Anadolu Üniversitesi Bilim ve Teknoloji Dergisi A-Uygulamalı Bilimler ve Mühendislik
Anadolu University Journal of Science and Technology A- Applied Sciences and Engineering
Cilt: 16 Sayı: 2 - 2015
Sayfa: 117 - 124
DOI: 10.18038/btd-a.03494

ARAŞTIRMA MAKALESİ / **RESEARCH ARTICLE**

Şakir YILMAZ [1], Mehmet KALENDER [2] *, Cevdet AKOSMAN [1]

ÇEŞİTLİ ALÇILARDA TOLUENİN DİFÜZYON VE ADSORPSİYONUNUN DİNAMİK ANALİZİ

ÖZ

Bu çalışmada, bir uçucu organik bileşik (UOB) olan toluenin gözenekli yapıdaki çeşitli alçılarda dinamik difüzyon ve adsorpsiyon davranışı tek pelet moment tekniği ile incelenmiştir. Deneysel çalışmalar bir taraflı tek pelet Wicke-Kallenbach tipi bir difüzyon/adsorpsiyon hücresinde ve atmosfer basıncında gerçekleştirilmiştir. Taşıyıcı gaz olarak azot kullanılmıştır. Gaz analizleri GC'de yapılmıştır. Hücre girişinden 2 µl hacminde toluen pulse olarak enjekte edilmiştir. GC dedektöründen alınan elektriksel sinyaller veri toplama kartı ve bilgisayar ile tepki piklerine dönüştürülmüştür. Elde edilen cevap piklerinin analizi ile toluenin adsorpsiyon denge sabiti ve etkin difüzyon katsayıları hesaplanmıştır. Deneyler $8.34x10^{-7}$-$2.92x10^{-6}$ m^3/s farklı akış hızlarında ve 298-333 K sıcaklık aralığında gerçekleştirilmiştir. Sonuçlardan toluen adsorpsiyonunun sıcaklıkla azaldığı görülmüştür. Toluen en yüksek inşaat alçısı ve makine sıva alçılarında en düşük ısı yalıtım alçısında adsorplanmıştır. Toluenin çeşitli alçı peletlerindeki etkin difüzyon katsayıları ise artan sıcaklıkla artmıştır.

Anahtar kelimeler: Alçı, Toluen, Adsorpsiyon, Etkin difüzyon katsayısı, Dinamik metot.

DYNAMIC ANALYSIS OF DIFFUSION AND ADSORPTION OF TOLUENE IN VARIOUS GYPSUM PLASTERS

ABSTRACT

In this study, dynamic diffusion and adsorption behavior of volatile organic compound (VOC), toluene, in various gypsums having porous structure were investigated by a single-pellet moment technique. The experimental studies were performed a one sided single-pellet Wicke-Kallenbach diffusion/adsorption cell at atmospheric pressure. Nitrogen was used as carrier gas. The gas analyses of VOCs were measured by using GC. 2 µl pulses of toluene were injected in the cell inlet. The signals received from GC detector were converted to response peaks by using a data accusation card and a computer. The adsorption equilibrium constant and effective diffusivities of toluene were estimated by moment analyses of the response peaks. The experiments were carried out at different gas flow rates ($8.34x10^{-7}$-$2.92x10^{-6}$ m^3/s). The temperatures investigated ranged from 298 to 333 K for toluene. It was observed that toluene adsorption decreased with increasing temperature. The highest toluene adsorption occurred in the construction plaster and machine plaster, while the lowest toluene adsorption occurred in the thermal insulation plaster. The effective diffusivities of toluene increased with increasing temperature.

Keywords: Gypsum plaster, Toluene, Adsorption, Effective diffusivities, Dynamic method.

