

## DÉTERMINATION DES CHALEURS DE MÉLANGE DES SYSTÈMES TERNAIRES Pipéridine et hydrocarbures à 303.15 K

*H. Sifaoui*<sup>1\*</sup>, *A. Ait-kaci*<sup>2</sup> et *M. Rogalski*<sup>3</sup>

<sup>1</sup>Département de Chimie, Faculté des Sciences et des Sciences de l'Ingénieur, Université A. Mira, Rue Tharga Ouzzemour, 06000 Béjaia, Algérie

<sup>2</sup>Laboratoire de Thermodynamique des Matériaux Organiques, Faculté de Chimie, Université des Sciences et de la Technologie Houari Boumediène, BP 32, El-Alia, Bab Ezzouar, Alger, Algérie

<sup>3</sup>Laboratoire de Thermodynamique et d'Analyse Chimique, Université de Metz, Ile du Saulcy, Metz, France

(Reçu le 14 December, 2002)

### Abstract

Heats of mixing  $H^E$  at 303.15 K and 1.013 bar are reported for two ternary liquid mixtures piperidine(1)+*n*-heptane(2)+cyclohexane(3) and piperidine(1)+*n*-octane(2)+cyclohexane(3).

A Redlich–Kister type smoothing equation was used to represent and correlate the results. A dispersive quasichemical (DISQUAC) theoretical model was used for predicting the heats of mixing  $H^E$  at 303.15 K and 1.013 bar for these two ternary liquid mixtures.

**Keywords:** disquac model, heat of mixing, Redlich–Kister equation, ternary system

### Partie expérimentale

Les chaleurs de mélange des systèmes binaires, heptane-*n* (1)+cyclohexane(2), octane-*n*(1)+cyclohexane(2) et pipéridine(1)+cyclohexane(2), ont été déterminées par d'autres auteurs [3, 4, 7] à  $T=298.15$  K, elles peuvent servir de valeurs de référence. Nous les avons remesurées à  $T=303.15$  K pour comparer nos résultats et nous assurer de la fiabilité de l'appareil utilisé.

Les chaleurs des mélanges liquides binaires et ternaires ont été mesurées à l'aide d'un calorimètre à flux C80 Setaram. Ce calorimètre comprend deux cellules à deux compartiments séparés par un opercule sur lequel on met quelques gouttes de mercure pour une meilleure étanchéité. La première cellule est utilisée comme cellule de référence. Elle doit être identique à la seconde qui est celle de mesure. Le calorimètre C80 Setaram est muni d'un système de retournement pour assurer le

\* Author for correspondence: E-mail: [hsifaoui@yahoo.fr](mailto:hsifaoui@yahoo.fr)

mélange. La température est stabilisée par une régulation de température de type PID régulant à  $\pm 0.01^\circ\text{C}$ .

Pour déterminer les chaleurs de mélange des mélanges liquides ternaires, nous avons procédé de la façon suivante : On réalise un mélange binaire de composition connue. Le mélange ainsi réalisé est introduit dans le compartiment inférieur de la cellule de mesure. Ce compartiment est ensuite fermé par l'opercule sur lequel on ajoute quelques gouttes de mercure. Le troisième constituant est placé dans le compartiment supérieur de la cellule. Une fois l'équilibre thermique atteint, on déclenche le système à retournement pour effectuer le mélange.

Les systèmes ternaires ont été mesurés suivant des lignes de dilution telles que le rapport  $x_1/x_2$  soit constant. Ces lignes partent d'un sommet du triangle des compositions vers le côté opposé à ce sommet.

Les produits faisant l'objet de notre étude ont été utilisés sans purification supplémentaire. Le cyclohexane, l'octane-*n* et la pipéridine, sont d'origine Riedel-de Haen Seelze-Hanover de pureté 99%, l'heptane-*n* est d'origine Merck de pureté 99.5%.

## Résultats expérimentaux des mélanges binaires

Les résultats expérimentaux des cinq systèmes binaires sont consignés dans les tableaux 1–5 et représentés sur les figures 1–5. Tous ces mélanges binaires présentent des effets endothermiques.

