; KOH ile 700 ve 800°C'de hazırlanan aktif karbonlar en yüksek aseton adsorpsiyon kapasitesi vermişlerdir. DR izoterm modelinden hesaplanan adsorpsiyon karakteristik enerjisinin 2,87-29,80 kJ/mol aralığında olduğu belirlenmiştir. Bu çalışma ile Karadon kömüründen kimyasal aktifleştirmeye elde edilen aktif karbonların aseton

adsorpsiyonu için oldukça etkin ve kullanışlı oldukları, ayrıca ticari olarak yüksek bir potansiyele sahip adsorbentler olabilecekleri belirlenmiştir.

TEŞEKKÜR (ACKNOWLEDGEMENT)

Bu çalışma Zonguldak Bülent Ecevit Üniversitesi (BEUN BAP 2008-13-02-02) ve Devlet Planlama Teşkilatı (DPT2003K121110) tarafından desteklenmiştir. Çalışmalarımız esnasındaki değerli katkıları ve destekleri nedeniyle değerli Hocalarımız Gazi Üniversitesi Kimya Mühendisliği Bölümü Öğretim Üyesi Prof. Dr. Gülşen DOĞU ve Orta Doğu Teknik Üniversitesi Kimya Mühendisliği Bölümü Öğretim Üyesi Prof. Dr. Timur DOĞU'ya en içten teşekkürlerimizi sunarız.

KAYNAKLAR (REFERENCES)

1. Wang Z., Li S., Xie S., Liu Y., Dai H., Guo G., Deng J., Supported ultralow loading Pt catalysts with high H₂O-, CO₂-, and SO₂- resistance for acetone removal, *Applied Catalysis A*, 579, 106-115, 2019.
2. Chevalier V., Martin J., Peralta D., Roussey A., Tardif F., Performance of HKUST-1 metal-organic framework for a VOCs mixture adsorption at realistic concentrations ranging from 0.5 to 2.5 ppmv under different humidity conditions, *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 7, 103131, 2019.
3. Kim B., Lee Y.R., Kim H.Y., Ahn W.S., Adsorption of volatile organic compounds over MIL-125-NH₂, *Polyhedron*, 154, 343-349, 2018.
4. Wang H., Wang B., Li J., Zhu T., Adsorption equilibrium and thermodynamics of acetaldehyde/acetone on activated carbon, *Separation and Purification Technology*, 209, 535-541, 2019.
5. Laskar I.I., Hashisho Z., Phillips J.H., Anderson J.E., Nichols M., Competitive adsorption equilibrium modeling of volatile organic compound (VOC) and water vapor onto activated carbon, *Separation and Purification Technology*, 212, 632-640, 2019.
6. Zhou K., Ma W., Zeng Z., Ma X., Xu X., Guo Y., Li H., Li L., Experimental and DFT study on the adsorption of VOCs on activated carbon/metal oxides composites, *Chemical Engineering Journal*, 372, 1122-1133, 2019.
7. Liang X., Chi J., Yang Z., The influence of the functional group on activated carbon for acetone adsorption property by molecular simulation study, *Microporous and Mesoporous Materials*, 262, 77-88, 2018.
8. Erdogan F.O., Kopac T., Highly effective activated carbons from Turkish-Kozlu bituminous coal by physical and KOH activation and sorption studies with organic vapors, *International Journal of Chemical Reactor Engineering*, 17 (5), 20180071, 2019.
9. Erdogan F.O., Kopac T., Adsorption behavior of alcohol vapors on Zonguldak-Karadon coal derived porous carbons, *Energy Sources, Part A: Recovery, Utilization, and Environmental Effects*, doi.org/10.1080/15567036.2019.1666191, 2019.
10. Erdogan F.O., Kopac T., Dynamic analysis of sorption of hydrogen in activated carbon, *International Journal of Hydrogen Energy*, 32, 3448-3456, 2007.
11. Erdogan F.O., Characterization of the activated carbon surface of cherry stones prepared by sodium and potassium hydroxide, *Analytical Letters*, 49 (7), 1079-1090, 2016.
12. Erdogan F.O., Comparative study of sunset yellow dye adsorption onto cornelian cherry stones-based activated carbon and carbon nanotubes, *Bulgarian Chemical Communications*, 50 (4), 592-601, 2018.
13. Bağ Ö., Tekin K., Production and characterization of hydrothermal carbon from waste lignocellulosic biomass, *Journal of the Faculty of Engineering and Architecture of Gazi University*, 35 (2), 1063-1076, 2019.
14. Kopac T., Toprak A., Preparation of activated carbons from Zonguldak region coals by physical and chemical activations for hydrogen sorption, *International Journal of Hydrogen Energy*, 32, 5005-5014, 2007.
15. Akti F., Ünal İ., Investigation of adsorption organic surfactants on the different structure adsorbent coals, *Journal of the Faculty of Engineering and Architecture of Gazi University*, 29 (1), 191-199, 2014.
16. Kopac T., Toprak A., Hydrogen sorption characteristics of Zonguldak region coal activated by physical and chemical methods, *Korean Journal of Chemical Engineering*, 26, 1700-1705, 2009.
17. Kopac T., Sulu E., Toprak A., Effect of KOH treatment on bituminous coal for the effective removal of basic blue 41 dye from aqueous solutions, *Desalination and Water Treatment*, 57, 29007-29018, 2016.
18. Kopac T., Kirca Y., Toprak A., Synthesis and characterization of KOH/boron modified activated carbons from coal and their hydrogen sorption characteristics, *International Journal of Hydrogen Energy*, 42, 23606-23616, 2017.
19. Kopac T., Sulu E., Comparison of adsorption behavior of basic red 46 textile dye on various activated carbons obtained from Zonguldak coal, *Journal of the Faculty of Engineering and Architecture of Gazi University*, 34 (3), 1227-1240, 2019.
20. Kopac T., Kirca Y., Effect of ammonia and boron modifications on the surface and hydrogen sorption characteristics of activated carbons from coal, *International Journal of Hydrogen Energy*, 45 (17), 10494-10506, 2020.
21. Kopac T., Erdogan F.O., Temperature and alkaline hydroxide treatment effects on hydrogen sorption characteristics of multi-walled carbon nanotube-graphite mixture, *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*, 15, 730-735, 2009.
22. González-Navarro M.F., Giraldo L., Moreno-Piraján J.C., Preparation and characterization of activated carbon for hydrogen storage from waste African oil-palm by microwave-induced LiOH basic activation, *Journal of Analytical and Applied Pyrolysis*, 107, 82-86, 2014.

