

doi:10.3969/j.issn.2095-1744.2020.05.007

合金组元过量焓与真空蒸馏气-液相平衡研究

张 行^{1,2}, 杨红卫^{1,2,3}

- (1. 昆明理工大学 真空冶金与国家工程实验室, 昆明 650093;
2. 昆明理工大学 冶金与能源工程学院, 昆明 650093;
3. 昆明理工大学 复杂有色金属资源清洁利用国家重点实验室, 昆明 650093)

摘要: 基于 Wilson 方程, 通过组元的摩尔体积和无限稀偏摩尔过量焓获得 Wilson 方程的相互作用参数, 预测了 Sn-X(X=Bi, Cd, Ga, Ge, In, Pb 和 Sb) 体系在 5 Pa 时的 VLE(气-液平衡) 相图。结果表明, 预测值与实验数据具有很好的一致性, 在缺乏组元活度的情况下, 该方法可以有效预测合金真空蒸馏的气-液平衡, 为粗金属的真空分离与提纯提供理论指导。

关键词: 无限稀偏摩尔过量焓; 气-液平衡; 真空蒸馏; Wilson 方程

中图分类号:TQ013.1 文献标志码:A 文章编号:2095-1744(2020)05-0033-07

Correlation between Infinite-Dilution Partial Molar Excess Enthalpy and Vapor-Liquid Equilibrium of Sn-Based Binary Systems in Vacuum Distillation

ZHANG Hang^{1,2}, YANG Hongwei^{1,2,3}

- (1. National Engineering Laboratory for Vacuum Metallurgy, Kunming University of Science and Technology, Kunming 650093, China;
2. Faculty of Metallurgical and Energy Engineering, Kunming University of Science and Technology, Kunming 650093, China;
3. The State Key Laboratory of Complex Nonferrous Metal Resources Clean Utilization, Kunming University of Science and Technology, Kunming 650093, China)

Abstract: By means of molar volumes and infinite-dilution partial molar excess enthalpy of components, interaction parameters of the Wilson equation have been obtained. VLE (vapor-liquid equilibrium) phase diagrams of Sn-X (X=Bi, Cd, Ga, Ge, In, Pb and Sb) systems at 5 Pa are modeled successfully based on the Wilson equation. The results indicate that the predicted values agree well with the experimental data. It shows that the method could provide effective prediction for the vacuum distillation process of alloys and theoretical guides for separating and purifying crude metals in cases if the activities of components are scarce.

Key words: infinite-dilution partial molar excess enthalpy; vapor-liquid equilibria; vacuum distillation; Wilson equation

收稿日期:2019-10-28

基金项目:国家自然科学基金资助项目(51764031, U1502271); 云南省科技领军人才项目(2017HB009)

Fund: Supported by the National Natural Science Foundation of China (51764031, U1502271); Science and Technological Talent Cultivation Plan of Yunnan Province (2017HB009)

作者简介:张 行(1993—),男,硕士研究生,主要从事真空冶金热力学研究。

通信作者:杨红卫(1973—),男,博士,教授,博士生导师,主要从事真空冶金热力学研究。

引用格式:张 行,杨红卫. 合金组元过量焓与真空蒸馏气-液相平衡研究[J]. 有色金属工程,2020,10(5):33-39.

ZHANG Hang, YANG Hongwei. Correlation between Infinite-dilution Partial Molar Excess Enthalpy and Vapor-liquid Equilibrium of Sn-based Binary Systems in Vacuum Distillation[J]. Nonferrous Metals Engineering, 2020, 10(5): 33-39.

热力学数据是冶金、材料、化学化工制品等领域的基础数据^[1],其中焓在合金和化合物材料制备及冶金过程中已得到广泛应用^[2]。焓和相平衡之间的关系一直是热力学领域的重要研究课题,研究人员已对焓进行了大量的研究^[3-4],但很少关注焓在真空蒸馏气-液相平衡中的情况,缺乏组元活度数据。如何通过无限稀偏摩尔过量焓和热力学模型参数之间的关系,关联组元偏摩尔焓与合金体系气-液平衡,直接用无限稀数据计算真空蒸馏的气-液相平衡图(VLE),预测真空冶金实际工业分离过程的相平衡,对于真空蒸馏工艺设计和科学的研究而言,均具有很大的实际意义。