**Tableau 1** Enthalpie molaire d'excès du système binaire heptane-*n*(1)+cyclohexane(2) à  $T=303.15\text{ K}$

$x_1$	$H^E/\text{J mol}^{-1}$
0.0494	69.1
0.1007	125.2
0.1493	159.4
0.2010	181.8
0.3000	222.0
0.3430	226.0
0.4434	239.0
0.5150	230.0
0.5987	212.6
0.7058	174.7
0.8000	128.7
0.8965	68.4

**Tableau 2** Enthalpie molaire d'excès du système binaire octane-*n*(1)+cyclohexane(2) à  $T=303.15$  K

$x_1$	$H^E/\text{J mol}^{-1}$
0.0968	132.5
0.0988	134.5
0.1170	154.0
0.1503	177.4
0.2015	199.9
0.2542	223.1
0.3055	245.0
0.3828	264.5
0.4750	270.0
0.6065	246.0
0.6532	225.6
0.7054	204.0
0.7661	160.9
0.7986	140.2
0.8075	133.0
0.8469	105.0
0.8990	72.3

**Tableau 3** Enthalpie molaire d'excès du système binaire pipéridine(1)+cyclohexane(2) à  $T=303.15$  K

$x_1$	$H^E/\text{J mol}^{-1}$
0.1012	435.1
0.2030	722.8
0.2998	851.0
0.3983	882.4
0.4985	886.5
0.6003	810.1
0.7095	693.0
0.7968	529.7
0.9006	254.8

Les résultats expérimentaux de ces systèmes binaires sont en bon accord avec les valeurs de la littérature.

Les valeurs expérimentales de chaque système binaire ont été lissées par la méthode des moindres carrés avec l'équation de Redlich–Kister [8] sous la forme suivante :

$$H^E = x_1 x_2 \sum_{i=1} A_i (x_1 - x_2)^{i-1} \quad (1)$$

**Tableau 4** Enthalpie molaire d'excès du système binaire pipéridine(1)+heptane-*n*(2) à  $T=303.15$  K

$x_1$	$H^E/J \text{ mol}^{-1}$
0.0995	208.9
0.1992	353.2
0.2998	461.3
0.3500	470.1
0.4015	512.4
0.4458	507.8
0.5008	517.9
0.5516	502.7
0.6614	462.9
0.7018	428.6
0.7992	334.1
0.9050	184.0

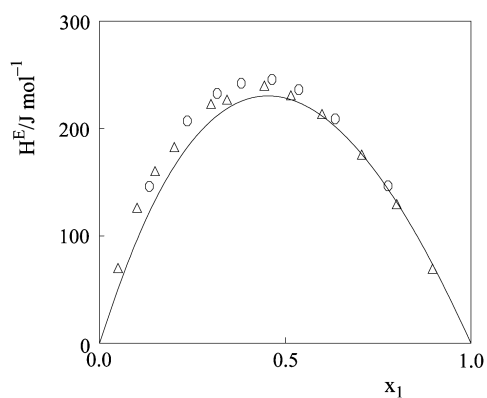
**Tableau 5** Enthalpie molaire d'excès du système binaire pipéridine(1)+octane-*n*(2) à  $T=303.15$  K

$x_1$	$H^E/J \text{ mol}^{-1}$
0.0999	493.4
0.2019	841.1
0.3006	1079.3
0.4005	1182.6
0.4489	1208.6
0.5000	1231.4
0.5472	1218.3
0.5926	1168.1
0.6050	1157.3
0.6181	1143.4
0.6593	1099.8
0.7016	1019.1
0.8004	767.7
0.8024	763.3
0.8989	447.0

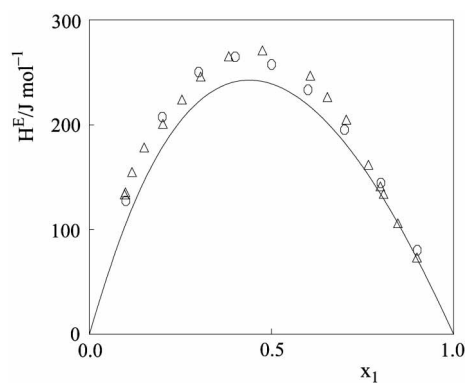
Les coefficients de lissage  $A_i$  de chaque système binaire et les déviations standard  $\sigma$  correspondantes sont données dans le tableau 6. La déviation standard  $\sigma$  est définie par l'expression suivante :

