

РАСТВОРИМОСТЬ СЕРЫ В СВЕРХКРИТИЧЕСКОЙ ПРОПАН-БУТАНОВОЙ СМЕСИ

Т.Р. Биалов — Казанский национальный исследовательский технологический университет, Казань, Россия; Казанский национальный исследовательский технический университет им. А.Н. Туполева — КАИ, Казань, Россия. ORCID: 0000-0001-6970-4717. Эл. почта: t.bilalov@yandex.ru (*для переписки*)

И.Ш. Хабриев — Казанский национальный исследовательский технологический университет, Казань, Россия. ORCID: 0000-0002-0327-0343. Эл. почта: termi0@yandex.ru

В.Ф. Хайрутдинов — Казанский национальный исследовательский технологический университет, Казань, Россия. ORCID ID 0000-0002-8137-6450. Эл. почта: kvener@yandex.ru

Т.Р. Ахметзянов — Казанский национальный исследовательский технологический университет, Казань, Россия. ORCID ID 0000-0002-2347-5389. Эл. почта: ahmetzyanov1992@bk.ru

Ф.М. Гумеров — Казанский национальный исследовательский технологический университет, Казань, Россия. ORCID: 0000-0002-3806-2165. Эл. почта: gum@kstu.ru

©2022 г. Поступила в редакцию 02.09.2022 г. Прошла рецензирование 19.09.2022 г. Принята к публикации 19.09.2022 г.

С использованием оптической ячейки высокого давления в интервале температур 403–443 К и давлений 5,3–24,5 МПа исследовано фазовое равновесие системы сера–пропан/бутан и установлен V-й тип фазового поведения. Растворимость серы в сверхкритической пропан-бутановой смеси оценена на основе характеристик паровой ветви фазового равновесия системы сера–пропан/бутан и описана с использованием уравнения состояния Пенга–Робинсона в сочетании с правилом комбинирования Мухопадхьяи и Рао. Установлено, что пропан-бутановая смесь в сверхкритическом флюидном состоянии, наряду с хорошими экстракционными свойствами, позволяет осуществить процесс обессеривания товарных углеводородов. Например, снижение давления с 25 до 7 МПа позволяет уменьшить содержание серы в продукте на изотерме 413 К в два раза, а на изотерме 443 К — в 10 раз. **Ключевые слова:** сера, сверхкритическая пропан-бутановая смесь, фазовое равновесие, растворимость, термодинамическая модель, уравнение Пенга–Робинсона.

ВВЕДЕНИЕ

Во всех нефтях наряду с углеводородами имеется значительное количество соединений, включающих такие гетероатомы, как сера, кислород и азот. Содержание этих элементов зависит от возраста и происхождения нефти [1].

Общее содержание серы в нефтегазовых системах колеблется в широких пределах: от сотых долей процента до 6–8 мас. % и более. В отличие от других гетероатомов соединения серы преимущественно концентрируются в смолисто-асфальтеновых веществах (масла, мазуты, гудроны, асфальтопарафинные отложения) [2].

По химической природе они представляют собой, главным образом, нейтральные соединения типа сульфидов с алифатическими и/или циклическими

радикалами, гетероциклические соединения типа гомологов тиофана и тиофена с различным количеством циклов в молекуле, а также элементную серу. По способности вызывать сильную коррозию оборудования эти вещества относятся к активным сернистым соединениям [3].

Настоящая работа является продолжением цикла работ, посвященных сверхкритической флюидной (СКФ) переработке тяжелых сернистых нефтяных остатков, а именно выделению товарных углеводородов из нефтяных шламов, нефтеносных песков и водонефтяных эмульсий [4, 5].

В ходе осуществления процесса СКФ-экстракции углеводородов из нефтяных остатков сера частично растворяется в экстрагенте и извлекается в товарную продукцию, и ее количество определяется термодинамическими параметрами процесса экстракции. Поэтому получение данных по растворимости серы в экстрагенте позволит максимально снизить ее содержание в готовом продукте.

На сегодняшний день большинство СКФ-процессов экстракции реализованы с использованием неполярного диоксида углерода в качестве экстрагента. Причиной этого являются инертность и нетоксичность, пожаро- и взрывобезопасность, дешевизна и доступность, а также удобные критические параметры и высокая летучесть диоксида углерода. Однако, несмотря на все свои достоинства, диоксид углерода не является универсальным растворителем/экстрагентом.