锡广泛用于核工业、超导合金、半导体、电子信息、医药等领域,是军事工业和现代尖端技术领域必不可少的关键材料。无论是环境保护还是有价金属回收,废锡合金的回收利用均是重要的研究课题。戴永年及其团队利用真空技术进行了粗锡真空蒸馏、锡的分离与提纯研究,成功回收了废锡合金,完善了炼锡工艺^[5-7]。在以前的工作中,我们利用 Wilson 方程预测了真空蒸馏中二元和三元合金体系的 VLE 相图,其模型参数是通过拟合各组分活度获得的^[8-9]。本研究试图通过组元的摩尔体积和无限稀偏摩尔过量焓计算 Wilson 方程参数,不拟合各组分活度数据,利用模型参数计算锡基二元合金相图,建立不同温度和压力下,通过组元的物性参数预测真空蒸馏气相和液相组成方法,探索在缺乏相关热力学数据时,用无限稀偏摩尔过量焓计算热力学模型参数的可行性。

1 方法

1.1 二元参数的确定

基于热力学定理,超额吉布斯自由能的表达式^[10]为:

$$d\left(\frac{nG^E}{RT}\right) = \frac{nV^E}{RT}dP - \frac{nH^E}{RT^2}dT = \sum \ln \gamma_i dn_i \quad (1)$$

其中, n —总物质的量,mol; G^E —超额吉布斯自由能,J/mol; R —气体常数,8.314 J/(mol·K); T 和 P 分别是系统的温度,K 和 压力 Pa; γ_i 和 n_i 分别是组分 i 的活度系数和物质的量。从式(1)获得与过量焓有关的偏微分方程,即:

$$\frac{-H^E}{RT^2} = \left[\frac{\partial(G^E/RT)}{\partial T} \right]_{P,x} \quad (2)$$

其中, H^E —过量焓,J/mol; 下标符号 x 代表摩尔分数。式(2)可以预测中低压相平衡,在这个过程

中忽略压力对过量吉布斯自由能的影响。

基于局部组成的概念,Wilson 提出了一个新的液态超额吉布斯自由能的表达式^[11]。对于一个二元体系, Wilson 方程的超额吉布斯自由能的形式为:

$$\frac{G^E}{RT} = -x_1 \ln(x_1 + x_2 A_{12}) - x_2 \ln(x_2 + x_1 A_{21}) \quad (3)$$

式中,二元参数的计算见式(4)。

$$A_{ij} = \left(\frac{b_j}{b_i} \right) \exp\left(\frac{-a_{ij}}{RT} \right) \quad (4)$$

其中, b_i 和 b_j 分别是组分 i 和 j 的范德华排除体积,cm³/mol, a_{ij} —与温度和组分无关的相互作用参数,J/mol。

把式(4)代入式(3)并通过式(2)计算偏微分,推导出二元混合物的无限稀偏摩尔过量焓,组元 1 和 2 的无限稀偏摩尔过量焓分别如式(5)与(6)所示。

$$\left. \frac{H^E}{x_1 x_2} \right|_{x_1 \rightarrow 0} = a_{12} + a_{21} \left(\frac{b_1}{b_2} \right) \exp\left(\frac{-a_{21}}{RT} \right) \quad (5)$$

$$\left. \frac{H^E}{x_1 x_2} \right|_{x_1 \rightarrow 1} = a_{21} + a_{12} \left(\frac{b_2}{b_1} \right) \exp\left(\frac{-a_{12}}{RT} \right) \quad (6)$$

为方便计算,使用 $\frac{v_j}{v_i}$ 取代 $\frac{b_j}{b_i}$, $x_1 x_2$ 的值取为 1,因此, H^E 表达式的简化形式可以写为:

$$H^E \Big|_{x_1 \rightarrow 0} = a_{12} + a_{21} \left(\frac{v_1}{v_2} \right) \exp\left(\frac{-a_{21}}{RT} \right) \quad (7)$$

$$H^E \Big|_{x_1 \rightarrow 1} = a_{21} + a_{12} \left(\frac{v_2}{v_1} \right) \exp\left(\frac{-a_{12}}{RT} \right) \quad (8)$$

相应地,式(4)可改写为:

$$A_{ij} = \left(\frac{v_j}{v_i} \right) \exp\left(\frac{-a_{ij}}{RT} \right) \quad (9)$$

其中, v_1 和 v_2 分别是组元 1 和 2 的摩尔体积,使用式(7~9),可以得到二元参数 A_{12} 和 A_{21} 。

1.2 气-液相平衡计算

根据相平衡理论,气-液相平衡公式表示为:

$$Py_i = x_i \gamma_i (x_i, T, P) P_i^* (T) \quad (10)$$

其中, γ_i 是组元 i 的活度系数, x_i 和 y_i 分别为组元 i 在液相和气相中的摩尔分数, $P_i^* (T)$ 是纯组元 i 的饱和蒸气压,Pa。