**Tableau 6** Coefficients de lissage de l'équation (1) et déviations standard pour les cinq mélanges binaires

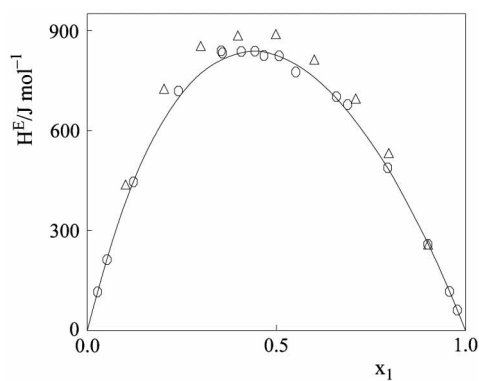
Coeff.	Système				
	heptane- <i>n</i> (1) + cyclohexane(2)	octane- <i>n</i> (1) + cyclohexane(2)	pipéridine(1) + cyclohexane(2)	pipéridine(1) + heptane- <i>n</i> (2)	pipéridine(1) + octane- <i>n</i> (2)
$A_1$	932.19	1081.23	3496.43	4619.2	4895.97
$A_2$	-207.57	-152.13	-736.59	-374.68	-244.81
$A_3$	36.58	-237.10	1604.70	514.18	421.32
$A_4$	-268.70	-488.21	-749.10	-466.57	-248.17
$A_5$	237.61	538.92	-1684.48	-	-
$\sigma/\text{J mol}^{-1}$	2.32	2.19	6.23	7.17	7.54



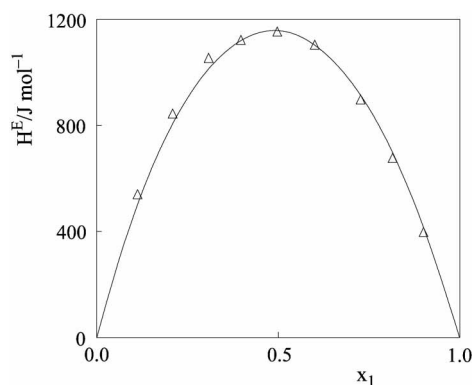
**Fig. 1** Enthalpie molaire d'excès du système heptane-*n*(1)+cyclohexane(2) en fonction de la fraction molaire  $x_1$  à  $T=303.15$  K.  $\Delta$  – nos résultats;  $\circ$  – littérature à 298.15 K [4], - - courbe calculée avec le modèle Disquac



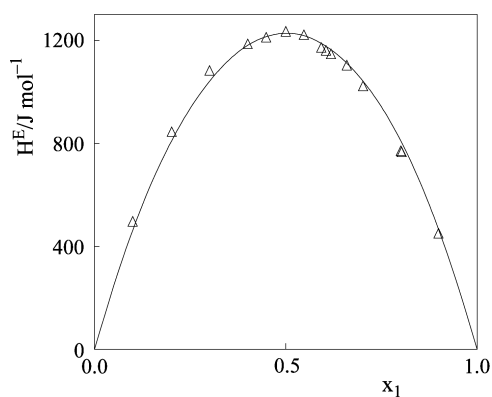
**Fig. 2** Enthalpie molaire d'excès du système octane-*n*(1)+cyclohexane(2) en fonction de la fraction molaire  $x_1$  à  $T=303.15$  K.  $\Delta$  – nos résultats;  $\circ$  – littérature à 298.15 K [7], - - courbe calculée avec le modèle Disquac



**Fig. 3** Enthalpie molaire d'excès du système pipéridine(1)+cyclohexane(2) en fonction de la fraction molaire  $x_1$  à  $T=303.15$  K.  $\Delta$  – nos résultats;  $\circ$  – littérature à 298.15 K [3], - - courbe calculée avec le modèle Disquac