Наиболее предпочтительными растворителями в нефтяной промышленности, в частности, при деасфальтизации тяжелого нефтяного остатка, являются пропан, бутан и их смеси. Пропан и бутан родственны нефтяным углеводородам. Сырьем для их получения служат, в основном, нефтяные попутные газы, образующиеся в процессе переработки нефти. Еще одно немаловажное преимущество этих веществ — относительно низкие значения критических параметров, особенно давления. Критические параметры пропана и бутана согласно [6, 7] характеризуются следующими значениями: пропан: $T_{кр} = 369,82 \text{ К}$ ($96,67 \text{ °C}$), $P_{кр} = 4,247 \text{ МПа}$; бутан: $T_{кр} = 425 \text{ К}$ ($151,85 \text{ °C}$), $P_{кр} = 3,797 \text{ МПа}$. Для коммунально-бытового потребления промышленность выпускает их смесь [13], содержащую 45 мас. % пропана и 55 мас. % бутана.

Данные по растворимости серы в сероводороде, CO_2 , метане и их смесях [8–17] также представлены в литературе. В целом, исследования проведены в достаточно широких диапазонах изменения температур (340–400 К) и давлений (7–60 МПа). При этом можно констатировать, что не во всех случаях результаты различных исследований согласуются друг с другом. К примеру, значения растворимости серы в сероводороде, полученные в работах [8] и [9], существенным образом различаются. Сопоставление результатов по растворимости серы в СК- CO_2 , полученных в работах [10, 15, 16], показывает, что на изотерме 333,15 К данные хорошо согласуются между собой, а на изотерме 363,15 К при давлениях выше 20 МПа видно их сильное расхождение. При исследовании растворимости серы в чистом метане [8, 13, 17], проведенном в диапазоне давлений 4–30 МПа и температур 333,15–363,15 К, также наблюдается значительное расхождение данных. К примеру, при $T = 363,15 \text{ К}$ и $P = 20 \text{ МПа}$ отличия в результатах работ [8] и [17] достигает 50 %.

В литературе также имеются ограниченные данные по растворимости серы и ее соединений в пропане и бутане [18, 19] — так, в работе [18] приведены данные по содержанию соединений серы (сероводород, меркаптаны) в

сжиженном газе, а в работе [19] — по растворимости серы в смеси пропана и бутана при температурах 400,15 и 420,15 К.

Цель настоящей работы — исследование растворимости серы в сверхкритической пропан-бутановой смеси (СК-пропан/бутан).

ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНАЯ ЧАСТЬ

Материалы и методы

В работе использованы: сера полусферическая (ТУ 2112-144-31323949-2010, а также пропан-бутановая смесь с массовым составом 45,8 % пропана и 54,2 % бутана и критическими параметрами: $T_{кр} = 394,25$ К (121,1 °С), $P_{кр} = 4,3$ МПа, $w = 0,183$.

Экспериментальная установка для исследования фазового равновесия жидкость—пар бинарных систем с использованием оптической ячейки высокого давления, принципиальная схема которой приведена на рис. 1, состоит из системы создания, регулирования и измерения давления, системы измерения и регулирования температуры, сосуда равновесия, системы вакуумирования, узла перемешивания и аналитической части.

Для проведения статического эксперимента оптическую ячейку заполняли на одну треть исследуемым веществом, а затем из системы удаляли воздух