1.3 Wilson 方程

本研究是以 Wilson 方程作为关联模型,对于一个二元体系 $i-j$,组元 i 和 j 的活度系数分别如式(11)和(12)所示。

$$\ln \gamma_i = -\ln(x_i + x_j A_{ij}) + x_j \left(\frac{A_{ij}}{x_i + x_j A_{ij}} - \frac{A_{ji}}{x_j + x_i A_{ji}} \right) \quad (11)$$

$$\ln \gamma_j = -\ln(x_j + x_i A_{ji}) - x_i \left(\frac{A_{ij}}{x_i + x_j A_{ij}} - \frac{A_{ji}}{x_j + x_i A_{ji}} \right) \quad (12)$$

二元参数 A_{ij} 和 A_{ji} 的定义分别为:

$$A_{ij} = \frac{v_j}{v_i} \exp[-(\lambda_{ij} - \lambda_{ii})/RT] \quad (13)$$

$$A_{ji} = \frac{v_i}{v_j} \exp[-(\lambda_{ji} - \lambda_{jj})/RT] \quad (14)$$

其中, λ_{ii} , λ_{jj} 和 λ_{ij} ($\lambda_{ij} = \lambda_{ji}$) 分别为组元 i - i , j - j 和 i - j 分子间的相互作用能。 $(\lambda_{ij} - \lambda_{ii})$ 和 $(\lambda_{ji} - \lambda_{jj})$ 被认为与温度无关^[12], 根据(13)和(14)式获得任意温度 T' 下的二元参数 A'_{ij} 和 A'_{ji} , 如式(15)和(16)所示。

$$A'_{ij} = \frac{v'_j}{v'_i} \left(\frac{A_{ji}}{v_j/v_i} \right)^{\frac{T}{T'}} \quad (15)$$

$$A'_{ji} = \frac{v'_i}{v'_j} \left(\frac{A_{ij}}{v_i/v_j} \right)^{\frac{T}{T'}} \quad (16)$$

将 A'_{ij} 和 A'_{ji} 值代入式(11)和(12), 可以得到对应温度下的活度系数 γ_i 和 γ_j 。

2 结果与讨论

为了计算 Wilson 方程的相互作用参数和 Sn 基体系的气液相平衡, 所需 Bi、Cd、Ga、Ge、In、Pb、Sb 和 Sn 的相关参数见表 1。

基于式(7)和式(8), 利用无限稀偏摩尔过量焓数据求得 Sn-X 体系($X=Bi, Cd, Ga, Ge, In, Pb$ 和 Sb)的 Wilson 方程参数 A_{ij} 和 A_{ji} 。Sn 基二元体系的无限稀偏摩尔过量焓数据以及参数 A_{ij} 和 A_{ji} 见表 2。

表 1 组元的相关参数^[13](1 mm Hg=133.322 Pa)

Table 1 The related parameters of the components^[13](1 mm Hg=133.322 Pa)

i	Vapor pressure equations/mm Hg	$v_i/(cm^3 \cdot mol^{-1})$
Bi	$lg(P^*) = -10400T^{-1} - 1.26lgT + 12.35$ ($T=544\sim1833$ K)	$20.8[1+1.17\times10^{-4}(T-544)]$
Cd	$lg(P^*) = -5819T^{-1} - 1.257lgT + 12.287$ ($T=594\sim1039$ K)	$14[1+1.5\times10^{-4}(T-594)]$
Ga	$lg(P^*) = -14330T^{-1} - 0.844lgT + 11.42$ ($T=303\sim2573$ K)	$11.4[1+0.92\times10^{-4}(T-303)]$
Ge	$lg(P^*) = -18700T^{-1} - 1.16lgT + 12.87$ ($T=1232\sim2973$ K)	$13.2[1+0.89\times10^{-4}(T-1232)]$
In	$lg(P^*) = -12580T^{-1} - 0.45lgT + 9.79$ ($T=430\sim2373$ K)	$16.3[1+0.97\times10^{-4}(T-430)]$
Pb	$lg(P^*) = -10130T^{-1} - 0.985lgT + 11.16$ ($T=601\sim2023$ K)	$19.42[1+1.24\times10^{-4}(T-600)]$
Sb	$lg(P^*) = -6500T^{-1} + 6.37$ ($T=904\sim1913$ K)	$18.8[1+1.3\times10^{-4}(T-904)]$
Sn	$lg(P^*) = -15500T^{-1} + 8.23$ ($T=505\sim2548$ K)	$17.0[1+0.87\times10^{-4}(T-505)]$

