

روش‌های تجربی اندازه‌گیری چگالی و گرانشی محلول‌های آمین و حلال‌های مایع و مدل‌سازی داده‌های تجربی

محمد شکوهی*، سیده آرامش طاهری محمد آبادی، مهدی وحیدی، امیرحسین جلیلی، مسیح حسینی جناب

تهران، پژوهشگاه صنعت نفت، پژوهشگاه گاز، آزمایشگاه تصفیه و ترمودینامیک

پیام نگار: shokouhim@ripi.ir

چکیده

محلول‌های آمین و همچنین مخلوط محلول‌های آمین با حلال‌های فیزیکی به طور گسترده‌ای برای شیرین‌سازی گازهای اسیدی در پالایشگاه‌های نفت و گاز مورد استفاده قرار می‌گیرند. به طوری که برای طراحی ادوات فرایندی واحدهای آمین پالایشگاه و همچنین در طراحی فرایند واحد احیاء، خواص فیزیکی و انتقالی و همچنین گرمایی محلول‌های آمین چه در حالت بارگذاری شده و چه در حالت غیر بارگذاری شده حائز اهمیت هستند. چگالی و ضریب گرانشی، نمونه‌هایی از خواص تعادلی و انتقالی هستند و می‌توانند در نرم‌افزارهای شبیه‌سازی برج جذب و احیای واحدهای آمین مورد استفاده قرار بگیرند. در این کار قصد این است که روش‌های اندازه‌گیری دو کمیت غیر حرارتی نام برده شده را بررسی کرده و انواع مدل‌های ارائه شده در مقالات علمی، مورد بحث قرار گیرند. و در انتها به عنوان یک کار تجربی، خواص غیرحرارتی شامل چگالی، گرانشی محلول‌های آبی و خالص N-N دی متیل فرمامید (DMF) در کل محدوده ترکیب و فشار اتمسفری در محدوده دمایی $K(303/15-333/15)$ اندازه‌گیری شوند.

کلمات کلیدی: محلول‌های آمین، حلال‌های فیزیکی، خواص انتقالی، ضریب گرانشی، چگالی، گازهای اسیدی

۱- مقدمه

در این کار روش‌های اندازه‌گیری دو کمیت غیر حرارتی چگالی و گرانشی را بررسی کرده و انواع مدل‌های ارائه شده در مقالات علمی مورد بحث قرار می‌گیرد. و در انتها به عنوان یک کار تجربی خواص غیرحرارتی شامل چگالی، گرانشی محلول آبی و خالص N-N دی متیل فرمامید (DMF) در کل محدوده ترکیب در مقیاس کسر مولی و فشار اتمسفری اندازه‌گیری شدند.

دانستن خواص حرارتی از قبیل ظرفیت گرمایی و ضریب هدایت گرمایی و خواص غیر حرارتی از قبیل چگالی، گرانشی و کشش سطحی محلول‌های آمین جهت بررسی و کنترل فرایندهای انتقال حرارت در مایعات و بطور کلی در مدل‌سازی فرایندها بسیار مهم می‌باشد. در فرایند شیرین‌سازی گاز طبیعی بر مبنای محلول‌های آلکانول آمین (یا همان فرایند آمین)، داشتن اطلاعات کافی در مورد کمیت‌های نامبرده در محدوده‌های دما و فشار عملیاتی بسیار حائز اهمیت است. کمیت‌های ترمودینامیکی سیالات با تغییر دما، فشار و غلظت تغییر می‌کنند و تاکنون داده‌های تجربی متعددی در مورد محلول‌های حاوی آلکانول آمینها در مراجع منتشر و گزارش شده است.

۲- چگالی

کارهایی تجربی که در زمینه اندازه‌گیری چگالی مخلوط‌های آمین تا این دوره انجام شده به طور مختصر در جدول (۱) آورده شده است. در بسیاری از موارد اندازه‌گیری خواص چگالی و گرانشی محلول‌های آمین در فشار اتمسفریک انجام شده است.

جدول ۱- لیست مقالاتی که داده‌های تجربی چگالی مخلوط‌های حاوی آلکانول آمین‌ها را در فشار اتمسفری گزارش کرده‌اند.

ردیف	نویسنده/ سال	محلول	محدوده دمایی (K)	مرجع
۱	آرید هارتون (۲۰۰۹)	DETA+H ₂ O	۲۹۳-۳۶۳	۱
۲	رولینو، تامسون ^۱ (۱۹۶۲)	DETA	۲۹۸/۵	۲
۳	برنال-گارسار ^۲ (۲۰۰۵)	N,N-dimethylethanolamine	۲۹۳-۳۶۳	۳
۴	دیگولیو ^۳ (۱۹۹۲)	Pure alkanolamines	۲۹۴-۳۹۷	۴
۵	ماهام ^۴ (۲۰۰۲)	N,N-DEMA+ H ₂ O	۲۹۸-۳۵۳	۵
۶	لی، لی ^۵ (۱۹۹۴)	MEA + MDEA, MEA + AMP		۶
۷	سامانتا (۲۰۰۶)	PZ, PZ+AMP	۲۹۸-۳۳۳	۷
۸	هنی (۲۰۰۳)	AMP+ H ₂ O	۲۹۸-۳۴۳	۸
۹	زوه، اس (۱۹۹۱)	AMP		۹
۱۰	ولش (۱۹۹۵)	AMP+MDEA		۱۰
۱۱	چان، سی (۲۰۰۲)	AMP, N-Butyldiethanolamine and N-Propylathanolamine	۲۹۸-۳۵۳	۱۱
۱۲	ماندال، بی. پی ^۶ (۲۰۰۳)	MEA+AMP, MDEA+DEA, MDEA+MEA, DEA+AMP		۱۲
۱۳	ریولدو- لیبررز ^۷ (۲۰۰۶)	MDEA, DEA, 2-Amino-2-methyl-1-propanol	۳۰۳-۳۴۳	۱۳
۱۴	رینکر (۱۹۹۴)	MDEA+DEA	۲۹۳-۳۷۳	۱۴
۱۵	تنگ (۱۹۹۴)	MDEA+DEA	۲۹۸-۳۵۳	۱۵
۱۶	هسو ^۸ (۱۹۹۷)	Blend of amines		۱۶
۱۷	استرلا آلوارز	(MEA+MDEA) و (MEA+TEA) و (MEA+AMP)	۲۹۳-۳۲۳	۱۷
۱۸	آلوارز (۲۰۰۶)	2-(Methylamino)ethanol, 3-(Ethylamino)ethanol + DEA, Triethanolamine, N-methyldiethanolamine or 2-Amino-2-methyl-1-propanol	۲۹۸-۳۲۳	۱۸
۱۹	محمد ^۹ (۲۰۰۸)	MDEA	۲۹۸-۳۳۸	۱۹
۲۰	برنال گارسار (۲۰۰۳)	MDEA	۲۸۳-۳۶۳	۲۰
۲۱	پل (۲۰۰)	2-Amino-2-hydroxymethyl-1,3-propanediol (AMP)		۲۱
۲۲	پارک (۲۰۰۲)	AHPD	۳۰۳-۳۴۳	۲۲
۲۳	مرشد (۲۰۱۱)	H ₂ O/AMP, H ₂ O/PZ	۲۹۸/۱۵-۳۳۳/۱۵	۲۳
۲۴	اسپاسوژونیک (۲۰۱۳)	water + monoisopropanolamine (MIPA), diisopropanolamine (DIPA), triisopropanolamine (TIPA), or diethanolamine (DEA)	۲۹۸/۱۵-۳۴۳/۱۵	۲۴
۲۵	جایاراتنا ^{۱۰} (۲۰۱۳)	H ₂ O/CO ₂ /MEA	۳۰۳/۱۵-۳۳۳/۱۵	۲۵
۲۶	جایاراتنا (۲۰۱۳)	H ₂ O/CO ₂ /MEA	۳۱۳/۱۵-۳۴۳/۱۵	۲۶
۲۷	وحیدی (۲۰۱۳)	MDEA/Sulfolane	۲۹۳/۱۵-۳۲۸/۱۵	۲۷
۲۸	احمد کلایه (۲۰۰۱)	H ₂ O/Sulfolane/TEA, H ₂ O/Sulfolane/Diisopropanolamine	۳۰۳/۱۵-۳۴۳/۱۵	۲۸
۲۹	فیری من (۲۰۱۱)	H ₂ O/CO ₂ /PZ	۲۹۳/۱۵-۳۳۳/۱۵	۲۹
۳۰	مرشد (۲۰۱۲)	H ₂ O/PZ/2-Amino-2-hydroxymethyl-1,3-propanediol	۳۰۳/۱۵-۳۳۳/۱۵	۳۰
۳۱	آلوارز (۲۰۱۰)	1-Amino-2-propanol or 3-Amino-1-propanol with AMP, DEA, TEA	۲۹۳/۱۵-۳۲۳/۱۵	۳۱
۳۲	پل (۲۰۱۰)	H ₂ O/2-(1-Piperazinyl)-ethylamine	۲۹۸-۳۲۳	۳۲

1. Rouleau, Tompson

2. Bernal-García

3. Diguillo

4. Maham

5. Li, Lie

6. Mandal, B. P

7. Rebolledo-Libreros

8. Hsu

9. Muhammad

10. Jayarathna

۲-۱-۱ روش‌های اندازه‌گیری

در مطالعاتی که بر روی مخلوط‌های آمین صورت گرفته برای اندازه‌گیری چگالی از روش‌های زیر استفاده شده است:

۲-۱-۱ روش پیکنومتری^۱

پیکنومتر را از محلول مورد نظر پر کرده و در حمام دمای ثابت قرار می‌دهیم. دمای حمام توسط کنترل‌کننده دمایی کنترل می‌شود. وقتی نمونه به دمای مورد نظر رسید توسط ترازوی تجزیه وزن می‌شود (m_2). پس از چند بار اندازه‌گیری چگالی متوسط را گزارش می‌نماییم:

$$\rho = (m_1 - m_2) / V_t \quad (1)$$

که m_1 جرم پیکنومتر خالی است و V_t حجم پیکنومتر است.