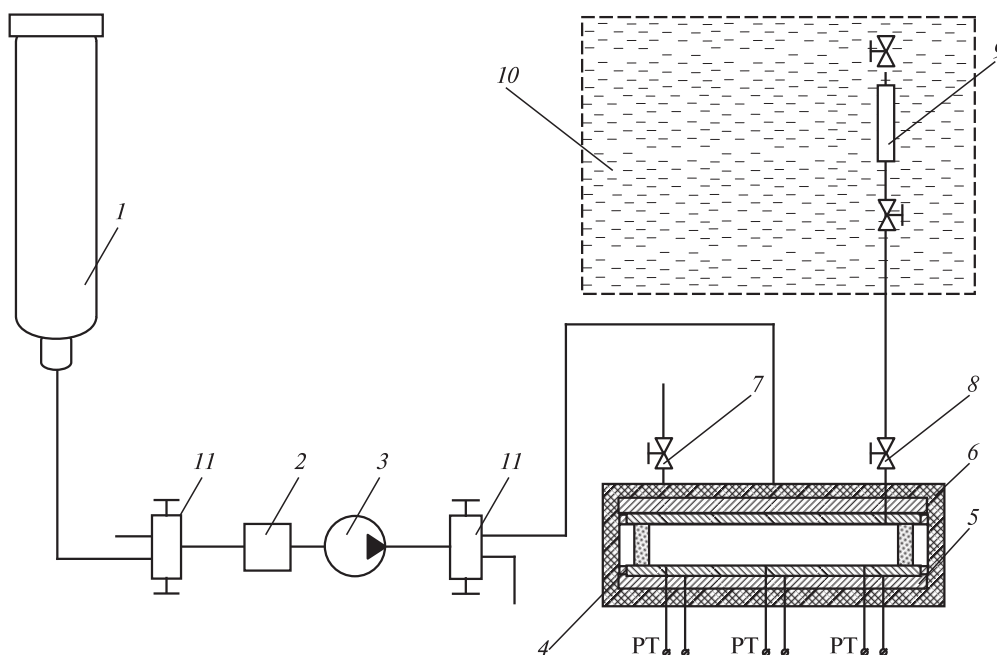


Рис. 1. Схема экспериментальной установки для исследования фазового равновесия бинарных систем с использованием оптической ячейки высокого давления:

1 — баллон с CO_2 ; 2 — фильтр-осушитель; 3 — насос; 4 — оптическая ячейка высокого давления; 5 — медная рубашка; 6 — термоизоляция; 7, 8 — вентили для отбора верхней (газовой) и нижней (жидкой) фаз, соответственно (для случая вертикального расположения оптической ячейки в момент отбора проб и присутствия пробоотборника на линии подачи образца анализируемой в данный момент фазы); 9 — пробоотборник; 10 — термостатирующая ванна; 11 — вентиль

вакуумным насосом. Далее ячейку нагревали до нужной температуры и в нее насосом высокого давления подавали пропан-бутановую смесь до необходимого давления. Равновесие в двухфазной системе осуществляли интенсивным перемешиванием содержимого ячейки, достижение которого контролировали отбором проб на анализ и/или путем измерения давления в оптической ячейке. Более подробное описание экспериментальной установки и методики приведено в работе [20].

РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

В результате экспериментального исследования фазового равновесия системы сера—пропан/бутан (рис. 2) с использованием оптической ячейки высокого давления установлена ее принадлежность к фазовому поведению V-го типа (по классификации D.F. Williams) [21]. Погрешность результатов исследования фазового равновесия для рассмотренных выше систем оценивается как 3,1—5,9 %.

В таком случае в области сверхкритических параметров пропан/бутановой смеси для системы сера—пропан/бутан сохраняется граница раздела фаз жидкость—пар и существует методическая возможность исследования растворимости серы в СК-пропан/бутане. Эти значения были установлены на основе характеристик паровой ветви (правая ветвь на рис. 2) фазового равновесия системы сера—пропан/бутан и приведены в координатах y — P (рис. 3).

Из результатов видно, что в диапазоне давлений от 5 до 9 МПа с ростом температуры растворимость падает, а при давлениях выше 9 МПа — наоборот, при увеличении температуры растворимость повышается. Это явление можно объяснить кроссоверными поведением изотерм растворимости и соответствующей второй кроссоверной точкой.

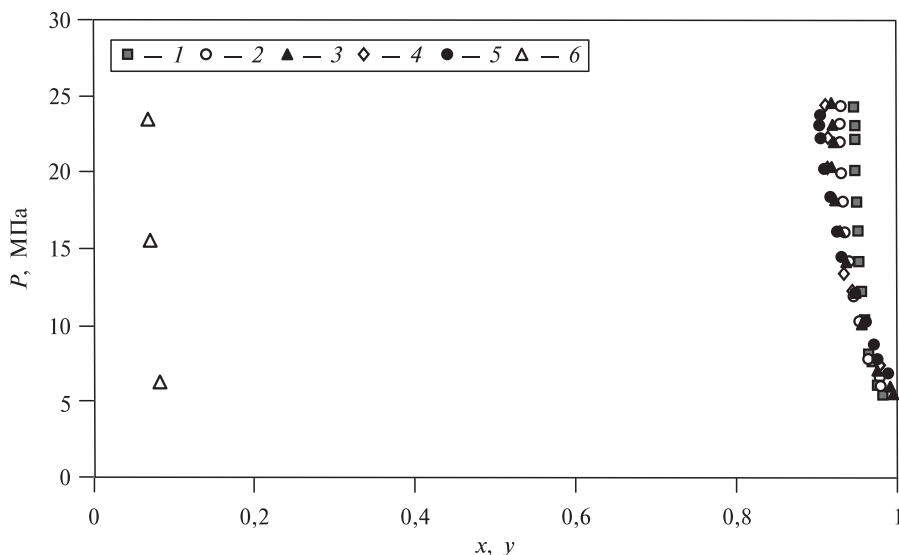


Рис. 2. Фазовое равновесие бинарной системы сера—пропан/бутан при различных температурах, К:

1 — 403; 2 — 413; 3 — 423; 4 — 433; 5 — 443; 6 — 423 (жидкая фаза)

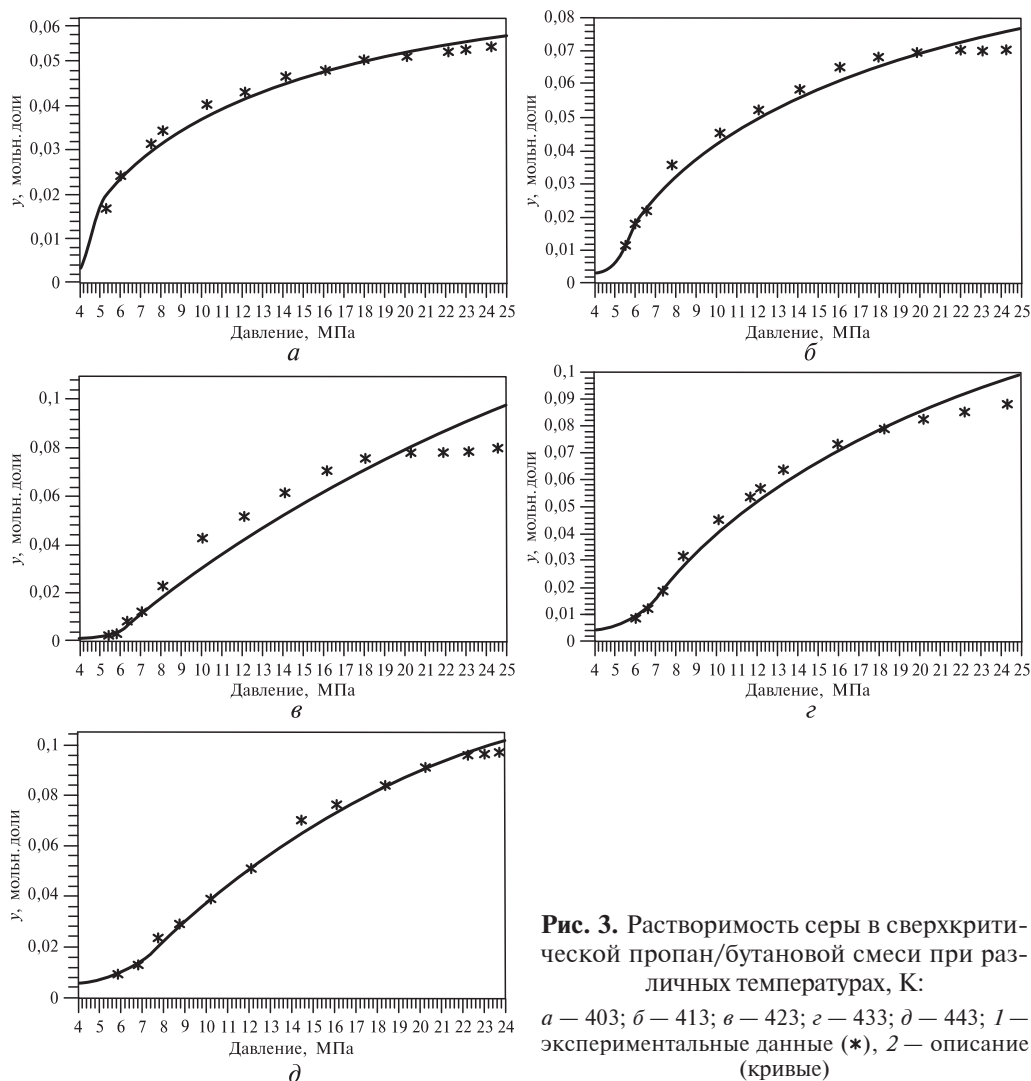


Рис. 3. Растворимость серы в сверхкритической пропан/бутановой смеси при различных температурах, К: а – 403; б – 413; в – 423; г – 433; д – 443; 1 – экспериментальные данные (*), 2 – описание (кривые)

Результаты экспериментального исследования растворимости серы в сверхкритическом растворителе описаны в соответствии с моделью, широко апробированной в работе [22].

