

# APLICAÇÃO DA LEI DA AÇÃO DAS MASSAS E DE REDES NEURAIS ARTIFICIAIS NA PREDIÇÃO DO EQUILÍBRIO DE TROCA IÔNICA DO SISTEMA TERNÁRIO $H^+$ - $Ca^{2+}$ - $Mg^{2+}$

Rafael Luan Sehn Canevesi, Rodrigo Augusto Barella, Elizeu Avelino Zanella Junior, Marcos Flávio Pinto Moreira, Edson Antonio da Silva  
e-mail: rafael\_canevesi@hotmail.com

Universidade Estadual do Oeste do Paraná/Centro de Engenharias e Ciências Exatas – Toledo – PR.

**Palavras-chave:** lei da ação das massas, troca iônica, rede neural

## Resumo

Para o estudo e modelagem de dados de equilíbrio de sistemas de troca iônica, isotermas de adsorção e Lei da Ação das Massas (LAM) são abordagens muito utilizadas. Neste trabalho será feita uma comparação entre duas abordagens na representação dos dados de equilíbrio: a primeira baseada na aplicação da LAM que considera a não idealidade de ambas as fases dos íons e a segunda empregando a técnica de redes neurais artificiais. Os dados de equilíbrio utilizados para a aplicação das metodologias foram obtidos por Vo e Shallcross (2003) que investigaram o processo de troca iônica binária e ternária dos íons: Hidrogênio, Cálcio e Magnésio empregando a resina AMBERJET 1200H, nas concentrações de 0.1N, 0.2N, 0.5N e 1.0N e temperatura de 298K. A aplicação da LAM para a predição do comportamento do sistema ternário requer que sejam conhecidos os valores da constante da reação de troca iônica, parâmetros do modelo para o cálculo dos coeficientes de atividade na solução e na resina que foram obtidos da literatura. Na aplicação da técnica das redes neurais artificiais foram testadas diferentes arquiteturas de redes com uma camada oculta. As variáveis de entrada da rede foram a composição dos íons em solução e como variáveis de saída a composição dos íons na resina. Os dados utilizados no treinamento da rede foram todos gerados a partir da aplicação da Lei da Ação das Massas para cada sistema binário:  $H^+$ - $Ca^{+2}$ ,  $H^+$ - $Mg^{+2}$  e  $Ca^{+2}$ - $Mg^{+2}$ . A rede treinada a partir dos dados binários foi utilizada para prever o comportamento do sistema ternário. Na predição do sistema ternário as redes neurais artificiais RNAs apresentaram um desempenho muito baixo, pois os erros em relação aos dados experimentais foram muito elevados. A Lei da Ação das Massas por outro lado conseguiu descrever com boa precisão o comportamento do sistema ternário.

## Introdução

A troca iônica, muito empregada no tratamento de efluentes industriais aquosos contendo compostos orgânicos e metais pesados, é um processo pelo qual um trocador iônico adsorve espécies iônicas acompanhado, do

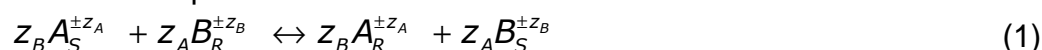
processo de dessorção de outras espécies iônicas em quantidades equivalentes. Todavia, para ser utilizada em larga escala, é necessário uma série de estudos preliminares sobre a distribuição dos seus componentes nas fases em equilíbrio (SMITH e WOODBURN, 1978), e sobre as características não-ideal das fases presentes, normais a sistemas iônicos.

O trocador iônico (geralmente resinas) é um material poroso inerte, como também praticamente insolúvel em água e em solventes orgânicos. As resinas apresentam alta densidade de carga, sendo impreterivelmente, contrárias às dos íons presentes na solução aquosa a ser tratada.

Na modelagem de sistemas de troca iônica, duas são as abordagens mais utilizadas: isotermas de adsorção (IAs) e Lei da Ação das Massas (LAM). No entanto, a formulação dos modelos de IAs consagrados na literatura, como a isoterma de Langmuir, não leva em conta o efeito da força iônica da solução e do contra íon. Sendo assim, a utilização da LAM é o mais recomendável nesse tipo de estudo.

#### *Modelo Termodinâmico: A Lei da Ação das Massas*

A equação de troca iônica pode ser generalizada pela equação (1), onde A e B representam o par de íons, z a carga, R representa a fase sólida e S a fase aquosa.