**Fig. 4** Enthalpie molaire d'excès du système pipéridine(1)+heptane- $n$ (2) en fonction de la fraction molaire  $x_1$  à  $T=303.15$  K.  $\Delta$  – nos résultats; - - courbe calculée avec le modèle Disquac



**Fig. 5** Enthalpie molaire d'excès du système pipéridine(1)+octane- $n$ (2) en fonction de la fraction molaire  $x_1$  à  $T=303.15$  K.  $\Delta$  – nos résultats; - - courbe calculée avec le modèle Disquac

$$\sigma = \left[ \frac{\sum_i (H_i^E(\text{exp}) - H_i^E(\text{cal}))^2}{N - P} \right]^{1/2} \quad (2)$$

où  $N$  est le nombre de points expérimentaux et  $P$  le nombre de paramètres de l'équation de lissage (1).

### Résultats expérimentaux sur les mélanges ternaires

Les résultats expérimentaux pour les deux systèmes ternaires pipéridine(1)+heptane- $n$ (2)+cyclohexane(3) et pipéridine(1)+octane- $n$ (2)+cyclohexane(3) sont reportés dans les tableaux 7 et 8. Ils présentent tous les deux un effet endothermique.

**Tableau 7** Enthalpie molaire d'excès du système ternaire pipéridine(1)+heptane-*n*(2)+cyclohexane(3)

$x_1$	$x_2$	$H^E/\text{J mol}^{-1}$
0.2081	0.7919	841.4
0.1759	0.6697	693.6
0.1459	0.5552	590.8
0.1250	0.4760	515.3
0.0819	0.3117	379.9
0.0618	0.2353	323.6
0.0294	0.1121	209.8
0.5121	0.4875	1151.8
0.4342	0.4131	1002.6
0.3584	0.3409	881.6
0.3072	0.2922	783.9
0.2582	0.2456	744.0
0.2064	0.1963	596.2
0.1478	0.1406	489.7
0.8013	0.1987	713.0
0.6788	0.1683	786.8
0.5620	0.1394	851.1
0.4814	0.1194	860.3
0.4034	0.1000	855.0
0.3214	0.0797	752.2
0.2416	0.0599	685.9
0.1155	0.0287	458.4
0.0416	0.0103	193.4

*Calcul des chaleurs de mélange du ternaire*

Pour corrélérer les résultats expérimentaux des deux systèmes ternaires, nous avons utilisé une relation dans laquelle figurent les enthalpies d'excès des systèmes binaires et un terme croisé  $C_{123}$ . La meilleure corrélation obtenue en utilisant la méthode des moindres carrés est celle correspondant à  $C_{123}=(c_0+c_1x_1+c_2x_2)x_1x_2x_3$  et à l'équation (3) ci-dessous.

Les valeurs des paramètres retenus sont données dans le tableau 9.

$$H_{123}^E = H_{12}^E + H_{13}^E + H_{23}^E + (c_0 + c_1x_1 + c_2x_2)x_1x_2x_3 \quad (3)$$

**Ternaire 1 :** pipéridine(1)+heptane-*n*(2)+cyclohexane(3); Les chaleurs de mélange de ce ternaire ont été déterminées à  $x_1/x_2=0.2627$ ,  $x_1/x_2=1.0512$  et  $x_1/x_2=4.0327$ .

**Ternaire 2 :** pipéridine(1)+octane-*n*(2)+cyclohexane(3); Les chaleurs de mélange de ce ternaire ont été déterminées à  $x_1/x_2=0.413$ ,  $x_1/x_2=0.9845$  et  $x_1/x_2=2.4686$ .