表 2 Bi-Sn、Cd-Sn、Ga-Sn、Ge-Sn、In-Sn、Pb-Sn 和 Sb-Sn 体系的 Wilson 方程参数^[14]

Table 2 Calculated parameters of the Wilson equation for Bi-Sn, Cd-Sn, Ga-Sn, Ge-Sn, In-Sn, Pb-Sn and Sb-Sn systems^[14]

i,j	T/K	$H_i^\infty/(J \cdot mol^{-1})$	$H_j^\infty/(J \cdot mol^{-1})$	A_{ij}	A_{ji}
Bi-Sn	600	520	460	0.8115	1.1219
Cd-Sn	773	6582	9357	0.5888	0.2945
Ga-Sn	723	2841	3899	1.0657	0.5008
Ge-Sn	1273	3211	2266	0.8570	0.8809
In-Sn	600	-640	-871	0.4749	1.6659
Pb-Sn	1050	5413	6996	0.6893	0.6059
Sb-Sn	970	-4637	-3072	2.3088	0.1936

为了比较计算值与实验值之间的偏差, 引入平均相对偏差和平均标准偏差, 计算公式分别为:

$$\bar{S}\% = \pm \frac{100}{n} \sum_{i=1}^n \left| \frac{a_{i,\text{exp}} - a_{i,\text{cal}}}{a_{i,\text{exp}}} \right| \quad (17)$$

$$S = \pm \left[\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n [a_{i,\text{exp}} - a_{i,\text{cal}}]^2 \right]^{\frac{1}{2}} \quad (18)$$

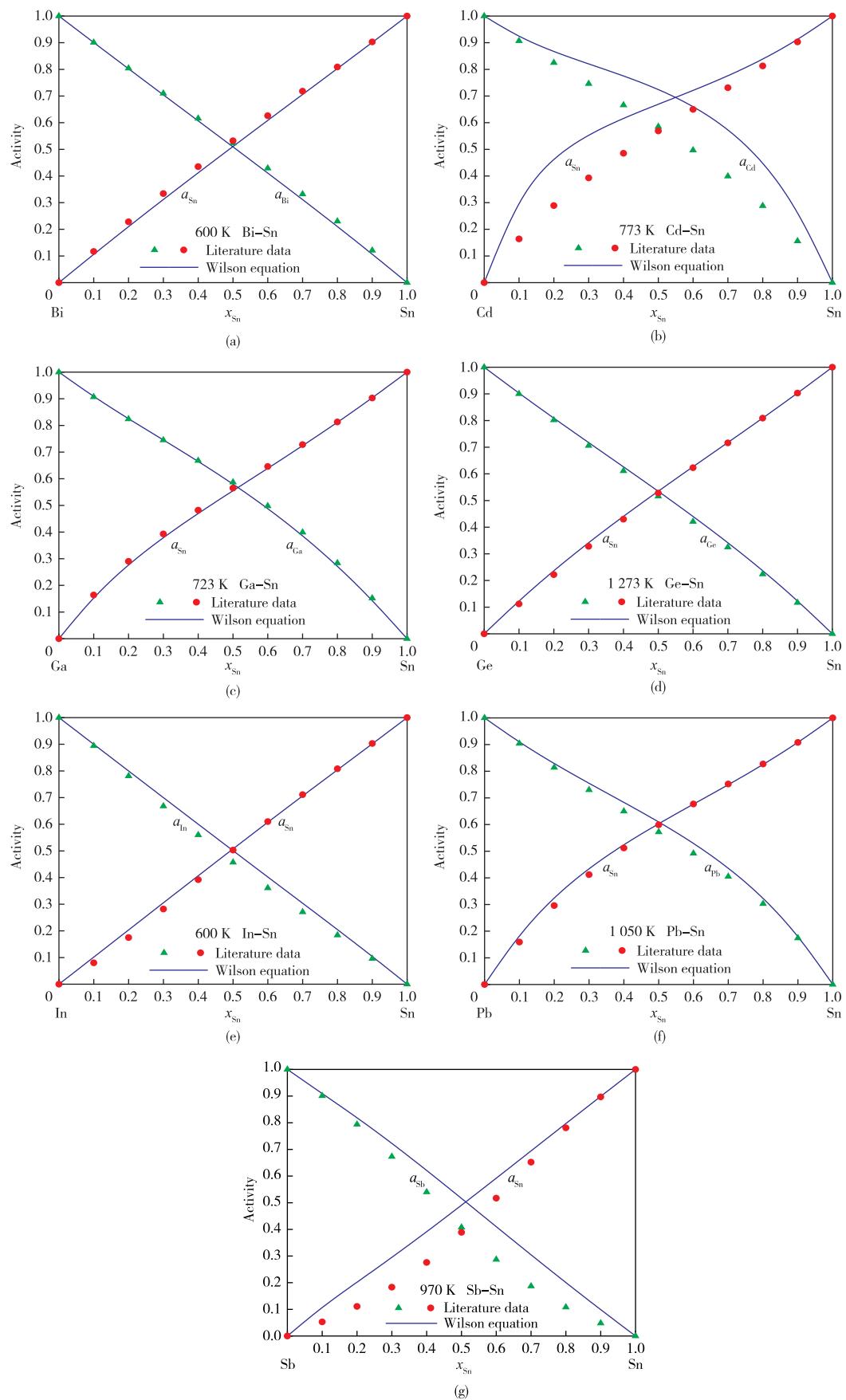
其中, n 为实验数据个数, $a_{i,\text{exp}}$ 和 $a_{i,\text{cal}}$ 分别为组元 i 的活度实验值和预测值。