A constante de equilíbrio da reação representada pela equação estequiométrica (1), pode ser obtida utilizando a seguinte equação (MEHABLIA et. al., 1994).

$$K_B^A = \left( \frac{y_A \gamma_{R_A}}{m_A \gamma_{S_A}} \right)^{z_B} \left( \frac{m_B \gamma_{S_B}}{y_B \gamma_{R_B}} \right)^{z_A} \quad (2)$$

onde:  $K$  é a constante de equilíbrio,  $m$  é a molalidade da fase aquosa,  $y$  é a fração molar das espécies na fase sólida e  $\gamma$  é o coeficiente de atividade.

Para a utilização da equação (2), são necessários os coeficientes de atividade e a composição de cada uma das fases. Diversos modelos estão disponíveis na literatura para o cálculo do coeficiente de atividade da fase aquosa (como os modelos de Debye-Hückel, Bromley e Pitzer). No entanto, não existem formulações teóricas para o cálculo do coeficiente de atividade dos íons na fase sólida.

Vários autores (SMITH e WOODBURN, 1978; EL-PRINCE e BABCOCK, 1975; FERNÁNDEZ, 2004; ALLEN e ADDISON, 1989) usaram como solução para esse problema a aplicação da equação de Wilson para representar as não-idealidades da fase sólida em questão. O modelo de Wilson, apesar de ser um modelo proposto para descrever as não-idealidades de soluções não eletrolíticas em fase líquida, foi utilizado com sucesso para representar as não-idealidades da fase sólida dos sistemas de troca iônica estudado pelos autores.

Uma vantagem da utilização do modelo de Wilson para o cálculo do coeficiente de atividade em um sistema de troca iônica consiste na utilização

dos parâmetros obtidos nos sistemas binários para prever o comportamento de sistemas ternários. Este método foi originalmente desenvolvido por Smith e Woodburn (1978), sendo depois também empregado por diversos autores na predição de sistemas ternários (FERNÁNDEZ, 2004; VO e SHALLCROSS, 2003; IOANNIDIS et. al., 2000; ALLEN e ADDISON, 1990), e de sistemas quartanários de troca-iônica (FERNÁNDEZ, 2004; VO e SHALLCROSS, 2003).

### *Redes Neurais Artificiais*

Uma alternativa bastante empregada para modelagem de processos industriais é a utilização de Redes Neurais Artificiais (RNAs) – que apesar de apresentar um maior número de parâmetros a serem determinados, é um método de cálculo direto – ao contrário da LAM que necessita resolver uma série de sistemas não-lineares.

As RNAs têm sido usadas para representar dados de adsorção binária de espécies metálicas (FAGUNDES-KLEN et al., 2007; MARTINS et. al., 2006; CANEVESI et. al., 2008a), ternária (CANEVESI et. al., 2008b), troca iônica ternária e binária (SCHMITZ, 2008), como também na determinação de componentes de misturas em condição de equilíbrio de líquido-líquido, líquido-vapor e líquido-líquido-vapor (SCHMITZ, 2006).

As RNAs consistem em um modelo matemático, inspirado no sistema neural de organismos inteligentes, sendo capazes de aprender com a experiência, identificando padrões lógicos em seqüências matemáticas. Numa RNA os neurônios são dispostos em camadas: a camada de entrada, as camadas intermediárias e a camada de saída (KLASSEN, 2004).

Cada neurônio é composto por uma estrutura lógico matemática, onde os estímulos captados pelas sinapses são processados através da função soma e o limiar de disparo é representado por uma função de transferência. Matematicamente:

$$Y_k = f \left( \sum_{j=1}^N (w_{k,j} x_j) + b_k \right) \quad (3)$$

onde:  $w$  é peso sináptico,  $x$  é o estímulo de entrada,  $b$  é o bias,  $f$  representa a função de transferência e  $Y$  é a saída do neurônio. Os subscritos  $k$  e  $j$  representam o número da camada e do estímulo, respectivamente.

A aplicação de uma RNA se divide em três etapas: treinamento, validação e generalização. Para o treinamento da RNA são necessários conjuntos de dados, para que a RNA consiga identificar padrões entre as variáveis de entrada e saída, ajustando os pesos sinápticos, através de um algoritmo de otimização. A etapa de validação consiste em conferir se a RNA efetivamente aprendeu com o treinamento prévio. Por fim, a generalização consiste na utilização efetiva do modelo ajustado na simulação do processo em questão.