Согласно этой модели, позволяющей описывать растворимость низколетучих и несжимаемых веществ в сверхкритических флюидных средах:

$$y = \frac{P_v^i}{P\Phi_i} \exp\left[\frac{v_i}{RT(P - P_v^i)}\right]$$

или

$$\ln(y) = \ln\left(\frac{P_v^i}{P}\right) - \ln(\Phi) + \frac{Pv_i}{RT},$$

где y – растворимость вещества в СКФ-растворителе, мольные доли; P_v – давление насыщенных паров растворяемого вещества при температуре T ;

P — давление в системе; Φ — коэффициент летучести растворяемого вещества во флюиде; v_i — приведенный мольный объем чистого растворяемого вещества; R — универсальная газовая постоянная. При переходе к логарифмической форме представления уравнения исключен член $\frac{P_i v_i}{RT}$, поскольку давление насыщенных паров существенно ниже давления системы, а значения для этого члена пренебрежимо малы по сравнению со значениями остальных членов уравнения.

Коэффициент летучести растворяемого вещества во флюидной фазе может быть вычислен с помощью одного из кубических многопараметрических уравнений состояния. В настоящей работе было использовано двухпараметрическое уравнение состояния Пенга—Робинсона, широко применяемое для расчета фазовых равновесий в системах вещество—сверхкритический флюид:

$$P = \frac{RT}{v - b} - \frac{a}{v^2 + 2bv - b^2},$$

где v — мольный объем; a и b — параметры уравнения Пенга—Робинсона для смеси, определяемые следующим образом:

$$a = \sum_i \sum_j y_i y_j a_{ij} \left(\frac{b}{b_{ij}} \right)^{m_{ij}}, \quad b = \sum_i y_i b_i,$$

где $a_{ij} = (a_{ii} a_{jj})^{1/2}$, $b_{ij} = (b_{ii} b_{jj})^{1/2}$, y_i и y_j — мольные доли соответственно i - и j -го компонентов смеси в любой из равновесных фаз, m_{ij} — эмпирический коэффициент бинарного взаимодействия, учитывающий особенности парного взаимодействия разнородных молекул, определяемый в рамках правила комбинирования Мухопадхьяи и Рао [22].

Параметры уравнения Пенга—Робинсона для чистых компонентов являются комбинациями критических давлений и температур:

$$a_i = 0,45724 R^2 T_{кр}^2 \alpha_i(T) / P_{кр},$$

$$b_i = 0,0778 RT_{кр} / P_{кр},$$

$$\alpha_i(T) = \left[1 + (0,37464 + 1,54226\omega_i - 0,26992\omega_i^2) (1 - (T/T_{кр})^{1/2})^2 \right],$$

где $P_{кр}$, $T_{кр}$, и ω — критическое давление, критическая температура и фактор ацентричности i -го компонента; $\alpha_i(T)$ — функция, связывающая фактор ацентричности и температуру процесса.

Подгоночный эмпирический параметр F бинарного взаимодействия m_{ij} определяется при фиксированной температуре путем минимизации среднеквадратичного отклонения расчетных данных от экспериментальных точек:

$$F = \sqrt{\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n \left(\frac{y_i^{расч} - y_i^{экс}}{y_i^{экс}} \right)^2},$$

где n — количество экспериментальных точек на изотерме.

Таблица

Значения коэффициента бинарного взаимодействия и давления насыщенных паров

T, K	P_v, Pa	m_{21}	$F, \%$
403	2183	-0,51	5,752
413	2570	0,08	5,735
423	741	1,77	16,255
433	4434	0,54	7,663
443	6713	0,53	5,188

Критические параметры пропан-бутановой смеси приведены выше, а для серы они составляют $T_{кр} = 1313 K$, $P_{кр} = 18,21 MPa$, $w = 0,165$ [23].

В дополнение к коэффициенту бинарного взаимодействия в качестве подгоночного параметра использовали давление насыщенных паров растворяемого вещества. Это позволило существенно повысить точность описания растворимости для случаев,

когда экспериментальное значение давления насыщенных паров на исследуемой изотерме неизвестно.

Результаты описания представлены на рис. 3 и в таблице. Погрешность описания растворимости сопоставима с погрешностью экспериментальных исследований, что дает возможность рассчитать растворимость серы в пропан/бутане внутри исследованного температурного диапазона с высокой точностью. Исключение составляет изотерма 423 K, которая примерно соответствует фазовому переходу серы при этих параметрах [24], что затрудняет описание растворимости. Аналогичную картину мы наблюдали при описании растворимости пальмитата аммония в СК-СО₂, когда модель также не удалось использовать при описании изотермы, соответствующей температуре фазового перехода растворяемого вещества [25].