۲-۱-۲ دستگاه چگالی سنج^۲

دستگاه VTD شامل قسمت اصلی یعنی یک لوله U شکل به حجم تقریباً 1cm^3 می‌باشد. اصول چگالی‌سنج VTD براساس اندازه‌گیری دوره تناوبی ارتعاش لوله U شکل می‌باشد که با چگالی سیال نمونه که در لوله محبوس شده تغییر می‌کند. دستگاه VTD مستقیماً دوره تناوب ارتعاش τ لوله U را که از سیال نمونه به طور کامل پر شده اندازه‌گیری می‌کند. وقتی لوله از سیال به طور کامل پر شد انتهای آن بسته شده و بدون پیچ خوردگی شروع به نوسان و لرزیدن می‌کند. پریود نوسان لوله توسط رابطه (۲) به مشخصات مکانیکی آن مرتبط می‌باشد.

$$\frac{1}{\tau} = \frac{1}{2\pi} \sqrt{k \left(\frac{1}{m} + \frac{1}{M} \right)} \quad (2)$$

$$m = m_0 + \rho V_0$$

که در آن m جرم لوله U شکل و M جرم شمارنده و k ضریب فنریت VT می‌باشد. m مجموع جرم لوله خالی (m_0) و جرم سیال داخل لوله، ρV_0 است. ρ چگالی سیال و V_0 حجم لوله خالی است.

1. Gay-Lussac Pycnometer
2. Vibrating Tube Densimeter (VTD)

معادله (۱) را با وارد کردن متغیرهای پارامتر تناوب، x ثابت تناسب A ، نسبت جرمی μ و پریود لرزش تحت خلاء τ_0 که توسط روابط ۴ تا ۶ تعریف می‌شوند می‌توان به معادله (۳) تبدیل نمود:

$$\rho = A \frac{(1 + \mu)x}{1 - \mu x} \quad (3)$$

$$x = \left(\tau^2 / \tau_0^2 \right) - 1 \quad (4)$$

$$A = m_0 / V_0 \quad (5)$$

$$\mu = m_0 / M \quad (6)$$

$$\tau_0 = 2\pi \sqrt{m_0 / [k(\mu + 1)]} \quad (7)$$

واضح است که پارامتر τ_0 در معادله (۷) معادل است با پریود نوسان لوله هنگامی که $\rho = 0$ باشد، به عبارت دیگر عبارت است از پریود نوسان لوله در حالت خلاء، پارامترهای A ، μ از طریق اندازه‌گیری چگالی سیالات مرجعی که داده‌های تجربی موثق در مورد آنها در مراجع موجود است بدست می‌آیند یعنی از طریق کالیبراسیون دستگاه.

۲-۲ مدل‌های ترمودینامیکی و روابط همبستگی

به طور کلی دو روش برای مدلسازی و محاسبه چگالی استفاده می‌شود: یکی روشهای مبتنی بر مدل‌های ترمودینامیکی که همانا معادلات حالت و مدل‌های ضریب فعالیت هستند، و دیگری روشهای صرفاً تجربی که در آنها چگالی محلول از طریق یک رابطه صرفاً ریاضی با غلظت، دما و فشار ارتباط داده می‌شود. رابطه ریاضی دارای یکسری پارامترهای تنظیم پذیر است که از طریق برازش مدل بر روی داده‌های تجربی بدست می‌آیند.

در روش اول با استفاده از یک معادله حالت مانند معادلات حالت درجه سوم می‌توان حجم مولی و در نتیجه چگالی محلول را محاسبه نمود مشروط بر اینکه پارامترهای معادله حالت از قبل معلوم باشد، مثلاً از طریق داده‌های تجربی تعادل فاز برای سیستم مورد نظر پارامترها بدست آمده باشند که با حل معادله درجه سوم بر حسب

f نوع برهمکنش‌ها را نشان می‌دهد که مقدار آن برابر با ۱ برای سهم ترکیبی، ۲ برای سهم باقیمانده و ۳ برای سهم دبای-هوکل می‌باشد. برای تعیین چگالی محلول از رابطه زیر استفاده می‌شود:

$$\rho = \frac{M}{V} = \frac{1}{V} \sum_{i=1}^n x_i M_i$$

$$V^E = \left. \frac{\partial G^E}{\partial P} \right|_{T,x} \quad (11)$$

$$V = V^E + V_{SS} \quad , V_{SS} = \sum_{i=1}^n x_i \bar{V}_{i,SS}$$

اگر گونه i جامد خالص باشد $\bar{V}_{i,SS} = \bar{V}_i^\infty$ و اگر مایع خالص باشد $\bar{V}_{i,SS} = \bar{V}_i^0$ می‌باشد که در آن \bar{V}_i^0 و \bar{V}_i^∞ حجم مولی جامد خالص یا مایع خالص است. همچنین برای چگالی مایعات اشباع از مدل‌های حالات متناظر نیز می‌توان استفاده نمود [۳۴] از جمله:

۱. هانکینسون-توماس^۵

۲. ایگلسیاس-سیلوا-هال^۶

۳. تجا و همکاران^۷

اما در مورد محلول‌های آمین که مخلوطی از مولکولهای قطبی، غیرقطبی و یونها می‌باشد نمی‌توان از قانونهای حالات متناظر ذکر شده در بالا استفاده نمود.

در مقاله‌ای مدل تعمیم یافته جدیدی برای پیش‌بینی چگالی محلول‌های الکترولیت منفرد و مخلوط استفاده شده است که براساس ضریب اسمزی و فشار اسمزی است [۳۵]. در این حالت فرض شده است که حجم اصلی موثر الکترولیت (V_i) تابعی از شعاع یونی (r_i) است. حجم مولی محلول الکترولیت به صورت زیر بدست می‌آید (V_m):

$$V_m = \sum_i^{ion} x_i V_i + x_{H2O} V_{H2O} \quad (12)$$

$$V_i = 2.51r_i^3 + 3.15r_i^2 \quad (13)$$

حجم، در نهایت چگالی محلول بدست می‌آید. و یا اینکه اگر از مدل‌های ضریب فعالیت برای مدلسازی تعادل فاز استفاده شده باشد از طریق مشتق‌گیری رابطه تابع انرژی گیبس فزونی G^E نسبت به فشار حجم مولی فزونی V^E و از آنجا چگالی محلول را بدست می‌آورند. در زیر به توضیح چند مورد از هر یک از رویکردهای ذکر شده در بالا که می‌توان برای سیستم‌های مورد مطالعه در این پروژه آنها را بکار برد می‌پردازیم.

در مقاله ای برای پیش‌بینی چگالی محلول‌های سردکننده مایع از مدل‌های انرژی گیبس مولی اضافی مانند مدل ترمودینامیکی یونیکواک^۱ توسعه یافته استفاده شده است [۳۳]. در این روش انرژی گیبس اضافی شامل سه سهم می‌باشد: سهم ترکیبی^۲، سهم باقیمانده^۳، و سهم دبای-هوکل^۴.

$$G^E = G^C + G^R + G^{D-H} \quad (8)$$

که ترم ترکیبی اندازه مولکولی و اختلاف شکل‌ها را در نظر می‌گیرد، سهم باقیمانده برهمکنش‌های مولکولی و سهم دبای-هوکل برهمکنش‌های الکترواستاتیکی برد بلند را در نظر می‌گیرد. با در نظر گرفتن حالت فیزیکی گونه‌های خالص و حالت‌های استاندارد، ضرایب فعالیت به صورت زیر می‌باشند:

$$\ln \gamma_i^{IDS} = \ln \gamma_i^{RS} - \ln \gamma_i^\infty$$

$$\ln \gamma_i^\infty = \lim_{x_s \rightarrow 1} (\ln \gamma_i^{RS}), x_s \rightarrow 1 \quad (9)$$

ضرایب فعالیت گونه i برای محلول‌های ایده‌آل رقیق و γ_i^{RS} برای محلول کامل و γ_i^∞ ضریب فعالیت گونه i در رقت بینهایت برای محلول کامل که در حالت‌های استاندارد می‌باشند:

$$\frac{G^E}{RT} = \sum_{i=1}^l x_i \sum_{f=1}^3 \ln \gamma_{i,f}^{RS} + \sum_{i=1+1}^r x_i \sum_{f=1}^3 (\ln \gamma_{i,f}^{RS} - \ln \gamma_{i,f}^\infty) +$$

$$\sum_{i=r+1}^n x_i \sum_{f=1}^2 (\ln \gamma_{i,f}^{RS} - \ln \gamma_{i,f}^\infty) + \sum_{i=r+1}^n x_i \ln \gamma_{i,D-H}^{IDS} \quad (10)$$

1. UNIQUAC
2. Combinatorial
3. Residual
4. Debye-Huckel

5. Hankinson-Thomson
6. Iglesias-Silva-Hall
7. Teja et al

که C برای هر دمایی ثابت است و B و A در دماهای معین محاسبه می‌شوند و با جاگذاری در رابطه بالا چگالی در فشار P محاسبه می‌شود. برای مقایسه مقادیر چگالی تجربی با مقادیر بدست آمده از رابطه تایت، از انحراف متوسط نسبی (ARD)، ماکزیمم انحراف (DMax)، انحراف متوسط (Bias) و انحراف معیار استاندارد (σ) استفاده شده است. با استفاده از روابط زیر می‌توان پارامترهای ثابت معادله بالا را بدست آورد:

$$\begin{aligned}ARD &= \frac{100}{N} \sum_{i=1}^N \left| \frac{\rho_i^{exp} - \rho_i^{calc}}{\rho_i^{exp}} \right| \\DMax &= Max \left(100 \left| \frac{\rho_i^{exp} - \rho_i^{calc}}{\rho_i^{exp}} \right| \right) \\Bias &= \frac{100}{N} \sum_{i=1}^N \frac{\rho_i^{exp} - \rho_i^{calc}}{\rho_i^{exp}} \\ \sigma &= \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^N (\rho_i^{exp} - \rho_i^{calc})^2}{N - m}}\end{aligned}\quad (18)$$

که N تعداد نقاط تجربی و m تعداد پارامترهای معادله تایت است. با بدست آوردن σ , DMax, ADD, این پارامترها محاسبه می‌شوند. در بسیاری از مقالات برای همبستگی داده‌های تجربی از رابطه ردلیچ-کیستر^۲ استفاده می‌کنند [۳۷]. حجم مولی اضافی از رابطه زیر محاسبه می‌شود:

$$V^E (m^3 \cdot mol^{-1}) = \left[(x_1 M_1 + x_2 M_2) / \rho_m \right] - x_1 M_1 / \rho_1 - x_2 M_2 / \rho_2 \quad (19)$$