**Tableau 8** Enthalpie molaire d'excès du système ternaire pipéridine(1)+octane-*n*(2)+cyclohexane(3)

$x_1$	$x_2$	$H^E/J \text{ mol}^{-1}$
0.2923	0.7077	1052.5
0.2598	0.6291	911.8
0.2040	0.4938	729.1
0.1450	0.3510	594.6
0.1192	0.2888	448.5
0.0881	0.2134	386.0
0.0294	0.0713	204.6
0.4961	0.5039	1224.4
0.4445	0.4515	1102.5
0.3470	0.3525	897.9
0.2875	0.2921	819.0
0.2486	0.2525	742.8
0.1483	0.1506	493.9
0.0993	0.1008	407.4
0.0492	0.0499	254.4
0.7117	0.2883	994.9
0.5641	0.2285	935.3
0.4980	0.2018	918.0
0.4232	0.1714	888.4
0.3505	0.1420	817.9
0.2824	0.1144	709.1
0.1990	0.0806	611.4
0.1441	0.0584	515.6
0.0721	0.0292	321.3

**Tableau 9** Paramètres de lissage de l'équation (3) et déviations standard correspondantes

Paramètre	Système	
	pipéridine(1)+heptane- <i>n</i> (2)+ cyclohexane(3)	pipéridine(1)+octane- <i>n</i> (2)+ cyclohexane(3)
$c_0$	-12738.57	-13483.45
$c_1$	11878.13	12777.79
$c_2$	11529.36	12232.90
$\sigma/J \text{ mol}^{-1}$	26.18	31.23

## Partie théorique

L'équation utilisée pour la prévision des  $H^E$  des deux systèmes ternaires : pipéridine(1)+heptane- $n$ (2)+cyclohexane(3) et pipéridine(1)+octane- $n$ (2)+cyclohexane(3) est l'équation qui dérive du modèle de contribution de groupes Disquac élaboré par H. V. Kehiaian et ces collaborateurs [5].

L'expression de l'enthalpie d'excès selon le modèle dispersif-quasichimique est :

$$H^E/RT = H^{E,dis}/RT + H^{E,quac}/RT \quad (4)$$

Les constituants des systèmes ternaires étudiés présentent quatre types de groupements :

- Type **a** groupement aliphatique (CH<sub>3</sub> et CH<sub>2</sub> dans l'heptane- $n$  et l'octane- $n$ )
- Type **c** groupement cyclique (C-CH<sub>2</sub> dans le cyclohexane et la pipéridine)
- Type **n** groupement azote (>NH dans la pipéridine)

Pour le système ternaire :

$$\frac{H^{E,dis}}{RT} = \frac{1}{2} \left( \sum_{i=1}^3 q_i x_i \right) \frac{\sum_{i=1}^3 \sum_{j=1}^3 \xi_i \xi_j h_{st}^{dis}}{RT} \quad (5)$$

$$\frac{h_{ij}^{dis}}{RT} = -\frac{1}{2} \frac{\sum_s \sum_t (\alpha_{si} - \alpha_{sj})(\alpha_{ti} - \alpha_{tj}) h_{st}^{dis}}{RT} \quad (6)$$

tel que :  $x_i$  est la fraction molaire du constituant  $i$  dans la solution ;  $q_i$  est la surface relative de la molécule de type  $i$  ;  $\xi_i = q_i x_i / (\sum_{j=1}^3 q_j x_j)$  est la fraction de surface du constituant  $i$  dans la solution ;  $\alpha_{si}$  est la fraction de surface de type  $s$  ( $s = \mathbf{a}, \mathbf{c}, \mathbf{n}$ ) dans la molécule de type  $i$  ;  $h_{st}^{dis}/RT$  est le paramètre d'interéchange dispersif d'enthalpie entre le groupe  $s$  et le groupe  $t$ , ( $s, t = \mathbf{a}, \mathbf{c}, \mathbf{n}$ ).

Par contre :

$$\frac{H^{E,quac}}{RT} = \frac{1}{2} \sum_{i=1}^3 q_i x_i \sum_s \sum_t \left( X_s X_t - \sum_{i=1}^3 \xi_i X_{si} X_{ti} \right) \eta_{st} \frac{h_{st}^{quac}}{RT} \quad (7)$$

où

$$\eta_{st} = \exp \left( \frac{-g_{st}^{quac}}{zRT} \right) \quad (8)$$

$g_{st}^{quac}/RT$  et  $h_{st}^{quac}/RT$  sont des paramètres d'interéchange quasichimiques respectivement d'enthalpie libre et d'enthalpie entre le groupe  $s$  et le groupement  $t$ ,  $z$  étant le nombre de coordination pris égale à 4 dans notre application.