Таким образом, экспериментальные и расчетные данные, полученные в работе в широком интервале температур и давлений, имеют большую практическую ценность. С одной стороны, это дает возможность спрогнозировать количественное содержание серы в сжиженных газах, извлекаемых при нефтедобыче в пластовых условиях, а с другой — позволяет оптимизировать процессы деасфальтизации и СКФ-экстракции углеводородов из нефтяных шламов.

В частности, если рассматривать процесс СКФ с пропан-бутановой смесью в качестве экстрагента, то ранее [4] было установлено, что в ходе обработки при 10 МПа и 413 K содержание серы снизилось с 5,2 до 2,8 мас. %, что является неплохим показателем. Незначительное количество серы в нефтепродукте объясняется, прежде всего, фазовым равновесием системы сера—экстрагент, в частности, растворимостью серы в пропан-бутановой смеси при разных термодинамических параметрах. И для оптимизации процесса с целью снижения содержания серы в готовом нефтепродукте необходимо было знать численные значения растворимости серы в экстрагенте, полученные в нашей работе. Результаты показывают, что уменьшение давления с 25 до 7 МПа позволяет снизить содержание серы на изотерме 413 K в два раза, на изотерме 443 K — в 10 раз.

Таким образом, можно заключить, что СК-пропан/бутановая смесь является, с одной стороны, хорошим экстрагентом (выход углеводородов от их общей массы в обрабатываемом шламе составляет 98 %), а с другой стороны, позволяет провести процесс обессеривания товарных углеводородов.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе исследовано фазовое равновесие бинарной системы сера—пропан/бутан. Установлено, что данная система относится к фазовому поведению V-го типа, для которого характерен разрыв критической линии раствора. Проведен расчет растворимости серы в СК-пропан/бутановой смеси на основе параметров паровой ветви фазового равновесия обсуждаемой бинарной системы. Установлена вторая кроссовочная точка изотерм растворимости. Для описания результатов оценки растворимости использовали уравнение состояния Пенга—Робинсона совместно с правилом комбинирования Мухопадхьяи и Рао. Показано, что точность описания имеет тот же порядок значений, что и погрешность экспериментального исследования растворимости серы в пропан-бутановой смеси.

БЛАГОДАРНОСТИ

Исследование выполнено в рамках финансовой поддержки в виде гранта Российского научного фонда (проект № 22-79-10129, <https://rscf.ru/project/22-79-10129/>).

Работа выполнена с использованием оборудования ЦКП Нанотехнологии и наноматериалы ФГБОУ ВО «КНИТУ».

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Рябов В.Д. Химия нефти и газа. М.: Форум, 2009. 336 с.
2. Кужаева А.А., Берлинский И.В. // Вестник науки и образования. 2016. Т. 17. № 5. С. 5.
3. Цыпленкова Д.И., Жереб В.П. Актуальные проблемы авиации и космонавтики. 2019. Т. 2. С. 692.
4. Гумеров Ф.М., Хайрутдинов В.Ф., Ахметзянов Т.Р., Габитов Ф.Р., Зарипов З.И., Фаракхов М.И., Мухутдинов А.В. // Сверхкритические Флюиды: Теория и Практика. 2016. Т. 11. № 2. С. 75.
5. Хайрутдинов В.Ф., Габитова А.Р., Гумеров Ф.М., Габитов Р.Ф., Курдюков А.И. // Сверхкритические Флюиды: Теория и Практика. 2018. Т. 13. № 3. С. 97.
6. Juntarachat N. // J. Chem. Eng. Data. 2013. No 58. P. 671.
7. Beranek P. // Fluid Phase Equilibria. 1981. Vol. 6. P. 279.
8. Kennedy H.T., Wieland D.R. // Petrol. Trans. AIME. 1960. Vol. 219. P. 166.
9. Roof J.G. // Soc. Petrol. Eng. J. 1971. Vol. 11. No 3. P. 272.
10. Swift S.C., Manning F.S., Thompson R.E. // Soc. Petro. Eng. J. 1976. Vol. 16. P. 57.
11. Brunner E., Woll W. // Soc. Petrol. Eng. J. 1980. Vol. 20. Is. 5. P. 377.
12. Brunner E., Place M., Woll W. // J. Petrol. Technology. 1988. Vol. 40. Is. 12. P. 1587.
13. Gu M., Li Q., Zhou S., Chen W., Guo T. // Fluid Phase Equilibria. 1993. Vol. 82. P. 173.
14. Sun C.Y., Chen G.J. // Fluid Phase Equilibria. 2003. Vol. 214. Is. 2. P. 187.
15. Zeng Ping, Zhao Jinzhou // J. Southwest Petrol. Institute. 2005. Vol. 27. No 1. P. 67.
16. Serin J.P., Jay S., Cézac P., Contamine F., Mercadier J., Arrabie C., Legros-Adrian J. // J. Supercritical Fluids. 2010. Vol. 53. P. 12.
17. Cloarec E., Serin J.P., Cézac P., Contamine F., Mercadier J., Louvat A., Lopez A.C., Van Caneghem P., Forster R., Kim U. // J. Chemical & Engineering Data. 2012. Vol. 57. № 4. P. 1222.
18. Adib H., Kazerooni N., Falsafi A., Adhami M. A., M. Dehghan, Golna A. // Oil & Gas Science and Technology Rev. IFP Energies nouvelles. 2018. Vol. 73. No 70. P. 1.
19. Khairutdinov V.F., Gumerov F.M., Zaripov Z.I., Farakhov M.I. // J. Physics: Conference Series. 2019. No 1385. P. 012059.