23. Chen R., Li L., Liu Z., Lu M., Wang C., Li H., Ma W., Wang S., Preparation and characterization of activated carbons from tobacco stem by chemical activation, *Journal of the Air & Waste Management Association*, 67 (6), 713-724, 2017.
24. Xia H., Cheng S., Zhang L., Peng J., Utilization of walnut shell as a feedstock for preparing high surface area activated carbon by microwave induced activation: effect of activation agents, *Green Process Synth.*, 5, 7–14, 2016.
25. Pak S.H., Jeon M.J., Jeon Y.W., Study of sulfuric acid treatment of activated carbon used to enhance mixed VOC removal, *International Biodeterioration & Biodegradation*, 113, 195-200, 2016.
26. Gürten İnal İ., Gökçe Y., Yağmur E., Aktaş Z., Investigation of supercapacitor performance of the biomass based activated carbon modified with nitric acid, *Journal of the Faculty of Engineering and Architecture of Gazi University*, 35 (3) 1256-1243, 2020.
27. Maldhure A.V., Ekhe J.D., Pyrolysis of purified kraft lignin in the presence of AlCl₃ and ZnCl₂, *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 1, 844–849, 2013.
28. Sui H., Liu J., He L., Li X., Jani A., Adsorption and desorption of binary mixture of acetone and ethyl acetate on silica gel, *Chemical Engineering Science*, 197, 185-194, 2019.
29. Zhang X., Gao B., Fang J., Zou W., Dong L., Cao C., Zhang J., Li Y., Wang H., Chemically activated hydrochar as an effective adsorbent for volatile organic compounds (VOCs), *Chemosphere*, 218, 680-686, 2019.
30. Ushiki I., Sato Y., Ito Y., Takishima S., Inomata H., A generalized model for predicting adsorption equilibria of various volatile organic compounds on activated carbon in the presence of supercritical carbon dioxide, *The Journal of Supercritical Fluids*, 146, 30-37, 2019.
31. Wang H., Wang B., Li J., Zhu T., Adsorption equilibrium and thermodynamics of acetaldehyde/acetone on activated carbon, *Separation and Purification Technology*, 209, 535-541, 2019.
32. Ma X., Li L., Chen R., Wang C., Zhou K., Li H., Porous carbon materials based on biomass for acetone adsorption: Effect of surface chemistry and porous structure, *Applied Surface Science*, 459, 657-664, 2018.
33. Zhou K., Li L., Ma X., Mo Y., Chen R., Li H., Li H., Activated carbons modified by magnesium oxide as highly efficient sorbents for acetone, *RSC Advances*, 8, 2922, 2018.
34. Li D., Li L., Chen R., Wang C., Li H., Li H., A MIL-101 composite doped with porous carbon from tobacco stem for enhanced acetone uptake at normal temperature, *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 57, 6226-6235, 2018.
35. Zhang X., Gao B., Zheng Y., Hu X., Creamer A.E., Annable M.D., Li Y., Biochar for volatile organic compound (VOC) removal: Sorption performance and governing mechanism, *Bioresource Technology*, 245, 606-614, 2017.
36. Yu X., Liu S., Lin G., Zhu X., Zhang S., Qu R., Zheng C., Gao X., Insight into the significant roles of microstructures and functional groups on carbonaceous surfaces for acetone adsorption, *RSC Advances*, 8, 21541, 2018.