O desempenho da RNA depende de vários fatores: do número de camadas intermediárias, do número de neurônios em cada camada, da função de transferência utilizada. A utilização de uma grande quantidade de

neurônios faz com que as respostas sejam precisas, porém poderão provocar um problema de generalização da rede ao receber novas entradas. Toda via, se o número de neurônios for baixo, existe a possibilidade de que a resposta obtida não seja suficientemente precisa.

Dessa forma, conforme o que foi citado acima, o objetivo desse trabalho é comparar os resultados da modelagem do processo de troca iônica, empregando os métodos da LAM e a RNA, do sistema ternário  $H^+$ - $Mg^{2+}$ - $Ca^{2+}$  na concentração de 0.1N a 1.0N e temperatura de 298K, utilizando como contra íon  $Cl^-$ .

## Materiais e Métodos

Para realizar as modelagens, foram utilizados os dados experimentais de equilíbrio do sistema ternário  $H^+$ - $Mg^{2+}$ - $Ca^{2+}$ , nas concentrações de 0.1N, 0.2N, 0.5N e 1.0N e temperatura de 298K pela resina de troca iônica AMBERJET 1200H, com diâmetro médio de  $650 \pm 50 \mu m$ , obtidos por Vo e Shallcross (2003), como também os parâmetros de Wilson e a constante de equilíbrio obtidos na modelagem dos sistemas de troca iônica binário  $H^+$ - $Mg^{2+}$ ,  $Mg^{2+}$ - $Ca^{2+}$  e  $H^+$ - $Ca^{2+}$  obtidos de Vo e Shallcross (2003).

### Obtenção Da Curva de Equilíbrio Para os Sistemas Binários

Primeiramente, foram obtidas as curvas de equilíbrio para os sistemas binários  $H^+$ - $Mg^{2+}$ ,  $Mg^{2+}$ - $Ca^{2+}$  e  $H^+$ - $Ca^{2+}$ , através da LAM, utilizando-se dos parâmetros de Wilson e as constantes de equilíbrio obtidos por Vo e Shallcross (2003), para posteriormente serem utilizados no treinamento das RNAs.

Usando os parâmetros de Wilson para o cálculo da atividade no sólido através da equação (4)

$$\ln \gamma_i = 1 - \sum_{j=1}^n y_j \Lambda_{ij} - \sum_{j=1}^n \left[ y_j \Lambda_{ji} / \sum_{k=1}^n y_k \Lambda_{jk} \right] \quad (4)$$

Onde  $\Lambda_{ij}$  são os parâmetros de Wilson, e n é o número de íons presentes na fase sólida. A aplicação desse método em sistemas binários considera que  $\Lambda_{ii} = 1$ , necessita da determinação de dois parâmetros de interação,  $\Lambda_{kj}$  e  $\Lambda_{jk}$ , os quais foram retirados de Vo e Shallcross (2003) e são apresentados na tabela 1.

**Tabela 1 – Parâmetros Obtidos por Vo e Shallcross na Modelagem dos Sistemas Binários.**

Sistema	$K_{eq}$	Parâmetros da equação de Wilson	
		$\Lambda_{12}$	$\Lambda_{21}$
$Mg^{2+} - H^+$	82.0	1.80	0.744
$Ca^{2+} - H^+$	98.0	1.42	1.07
$Ca^{2+} - Mg^{2+}$	1.92	4.27	0.363

Para o cálculo do coeficiente de atividade na solução, utilizou-se o modelo de Bronley, em função de sua simplicidade e da facilidade de encontrar seus parâmetros na literatura. Matematicamente definido pela equação (5).

$$\log \gamma_i = -\frac{Az_i^2 \sqrt{I}}{1 + \sqrt{I}} + F_i \quad (5)$$

Onde A é a constante de Debye-Huckel, e I consiste no comprimento iônico definido por  $I = \sum_i m_i z_i^2$ , sendo  $z_i$  o número de cargas do íon i. O termo  $F_i$  é a soma dos parâmetros das interações, definido pela equação (6)

$$F_i = \sum_j \left( -\frac{(0.06 + 0.6B) |z_j z_i|}{\left(1 + \frac{1.5}{|z_j z_i|} I\right)^2} + B \right) \left( \frac{z_j + z_i}{2} \right)^2 m_j \quad (6)$$

O termo B é o parâmetro de Bromley do eletrofilo formado a partir do cátion j e do ânion i, os valores do parâmetro de Bromley encontram-se na literatura, apresentados por Bromley (1974) e Zemaitis et. al. (1986).