Les valeurs de  $X_s$  et de  $X_t$  sont des solutions du système de Barker :

$$X_s (X_s + \sum_t X_t \eta_{st}) = \alpha_s \quad (9)$$

$\alpha_s$  est la fraction de surface de groupement  $s$  dans la solution,  $X_{si}$  sont des solutions de l'équation (9) pour  $x_i=1$ .

Les expressions des paramètres d'interactions dispersifs et quasichimiques en fonction de la température sont données par les deux équations suivantes :

$$g_{st}(T)/RT = C_{st,1} + C_{st,2}[(T^0/T) - 1] \quad (10)$$

$$h_{st}(T)/RT = C_{st,2}(T^0/T) \quad (11)$$

où  $T^0=298.15$  K,  $C_{st,1}=g_{st}/RT^0$  et  $C_{st,2}=h_{st}/RT^0$ .

#### Paramètres géométriques

Les paramètres géométriques  $q_i$  et  $\alpha_{si}$  sont calculés à partir du paramètre  $q_G=A_G/A_{CH_4}$  avec  $A_{CH_4}$  surface de la molécule du méthane.

Les valeurs  $A_G$  des différents groupements constituant les molécules de nos systèmes sont calculées par la méthode de Bondi [2]. Avec  $\alpha_{si}=q_{si}/q_i$  et  $q_{si}$  est la surface relative du groupement  $s$  dans la molécule  $i$ .

Les valeurs des paramètres géométriques des groupements fonctionnels et des molécules des systèmes étudiés sont rassemblées respectivement dans les tableaux 10 et 11.

**Tableau 10** Surfaces relatives  $q_G=A_G/A_{CH_4}$ , avec  $A_{CH_4}=2.9 \cdot 10^5$  m<sup>2</sup> mol<sup>-1</sup> des groupements constituant les molécules des comparés des mélanges étudiés

Groupements fonctionnels	$q_G$	Type de surface
-CH <sub>3</sub>	0.73103	<b>a</b>
-CH <sub>2</sub> -	0.46552	<b>a</b>
C-CH <sub>2</sub>	0.43277	<b>c</b>
>NH	0.34138	<b>n</b>

#### Paramètres thermodynamiques

Les paramètres thermodynamiques d'interéchange intervenant dans les mélanges étudiés ont été déterminés par ajustement sur des mélanges ayant les même types de surfaces de contact. Dans les systèmes étudiés nous avons trois types de contact.

**Tableau 11** Les paramètres géométriques des constituants des systèmes étudiés

Composé	$q_i$	$\alpha_{si}$	$\alpha_{ci}$	$\alpha_{ni}$
Pipéridine	2.5052	0.0000	0.8637	0.1363
Cyclohexane	2.5966	0.0000	1.0000	0.0000
Octane- <i>n</i>	4.2552	1.0000	0.0000	0.0000
Heptane- <i>n</i>	3.7897	1.0000	0.0000	0.0000

## Contact aliphatique–cyclique (a,c)

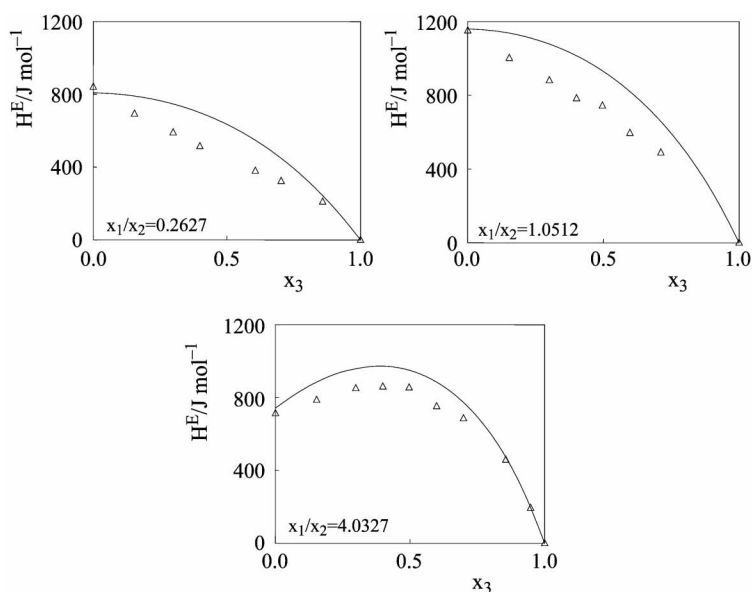
Les paramètres  $C_{ac,1}$  et  $C_{ac,2}$  ont été ajustés dans la littérature sur le système cyclohexane + alcanes normaux [1] avec une contribution dispersive uniquement. Leurs valeurs sont regroupées dans le tableau 12.