37. Hu H., Zhu J., Yang F., Chen Z., Deng M., Weng L., Ling Y., Zhou Y., A robust etb-type metal-organic framework showing polarity-exclusive adsorption of acetone over methanol for their azeotropic mixture, *Chemical Communications*, 55, 6495, 2019.
38. Blommaerts N., Dingenen F., Middelkoop V., Savelkoul J., Goemans M., Tytgat T., Verbruggen S.W., Lenaerts S., Ultrafast screening of commercial sorbent materials for VOC adsorption using real-time FTIR spectroscopy, *Separation and Purification Technology*, 207, 284-290, 2018.
39. Brunauer S., Emmett P.H., Teller E., Adsorption of gases in multimolecular layers, *Journal of the American Chemical Society*, 60, 309–319, 1938.
40. Langmuir I., The constitution and fundamental properties of solids and liquids. Part I. Solids, *Journal of the American Chemical Society*, 38, 2221–2295, 1916.
41. Freundlich H., *Kapillarchemie: Eine Darstellung der Chemie der Kolloide und verwandter Gebiete*, Akademische Verlagsgesellschaft, Leipzig, 1909.
42. Harkins W., Jura G., *Surfaces of solids. XIII. A vapour adsorption method for the determination of the area of a solid without the assumption of a molecular area, and the areas occupied by nitrogen and other molecules on the surface of a solid*, *J Am Chem Soc.*, 66, 1366-1373, 1944.
43. Dubinin M. M., Radushkevitch L.V., The equation of the characteristic curve of activated charcoal, *Proceedings of the USSR Academy of Sciences*, 55, 331–333, 1947.
44. Dubinin M.M., Astakhov V.A. Description of Adsorption Equilibria of Vapors on Zeolites over Wide Ranges of Temperature and Pressure, E.M. Flanigen, L.B. Sand (Eds.), *Molecular Sieve Zeolites-II*, Adv. Chem. Ser. No. 102, Am. Chem. Soc, Washington, 69-85, 1971.
45. Henderson S. M., A basic concept of equilibrium moisture, *Agricultural Engineering*, 33, 29–32, 1952.
46. Halsey G.D., The role of surface heterogeneity, *Adv Catal.*, 4, 259–269, 1952.
47. Smith S.E., The sorption of water vapor by high polymers, *J. Am. Chem. Soc.* 69, 646–651, 1947.
48. Tang L., Li L., Chen R., Wang C., Ma W., Ma X., Adsorption of acetone and isopropanol on organic acid modified activated carbons, *Journal of Environmental Chemical Engineering*, 4, 2045-2051, 2016.
49. Li L., Tang L., Liang X., Liu Z., Yang Y., Adsorption performance of acetone on activated carbon modified by microwave heating and alkali treatment, *Journal of Chemical Engineering of Japan*, 49 (11), 958-966, 2016.
50. Lee W.H., Reucroft P.J., Vapor adsorption on coal- and wood-based chemically activated carbons (II) adsorption of organic vapors, *Carbon*, 37, 15-20, 1999.

51. Hsieh C.T., Chen J.M., Adsorption energy distribution model for VOCs onto activated carbons, *J. Colloid Interface Sci*, 255, 248-253, 2002.
52. Jiun-Horng T., Hsiu-Mei C., Guan-Yinag H., Hung-Lung C., Adsorption characteristics of acetone, chloroform and acetonitrile on sludge-derived adsorbent, commercial granular activated carbon and activated carbon fibers, *Journal of Hazardous Materials*, 154, 1183-1191, 2008.
53. Fuertes A.B., Marbán G., Nevskaja D.M., Adsorption of volatile organic compounds by means of activated carbon fibre-based monoliths, *Carbon*, 41, 87-96, 2003.