که M_1 و M_2 جرم‌های مولی اجزای سیستم، و ρ_1 و ρ_2 و ρ_m به ترتیب چگالی‌های اجزای خالص سیستم و مخلوط می‌باشند. خصوصیات اضافی Y^E انحراف از حالت ایده آل را نشان می‌دهند که توسط معادله ردلیچ-کیستر برازش می‌شوند:

$$Y^E = x_1 x_2 \sum_{n=1} A_n (1 - 2x_2)^{n-1} \quad (20)$$

رابطه فشار اسمزی بر حسب حجم مولی جزئی آب به صورت زیر است:

$$\Pi = \frac{\phi_{RTM_{H_2O}} \sum_i^{ion} m_i}{1000 \bar{V}_{H_2O}} \quad (14)$$

حجم مولی جزئی آب در محلول الکترولیت تقریباً با حجم مولی آب خالص برابر است یعنی $V_{H_2O} = \bar{V}_{H_2O}$. که با جاگذاری رابطه فشار اسمزی در رابطه (۱۲) روابطی برای حجم مولی محلول الکترولیت بر حسب فشار اسمزی بدست می‌آید که با معکوس حجم مولی محلول می‌توان چگالی آن را محاسبه کرد. در مقاله‌ای برای مرتبط کردن مقادیر چگالی با دما و فشار از معادله شبه تایت^۱ استفاده شده است [۳۶]. این مدل برای آمین‌ها نیز در فشار بالا مورد استفاده قرار گرفته است.

$$\rho(T, P) = \frac{A(T)}{1 - C \ln \left(\frac{B(T) + P}{B(T) + 0.1 MPa} \right)} \quad (15)$$

$$\begin{aligned}A(T) &= A_0 + A_1 T + A_2 T^2 \\B(T) &= B_0 + B_1 T + B_2 T^2\end{aligned}\quad (16)$$

پارامترهای A و B و C پارامترهای قابل تنظیم هستند که با بهینه کردن تابع انحراف زیر بدست می‌آیند. A و B با روابط (۱۶) وابسته به دما هستند. P فشار و T دما است و C عددی ثابت است که مستقل از دما می‌باشد. واحدهای A و B و C به ترتیب MPa، g/cm^3 و g/cm^3 می‌باشند. در این مدل پارامترها با توجه به داده‌های تجربی چگالی در فشار اتمسفریک محاسبه می‌شوند و بعد در فشار بالا از معادله زیر با معلوم بودن پارامترها در دمای معین و مشخص چگالی را بدست می‌آورند:

$$\rho(T, P) = \frac{A}{1 - C \ln \left(\frac{B + P}{B + 0.1 MPa} \right)} \quad (17)$$

اگر گونه i جامد خالص باشد $\bar{V}_{i,SS} = \bar{V}_i^\infty$ و اگر مایع خالص باشد $\bar{V}_{i,SS} = \bar{V}_i^0$ می‌باشد.

۳- گرانشی

تمام مطالعاتی که در زمینه اندازه‌گیری خاصیت گرانشی محلول‌های آمین صورت گرفته به اختصار در جدول (۲) آورده شده است.

که Y^E در اینجا حجم مولی اضافی V^E می‌باشد. X_i کسر مولی و n تعداد ضرایبی است که در برازش داده‌ها در نظر گرفته می‌شود. A_n ضرایب ردلیج-کیستر است که وابستگی دمایی چند جمله‌ای دارند که معمولاً تا درجه اول را در نظر می‌گیرند.

$$V = V^E + V_{SS}, V_{SS} = \sum_{i=1}^n x_i \bar{V}_{i,SS} \quad (21)$$

$$\rho = \frac{M}{V} = \frac{1}{V} \sum_{i=1}^n x_i M_i$$

جدول ۲- داده‌های تجربی گرانشی در فشار اتمسفری که برای محلول‌های آمین در مراجع گزارش شده است

ردیف	نویسنده/ سال	محلول	محدوده دمایی (K)	مرجع
۱	هارتونو، الف. ^۱ (۲۰۰۹)	DETA+H ₂ O	۲۹۳-۳۶۳	۱
۲	گارسیا، ام. بی. ^۲ (۲۰۰۵)	N,N-dimethylethanolamine	۲۹۳-۳۶۳	۳۸
۳	دیاکولا (۱۹۹۲)	Pure alkanolamines	۲۹۴-۳۹۷	۳
۴	لی، لی (۱۹۹۴)	MEA + MDEA, MEA + AMP		۶
۵	سامانتا (۲۰۰۶)	PZ, PZ+AMP	۲۹۸-۳۳۳	۷
۶	هنی (۲۰۰۳)	AMP+ H ₂ O	۲۹۸-۳۴۳	۸
۷	زوه، اس (۱۹۹۱)	AMP		۹
۸	ولش (۱۹۹۵)	AMP+MDEA		۱۰
۹	ماندال، بی. بی. (۲۰۰۳)	MDEA+MEA, MEA+AMP, MDEA+DEA, DEA+AMP		۱۲
۱۰	ریبولدو- لیبررز (۲۰۰۶)	MDEA, DEA, 2-Amino-2-methyl-1-propanol	۳۰۳-۳۴۳	۱۳
۱۱	رینکر (۱۹۹۴)	MDEA+DEA	۲۹۳-۳۷۳	۱۴
۱۲	هسو (۱۹۹۷)	Blend of amines		۱۶
۱۳	آلوارز (۲۰۰۶)	2-(Methylamino)ethanol, 3-(Ethylamino)ethanol + DEA, TEA, MDEA or 2-Amino-2-methyl-1-propanol	۲۹۸-۳۲۳	۱۸
۱۴	پارک (۲۰۰۲)	AHPD	۳۰۳-۳۴۳	۲۲
۱۵	مرشد (۲۰۱۱)	AMP	۲۹۸/۱۵-۳۳۳/۱۵	۲۳
۱۶	اسپاسویک ^۳ (۲۰۱۳)	water + monoisopropanolamine (MIPA), diisopropanolamine (DIPA), triisopropanolamine (TIPA), or diethanolamine (DEA)	۲۹۸/۱۵-۳۴۳/۱۵	۲۴
۱۷	احمد کلایه (۲۰۱۱)	H ₂ O/Sulfolane/TEA, H ₂ O/Sulfolane/Diisopropanolamine	۳۰۳/۱۵-۳۴۳/۱۵	۲۸
۱۸	فیری من (۲۰۱۱)	H ₂ O/CO ₂ /PZ	۲۹۳/۱۵-۳۳۳/۱۵	۲۹
۱۹	مرشد (۲۰۱۲)	H ₂ O/PZ/2-Amino-2-hydroxymethyl-1,3-propanediol	۳۰۳/۱۵-۳۳۳/۱۵	۳۰
۲۰	پیل (۲۰۱۰)	H ₂ O/2-(1-Piperazinyl)-ethylamine	۲۹۸-۳۲۳	۳۲
۲۲	تورنیوکس (۲۰۰۷)	AHPD	۳۰۳-۳۴۳	۳۹
۲۳	پیل (۲۰۰۶)	MDEA, 2-Piperidineethanol + PZ, AMP + PZ	۲۹۳-۳۲۳	۴۰
۲۴	محمد، الف. ^۴ (۲۰۰۹)	PZ, PZ + MDEA	۲۹۸-۳۳۸	۴۱
۲۵	درکس ^۵ (۲۰۰۸)	PZ, PZ + MDEA		۴۲
۲۶	درکس (۲۰۰۵)	PZ + H ₂ O		۴۳
۲۷	چی، یون. ^۶ (۲۰۰۲)	2-Amino-2-ethyl-1,3-propanediol		۴۴

- Hartono, A.
- García, M. B.
- Spasojević
- Muhammad, A.
- Derks
- Yoon, J.

۳-۱ روشهای اندازه‌گیری گرانروی

با توجه به مقالات موجود در زمینه آکانونول آمین‌ها در دما و فشارهای متفاوت روش‌های اندازه‌گیری گرانروی به قرار زیر است:

۳-۱-۱ گرانروی سنج کاپیلاری^۱

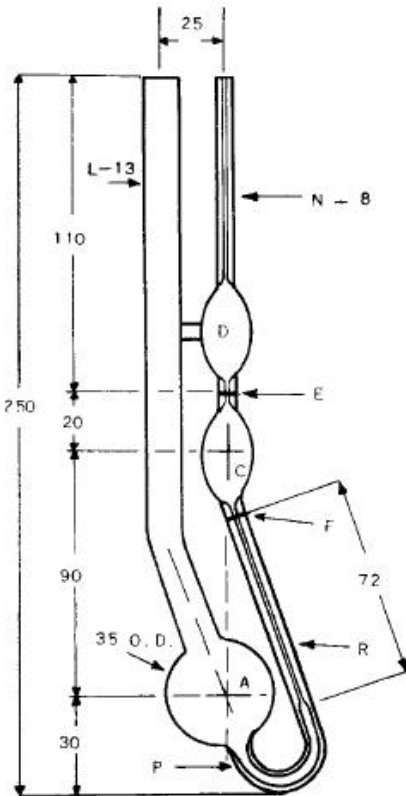
شماتیک دستگاه اندازه‌گیری گرانروی مایعات در فشار اتمسفری با استفاده از روش لوله موئینه در شکل (۱) آورده شده است. اندازه‌ها در این شکل برطبق استاندارد ASTM D446-07 می‌باشند. در این ویسکومتر زمان لازم t ، برای عبور حجم معینی از مایع V ، از درون یک لوله موئینه عمودی تحت اثر نیروی جاذبه گرانش اندازه گرفته می‌شود. برای یک سیال با تراکم پذیری بسیار پایین مانند مایعات، سرعت عبور مایع dV/dt یا همان شدت جریان حجمی، بتوسط قانون پویسوله^۲ بیان می‌شود.

$$\frac{dV}{dt} = \frac{\pi r^4 (P_1 - P_2)}{8\eta L} \quad (22)$$

که در آن r ، L به ترتیب طول و شعاع لوله موئینه و $(P_1 - P_2)$ اختلاف فشار میان دو سر لوله و η گرانروی مایع می‌باشد. با توجه به اینکه $(P_1 - P_2)$ متناسب با چگالی سیال است، می‌توان نشان داد [۴۵] که برای یک حجم معین مایع رابطه زیر برقرار است:

$$\frac{\eta}{\rho} = Bt \quad (23)$$

در این رابطه t عبارت است از زمان لازم برای عبور مایع بین دو نقطه معین (مثلاً نقاط E، F در شکل (۱)). B پارامتری است که از طریق اندازه‌گیری گرانروی یک مایع مرجع با چگالی و گرانروی مشخص در هر دما بدست می‌آید، به عبارت دیگر از طریق کالیبراسیون دستگاه مقدار B برای گرانروی سنج مورد نظر بدست می‌آید. برای اندازه‌گیری گرانروی سیال خالص یا مخلوط در هر دما ویسکومترها را در حمام دمای ثابت قرار می‌دهند. بعد از یک ساعت، تعادل حرارتی برقرار می‌شود و می‌توان اقدام به اندازه‌گیری زمان عبور و در نهایت گرانروی نمود.