**Tableau 12** Paramètres d'interéchange dispersifs et quasichimiques

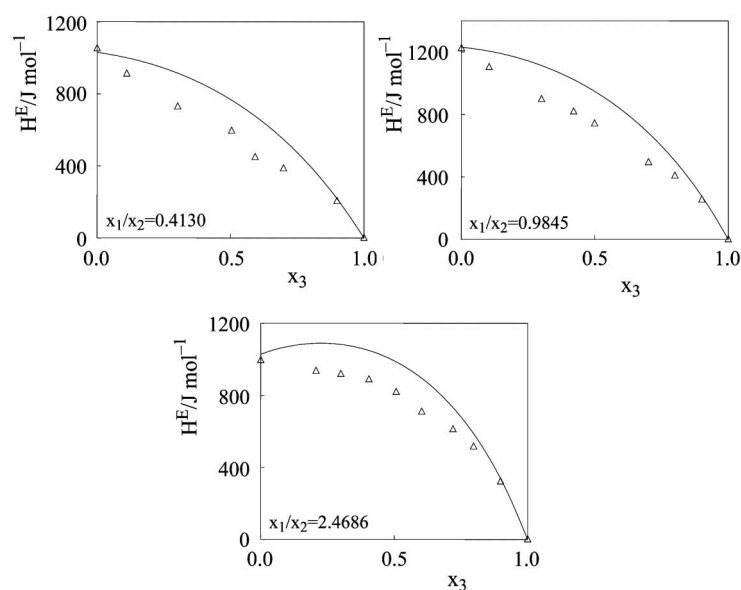
Contact (s,t)	Paramètres d'interéchange			
	$C_{st,1}^{dis}$	$C_{st,2}^{dis}$	$C_{st,1}^{quac}$	$C_{st,2}^{quac}$
(a,c)	0.05	0.12	0.00	0.00
(a,n)	3.60	10.00	5.28	8.72
(c,n)	3.60	10.00	5.28	9.08

## Contact aliphatique–azote (a,n)

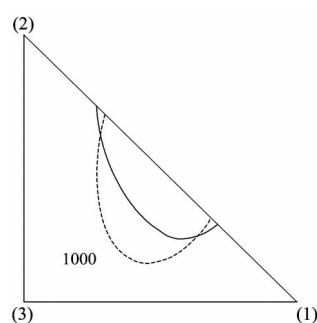
Il n'existe pas de mesure d'équilibre liquide–vapeur dans la littérature sur des systèmes comportant ce type de contact. Les paramètres d'interéchange dispersifs ont été pris de la littérature [6] sur les mélanges amine secondaire linéaire + alcanes, et les paramètres d'interéchange quasichimique ont été ajustés de manière reproduire les valeurs de  $H^E$  du mélange binaire pipéridine+octane-*n*. Les valeurs des paramètres sont consignées dans le tableau 12.