Sn-X($X=Bi, Cd, Ga, Ge, In, Pb$ 和 Sb)二元体系活度的预测值与实验值如图 1 所示。5 Pa 条件下 Wilson 方程以及无限稀偏摩尔过量焓数据预测的 $T-x$ 相图与实验值如图 2 所示。平均标准偏差和

平均相对偏差见表 3。

从图 1 可以看出, 除 Cd-Sn 和 Sb-Sn 二元体系, Bi-Sn、Ga-Sn、Ge-Sn、In-Sn 和 Pb-Sn 这 5 种二元体系活度的预测值与实验值具有很好的一致性, 其平均相对偏差均低于 8.00%, 显示了通过组元无限稀偏摩尔过量焓获得的 Wilson 参数 A_{ij} 和 A_{ji} 的可靠性。利用无限稀偏摩尔过量焓计算液态合金组元活度的方法是可行的。

根据 Bi-Sn 体系的相图, 纯 Bi 和纯 Sn 的固溶体之间存在共晶类型, Sn 在 Bi 中的溶解度小, 而 Bi 有很大的溶解度。

图 1 Wilson 方程(实线)活度的预测值与实验值^[14]比较Fig. 1 Comparison of the predicted activities of the Wilson equation (solid lines) with experimental values^[14]

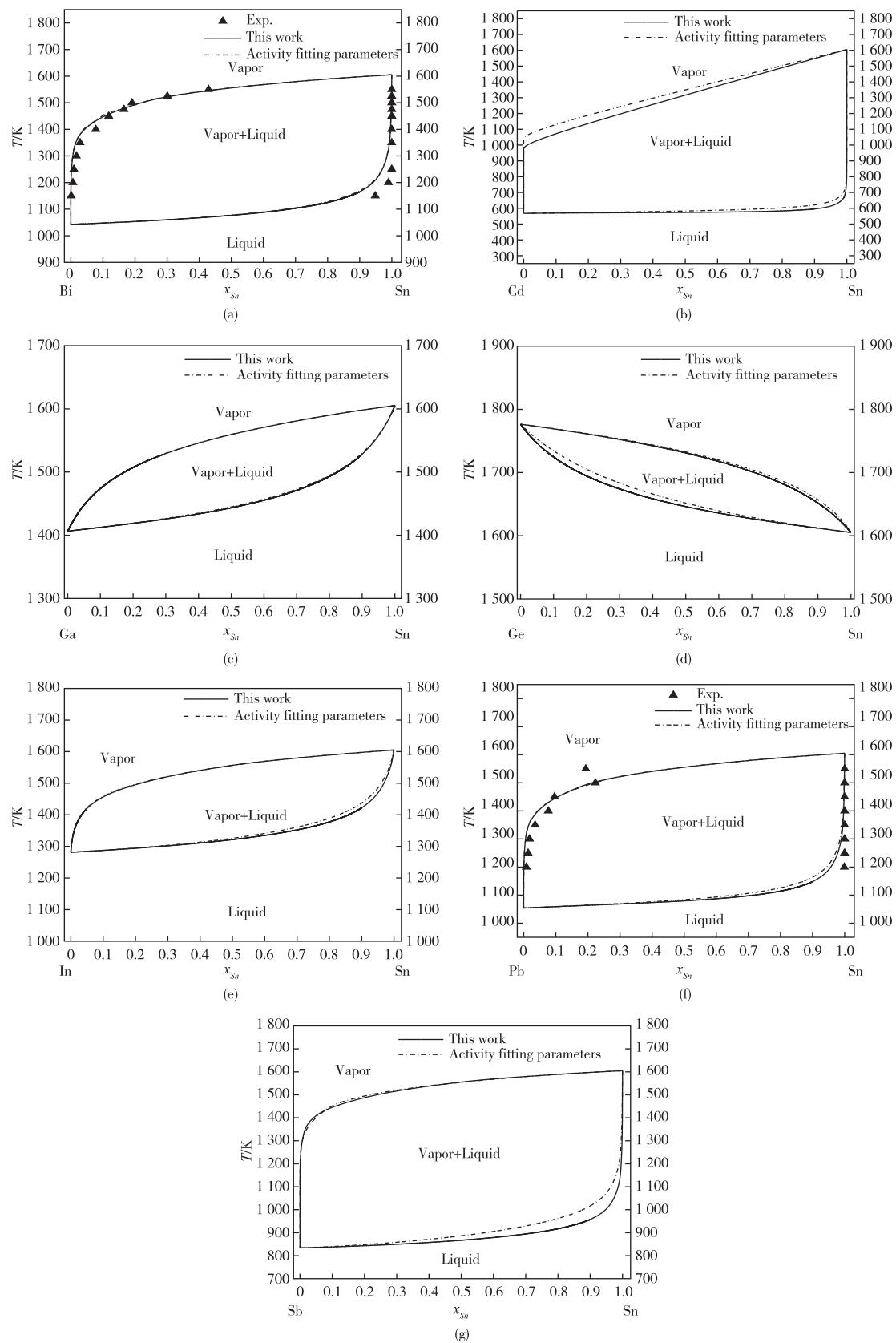


图2 5 Pa条件下 Wilson方程(点划线)预测的气-液相平衡,无限稀偏摩尔过量焓数据(实线)预测的气-液相平衡,实验数据^[15-16]三者之间的比较

Fig. 2 Comparison of the predicted VLE of Wilson equation (dash-dotted lines) and infinite-dilution partial molar excess enthalpy data (solid lines) at 5 Pa with experimental values^[15-16]