[1] Fırat Üniversitesi Kimya Mühendisliği Bölümü, Elazığ, 23119.
[2] Fırat Üniversitesi Biyomühendislik Bölümü, Elazığ, 23119.
*E-posta: mkalender@firat.edu.tr
Geliş: 30 Eylül 2014 **Düzeltme:** 28 Kasım 2014 **Kabul:** 05 Aralık 2014

1. GİRİŞ

Yüksek toksisiteleri ile uçucu organik bileşikler (UOB) en önemli iç ortam kirleticileri arasındadır. İç ortamlardan salınan UOB'ler genel olarak boya, vernik, yapıştırıcı, döşemelik gibi yapı malzemelerinden kaynaklanmaktadırlar. Duvar yapımında kullanılan alçı blok ve levhalarda ksilen ve toluen türü UOB'ler bulunurken, inşaat sıvasında en çok rastlanan uçucu organik bileşikler, etil benzen, formaldehit ve toluendir. Toluen ayrıca duvar kâğıtlarının yapısında da bulunmaktadır. Özellikle iç yüzey kaplamalarında kullanılan işlem görmüş ahşap ve yapay ahşaplar ile boya, vernik, cila gibi malzemeler de iç ortam havasında bulunan etil benzen, tri-metil benzen, ksilen gibi UOB'lerin önemli kaynaklarıdır (Vural ve Balanlı 2005; Alyüz ve Veli 2006; Cox ve ark. 2001).

Birçok kaynaktan çevreye salınan ve çoğu toksik özellikte olan UOB'lerin gözenekli katı materyallerdeki davranışı belirlenmelidir. Gözenekli katı materyallerde UOB taşınım ve adsorpsiyonunu karakterize etmek için etkin difüzyon ve adsorpsiyon katsayılarının bilinmesi gerekir (Cox ve ark. 2001; Huang ve Haghighat 2003; Luo ve Niu 2006; Yang ve ark. 2001). Gözenekli katılarda etkin difüzyon katsayısı ve adsorpsiyon denge sabitinin güvenilir ve hızlı bir şekilde belirlenmesinde yaygın olarak kullanılan yöntemlerden biri dinamik bir taraflı tek pelet difüzyon/adsorpsiyon hücre yöntemidir. Dinamik tek pelet difüzyon/adsorpsiyon hücresi yönteminin esası pulse şeklinde taşıyıcı gaz akımına verilen izleyicinin gözenekli katı materyalden hazırlanan bir peletteki cevap piklerinin istatistiksel moment analizleridir. Birinci moment analizinden adsorpsiyon denge sabiti hesaplanırken ikinci merkezi moment analizinden ise etkin difüzyon katsayısı belirlenebilir.

Bir taraflı tek pelet adsorpsiyon hücresi yönteminde peletin üzerinin açık ve kapalı olduğu durumlar için kurulan kütle dengesi ifadelerinin uygun sınır şartları altında çözülüp deneysel moment analizleri ile birleştirilmesiyle adsorpsiyon denge sabiti ve etkin difüzyon katsayısı gibi parametreler kolaylıkla bulunabilmektedir. Bu tip bir hücre için izleyici konsantrasyon ifadesi aşağıdaki eşitlik ile ifade edilmektedir (Yaşyerli ve ark. 1999; Doğu ve ark. 1996):

$$C_A = \frac{C_o \tau}{\left(D_e A / FL \right)(mL)\tanh(mL) + s\tau + 1} \tag{1}$$

Burada m, tersinir, tersinmez, denge ve inert adsorpsiyon gibi farklı adsorpsiyon mekanizmaları için tanımlanmıştır (Doğu ve ark. 1996). Adsorpsiyon hücresinin çıkışında ölçülen cevap pikinin moment ifadeleri aşağıda verilen n. moment ifadesinin genel tanımından yararlanarak türetilmiştir.

$$m_n = \int_0^\infty t^n \, C_A(t)\, dt = (-1)^n \lim_{s \to 0} \frac{d^n \overline{C}_A}{dS^n} \tag{2}$$

Gözenekli katıda izleyicinin adsorpsiyonu çok hızlıysa, bu durumda gözeneklerde gaz faz konsantrasyonu ve adsorplanan izleyici arasında denge adsorpsiyonunun olduğu varsayılabilir. Böylece tersinir adsorpsiyon için türetilen eşitlikler denge adsorpsiyonuna indirgenir. Sıfırıncı moment için pelet üzerinin açık (m_{0t}) ve kapalı (m_0) olduğu durumlardaki momentler oranı, birinci mutlak ve ikinci merkezi momentlerde ise peletin üzerinin açık ve kapalı olduğu durumlardaki momentler farkı düzeltilmiş moment olarak adlandırılır. Denge adsorpsiyonu için düzeltilmiş sıfırıncı, birinci mutlak ve ikinci merkezi moment ifadeleri aşağıdaki şekildedir:

$$m_{oc} = \frac{m_o}{m_{ot}} = 1 \tag{3}$$

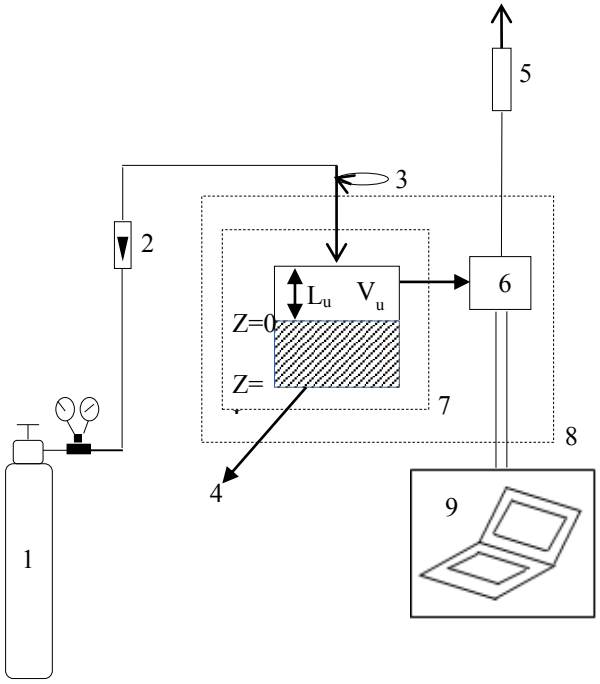
$$\mu_{1c} = \frac{AL}{F}\left(\varepsilon_p + \rho_p K_i\right) \tag{4}$$

$$\frac{\mu_{2c}}{\mu_{1c}^{\ 2}} = 1 + \frac{2V_t}{AL\left(\varepsilon_p + \rho_p K_i\right)} + \left(\frac{2L}{3D_e A}\right)F \tag{5}$$

Burada μ_{1c} düzeltilmiş birinci mutlak moment, μ_{2c} düzeltilmiş ikinci merkezi moment, A pelet kesit alanı, L pelet uzunluğu, ε_p pelet gözenekliliği, ρ_p pelet yoğunluğu, K_i adsorpsiyon denge sabiti, F taşıyıcı gaz akış hızı, V_t pelet üstündeki bölme hacmi, D_e etkin difüzyon katsayısıdır. Deneysel moment değerleri elde edilen pik alanlarının sayısal metotla hesaplanmasıyla elde edilir.

2. MATERYAL ve YÖNTEM

Deneysel çalışmalarda kullanılan alçı örnekleri (inşaat alçısı, perlitli sıva alçısı, makine sıva alçısı, ısı yalıtım alçısı ve saten perdah alçısı) Elazığ'da üretim gerçekleştiren Arslanlı A.Ş.' den temin edilmiştir. Çalışılan alçı örneklerinin katı yoğunlukları He piknometresi yöntemiyle ölçülmüştür. UOB olarak Merck marka toluen (% 99 GC saflık) kullanılmıştır. Deneyler paslanmaz çelikten yapılmış bir taraflı tek pelet difüzyon/adsorpsiyon deney setinde gerçekleştirilmiştir (Şekil 1).



Şekil 1. Bir taraflı tek pelet difüzyon/adsorpsiyon hücresi deney düzeneği 1. Azot tüpü, 2. Rotametre, 3. Örnek enjeksiyonu, 4. Pelet, 5. Sabun köpüğü akış ölçer, 6. TCD dedektör 7. Fırın, 8. GC, 9. Bilgisayar

Toz halindeki alçılar 378 K'deki etüvde kurutularak sızdırmaz kapaklı cam kaplarda deneylerde kullanılmak üzere saklanmıştır. Kurutulan alçı örneklerinden belirli miktarlarda tartımlar alınarak 0.013 m çapında 0.003 m uzunluğundaki paslanmaz çelikten yapılmış halka içinde sıkıştırılmak suretiyle peletlenmiştir. Hazırlanan peletler kalıbıyla birlikte difüzyon/adsorpsiyon hücresine yerleştirilmiştir. GC fırını içerisine konulan difüzyon/adsorpsiyon hücresinden taşıyıcı gaz (azot) geçirilmiştir. Hücre