20. *Khairutdinov V.F., Gumerov F.M., Zaripov Z.I., Khabriev I.Sh., Yarullin L.Yu., Abdulagatov I.M.* // J. Supercrit. Fluids. 2020. Vol. 156. P. 6.
 21. *Williams D.F.J.* // Chem. Eng. Science. 1981. Vol. 36. No 11. P. 1769.
 22. *Mukhopadhyay M., Rao G.V.R.* // Ind. Eng. Chem. Res. 1993. № 32. P. 922.
 23. *Rau H., Kutty T.R.N., Guedes de Carvalho J.R.F.* // J. Chem. Thermodyn. 1973. No 5. P. 291.
 24. *Булидорова Г.В., Галяметдинов Ю.Г., Ярошевская Х.М., Барабанов В.П.* // Физическая химия. В 2-х кн. Учебник для студентов ВУЗов. Книга 1. Основы химической термодинамики. Фазовые равновесия // М.: «КДУ», «Университетская книга», 2016. 516 с.
 25. *Захаров А.А., Билалов Т.Р., Гумеров Ф.М.* // Сверхкритические Флюиды: Теория и Практика. 2015. Т. 10. № 2. С. 60.
-
-

SOLUBILITY OF SULFUR IN A SUPERCRITICAL PROPANE-BUTANE MIXTURE

T.R. Bilalov — Kazan national research technological university, Kazan, Russia; Kazan national research technical university named after A.N. Tupolev — KAI, Kazan, Russia. ORCID: 0000-0001-6970-4717. E-mail: t.bilalov@yandex.ru (*for correspondence*)

I.Sh. Khabriev — Kazan national research technological university, Kazan, Russia. ORCID: 0000-0002-0327-0343. E-mail: termi0@yandex.ru

V.F. Khairutdinov — Kazan national research technological university, Kazan, Russia. ORCID: 0000-0002-8137-6450. E-mail: kvener@yandex.ru

T.R. Akhmetzyanov — Kazan national research technological university, Kazan, Russia. ORCID: 0000-0002-2347-5389. E-mail: ahmetzyanov1992@bk.ru

F.M. Gumerov — Kazan national research technological university, Kazan, Russia. ORCID: 0000-0002-3806-2165. E-mail: gum@kstu.ru

The results of an experimental study of the phase equilibrium of the sulfur—propane/butane system carried out in the temperature range 403—443 K and pressure range 5.3—24.5 MPa using a high-pressure optical cell are presented. The V type of phase behavior is established. The solubility of sulfur in a supercritical propane-butane mixture under the above mentioned thermodynamic conditions is estimated based on the characteristics of the vapor branch of the phase equilibrium of the sulfur—propane/butane system and described using the Peng—Robinson equation of state in combination with the rule of combining Mukhopadhyay and Rao. It has been established that the propane-butane mixture in the SCF state, along with good extraction properties, allows for the desulfurization of commercial hydrocarbons. Reducing the pressure from 25 to 7 MPa makes it possible to reduce the sulfur content at the 413 K isotherm by two times, at the 443 K isotherm by 10 times.

Keywords: sulfur, supercritical propane/butane mixture, phase equilibrium, solubility, thermodynamic model, Peng—Robinson equation.

ACKNOWLEDGEMENT

The research was carried out within the framework of financial support in the form of a grant from the Russian Science Foundation (project No 22-79-10129, <https://rscf.ru/project/22-79-10129>).