表 3 Sn-X(X=Bi,Cd,Ga,Ge,In,Pb 和 Sb)体系活度
预测值的平均标准偏差和平均相对偏差

Table 3 The average standard error and the average relative error of predicted values of activities for Sn-X(X=Bi,Cd,Ga,Ge,In,Pb and Sb) systems

i,j	$\pm S_i$	$\pm S_j$	$\pm \bar{S}_i / \%$	$\pm \bar{S}_j / \%$
Bi-Sn	0.013	0.016	3.94	4.23
Cd-Sn	0.125	0.116	30.19	29.91
Ga-Sn	0.006	0.008	1.60	1.78
Ge-Sn	0.014	0.009	3.53	3.07
In-Sn	0.030	0.015	7.58	6.47
Pb-Sn	0.027	0.018	5.42	4.59
Sb-Sn	0.083	0.078	28.87	27.84

对于 In-Sn 体系,通过无限稀偏摩尔过量焓计算出的值与拟合活度计算出的值之间吻合较好。In 和 Sn 的焓值在全浓度范围内表现为正偏差值,从而保证了在各种摩尔分数下焓值正负的一致性。

Ga-Sn 体系是富 Ga 侧的简单共晶类型,液体吸收热量较小,温度依赖性很小。

对于 Ge-Sn 二元体系,由表 3 可知,Ge 和 Sn 的平均标准偏差分别为 ± 0.014 , ± 0.009 , 平均相对偏差分别为 $\pm 3.53\%$, $\pm 3.07\%$ 。Ge 和 Sn 之间的电子亲和势非常接近,且具有相似的晶体结构。