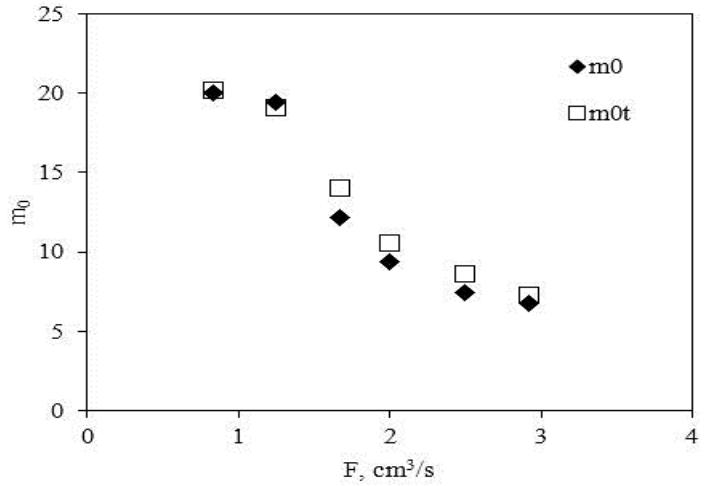
girişine farklı taşıyıcı gaz akış hızlarında ($8.34x10^{-7}$-$2.92x10^{-6}$ m^3/s) 2 µL toluen (izleyici) pulse olarak enjekte edilmiştir. GC dedektöründen elde edilen tepki piklerinin değerlendirilmesi ile toluenin alçı peletlerindeki birinci mutlak moment (ortalama alıkonma süreleri) ve ikinci merkezi moment (varyans) analizleri yapılmıştır. Deneysel çalışmalar atmosfer basıncında ve 298-333 K sıcaklıkları arasında yürütülmüştür.

3. BULGULAR

Çalışılan alçı peletlerine ait yoğunluk ve gözeneklilik değerleri Tablo 1'de verilmiştir. 298 K'de toluenin inşaat alçısında farklı taşıyıcı gaz akış hızlarında elde edilen pelet üzerinin açık ve kapalı olduğu durumlardaki sıfırıncı momentleri Şekil 2'de gösterilmiştir. Sıfırıncı moment dinamik analiz sonucu meydana gelen tepki piklerinin altında kalan alandır. Şekil 2'den görüldüğü gibi peletin üstünün açık ve kapalı olduğu durumlardaki sıfırıncı momentlerin birbirine yakın olması toluenin inşaat alçısındaki adsorpsiyonunun tersinir olarak gerçekleştiğini göstermektedir (Yaşyerli ve ark. 1999; Doğu ve ark. 1996).

Tablo 1. Çalışılan alçı örneklerinden hazırlanan peletlerin katı ve görünür yoğunlukları ile pelet gözeneklilik değerleri

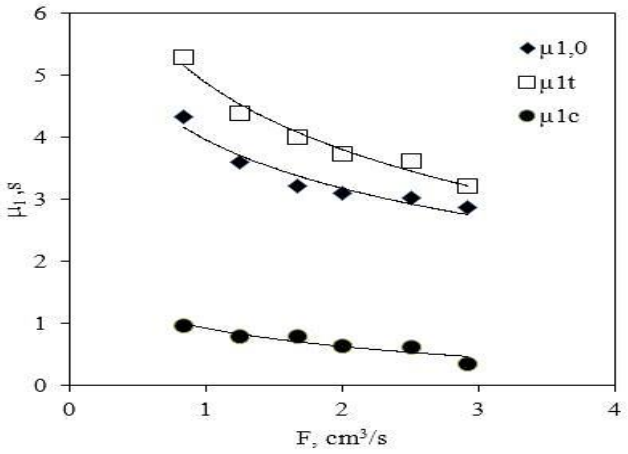
Yapı Malzemesi	**Katı yoğunluğu, ρ_s, g/cm^3**	**Görünür yoğunluk, ρ_p, g/cm^3**	**Gözeneklilik, ε_p (-)**
Perlitli Sıva Alçısı	2.34	1.464	0.374
Isı Yalıtım Levha S. Harcı	2.65	2.197	0.171
Makine Sıva Alçısı	2.36	1.637	0.306
İnşaat Alçısı	2.32	1.562	0.327
Saten Perdah Alçısı	2.36	1.738	0.264



Şekil 2. 298 K'de Toluenin inşaat alçısında pelet üzerinin açık (m_{0t}) ve kapalı (m_0) olduğu durumlardaki sıfırıncı momentleri

Toluenin çalışılan tüm sıcaklık ve diğer tüm yapı malzemelerindeki adsorpsiyonu için de Şekil 2'dekine benzer sıfırıncı moment analizi sonuçları elde edilmiştir.