**Tabela 2 – Parâmetros de Bronley Utilizados**

Composto	B ( $kg \cdot mol^{-1}$ )
HCl	0.1433
MgCl <sub>2</sub>	0.1129
CaCl <sub>2</sub>	0.0948

Uma vez que sejam conhecidos a constante termodinâmica de equilíbrio da reação de troca iônica e os parâmetros dos modelos para o cálculo do coeficiente de atividade dos íons em solução (Modelo de Bromley) e dos íons na resina (Modelo de Wilson), pode-se utilizar a equação (2) para gerar as curvas de equilíbrio para cada par binário H<sup>+</sup>-Mg<sup>2+</sup>, Mg<sup>2+</sup>-Ca<sup>2+</sup> e H<sup>+</sup>-Ca<sup>2+</sup>.

#### Modelagem Do Sistema Ternário Pela LAM

Baseando-se que a troca iônica ternária consiste em três reações de troca iônica binária representadas estequiometricamente pela equação (1), e que assim possui três equações de equilíbrio semelhantes a equação (2).

As três constantes de equilíbrio podem ser relacionadas pela equação (7).

$$K_C^B = \left(K_C^B\right)_{z_A}^{z_B} \left(K_C^B\right)_{z_B}^{z_C} \quad (7)$$

Dessa forma resultando em um sistema com duas equações independentes, equação (8) e (9).

$$\left( \frac{x_A \gamma_{R_A}}{m_A \gamma_{S_A}} \right)^{z_B} \left( \frac{m_B \gamma_{S_B}}{x_B \gamma_{R_B}} \right)^{z_A} - K_B^A = 0 \quad (8)$$

$$\left( \frac{x_A \gamma_{R_A}}{m_A \gamma_{S_A}} \right)^{z_C} \left( \frac{m_C \gamma_{S_C}}{x_C \gamma_{R_C}} \right)^{z_A} - K_C^A = 0 \quad (9)$$

Além das Equações referentes a constante de equilíbrio, as frações dos íons na resina devem satisfazer a seguinte equação:

$$x_A + x_B + x_C = 1 \quad (10)$$

Desta forma, conhecendo os valores das frações molares dos íons em solução  $(y_A, y_B, y_C)$  podem-se empregar as Eq. (8)-(10) para determinar as frações dos íons na resina  $(x_A, x_B, x_C)$ . O sistema de equações foi resolvido pelo método numérico de quase-Newton que usa as diferenças finitas para o cálculo da matriz Jacobiana. Os resultados obtidos na predição do comportamento o sistema ternário foram comparados com os dados experimentais obtidos por Vo e Shallcross (2003).

#### *Modelagem do Sistema Ternário Pela RNA*

Para a modelagem através da RNA, utilizou-se os 100 dados gerados em cada sistema binário, utilizando a LAM, para realizar o treinamento, os dados binários totalizando a quantia de 300 dados foram dispostos de forma ternária, ou seja a fração inicial final do metal ausente no sistema binário foi tida como sendo igual a zero. Foram testadas diferentes arquiteturas de rede, a fim de se obter uma estrutura que melhor representasse os dados de treinamento.

As RNAs usadas possuíam uma camada oculta e usava como função de ativação a função logística. Para determinar os pesos sinápticos utilizou-se o método de Otimização de Powell (POWELL, 1974) em associação com o método Otimização Simplex (NELDER e MEAD, 1965) para minimizar a seguinte função objetivo:

$$erro = \sum_{j=1}^{nc-1} \sum_{i=1}^{nt} (y_{i,j}^{calc} - y_{i,j}^{exp})^2 \quad (11)$$

Depois de realizado o treinamento da rede, foi realizado simulações para a predição do comportamento do sistema ternário. Os resultados obtidos pela rede foram comparados com os dados experimentais de equilíbrio do sistema ternário obtidos por Vo e Shallcross (2003).