The work was performed using the equipment of the CCP Nanotechnologies and nanomaterials of the FGBOU VO «KNITU».

REFERENCES

1. *Ryabov V.D.* // Chemistry of oil and gas. Moscow: Forum, 2009. 336 p.
 2. *Kudzhaeva A.A., Berlinskiy I.S.* // Bulletin of Science and Reputation. 2016. Vol. 17. No 5. P. 5.
 3. *Tsiplenkova D.I., Jereb V.P.* Aktual'ny'e problemy' aviatsii i kosmonavтики. 2019. Vol. 2. P. 692.
 4. *Gumerov F.M., Khairutdinov V.F., Akhmetzyanov T.R., Gabitova F.R., Zaripova Z.I., Farakhov M.I., Mukhutdinov A.V.* // Russ. J. Phys. Chem. B. 2017. Vol. 11. P. 1103.
 5. *Khayrutdinov V.F., Gabitova A.R., Gumerov F.M., Gabitova R.F., Kurdyukov A.I.* // Russ. J. Phys. Chem. B. 2019. Vol. 13. P. 1128.
 6. *Juntarachat N.* // J. Chem. Eng. Data. 2013. No 58. P. 671.
 7. *Beranek P.* // Fluid Phase Equilibria. 1981. Vol. 6. P. 279.
 8. *Kennedy H.T., Wieland D.R.* // Petrol. Trans. AIME. 1960. Vol. 219. P. 166.
 9. *Roof J.G.* // Soc. Petrol. Eng. J. 1971. Vol. 11. No 3. P. 272.
 10. *Swift S.C., Manning F.S., Thompson R.E.* // Soc. Petrol. Eng. J. 1976. Vol. 16. P. 57.
 11. *Brunner E., Woll W.* // Soc. Petrol. Eng. J. 1980. V. 20. Issue 5. P. 377.
 12. *Brunner E., Place M., Woll W.* // J. Petrol. Technology. 1988. V. 40. Issue 12. P. 1587.
 13. *Gu M., Li Q., Zhou S., Chen W., Guo T.* // Fluid Phase Equilibria. 1993. Vol. 82. P. 173.
 14. *Sun C.Y., Chen G.J.* // Fluid Phase Equilibria. 2003. Vol. 214. Issue 2. P. 187.
 15. *Zeng Ping, Zhao Jinzhou* // J. Southwest Petrol. Institute. 2005. V. 27. No 1. P. 67.
 16. *Serin J.P., Jay S., Cézac P., Contamine F., Mercadier J., Arrabie C., Legros-Adrian J.* // J. Supercrit. Fluids. 2010. Vol. 53. P. 12.
 17. *Cloarec E., Serin J.P., Cézac P., Contamine F., Mercadier J., Louvat A., Lopez A.C., Van Caneghem P., Forster R., Kim U.* // J. Chemical & Engineering Data. 2012. Vol. 57. No 4. P.1222.
 18. *Adib H., Kazerooni N., Falsafi A., Adhami M. A., M. Dehghan, Golna A.* // Oil & Gas Science and Technology. Rev. IFP Energies nouvelles. 2018. Vol. 73. No 70. P. 1.
 19. *Khairutdinov V.F., Gumerov F.M., Zaripov Z.I., Farakhov M.I.* // J. Physics: Conference Series. 2019. No 1385. P. 012059.
 20. *Khairutdinov V.F., Gumerov F.M., Zaripov Z.I., Khabriev I.Sh., Yarullin L.Yu., Abdulagatov I.M.* // J. Supercrit. Fluids. 2020. Vol.156. P. 6.
 21. *Williams D.F.J.* // Chem. Eng. Science. 1981. Vol. 36. No 11. P. 1769.
 22. *Mukhopadhyay M., Rao G.V.R.* // Ind. Eng. Chem. Res. 1993. No 32. P. 922.
 23. *Rau H., Kutty, T.R.N., Guedes de Carvalho J.R.F.* // J. Chem. Thermodyn. 1973. No 5. P. 291.
 24. *Bulidorova G.V., Galyametdinov Yu. G., Yaroshevskaya H.M., Barabanov V.P.* // Fizicheskaya himiya. V 2 kn. Uchebnik dlya studentov VUZov. Kniga 1. Osnovy himicheskoy termodinamiki.
 25. *Zakharov A.A., Bilalov T.R., Gumerov F.M.* // Russ. J. Phys. Chem. B. 2016. Vol. 10. P. 1092.
-
-