Toluenin perlitli alçı sıvasında 333 K'de hesaplanan pelet üstünün açık ve kapalı olduğu durumlar ile düzeltilmiş birinci mutlak moment değerlerinin taşıyıcı gaz akış hızı ile değişimi Şekil 3'de gösterilmiştir. Şekil 3'den görüldüğü gibi birinci mutlak moment değerleri taşıyıcı gaz akış hızı artışı ile azalmaktadır. Şekil 3'deki durum toluenin çalışılan tüm sıcaklık değerlerinde ve diğer tüm alçı örneklerinde de gözlenmiştir.



Şekil 3. Toluenin 333 K'de perlitli alçı sıvası için pelet üstünün açık (μ_{1t}), kapalı ($\mu_{1,0}$) ve düzeltilmiş (μ_{1c}) birinci mutlak moment değerlerinin taşıyıcı gaz akış hızı ile değişimi

Birinci mutlak moment fiziksel olarak gözenekli katı pelette izleyicinin ortalama kalış süresi olup Eşit. 4'den görüleceği üzere adsorpsiyon denge sabiti ile ilişkilidir. Oluşturulacak 1/F-μ_{1c} grafiklerinin eğimlerinden $\rho_p K_i$ değerleri bulunabilir. Toluenin farklı sıcaklıklarda çalışılan alçı örneklerinde 1/F-μ_{1c} grafiklerinin eğimlerinden hesaplanan $\rho_p K_i$ değerleri Tablo 2'de verilmiştir.

Tablo 2. Toluenin farklı sıcaklıklarda çalışılan alçı örneklerindeki $\rho_p K_i$ değerleri

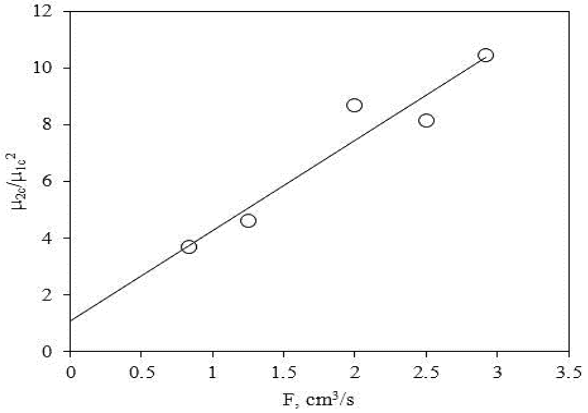
Yapı Malzemesi	**$\rho_p K_i$**		
	298 K	**313 K**	**333 K**
Perlitli alçı sıvası	12.226	8.352	2.416
Isı yalıtım levha alçı sıvası	10.844	7.750	4.243
İnşaat alçısı	13.786	10.241	4.906
Makine sıva alçısı	12.936	8.824	4.405
Saten perdah alçısı	11.889	8.266	4.388

Toluenin deneysel çalışmalarda kullanılan alçı peletindeki adsorpsiyon ısıları Van't Hoff eşitliği yardımıyla hesaplanmıştır. Van't Hoff eşitliği gereğince 1/T-ln($\rho_p K_i$) grafiği oluşturularak elde edilen doğruların eğiminden adsorpsiyon ısıları bulunmuştur. Bu şekilde hesaplanan adsorpsiyon ısıları Tablo 3'de verilmiştir.

Tablo 3. Toluenin deneysel çalışmalarda kullanılan alçı örneklerindeki adsorpsiyon ısıları

Yapı Malzemesi	**Adsorpsiyon ısısı, - ΔH kcal/gmol**
Perlitli alçı sıvası	9.252
Isı yalıtım levha alçı sıvası	5.316
İnşaat alçısı	5.878
Makine sıva alçısı	6.104
Saten perdah alçısı	5.645

Son olarak bir taraflı tek pelet difüzyon/adsorpsiyon hücre yöntemiyle Eşit. 5 kullanılarak toluenin farklı sıcaklıklarda çalışılan alçı örneklerindeki etkin difüzyon katsayıları hesaplanmıştır. Bu amaçla F-μ_{2c}/μ_{1c}^2 grafikleri oluşturulmuştur. Perlitli alçı sıvası için 313 K'deki F-μ_{2c}/μ_{1c}^2 grafiği Şekil 4'de gösterilmiştir. Şekil 4'de gösterildiği gibi oluşturulan F-μ_{2c}/μ_{1c}^2 grafiklerinin eğiminden hesaplanan etkin difüzyon katsayısı değerleri Tablo 4'de verilmiştir.