شکل ۱- شمای گرانروی سنج لوله شیشه ای موئینه بر طبق استاندارد ASTM D446-07

۳-۱-۲ گرانروی سنج توپ غلتان^۳

برای تعیین گرانروی دینامیکی از ویسکومتر توپ غلتان استفاده می‌شود. این دستگاه شامل لوله شیب دار با توپ غلتان می‌باشد که گرانروی مایع با اندازه‌گیری سرعت حرکت کره جامد تحت تاثیر نیروی گرانش، درون لوله شیب‌دار که از مایع مورد مطالعه پر شده است تعیین می‌شود. یک نمونه از این نوع گرانروی سنج در شکل (۲) نشان داده شده است. در این روش معمولاً محور لوله استوانه‌ای با سطح افق زاویه ۸۰ درجه می‌سازد و در کلیه آزمایش‌ها این زاویه ثابت خواهد بود. طرز کار دستگاه به این صورت است که ابتدا لوله گرانروی سنج را تمیز و خشک کرده و سپس با سیال مرجع و با استفاده از رابطه (۲۴)، ثابت مشخصه گرانروی سنج K تعیین می‌شود. زمان غلتیدن گلوله یا توپ در فاصله مشخص شده‌ای که بین دو سنسور الکترومغناطیسی در لوله اندازه‌گیری است به طور اتوماتیک تعیین می‌شود. این آزمایش چندین بار انجام می‌شود و

1. Capillary Viscometer
2. Poiseuille's Law

3. Rolling Ball Viscometer

زمان غلتیدن t متوسط‌گیری می‌شود:

$$\eta = Kt(\rho_b - \rho_f) \quad (24)$$

ρ_f, ρ_b به ترتیب چگالی توپ و چگالی سیال مورد نظر می‌باشند.

۳-۱-۳ گرانشی سنج سقوط آزاد

این گرانشی سنج شامل یک لوله استوانه‌ای کاملاً عمودی، یک میله استوانه‌ای توپر و یک دستگاه اندازه‌گیری زمان می‌باشد. بر روی لوله استوانه‌ای دو سنسور در فاصله معینی ثابت شده است که زمان سقوط جسم را درون لوله، اندازه‌گیری می‌کند. ابتدا لوله را از سیال مرجع پر کرده و زمان سقوط را اندازه‌گیری می‌کنیم که با استفاده از معادله عملکرد (۲۵) که در زیر آورده شده ثابت کالیبراسیون (A) محاسبه می‌شود.

روش اندازه‌گیری در این گرانشی سنج شبیه روش توپ غلتان می‌باشد با این تفاوت که جسم درون لوله سقوط آزاد دارد و طبق معادله (۲۵) گرانشی سیال مورد نظر محاسبه می‌شود:

$$\eta(P, T) = \frac{t(1 - \rho/\rho_s)}{A[(1 + 2\alpha(T - T_{ref})) / (1 - 2\beta(P - P_{ref})) / 3]} \quad (25)$$

η گرانشی، t زمان سقوط جسم، ρ وزن مخصوص سیال و ρ_s وزن مخصوص جسمی که درون سیال در حال سقوط است می‌باشد. α, β به ترتیب تراکم‌پذیری و ضریب انبساط حرارتی جسم سقوط‌کننده و لوله می‌باشد. T, P فشار و دمای سیستم می‌باشند. زیرنویس ref حالت مرجع را نشان می‌دهد که دمای مرجع ۲۹۸/۱۵ کلوین و فشار مرجع اتمسفریک می‌باشد و A ثابت دستگاه است که از طریق کالیبراسیون بدست می‌آید.

۲-۲-۲ مدلسازی و روابط همبستگی برای گرانشی

در این بخش به توضیح در مورد مدل‌هایی که برای پیش‌بینی گرانشی تاکنون ارائه شده است می‌پردازیم. روشهای مدلسازی که بیشتر جنبه نظری دارند و هنوز کاربردی نشده‌اند و یا آنهایی که برای سیستمهای مورد مطالعه در این پروژه مناسب نیستند

فهرست‌وار اشاره خواهند شد و سپس مدل‌های کاربردی تر با جزئیات کافی مورد بحث قرار می‌گیرند.

برای پیش‌بینی گرانشی برشی سیالات سنگین از نظریه تک پارامتری معادله چاپمن اسکوگ^۱ استفاده شده است [۴۶]. در این روش با توجه به ارتباط انتگرالهای برخورد با پتانسیلهای بین مولکولی و با ضرایب انتقالی گازها می‌توان گرانشی سیالات را مستقیماً با حل انتگرالهای سه گانه از روی پتانسیلهای بین مولکولی بدست آورد. برای پتانسیل ساده کره سخت، گرانشی سیال توسط عبارات تحلیلی با قطر کره سخت σ ارتباط دارد. سپس با استفاده از نظریه کارناهان-استارلینگ می‌توان معادله چپمن-انکوگ را برای سیالات غیر کروی تعمیم داد و ضرایب انتقالی آنها را داشتن یک پارامتر محاسبه نمود. در مقاله ای دیگر از نظریه آیرینگ^۲ و معادله حالت پنگ-رابینسون-استرچک-ویرا^۳ برای محاسبه گرانشی محلول‌های غیر ایده‌آل آبی و غیر آبی استفاده شده است [۴۷]. پیش‌بینی گرانشی مخلوط محلول‌های الکترولیت براساس نظریه آیرینگ و مدل آب پوشی نیمه ایده‌آل نیز بررسی شده است [۴۸]. در این روش به پارامترهای برهمکنش هر یک از زوجها نیاز است که این امر منجر به اخذ تعداد بسیار زیادی داده تجربی می‌گردد. همچنین این روش نسبتاً پیچیده بوده و تاکنون برای آلکانول آمینها مورد استفاده قرار نگرفته است.

همچنین مدل‌های توسعه یافته e-NRTL و Wilson برای بدست آوردن روابط همبستگی بین گرانشی محلول‌های الکترولیت قوی با دما ارائه شده است [۴۹].

در بسیاری از مقالات رابطه تجربی اصلاح شده وگل-فالچر-تامان^۴ (VFT) برای مرتبط کردن گرانشی با فشار استفاده شده است [۵۰]. معادله VFT در فشار اتمسفریک به صورت زیر است:

$$\eta(T) = A \exp\left[\frac{B}{T - T_0}\right] \quad (26)$$

که A و B پارامترهای قابل تنظیم هستند که مستقل از فشارند و همچنین T_0 پارامتر قابل تنظیم می‌باشد. برای بدست آوردن

1. Chapman-Enskog
2. Eyring
3. Peng-Robinson-Stryjek-Vera
4. Modified Vogel-Fulcher-Tammann (VFT)

است. خواص تعادلی و انتقالی محلول های آبی DMF که شامل گزارش های متعددی مربوطه به چگالی در دماهای $K (288/15-303/15)$ [57] و $K (283/15-353/15)$ [58] و $K (303/15-323/15)$ [61] و در دمای ۲۹۸/۱۵ و فشار اتمسفری [۶۲] و همچنین در مورد گرانیروی برنال-گاریسیا و همکاران [۵۸] و مارچیتی و همکاران [۵۹] در فشار اتمسفری و گرانیروی های مخلوط دوتایی آب + DMF را در دماهای مختلف از $(283/15-353/15)$ را گزارش کردند. اختر و همکاران [۶۱] نیز گرانیروی سیستم آب + DMF را در دماهای $K (303/15-323/15)$ در فشار اتمسفری گزارش کردند. در این کار، با توجه به اهمیت داده های تجربی محلول آب و DMF قصد داریم برای بررسی صحت و دقت دستگاه های موجود در آزمایشگاه و بررسی مدل های موجود چگالی، گرانیروی محلول فوق را در ترکیب های مختلف بدست آورده و با داده های تجربی موجود در مجلات معتبر مقایسه کنیم. اندازه گیری ها در کل محدوده کسر مولی DMF و در محدوده دمایی $K (303/15)$ تا $(353/15)$ و فشار اتمسفری انجام می شوند. داده های تجربی به دست آمده با استفاده از معادله ریدلیچ-کیستر [۶۳] مدل سازی می شوند.

۴-۱ روش تجربی و مواد استفاده شده

N-N دی متیل فرمامید از Riedel-de Haen با خلوص ۹۹٪ به دست آمد و بدون خالص سازی بیشتری مورد استفاده قرار گرفت. آب مقطر یون زدایی شده در حمام ما فوق صوت (FUNGILAB, model UA10MFD) در دمای $K (343/15)$ و فرکانس موج ۵۰ کیلوهرتز برای مدت زمان حدود یک ساعت استفاده شد. تمامی مخلوطها با دقت $\pm 0/1$ میلی گرم آماده شدند. عدم قطعیت در کسر مولی حدود $\pm 0/001$ بود.