## Resultados e Discussão

Para a obtenção das curvas de equilíbrio dos sistemas binários:  $H^+$ - $Mg^{2+}$ ,  $Mg^{2+}$ - $Ca^{2+}$  e  $H^+$ - $Ca^{2+}$  pela aplicação da Lei da Ação das Massas, deve ser conhecida a constante de equilíbrio de cada reação de troca iônica, bem como modelos para o cálculo do coeficiente e atividade dos íons em solução e na resina. O modelo de Bromley, cujos parâmetros são apresentados na Tabela 2 foi utilizado para o cálculo do coeficiente de atividade dos íons em solução. O modelo de Wilson, cujos parâmetros são apresentados na Tabela 1 foi empregado para o cálculo do coeficiente de atividade dos íons na resina. Os valores da constante de equilíbrio empregado também são apresentados na Tabela 1. Para cada par binário, variando a composição no intervalo de [0,1] foram gerados 100 pontos para cada concentração de par binário, as curvas de equilíbrio dos sistemas binários são apresentadas na figuras (1), (2) e (3). Foram treinadas diferentes arquiteturas da rede com uma camada de entrada e uma camada de saída, variando os numero de neurônios da camada oculta e da camada de entrada de 2 a 14 neurônios totalizando 33 estruturas. As estruturas que obtiveram melhores resultados foram a 3-11-1, 5-13-1, 10-12-1, 10-14-1 e 12-13-1.

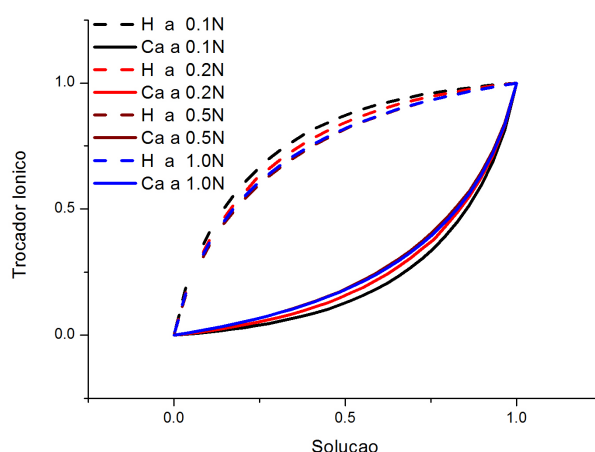
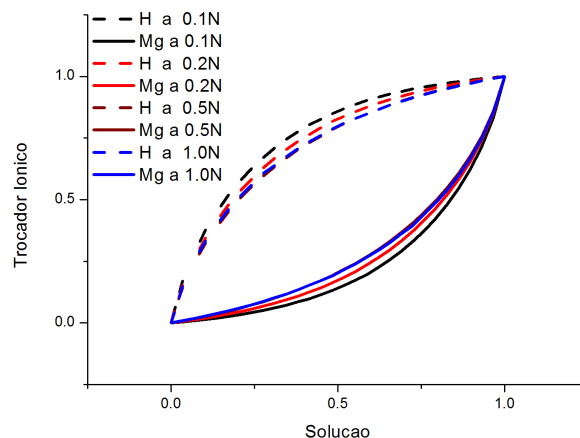
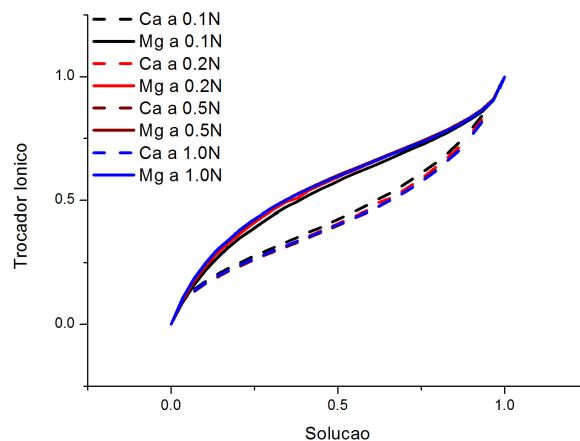


Figura 1 – Curvas de Equilíbrio Binário Obtidas Pela LAM Para o Sistema  $Ca^{2+}$ - $H^+$ .