Cd-Sn 和 Sb-Sn 两个体系的平均相对偏差均在 30% 左右,偏差可能由以下因素引起:1) Cd 的电子亲和势值为正,而 Sn 的电子亲和势值为负,因此二者之间存在很大差异,呈现出强烈的相互作用;2) Sb 的焓值数据在整个浓度范围内表现为混合偏差,既有正值,又有负值,难于保持在各种摩尔分数下焓值正负的一致性;3) Sb-Sn 体系存在稳定化合物 Sb_2Sn_3 ,其物理化学性质对液态的相互作用系数产生影响。

基于 Wilson 方程,计算了 5 Pa 时 Sn-X(X=Bi,Cd,Ga,Ge,In,Pb 和 Sb)二元体系气-液平衡相图。实验数据以及通过拟合组元活度获得的相图作了对比,结果如图 2 所示。图中的虚线代表 Wilson 方程参数是通过拟合组元活度得到的,实线代表 Wilson 方程参数仅是通过组元的无限稀偏摩尔过量焓得到的。由于实验数据的缺乏,只有 Bi-Sn 和 Pb-Sn 体系与实验数据作了对比。对于这两个体系,从图 2(a)和(f)中可以看出,预测的 T-x 相图与实验点是一致的。Bi-Sn 和 Pb-Sn 二元体系 5 Pa 时气相和液相中的 Sn 含量分别见表 4~5,结果表明气相和液相中 Sn 含量的计算值与实验数据吻合较好。

表 4 Bi-Sn 二元合金体系 5 Pa 条件下气-液相平衡的计算值与实验值^[15]的比较

Table 4 Comparison of calculated VLE data with experimental VLE data^[15] for the Bi-Sn binary alloy system at 5 Pa

T/K	Time/min	$x_{Sn,exp}$	$x_{Sn,cal}^*$	$x_{Sn,cal}$	$y_{Sn,exp}$	$y_{Sn,cal}^*$	$y_{Sn,cal}$
1 150	360	0.948 7	0.863 6	0.869 9	0.001 4	0.000 2	0.000 2
1 200	360	0.989 7	0.938 9	0.941 4	0.006 5	0.000 5	0.000 7
1 250	330	0.999 8	0.969 1	0.970 7	0.009 7	0.001 9	0.002 1
1 300	300	0.999 9	0.984 7	0.985 4	0.017 4	0.006 5	0.006 3
1 350	270	0.999 9	0.992 6	0.992 8	0.029 0	0.015 1	0.015 3
1 400	240	0.999 9	0.995 8	0.996 1	0.077 9	0.038 8	0.043 0
1 450	210	0.999 9	0.997 5	0.997 7	0.118 2	0.097 1	0.105 0
1 475	180	0.999 9	0.998 1	0.998 4	0.165 8	0.150 8	0.155 5
1 500	150	0.999 9	0.998 8	0.999 1	0.190 7	0.219 4	0.219 8
1 525	120	0.999 9	0.999 3	0.999 3	0.300 8	0.309 8	0.313 5
1 550	105	0.999 9	0.999 5	0.999 5	0.429 2	0.454 6	0.458 0

Note: $x_{Sn,cal}^*$ and $y_{Sn,cal}^*$ are fitting parameters of component activity; $x_{Sn,cal}$ and $y_{Sn,cal}$ are results of this paper

表 5 Pb-Sn 二元合金体系 5 Pa 条件下气-液相平衡的计算值与实验值^[16]的比较

Table 5 Comparison of calculated VLE data with experimental VLE data^[16] for the Pb-Sn binary alloy system at 5 Pa

T/K	Time/min	$x_{Sn,exp}$	$x_{Sn,cal}^*$	$x_{Sn,cal}$	$y_{Sn,exp}$	$y_{Sn,cal}^*$	$y_{Sn,cal}$
1 200	240	0.999 0	0.944 5	0.957 0	0.008 5	0.000 9	0.000 7
1 250	180	0.999 9	0.971 7	0.978 6	0.013 7	0.002 3	0.002 3
1 300	120	0.999 9	0.985 8	0.989 8	0.018 4	0.006 3	0.005 8
1 350	105	0.999 9	0.993 3	0.994 9	0.035 5	0.015 3	0.016 0
1 400	60	0.999 9	0.996 0	0.997 0	0.077 0	0.043 2	0.045 5
1 450	60	0.999 9	0.998 1	0.998 6	0.096 0	0.106 4	0.106 2
1 500	60	0.999 9	0.999 1	0.999 3	0.223 7	0.221 5	0.212 6
1 550	60	0.999 9	0.999 8	0.999 8	0.193 5	0.458 0	0.459 9