۴-۲ روش تجربی و دستگاه

چگالی ها با یک چگالی سنج شیشه ای با حجم $cm^3 25$ که قبلا با آب مقطر یون زدایی شده کالیبره شده بود اندازه گیری شدند. چگالی سنج را به صورت عمودی در داخل یک ظرف شیشه ای خشک در حمام آب ترموستاتیک (LAUDA, model ECOLINE E100) بادمای مشخص و دقت $K \pm 0/02$ قرار می دهیم. به طور کلی هر مقدار

گرانیروی در فشارهای بالا معادله اصلاح شده VFT که بصورت زیر می باشد ارائه شده است:

$$\eta / mPa.s = \exp \left[(a + bp + cp^2) + \left(\frac{d + ep + fp^2 + gp^3}{T - T_0} \right) \right] \quad (27)$$

P فشار برحسب MPa و T دما برحسب کلوین و a, b, c, d, e, f, g پارامترهای قابل تنظیم می باشند. در مقاله دیگر برای ارائه گرانیروی از (VFT) که با معادله شبه تایت ترکیب شده است استفاده کرده اند.

$$\eta(P, T) = A \exp \left[\frac{B}{T - C} \right] \exp \left[D \ln \left(\frac{p + E(T)}{0.1 Mpa + E(T)} \right) \right] \quad (28)$$

که $E(T) = E_0 + E_1 T + E_2 T^2$ است. A, B, C, D پارامترهای قابل تنظیم می باشند که مستقل از دما هستند و E پارامتر وابسته به دما است [۵۱].

از معادله دیگری که در مدل سازی گرانیروی محلول های آمین استفاده می شود، معادله ریدلیچ-کیستر است که شکل ریاضی آن در معادله (۲۰) آورده شده است.

۴-۳ چگالی، گرانیروی محلول های آبی N-N دی متیل فرمامید

N-N دی متیل فرمامید (DMF) به عنوان N-N دی متیل متانامید نیز شناخته شده است. در درجه اول به عنوان حلال در تولید محصولات پلی یورتان و الیاف اکریلیک استفاده می شود. همچنین در صنایع دارویی، در تولید آفت کش ها، در تولید مواد شیمیایی خوب، چرم مصنوعی، الیاف، فیلم ها، و پوشش های سطحی استفاده می شود [۵۲ و ۵۳]. و بیشترین اهمیت آن مخلوط آن با CO_2 فوق بحرانی است که در استخراج مایع در فرایندهای جداسازی استفاده می شود [۵۴-۵۶]. همچنین از آن به عنوان یک حلال فیزیکی در جذب گازهای اسیدی استفاده می شود. بنابراین، خواص ترمودینامیکی تعادلی و غیر تعادلی خالص DMF و مخلوط دوتایی آن با آب برای شبیه سازی و طراحی فرایندهای صنعتی مربوطه مهم

خوبی با داده‌های گزارش شده است که به طور متوسط با ۰/۱۹٪ خطا از مقادیر گزارش شده انحراف نشان می‌دهد [۵۸ و ۵۹]. داده‌های تجربی مخلوط آب + DMF برای تمام کسرهای مولی در جدول (۴) گزارش شده است.

با استفاده از داده‌های تجربی چگالی (داده‌های جدول (۴)) و معادله (۱۹)، مقادیر حجم مولی اضافی V_m^E محاسبه و با استفاده از معادله ریدلیچ-کیستر (معادله (۲۰)) مدل شدند و پارامترهای تنظیم پذیر معادله، A_i ها، که در مورد چگالی، به عنوان یک تابع درجه دوم از دما پیدا شدند، $A_i = A_{i0} + A_{i1}T + A_{i2}T^2$ ، در جدول (۵) گزارش شده اند. متوسط انحراف نسبی (ARD%) و ماکزیمم انحراف نسبی (DMAX%) داده‌های مرتبط از داده‌های تجربی (معادلات (۱۸)) به ترتیب ۰/۰۴٪ و ۰/۱۷٪ هستند.

چگالی‌های حاصل از مدل دارای متوسط انحراف ۰/۱۲٪ و ماکزیمم انحراف ۰/۳۲٪ از مقادیر گزارش شده در مراجع در محدوده دمایی K (۲۸۳/۱۵-۳۵۳/۱۵) هستند [۵۸]. این مقادیر نشان می‌دهند که مقادیر چگالی تجربی بدست آمده در این پروژه به طور کلی در تطابق مطلوبی با داده‌های مرجع گزارش شده است.

چگالی به طور متوسط سه بار اندازه‌گیری و با ماکزیمم عدم قطعیت در حدود ۰/۱۹٪ \pm (۰/۰۰۰۸ g.cm³) گزارش شدند.

گرانروی‌های تمام محلول‌های آبی DMF با استفاده از گرانروی‌سنج مویین سایز ۷۵ برای انتقال مایعات با گرانروی‌های سینماتیک در محدوده 10^{-6} تا 10^{-6} (۱/۶ × ۱۰^{-۶} - ۸ × ۱۰^{-۶}) m²s⁻¹ تعیین شد. زمان جریان به طور دستی و با استفاده از یک زمان سنج الکترونیکی با خطای ۰/۰۱ ± ثانیه ثبت شد. گرانروی‌سنج به حالت معلق درون حمام آب ترموستاتیک (LAUDA, model ECOLINE E100) با خطای دمای ۰/۰۲ K قرار داده می‌شود. هر مقدار گرانروی به طور میانگین ۵ بار اندازه‌گیری و دقت ۰/۵۴٪ \pm ، (۰/۰۰۳ mpas) گزارش شدند. گرانروی‌سنج قبل از استفاده در دماهای مختلف با استفاده از آب خالص کالیبره شده بود.

۳-۴ چگالی

برای تایید دقت و صحت داده‌های تجربی و روش مورد استفاده، چگالی DMF خالص در دماهای K (۳۰۳/۱۵-۳۳۳/۱۵) اندازه‌گیری و با داده‌های گزارش شده در مقالات مقایسه شد [۵۸ و ۵۹]. جدول (۳) نشان می‌دهد که چگالی‌های اندازه‌گیری شده در توافق

جدول ۳- مروری بر داده‌های گزارش شده برای چگالی و گرانشی DMF خالص

η / (mPa s)	ρ / (gr cm ⁻³)	T / (K)
۰/۷۵۴	۰/۹۴۲۱	۳۰۳/۱۵
۰/۷۶۶ ^۷	۰/۹۳۹۸۳ ^۷	
۰/۷۶۴۷ ^{۴۹}	۰/۹۴۰۶۹ ^۱	
۰/۶۷۳	۰/۹۳۲۲	۳۱۳/۱۵
۰/۶۸۴ ^{۴۸}	۰/۹۳۰۲۷ ^{۴۸}	
۰/۶۸۳۱ ^{۴۹}	۰/۹۳۱۰۳ ^{۴۹}	
۰/۶۰۴	۰/۹۲۲۶	۳۲۳/۱۵
۰/۶۱۷ ^{۴۸}	۰/۹۲۰۷۱ ^{۴۸}	
۰/۶۱۳ ^{۴۹}	۰/۹۲۱۵۴ ^{۴۹}	
۰/۵۴۶	۰/۹۱۳۸	۳۳۳/۱۵
۰/۵۵۹ ^{۴۸}	۰/۹۱۱۱۳ ^{۴۸}	
۰/۵۵۶۵ ^{۴۹}	۰/۹۱۱۹۷ ^{۴۹}	

جدول ۴- چگالی‌ها و ویسکوزیته‌ها DMF + آب در دماهای مختلف

η	ρ cm	x_{DMF}
$T=30.3/15$ K		
۰/۷۹۴	۰/۹۹۵۶	۰/۰۰۰
۱/۵۰۹	۰/۹۹۴۸	۰/۱۰۰
۱/۹۸۸	۰/۹۹۳۳	۰/۲۰۰
۲/۱۲۴	۰/۹۸۸۵	۰/۳۰۰
۱/۹۳۰	۰/۹۸۰۹	۰/۴۰۰
۱/۶۵۴	۰/۹۷۳۸	۰/۵۰۰
۱/۴۰۹	۰/۹۶۶۴	۰/۶۰۰
۱/۱۹۹	۰/۹۵۹۵	۰/۷۰۰
۱/۰۲۲	۰/۹۵۳۷	۰/۸۰۰
۰/۸۷۳	۰/۹۴۷۸	۰/۹۰۰
۰/۷۵۴	۰/۹۴۲۱	۱/۰۰۰
$T=31.3/15$ K		
۰/۶۵۵	۰/۹۹۲۲	۰/۰۰۰
۱/۱۷۹	۰/۹۸۸۸	۰/۱۰۰
۱/۵۲۳	۰/۹۸۵۰	۰/۲۰۰
۱/۶۵۲	۰/۹۷۹۶	۰/۳۰۰
۱/۵۱۲	۰/۹۷۱۵	۰/۴۰۰
۱/۳۲۸	۰/۹۶۴۰	۰/۵۰۰
۱/۱۶۷	۰/۹۵۶۵	۰/۶۰۰
۰/۹۸۸	۰/۹۴۹۵	۰/۷۰۰
۰/۸۱۱	۰/۹۴۳۲	۰/۸۰۰
۰/۷۳۷	۰/۹۳۷۶	۰/۹۰۰
۰/۶۷۳	۰/۹۳۲۲	۱/۰۰۰
$T=32.3/15$ K		
۰/۵۵۳	۰/۹۸۸۰	۰/۰۰۰
۰/۹۳۸	۰/۹۸۲۵	۰/۱۰۰
۱/۱۹۸	۰/۹۷۶۰	۰/۲۰۰
۱/۲۷۲	۰/۹۶۹۸	۰/۳۰۰
۱/۲۰۲	۰/۹۶۱۷	۰/۴۰۰
۱/۰۸۵	۰/۹۵۴۱	۰/۵۰۰
۰/۹۷۰	۰/۹۴۶۷	۰/۶۰۰
۰/۸۴۴	۰/۹۳۹۸	۰/۷۰۰
۰/۷۲۲	۰/۹۳۳۶	۰/۸۰۰
۰/۶۴۳	۰/۹۲۷۹	۰/۹۰۰
۰/۶۰۴	۰/۹۲۲۶	۱/۰۰۰
$T=33.3/15$ K		
۰/۹۷۳	۰/۹۸۳۲	۰/۰۰۰
۱/۰۳۴	۰/۹۷۵۹	۰/۱۰۰
۰/۹۹۵	۰/۹۶۶۸	۰/۲۰۰
۰/۹۱۰	۰/۹۶۰۳	۰/۳۰۰
۰/۸۲۸	۰/۹۵۱۹	۰/۴۰۰
۰/۷۳۶	۰/۹۴۴۰	۰/۵۰۰
۰/۶۴۵	۰/۹۳۷۱	۰/۶۰۰
۰/۵۸۲	۰/۹۳۰۶	۰/۷۰۰
۰/۵۴۶	۰/۹۲۴۴	۰/۸۰۰
۰/۹۷۳	۰/۹۱۸۷	۰/۹۰۰
۱/۰۳۴	۰/۹۱۳۸	۱/۰۰۰