Şekil 4. Toluenin 313 K'de perlitli alçı sıvasına ait F-μ_{2c}/μ_{1c}^2 grafiği

Tablo 4. Toluenin farklı sıcaklıklarda çalışılan alçı örneklerindeki etkin difüzyon katsayısı değerleri

Yapı Malzemesi	**D_e, cm²/s**		
	298 K	**313 K**	**333 K**
Perlitli alçı sıvası	0.039	0.047	0.059
Isı yalıtım levha alçı sıvası	0.015	0.033	0.073
İnşaat alçısı	0.028	0.050	0.081
Makine sıva alçısı	0.083	0.101	0.391
Saten perdah alçısı	0.061	0.076	0.125

4. TARTIŞMA

Çalışılan sıcaklıklarda tüm alçı örneklerinde toluenin pelet üstünün açık ve kapalı olduğu durumlarda elde edilen sıfırıncı moment değerlerinin (Şekil 2) birbirine yakın olduğu görülmüştür. Bu sonuç toluenin çalışılan alçı örneklerinde tüm sıcaklıklarda tersinir olarak adsorplandığını göstermektedir (Doğu ve ark. 1996). Böylece tersinir adsorpsiyon için geçerli olan Eşit. 4 ve 5 kullanılarak toluenin alçı örneklerindeki adsorpsiyon ve difüzyon katsayıları hesaplanabilir.

Tablo 2'den görüldüğü gibi toluenin çalışılan tüm alçı örneklerindeki adsorpsiyonu artan sıcaklıkla azalmaktadır. Fiziksel adsorpsiyonun genel karakteristiği (Ruthven, 1984) olan bu durum için çalışılan alçı örneklerinde toluenin fiziksel olarak adsorplandığı söylenebilir. Tablo 2'den ayrıca genel olarak tüm sıcaklık değerlerinde en iyi toluen adsorpsiyonunun inşaat alçısı ve makine sıva alçılarında; en düşük toluen adsorpsiyonunun ise ısı yalıtım levha alçısında gerçekleştiği görülmektedir.

Tablo 3'den görüldüğü gibi çalışılan tüm alçılarda adsorpsiyon ısılarının negatif olduğu ekzotermik adsorpsiyon meydana gelmiştir. Tablo 3'den hesaplanan adsorpsiyon ısısı değerleri 25-30 kcal/gmol aralığındaki değerlerden düşük olduğu görülmektedir. Bu durum çalışılan alçı örneklerinin hepsinde fiziksel adsorpsiyonun varlığını desteklemektedir (Ruthven, 1984).

Son olarak gerçekleştirilen ikinci merkezi moment analizlerinden alçı örneklerinde toluenin etkin difüzyon katsayıları hesaplanmıştır. Tablo 4'de görüldüğü gibi çalışılan tüm alçı örneklerinde toluenin etkin difüzyon katsayısı değerleri 10^{-5}-10^{-6} m^2/s aralığındadır. Gerek alçı örneklerinde herhangi bir UOB adsorpsiyonu için ve gerekse farklı yapı malzemelerinde toluen adsorpsiyonu için literatürde yapılan çalışmalarda benzer sayısal büyüklüklere sahip etkin difüzyon katsayısı değerlerinin elde edildiği sonuçlarına ulaşılmıştır (Xu ve Zhang, 2011; Kwan ve Cho, 2013; Xu ve ark., 2012; Meininghause ve Uhde, 2002; Tang ve ark., 2014). Böylece bu çalışmada hesaplanan etkin difüzyon katsayısı değerlerinin literatürle uyum içinde olduğu söylenebilir. Tablo 4'den ayrıca etkin difüzyon katsayısı değerlerinin beklenildiği gibi sıcaklık arttıkça arttığı görülmektedir.