**Figura 2– Curvas de Equilíbrio Binário Obtidas Pela LAM Para o Sistema  $Mg^{2+}$ - $H^+$ .**

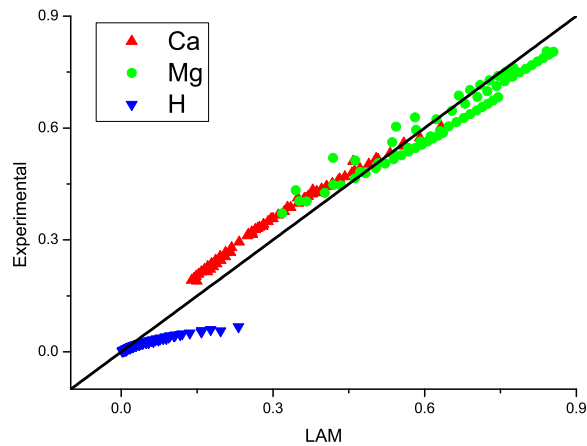


**Figura 3 – Curvas de Equilíbrio Binário Obtidas Pela LAM Para o Sistema  $Ca^{2+}$ - $Mg^{2+}$ .**

### *Predição do equilíbrio de troca iônica no sistema ternário*

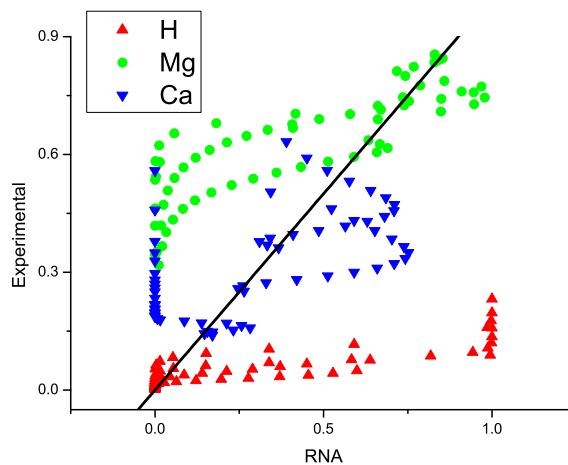
Utilizaram-se as curvas de equilíbrio binárias geradas pela LAM para o treinamento da RNA. A estrutura de RNA que demonstrou o melhor aprendizado foi a 12-13-3, que obteve o menor valor da função objetivo. Os resultados obtidos na modelagem pela LAM são mostrados na Figura 4.





**Figura 4 – Resultado Obtido Na Modelagem Ternária Pela LAM.**

Na modelagem ternária pela Lei da Ação das Massas, foram utilizados os parâmetros do Modelo de Wilson para o cálculo do coeficiente de atividade dos íons na resina e da constante de equilíbrio apresentados na Tabela 1. Na Lei da Ação das Massas também foi empregado o modelo de Bromley para o cálculo do coeficiente de atividade, cujos parâmetros são apresentados na Tabela (2). e os modelados pela RNA são mostrados na Figura 5.



**Figura 5 – RESULTADO Obtido Na Modelagem Ternária Pela RNA**

Os resultados apresentados na Figura 5 mostram que as RNAs não conseguiram descrever com precisão os dados experimentais de equilíbrio desse sistema ternário, enquanto que os resultados obtidos pela aplicação da Lei da Ação das Massas foram eficientes para prever o comportamento deste sistema. Dessa forma, a metodologia utilizada na modelagem pela RNA se demonstra ineficiente quanto a predição de equilíbrio de sistemas ternários de troca iônica, mostrando que os dados de equilíbrio sistemas

binários são insuficientes para a aprendizagem da RNA na modelagem de sistemas ternários.

## Conclusões

Neste trabalho foram comparadas duas metodologias para a predição do equilíbrio de sistemas de troca iônica ternários. As redes neurais artificiais apesar de apresentar facilidade na sua utilização, por permitir o cálculo da composição dos íons na resina de forma explícita, ao contrário da abordagem da Lei Ação das Massas que requer a resolução de um sistema de equações não lineares, não se mostrou capaz de prever o comportamento de equilíbrio do sistema ternário investigado. A modelagem convencional baseada na aplicação da Lei da Ação das Massas para a predição do comportamento de sistemas ternários mostrou-se eficiente.