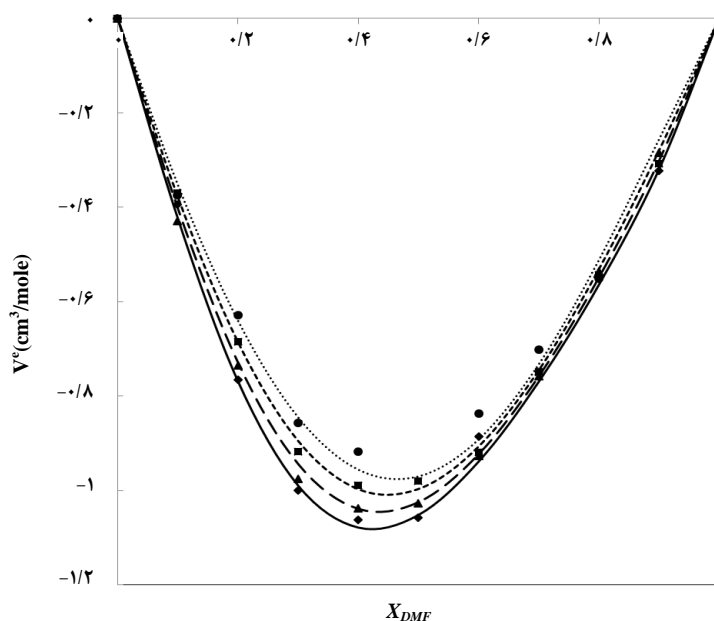
جدول ۵- مقادیر پارامترهای قابل تبدیل برای معادلات ریدلیچ-کیستر

پارامترهای معادله ریدلیچ-کیستر			
A_{i0}	A_{i1}	A_{i2}	i
ρ			
-۰/۰۰۰۸۷۶۹۷۷	-۰/۰۳۷۶۸۰۸	۰/۰۰۰۰۷۸۶۴۹۰	۱
-۰/۰۰۰۱۴۹۰۲۶	-۰/۰۰۹۰۷۴۲۴	۰/۰۰۰۰۱۷۱۲۳۵	۲
-۰/۰۰۰۱۹۷۲۲	-۰/۰۲۶۵۸۳۹	۰/۰۰۰۰۸۶۱۶۴۱	۳
-۰/۰۰۰۰۲۳۳۴۵۸	-۰/۰۰۱۵۷۶۷۴	۰/۰۰۰۰۱۲۶۷۴۸	۴
η			
-۰/۰۰۵۰۶۰۹۷	۰/۰۹۱۷۷۲۸	-۰/۰۰۰۰۲۶۳۰۸	۱
۰/۰۰۰۱۳۳۹۹۹	۰/۱۴۹۲۶۲	-۰/۰۰۰۴۳۰۰۹۱	۲
-۰/۰۰۰۰۴۴۰۴۰۶	۰/۰۳۷۵۷۵۸	-۰/۰۰۰۱۰۸۵۲۷	۳
-۰/۰۰۰۰۵۱۲۹۳۳	-۰/۰۶۳۱۲۸۶	۰/۰۰۰۱۸۵۱۵۸	۴

محلول در مقایسه با هر دو DMF خالص و آب قوی‌تر هستند و نیز برهمکنش‌های بین مولکولی وقتی که درجه حرارت کاهش می‌یابد افزایش می‌یابد.

در شکل (۲) به صورت نموداری همبستگی حجم مولی اضافی محلول حاصل از داده‌های تجربی و مقادیر بدست آمده از مدل ریدلیچ-کیستر مقایسه شده‌اند.

مقادیر حجم مولی اضافی V_m^E در مقابل x_{DMF} در دماهای مختلف در شکل (۲) رسم شده است. بررسی شکل (۲) نشان می‌دهد که محلول آب + DMF انحراف منفی از محلول ایده‌ال با یک نقطه مینیمم در $x_{DMF} = ۰/۴۵$ در همه دماها نشان می‌دهد. بزرگی حجم مولی اضافی با افزایش دما، افزایش می‌یابد این بدین معنی است که در سیستم دوتایی آب + DMF جاذبه‌های بین مولکولی در



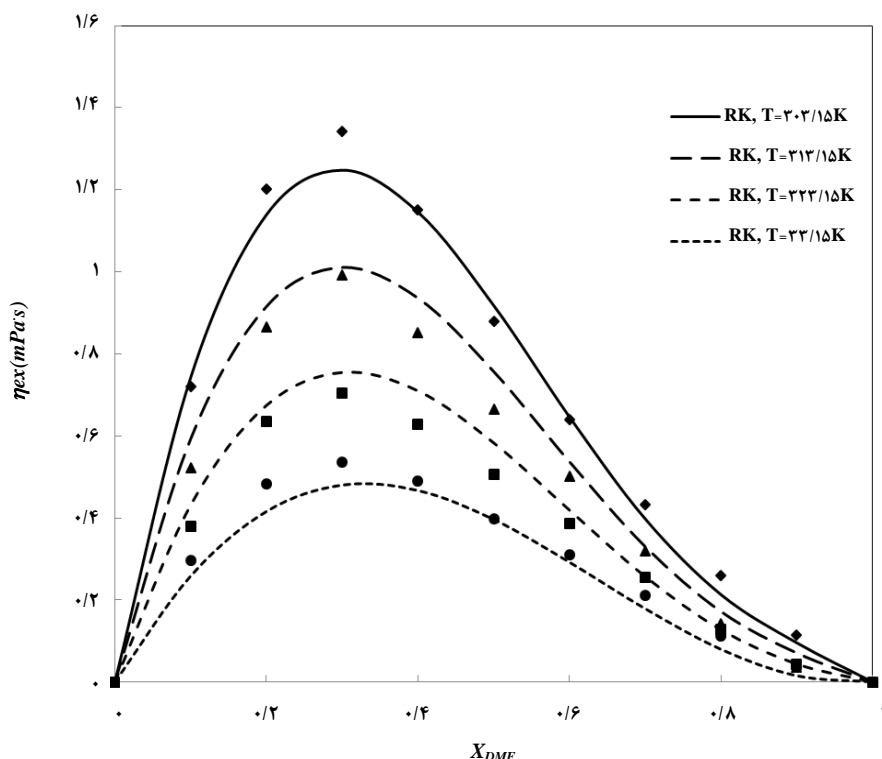
شکل ۲- تغییر تجربی (نمونه) و مدل (خطوط) حجم مولی اضافی V^E در مقابل کسر مولی از DMF, x_{DMF} نقطه داده‌های تجربی اند: (●) ۳۳۳/۱۵ K; (■) ۳۲۳/۱۵ K; (▲) ۳۱۳/۱۵ K; (◆) ۳۰۳/۱۵ K خطوط داده‌های حاصل از مدل ریدلیچ-کیستر است.

۴-۴ گرانیروی

اطراف گروه‌های متیل DMF ذکر کردند. داده‌های تجربی گزارش شده توسط برنال-گارسیا و همکاران [۵۸] با داده‌های کار حاضر مقایسه شده و مشاهده شد که دو سری داده از توافق خوبی برخوردارند. انحراف مقادیر تجربی گرانیروی بدست آمده در این کار و داده‌های مراجع دیگر به طور متوسط برابر ۱/۹٪ می‌باشد که بیشتر تایید می‌کند که داده‌های تولید شده در این کار به طور کلی در توافق با داده‌های مراجع گزارش شده است [۵۸].

همانطور که از شکل (۳) مشاهده می‌شود، مقدار گرانیروی، انحراف مثبت از رفتار ایده ال نشان می‌دهد. داده‌های تجربی با استفاده از معادله ریدلیچ-کیستر (معادله (۲۰)) و با وابستگی درجه دوم نسبت به دما که به وسیله پارامترهای A_i در ارتباط بودند مدل شدند. ضرایب معادله ریدلیچ-کیستر در جدول (۵) ارائه شده است. متوسط و حداکثر انحراف نسبی مقادیر معادله ریدلیچ-کیستر از داده‌های تجربی گرانیروی به ترتیب ۲/۹٪ و ۶/۷٪ هستند.

گرانیروی پویا با ضرب مدت زمان جریان با چگالی و ثابت گرانیروی سنج، $(\eta/\rho t)$ ، اندازه‌گیری می‌شود. ثابت گرانیروی سنج توسط درجه‌بندی گرانیروی سنج با یک نمونه شناخته شده به دست می‌آید. نتایج حاصل از این کار و سایر گزارش‌هایی که توسط محققان ارائه شده در جدول (۴) خلاصه شده است [۲۷ و ۲۸]. گرانیروی‌های به دست آمده در این کار برای DMF نسبت به داده‌های تجربی موجود در مقالات به طور متوسط ۱/۷٪ می‌باشد. مقادیر اندازه‌گیری شده گرانیروی مخلوط آب DMF+ در جدول (۴) آورده شده و به صورت نموداری در شکل (۳) نشان داده شده است. می‌توان مشاهده کرد که گرانیروی مخلوط‌ها با افزایش دما، کاهش می‌یابد. همچنین، گرانیروی محلول با افزایش کسر مولی DMF افزایش می‌یابد، تا رسیدن به ماکزیمم $x_{DMF} = 0/3$ و بعد از آن روند نزولی دارد. وجود این ماکزیمم در ناحیه غنی از آب قبلاً توسط اونو [۶۴] و همکاران نشان داده شده بود و علت آنرا تشکیل هیدراتاسیون آبگریز در



شکل ۳- تغییر تجربی (نمونه) و مدل (خطوط) گرانیروی‌های اضافی η^E در مقابل کسر مولی از DMF، x_{DMF} ، نقطه داده‌های تجربی‌اند: ۳۰۳/۱۵ K (◆) ۳۱۳/۱۵ K (▲) ۳۲۳/۱۵ K (■) ۳۳۳/۱۵ K (●). خطوط داده‌های حاصل از مدل ریدلیچ-کیستر است.