Note: $x_{Sn,cal}^*$ and $y_{Sn,cal}^*$ are fitting parameters of component activity; $x_{Sn,cal}$ and $y_{Sn,cal}$ are results of this paper

3 结论

通过 Sn 基二元液态合金组元的无限稀偏摩尔过量焓计算 Wilson 方程的模型参数,成功预测了真空蒸馏中 Sn-X(X=Bi,Cd,Ga,Ge,In,Pb 和 Sb)体系的 VLE 相图,预测值与实验结果吻合。结果显示,无限稀偏摩尔过量焓和拟合活度计算出的气相和液相含量之间的差异很小。本方法的优点在于缺乏组元活度数据的情况下,仅使用组元的两个无限稀偏摩尔过量焓值便可预测二元液态合金的气液相平衡,获得了无限稀偏摩尔过量焓与 Wilson 方程相互作用参数之间的关系,有助于用组元的物性参数计算粗金属及合金真空蒸馏相平衡,丰富和完善有色金属真空理论并拓展组元物理化学性质在冶金过程相平衡中的应用。

参考文献:

- [1] THEODORE L, RICCI F, VLIET T V. Thermodynamics for the Practicing Engineer[M]. New York: Wiley, 2009.
- [2] YASSIN A, CASTANET R. Enthalpies of dissolution of elements in liquid tin. A review: III. Elements of columns IIB, IIIA, IVA, VA and VIA of the periodic table[J]. Journal of Alloys and Compounds, 2001, 320(1):80-86.
- [3] SILVERMAN N, TASSIONS D. Prediction of multicomponent vapor-liquid equilibrium with the Wilson equation: effect of the minimization function and of the quality of binary data[J]. Industrial & Engineering Chemistry Process Design and Development, 1984, 23(3):586-589.
- [4] SIIMER E, GRINTCHAK M, KUUS M, et al. Use of the modified Wilson equation for description of vapor-liquid equilibrium in the system 1-nonyne-1-propanol[J]. Thermochimica Acta, 1989, 140:49-58.
- [5] 戴永年. 铅-锡合金真空蒸馏分离[J]. 有色金属(冶炼部分), 1977(9):26-32.
DAI Yongnian. Vacuum distillation separation of lead-tin alloy [J]. Nonferrous Metals (Extractive Metallurgy), 1977(9):26-32.
- [6] DAI Y N. Vacuum distillation of lead-tin alloy [J]. Journal of Kunming University of Science and Technology, 1989(3):16-27.
- [7] YANG B, KONG L X, XU B Q, et al. Recycling of metals from waste Sn-based alloys by vacuum separation [J]. Transactions of Nonferrous Metals Society of China, 2015, 25 (4):1315-1324.
- [8] JIANG W L, ZHANG C, XU N, et al. Experimental investigation and modelling of phase equilibria for the Ag-Cu-Pb system in vacuum distillation [J]. Fluid Phase Equilibria, 2016, 417:19-24.
- [9] NAN C B, XIONG H, XU B Q, et al. Measurement and modeling of phase equilibria for Sb-Sn and Bi-Sb-Sn alloys in vacuum distillation[J]. Fluid Phase Equilibria, 2017, 442:62-67.
- [10] GOW A S. Calculation of vapor-liquid equilibria from infinite-dilution excess enthalpy data using the Wilson or NRTL equation [J]. Industrial & Engineering Chemistry Research, 1993, 32:3150-3161.
- [11] WILSON G M. Vapor-liquid equilibrium. XI. A new expression for the excess free energy of mixing [J]. Journal of the American Chemical Society, 1964, 86(2):127-130.
- [12] GHOSH S K, CHOPRA S J. Activity coefficients from the Wilson equation [J]. Industrial & Engineering Chemistry Process Design and Development, 1975, 14: 304-308.
- [13] IIDA T, GUTHRIE R I L. The physical properties of liquid metals[M]. Oxford: Clarendon Press, 1988.
- [14] PREDEL B. Landolt-Bornstein-Group IV: Physical Chemistry [M]. New York: Springer Berlin Heidelberg, 2006.
- [15] NAN C B, YANG H W, YANG B, et al. Experimental and modeling vapor-liquid equilibria: Separation of Bi from Sn by vacuum distillation[J]. Vacuum, 2017, 135: 109-114.
- [16] JIA G B, YANG B, LIU D C. Deeply removing lead from Pb-Sn alloy with vacuum distillation[J]. Transactions Nonferrous Metals Society of China, 2013, 23 (6): 1822-1831.