**Fig. 6** Enthalpie molaire d'excès du système ternaire pipéridine(1)+heptane-*n*(2)+cyclohexane(3) en fonction de la fraction molaire  $x_3$  à  $T=303.15$  K.  
 $\Delta$  – nos résultats; - - courbe calculée avec le modèle Disquac



**Fig. 7** Enthalpie molaire d'excès du système ternaire pipéridine(1)+octane-*n*(2)+cyclohexane(3) en fonction de la fraction molaire  $x_3$  à  $T=303.15$  K.  $\Delta$  – nos résultats; - - courbe calculée avec le modèle Disquac

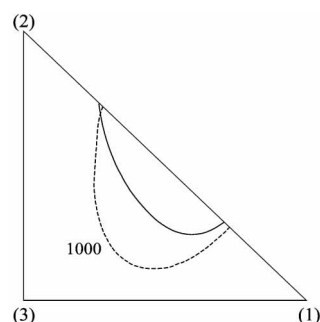


**Fig. 8** Diagramme de lignes isenthalpiques du système ternaire pipéridine(1)+heptane-*n*(2)+cyclohexane(3) à  $T=303.15$  K; - - ligne calculée par l'équation (3) et les coefficients du tableau 9, — ligne calculée par le modèle Disquac

#### Contact cyclique–azote (c,n)

Les paramètres  $C_{cn,1}$  et  $C_{cn,2}$  ont été pris dans la littérature [9] et ont été ajustés sur le mélange pipéridine+cyclohexane, avec une contribution dispersive et quasichimique, et leurs valeurs sont regroupées dans le tableau 12.

Les enthalpies molaires d'excès expérimentales et celles calculées par le modèle Disquac des systèmes ternaires en fonction de la fraction molaire  $x_3$  sont représentées sur les figures 6 et 7. Les diagrammes des lignes isenthalpiques calculées par



**Fig. 9** Diagramme de lignes isenthalpiques du système ternaire pipéridine(1)+octane-*n*(2)+cyclohexane(3) à  $T=303.15$  K; - - ligne calculée par l'équation (3) et les coefficients du tableau 9, — — ligne calculée par le modèle Disquac

l'équation (3) et les coefficients de lissage du tableau 9 et les lignes calculées par le modèle Disquac sont représentées sur les figures 8 et 9.

## Conclusion

Les mesures réalisées sur les deux systèmes ternaires pipéridine + hydrocarbures sont originales, ce qui nous a permis d'obtenir de nouvelles valeurs de chaleurs de mélange qui vont enrichir la banque de données thermodynamiques.

Les valeurs des enthalpies d'excès mesurées expérimentalement des systèmes binaires correspondant aux mélanges ternaires étudiés sont globalement en bon accord avec les valeurs de la littérature, ce qui vérifie la fiabilité de l'appareil utilisé.

Les résultats de l'application du modèle Disquac pour la prévision des enthalpies d'excès des systèmes binaires correspondant aux systèmes ternaires sont en très bonne cohérence avec les valeurs expérimentales car les paramètres d'interéchange dispersifs et quasichimiques pris dans la littérature sont ajustés sur les mêmes systèmes.

Pour les systèmes ternaires : pipéridine+heptane-*n*+cyclohexane et pipéridine+octane-*n*+cyclohexane, un écart est enregistré entre les  $H^E$  expérimentales et les  $H^E$  calculées par le modèle Disquac. Cet écart est dû certainement au paramètre ternaire.

## Références

- 1 A. Ait-kaci, Thèse d'Etat, UCB Lyon I, 1982.
- 2 A. Bondi, Physical Properties of Molecular Crystals, Liquids and Glasses, John Wiley, New York 1968, p. 502.
- 3 S. Cabani and N. Ceccanti, J. Chem. Thermody., 5 (1973) 9.
- 4 J. P. E. Grolier, Int. Data Ser., Selec. Data Mixtures, A3 (1974) 217.
- 5 H. V. Kehiaian, J. P. E. Grolier and G. C. Benson, J. Chim. Phys., 75 (1978) 1031.
- 6 H. V. Kehiaian, M. Pintos, R. Bravo and M. I. Paz-Andrade, J. Chim. Phys., 77 (1980) 797.
- 7 V. T. Lam, P. Picker, D. Patterson and P. Tancrede, Trans Faraday Soc., (1973) 1465.
- 8 I. Redlich and A. J. Kister, Ind. Eng. Chem., 40 (1948) 341.
- 9 M. R. Tine and H. V. Kehiaian, Fluid Phase Equilibria, 32 (1987) 211.