- Ethanolamines", *Journal of Chemical & Engineering Data*, 37, PP. 239–242, (1992).
- [5] Maham, Y., Teng, T. T., Hepler, L. G., Mather, A. E., "Volumetric properties of aqueous solutions of monoethanolamine, mono- and dimethylethanolamines at temperatures from 5 to 80°C", *Thermochimica Acta*, 386, pp. 111–118, (2002).
- [6] Li, M. H., Lie, Y. C., "Densities and viscosities of solutions of monoethanolamine + methyl-diethanolamine + water and monoethanolamine + 2-amino-2-methyl-1-propanol + water", *Journal of Chemical & Engineering Data*, 39, pp. 444–447, (1994).
- [7] Samanta, A., Bandyopadhyay, S. S., "Density and Viscosity of Aqueous Solutions of Piperazine and (2-Amino-2-methyl-1-propanol + Piperazine) from 298 to 333 K.", *Journal of Chemical & Engineering Data*, 51, pp. 467–470, (2006).
- [8] Henni, A., Hromek, J. J., Tontiwachwuthikul, P., Chakma, A., "Volumetric Properties and Viscosities for Aqueous AMP Solutions from 25 to 70°C.", *Journal of Chemical & Engineering Data*, 48, pp. 551–556, (2003).
- [9] Xu, S., Otto, F. D., Mather, A. E., "Physical Properties of Aqueous AMP Solutions", *Journal of Chemical & Engineering Data*, 36, pp. 71–75, (1991).
- [10] Welsh, L. M., Davis, R. A., "Density and Viscosity of Aqueous Blends of N-Methyldiethanolamine and 2-Amino-2-methyl-1-propanol", *Journal of Chemical & Engineering Data*, 40, pp. 257–259, (1995).
- [11] Chan, C., Maham, Y., Mather, A. E., Mathonat, C. D., "Densities and Volumetric Properties of Aqueous Solutions of 2-Amino-methyl-1-propanol, n-Butyldiethanolamine and n-Propylethanolamine at temperatures from 298.15 to 353.15 K.", *Fluid Phase Equilibria*, 198, pp. 239–250, (2002).
- [12] Mandal, B. P., Kundu, M., Bandyopadhyay, S. S., "Density and Viscosity of Aqueous Solutions of (N-Methyldiethanolamine + Monoethanolamine), (N-Methyldiethanolamine + Diethanolamine), (2-Amino-2-methyl-1-Propanol + Monoethanolamine), and (2-Amino-2-methyl-1-Propanol + Diethanolamine)", *Journal of Chemical & Engineering Data*, 48, pp. 703–707, (2003).
- [13] Rebolledo-Libreros, M. A., Trejo, A., "Density and Viscosity of Aqueous Blends of Three Alkanolamines: N-Methyldiethanolamine, Diethanolamine, and 2-Amino-2-methyl-1-propanol in the Range of (303 to 343) K.", *Journal of Chemical & Engineering Data*, 51, pp. 702–707, (2006).
- [14] Rinker, E. B., Oelschlager, D. W., Colussi, A. T., Henry, K. R., Sandall, O. C., "Viscosity, density, and surface tension of binary mixtures of water and N-methyldiethanolamine and water and diethanolamine an tertiary mixtures of these amines with water over the temperature range 20-100°C.", *Journal of Chemical & Engineering Data*, 39, pp. 392-395, (1994).
- [15] Teng, T. T., Maham, Y., Hepler, L. G., Mather, A. E., "Measurement and prediction of the density of aqueous ternary mixtures of methyl-diethanolamine and diethanolamine at temperatures from 25°C to 80°C", *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, 72, pp. 125-129, (1994).
- [16] Hsu, C. H., Li, M. H., "Densities of aqueous blended amines", *Journal of Chemical & Engineering Data*, 42, pp. 502-507, (1997).

۵- نتیجه‌گیری

با توجه به اینکه برای طراحی ادوات فرایندی واحدهای آمین پالایشگاه و همچنین در طراحی فرایند واحد احیاء چگالی و گرانشی محلول‌های آمین چه در حالت بارگذاری شده و چه در حالت عاری از گاز اسیدی کمیت ترمودینامیکی مهمی است. در این مقاله روش‌های اندازه‌گیری تجربی و مدل‌سازی آنها مورد بررسی قرار گرفت و خواص غیرحرارتی فیزیکی شامل چگالی، گرانشی محلول آبی و خالص N-N دی متیل فرمامید که به طور تجربی در محدوده وسیعی از ترکیب و دمایی که از اهمیت صنعتی برخوردار است، اندازه‌گیری شد. از معادله ریذلیچ-کیستر برای مدل‌سازی خواص تجربی به دست آمده، مورد استفاده قرار گرفت. مقایسه مقادیر حاصل از مدل با داده‌های تجربی نشان می‌دهد که هر دو معادله با دقت قابل مقایسه‌ای، هم از نظر کیفی و هم از نظر کمی، قادر به نشان دادن رفتار این خواص در محدوده وسیع از ترکیب مخلوط و دماهای مورد مطالعه در این کار هستند. انحراف منفی از محلول ایده‌آل در تمام دماها برای حجم مولی اضافی مشاهده شد، اما انحراف مثبت برای گرانشی مشاهده شده است.

۶- قدردانی

از شورای پژوهشی پژوهشگاه صنعت نفت و مدیریت پژوهش و فناوری شرکت ملی نفت ایران (NIOC) برای حمایت خود از این پروژه تشکر می‌کنیم.

مراجع

- [1] Hartono, A., Svendsen, H. F., "Density, viscosity, and excess properties of aqueous solution of diethylenetriamine (DETA)". *The Journal of Chemical Thermodynamics*, 41, pp. 973–979, (2009).
- [2] Rouleau, D. J., Thompson, A. R., "Densities and refractive indices of aqueous solutions diethylenetriamine, triethylenetetramine, and tetraethylenepentamine", *Journal of Chemical & Engineering Data*, 7, pp. 356-357, (1962).
- [3] Bernal-García, J. M., Hall, K. R., Estrada-Baltazar, A., Iglesias-Silva, G. A., "Density and viscosity of aqueous solutions of N,N-dimethylethanolamine at p = 0.1 MPa from T = (293.15 to 363.15) K", *Journal of the Chemical Thermodynamics*, 37, pp. 762–767, (2005).
- [4] DiGuillo, R. M., Lee, R. J., Schaeffer, S. T., Brasher, L. L., Teja, A. S., "Densities and Viscosities of the

- [17] A'lvarez, E., Cerdeira, F., Go'mez-Diaz, D., Navaza, J. M., "Density, Speed of Sound, Isentropic Compressibility, and Excess Volume of (Monoethanolamine + 2-Amino-2-methyl-1-propanol), (Monoethanolamine + Triethanolamine), and (Monoethanolamine + N-Methyldiethanolamine) at Temperatures from (293.15 to 323.15) K", *Journal of Chemical & Engineering Data*, 55, pp. 994-999, (2010).
- [18] A'lvarez, E., Go'mez-Díaz, D., La Rubia, M. D., Navaza, J. M., "Densities and Viscosities of Aqueous Ternary Mixtures of 2-(Methylamino) ethanol and 3-(Ethylamino)ethanol with Diethanolamine, Triethanolamine, N-methyldiethanolamine or 2-Amino-2-methyl-1-propanol from 298.15 to 323.15 K.", *Journal of Chemical & Engineering Data*, 51, pp. 955-962, (2006).
- [19] Muhammad, A., Mutalib, M. I. A., Murugesan, T., Shafeeq, A., "Density and Excess Properties of Aqueous N-methyldiethanolamine Solutions from (298.15 to 338.15) K.", *Journal of Chemical & Engineering Data*, 53, pp. 2217-2221, (2008).
- [20] Bernal-Garcia, J. M., Ramos-Estrada, M., Iglesias-Silva, G. A., Hall, K. R., "Densities and Excess Molar Volumes of Aqueous Solutions of N-methyldiethanolamine (MDEA) at Temperatures from (283.15 to 363.15) K.", *Journal of Chemical & Engineering Data*, 48, pp. 1442-1445, (2003).
- [21] Paul, S., Ghoshal, A. K., Mandal, B., "Physicochemical Properties of Aqueous Solutions of 2-Amino-2-hydroxymethyl-1,3-propanediol", *Journal of Chemical & Engineering Data*, 54, pp. 444-447, (2009).
- [22] Park, J. Y., Yoon, S. J., Lee, H., Yoon, J. H., Shim, J. G., Lee, J. K., Min, B. Y., Eum, H. M., "Density, Viscosity, and Solubility of CO₂ in Aqueous Solutions of 2-Amino-2-hydroxymethyl-1,3-propanediol", *Journal of Chemical & Engineering Data*, 47, pp. 970-973, (2002).
- [23] Murshid, G., Shariff, A. M., Keeong, L. K., Bustam, M. A., "Physical Properties of Aqueous Solutions of Piperazine and (2-Amino-2-methyl-1-propanol+ Piperazine) from (298.15 to 333.15) K", *Journal of Chemical & Engineering Data*, 56, pp. 2660-2663, (2011).
- [24] Spasojević, V. D., Šerbanović, S. P., Djordjević, B. D., Kijevčanin, M. L., "Densities, Viscosities, and Refractive Indices of Aqueous Alkanolamine Solutions as Potential Carbon Dioxide Removal Reagents", *Journal of Chemical & Engineering Data*, 58(1), pp. 84-92, (2013).
- [25] Jayarathna, S. A., Weerasooriya, A., Dayarathna, S., Eimer, D. A., Melaaen, M. C., "Density and surface tensions of CO₂ loaded aqueous Monoethanolamine solution with $r = (0.2 \text{ to } 0.7)$ at $T = (303.15 \text{ to } 333.15)$ K", *Journal of Chemical & Engineering Data*, 58, pp. 986-992, (2013).
- [26] Jayarathna, S. A., Jayarathna, C. K., Kottage, D. A., Dayarathna, S., Eimer, D. A., Melaaen, M. C., "Density and surface tension measurements of partially carbonated aqueous Monoethanolamine solutions", *Journal of Chemical & Engineering Data*, 58, pp. 343-348, (2013).
- [27] Vahidi, M., Moshtari, B., "Dielectric data, densities, refractive indices, and their deviations of the binary mixtures of N-methyldiethanolamine with sulfolane at temperatures 293.15-328.15 K and atmospheric pressure", *Thermochimica Acta*, 551, pp. 1-6, (2013).
- [28] Kelayeh, S. A., Jalili, A. H., Ghotbi, C., Hosseini-Jenab, M., Taghikhani, V., "Densities, Viscosities and Surface Tensions of Aqueous Mixtures of sulfolane + Triethanolamine and Sulfolane + Diisopropanolamine", *Journal of Chemical & Engineering Data*, 56, pp. 4317-4324, (2011).
- [29] Freeman, S. A., Rochelle, G. T., "Density and viscosity of aqueous (Piperazine + Carbon dioxide) solutions", *Journal of Chemical Engineering Data*, 56, pp. 574-581, (2011).
- [30] Murshid, G., Shariff, A. M., Lau, K. K., Bustam, M. A., Ahmad, F., "Physical properties of piperazine (PZ) activated aqueous solutions of 2-amino-2-hydroxymethyl-1, 3-propanediol (AHPD+ PZ)", *Journal of Chemical & Engineering Data*, 57, pp. 133-136, (2012).
- [31] Alvarez, E., Cerdeira, F., Gomez-Diaz, D., Navaza, J., "Density, Speed of Sound, Isentropic Compressibility, and Excess Volume of Binary Mixtures of 1-Amino-2-propanol or 3-Amino-1-propanol with 2-Amino-2-methyl-1-propanol, Diethanolamine, or Triethanolamine from (293.15 to 323.15) K", *Journal of Chemical & Engineering Data*, 55(7), pp. 2567-2575, (2010).
- [32] Paul, S., Ghoshal, A. K., Mandal, B., "Physicochemical Properties of Aqueous Solutions of 2-(1-Piperazinyl)-ethylamine", *Journal of Chemical & Engineering Data*, 55, pp. 1359-1363, (2010).
- [33] Peralta, J. M., Rubiolo, A. C., Zorrilla, S. E., "Prediction of heat capacity, density and freezing point of liquid refrigerant solutions using an excess Gibbs energy model", *Journal of Food Engineering*, 82, pp. 548-558, (2007).
- [34] Cristofoli, G., Grigiante, M., Scalabrin, G., "A corresponding states predictive model for the saturated liquid density of halogenated alkanes and of fluorinated propanes and ethers", *Fluid Phase Equilibria*, 170, pp. 23-35, (2000).
- [35] Li, C. X., Park, S. B., Kim, J. S., Lee, H., "A new generalized model for predicting the density of single- and mixed-electrolyte solutions", *Fluid Phase Equilibria*, 145, pp. 1-14, (1998).
- [36] Miyake, Y., Baylaucq, A., Plantier, F., Bessières, D., Ushiki, H., Boned, C., "High-pressure (up to 140 MPa) density and derivative properties of some (pentyl-, hexyl-, and heptyl-) amines between (293.15 and 353.15) K", *The Journal of Chemical Thermodynamics*, 40, pp. 836-845, (2008).
- [37] Hartono, A., Svendsen, H. F., "Density, viscosity, and excess properties of aqueous solution of diethylenetriamine (DETA)", *The Journal of Chemical Thermodynamics*, 41, pp. 973-979, (2009).
- [38] Bernal-García, J. M., Hall, K. R., Estrada-Baltazar, A., Iglesias-Silva, G. A., "Density and viscosity of aqueous solutions of N,N-dimethylethanolamine at $p = 0.1$ MPa from $T = (293.15 \text{ to } 363.15)$ K", *The Journal of Chemical Thermodynamics*, 37, pp. 762-767, (2005).
- [39] Tourneux, D. L., Iliuta, I., Iliuta, M. C., Fradette, S., Larachi, F., "Solubility of carbon dioxide in aqueous solutions of 2-amino-2-hydroxymethyl-1,3-propanediol", *Fluid Phase Equilibria*, 268, pp. 121-129, (2008).