5. GENEL SONUÇLAR ve ÖNERİLER

Toluenin farklı sıcaklıklarda çeşitli alçılardaki difüzyon ve adsorpsiyonunun dinamik metotla incelendiği bu çalışmada özetle aşağıdaki sonuçlar elde edilmiştir:

- Çalışılan sıcaklık aralığında toluen çalışılan tüm alçı örneklerinde tersinir olarak adsorplanmıştır. Sıcaklık arttıkça adsorpsiyon azalmıştır.
- Adsorpsiyon ısısı değerlerinden fiziksel adsorpsiyonun gerçekleştiği görülmüştür.
- İkinci merkezi moment analizlerinden toluenin çalışılan alçı örneklerindeki etkin difüzyon katsayısı değerlerinin 10^{-5}-10^{-6} m^2/s aralığında değiştiği görülmüştür. Sıcaklık arttıkça etkin difüzyon katsayısı değerleri de artmıştır.

Bu konu üzerine daha sonra çalışma gerçekleştirecek araştırmacılara, çalışılan alçı örneklerinde toluen difüzyon ve adsorpsiyonuna relatif nem etkisinin ve farklı UOB'lerin difüzyon ve adsorpsiyonunun incelenmesi önerilmektedir.

KAYNAKLAR

Alyüz, B. ve Veli, S., (2006). İç Ortam Havasında Bulunan Uçucu Organik Bileşikler ve Sağlık Üzerine Etkileri, *Environment Engineering Science*, 7, 109-116.

Cox, S.S., Zhao, D. and Little J.C., (2001). Measuring Partition and Diffusion Coefficients for Volatile Organic Compounds in Vinyl Flooring, *Atmospheric Environment*, 35, 3823-3830.

Doğu, T.,Yaşyerli, N.,Doğu, G., McCoy, B.J. and Smith, J.M., (1996). One-sided Single-pellet Technique for Adsorption and Intraparticle Diffusion, *AIChE J.*, 42, 516-523.

Huang, H. and Haghighat, F., (2003). Building Materials VOC Emissions-a Systematic Parametric Study, *Building and Environment*, 38, 995-1005.

Kwon, S. H. and Cho, D., (2013). A Study on Isothermal Adsorption of VOCs Onto Gypsum Mortar Incorporating Oyster Shell, *Clean Tecnology*, 19, 134-139.

Luo, R. and Niu, J.L., (2006). Determining Diffusion and Partition Coefficients of VOCs in Cement using one FLEC, *Building and Environment*, 41, 1148-1160.

Meininghaus, R. and Uhde, E., (2002). Diffusion Studies of VOC Mixtures in a Building Material, *Indoor Air*, 12, 215-222.

Ruthven, D.M., (1984). *Principles of Adsorption and Adsorption Processes*, John Wiley, New York.

Tang, S.W., Chen, E., Li, Z.J. and Shao, H.Y., (2014). Assessment of Steady State Diffusion of Volatile Organic Compounds in Unsaturated Building Materials Based on Fractal Diffusion Model, *Building and Environment*, in-press.

Vural, M.S. ve Balanlı, A., (2005). Yapı Ürünü Kaynaklı İç Hava Kirliliği ve Risk Değerlendirme de Ön Araştırma, *Megaron Yıldız Teknik Üniversitesi, Mimarlık Fakültesi Dergisi*, 1, 28-39.

Xu, J., Zhang and Jianshun S., (2011). An Experimental Study of Relative Humidity Effect on VOCs' Effective Diffusion Coefficient and Partition Coefficient in a Porous Medium, *Building and Environment*., 46, 1785-1796.

Xu, J., Zhang, Jianshun S., Liu, X. and Gao1, Z., (2012). Determination of Partition and Diffusion Coefficients of Formaldehyde in Selected Building Materials and Impact of Relative Humidity, *Journal of Air and Waste Management Association*, 62, 671-679.

Yang, X.,Chen, Q., Zhang, J.S., An, Y., Zeng, J. and Shaw, C.Y., (2001). A Mass Transfer Model for Simulating VOC Sorption on Building Materials, *Atmospheric Environment*, 35, 1291-1299.

Yaşyerli, N., Doğu, G., Doğu, T. and McCoy, B.J., (1999). Pulse-response Study for the Humidity Effect on Sorption of Ethyl Bromide on Clays, *American Institute of Chemical Engineering J*., 45, 291-298.