- [40] Paul, S., Mandal, B., "Density and viscosity of aqueous solutions of (N-methyldiethanolamine plus piperazine) and (2-amino-2-methyl-propanol plus piperazine) from (288 to 333) K", *Journal of Chemical Engineering Data*, 51, pp. 2242–2245, (2006).
- [41] Muhammad, A., Mutalib, M. I. A., Murugesan, T., Shafeeq, A., "Thermophysical Properties of Aqueous Piperazine and Aqueous (N-Methyldiethanolamine + Piperazine) Solutions at Temperatures (298.15 to 338.15) K", *Journal of Chemical Engineering Data*, 54, pp. 2317–2321, (2009).
- [42] Derks, P. W. J., Hamborg, E. S., Hogendoorn, J. A., Niederer, J. P. M., Versteeg, G. F., "Densities, Viscosities, and Liquid Diffusivities in Aqueous Piperazine and Aqueous (Piperazine + N-Methyldiethanolamine) Solutions", *Journal of Chemical Engineering Data*, 53, pp. 1179–118, (2008).
- [43] Derks, P. W. J., Hogendoorn, J. A., Versteeg, G. F., "Solubility of N₂O in and Density, Viscosity, and Surface Tension of Aqueous Piperazine Solutions", *Journal of Chemical Engineering Data*, 50, pp. 1947–1950, (2005).
- [44] Yoon, S. J., Lee, H. S., Lee, H., Baek, J. I., Yoon, J. H., Eum, H. M., "Densities, viscosities, and surface tensions of aqueous 2-amino-2-ethyl-1,3-propanediol solutions", *Journal of Chemical Engineering Data*, 47, pp. 30–32, (2002).
- [45] Shoemaker, D. P., Garland, C. W., Nibler, J. W., "Experiments in Physical Chemistry", 5th Ed., McGraw-Hill, pp. 371-373, (1989).
- [46] Coelho, L. A. F., "An one parameter model to predict shear viscosity of dense fluids", *Journal of Supercritical Fluids*, 34, pp. 243–248, (2005).
- [47] Mac'ias-Salinas, R., Garc'ia-Sánchez, F., Eliosa-Jiménez, G., "An equation-of-state-based viscosity model for non-ideal liquid mixtures", *Fluid Phase Equilibria*, 210, pp. 319–334, (2003).
- [48] Hu, Y. F., Lee, H., "Prediction of viscosity of mixed electrolyte solutions based on the Eyring's absolute rate theory and the semi-ideal hydration model", *Electrochimica Acta*, 48, pp. 1789-/1796, (2003).
- [49] Sadeghi, R., "Extension of the electrolyte NRTL and Wilson models for correlation of viscosity of strong electrolyte solutions at different temperatures", *Fluid Phase Equilibria*, 259, pp. 157–164, (2007).
- [50] Harris, K. R., Woolf, L. A., "Temperature and Pressure Dependence of the Viscosity of the Ionic Liquid 1-Butyl-3-methylimidazolium Hexafluorophosphate", *Journal of Chemical Engineering Data*, 50, pp. 1777-1782, (2005).
- [51] Yoshimura, M., Boned, C., Baylaucq, A., Galliero, G., Ushiki, H., "Influence of the chain length on the dynamic viscosity at high pressure of some amines: Measurements and comparative study of some models", *The Journal of Chemical Thermodynamics*, 41, pp. 291–300, (2009).
- [52] Howard, H. P., "Handbook of Environmental Fate and Exposure Data for Organic Chemicals" Vol. IV: Solvents 2. Chelsea, MI: Lewis Publishers Inc. 1993.
- [53] Gescher, A., "Metabolism of N,N-dimethylformamide: key to the understanding of its toxicity", *Chemical Research in Toxicology*, 6(3), pp. 245-251, (1993).
- [54] Jödecke, M., Pérez-Salado, A., Kamps, G., "An experimental investigation of the solubility of CO₂ in (N,N-dimethylmethanamide + water) ", *Journal of Chemical & Engineering Data*, 57, pp. 1249-1260, (2012).
- [55] Byun, H. S., Kim, N. H., Kwak, C., "Measurements and modeling of high-pressure phase behavior of binary CO₂ – amides systems", *Fluid Phase Equilibria*. 208, pp. 53-68, (2003).
- [56] Chang, C. J., Chen, C. Y., "Solubilities of carbon dioxide and nitrous oxide in cyclohexanone, toluene, and N,N-dimethylformamide at elevated pressures", *Journal of Chemical & Engineering Data*, 40, pp. 850-855, (1995).
- [57] Tôrres, R. B., Marchiore, A. C. M., Volpe, P. L. O., "Volumetric properties of binary mixtures of (water + organic solvents) at temperatures between T = 288.15 K and T = 303.15 K at p = 0.1 MPa", *The journal of chemical thermodynamics*, 38, pp. 526-541, (2006).
- [58] Bernal-García, M. J., Guuzman-Lopez, A., Cabrales-Torres, A., Estrada-Baltazar, A., Iglesias-Silva, G. A., "Densities and viscosity of (N, N-dimethylformamid + water) at atmospheric pressure from (283.15 to 353.15) K", *Journal of Chemical & Engineering Data*, 53, pp. 1024-1027, (2008).
- [59] Marchetti, A., Preti, C., Tagilazucchi, M., Tassi, L., Tosi, G., "The N,N-Dimethylformamide/Ethane-1,2 diol solvent system. Density, viscosity, and excess molar volume at various temperatures", *Journal of Chemical & Engineering Data*, 36, pp. 1442-1445, (1991).
- [60] Scharlin, P., Steinby, K., Domanska, U., "Volumetric properties of binary mixtures of N,N-dimethylformamide with water or water-D2 at temperatures from 277.13 K to 318.15 K", *The journal of chemical thermodynamics*, 34, pp. 927-957, (2002).
- [61] Akhtar, S., Omar Faruk, A. N. M., Saleh, M. A., "Viscosity of aqueous solutions of formamide, N-methylformamide and N,N-dimethylformamide", *Physics and Chemistry of Liquids*, 39, pp. 383-399, (2001).
- [62] Papamatthaiakis, D., Aroni, F., Havredaki, V., "Isentropic compressibilities of (amide + water) mixtures: a comparative study", *The journal of chemical thermodynamics*, 40, pp. 107-118, (2008).
- [63] Redlich, O., Kister, A. T., "Algebraic representation of thermodynamic properties and classification of solutions", *Industrial & Engineering Chemistry*, 40, pp. 345–348, (1948).
- [64] Ueno, M., Mitsui, R., Iwahashi, H., Tsuchihashi, N., Ibuki, K., "Pressure and temperature effects on the density and viscosity of DMF-water mixtures", *Journal of Physics: Conference Series*, 215, pp. 012074- 1–4, (2010).