## Referências

- Allen, R.M; Addison, P.A. (The Characterization of Binary and Ternary Ion Exchange Equilibria) *The Chemical Engineering Journal* 1989, 40, 158.
- Allen, R.M; Addison, P.A. (Ion Exchange Equilibria for Ternary Systems from Binary Exchange Data) *The Chemical Engineering Journal* 1990, 44, 113.
- Bromley, L.A. (Thermodynamic properties of strong electrolytes in aqueous solution) *AIChE Journal* 1973, 19(2), 313.
- R.L.S. Canevesi; R.A. Barella; T.D.Martins; E.A.Z. Junior, E.A. Silva (Uso da Lei da Ação das Massas e de Redes Neurais na Obtenção de Curvas de Equilíbrio de Sistemas Binários de Troca Iônica) *Anais III C3N, Foz do Iguaçu-PR, 2008a.*
- R.L.S. Canevesi; R.A. Barella; T.D. Martins; E.A.Z. Junior; E.A. Silva (Uso Das Redes Neurais Na Obtenção De Curvas De Equilíbrio De Sistemas Ternários De Troca Iônica) *Anais V ENDITEC; Medianeira-PR, 2008b.*
- El-Prince, A.M; Babcock, K.L. (Thermodynamics of ion-exchange equilibriums in mixed solvents) *J. Phys. Chem.* 1975, 79, 1150.
- Fagundes-Klen, M.R; Ferri, P; Martins, T. D; Tavares, C.R.G; SILVA, E.A. (Equilibrium study of the binary mixture of cadmium–zinc ions biosorption by the *Sargassum filipendula* species using adsorption isotherms models and neural network) *Biochemical Engineering Journal* 2007,34,136.
- Fernández, J.C.T. (Seletividade da clinoptilolita natural por metais tóxicos em sistemas aquosos) *Tese de Doutorado, Universidade Federal de São Carlos, 2004.*
- Ioannidis, S, Anderko, A, Sanders, S.J. (Internally Consistent Representation of Binary Ion Exchange Equilibria) *Chemical Engineering Science* 2000, 55, 2687.
- Klassen, T. (Uso de redes neurais artificiais para a modelagem da temperatura e da retenção de água no processo de resfriamento de carcaças de frangos por imersão) *Tese de Mestrado, Universidade Estadual do Oeste do Paraná, 2008.*

T.D. Martins; J.A. Awadallak; M.R. Fagundes-Klen; C.R.G. Tavares; L.C. Filho; E.A. Silva (Biossorção dos Íons Cobre, Cádmio e Zinco Pela Biomassa de Alga Marinha Pré- Tratada Sargassum sp.: Estudo do Equilíbrio por Redes Neurais Artificiais e Isotermas de Adsorção) Anais VI EBA, Maringá-PR, 2006.

Mehablia, M.A; Shallcross, D.C; Stevens, G.W. (Prediction of Multicomponent Ion Exchange Equilibria) Chemical Engineering Science 1994, 49(14), 2277.

Nelder J.A; Mead, R. (A Simplex Method for Function Minimization) The Computer J. 1965, 7, 308.

Powell, M.J.D. (Piecewise quadratic surface fitting for contour plotting) In Software for Numerical Mathematics; D. J. Evans, Ed.: Academic Press. London, 1974.

Schmitz, J.E. (Cálculos de Estabilidade e Divisão de Fases por Meio de Redes Neurais Artificiais), Tese de Doutorado, Universidade Estadual de Campinas, 2006.

J.E. Schmitz; C.E. Borba; T.D. Martins; E.A. Silva (Calculo do Equilíbrio do Sistema Ternário  $\text{SO}_4^{2-}\text{NO}_3^-\text{Cl}^-$  Usando Redes Neurais Artificiais) Anais COBEQ; 2008.

Shallcross, D.C; Herrmann, C.C; Mccoy, B.J. (An Improved Model For The Prediction Of Multicomponent Ion Exchange Equilibria) Chemical Engineering Science 1988, 43, 279.

SMITH, R.P; WOODBURN, E.T. (Prediction of Multicomponent Ion Exchange Equilibria for the Ternary System  $\text{SO}_4^{2-}$  -  $\text{NO}_3^-$  -  $\text{Cl}^-$  From Data of Binary Systems) AIChE Journal 1978, 24(4), 577.

Vo, B.S; Shallcross, D.C. (Multi-Component Ion Exchange Equilibria Prediction) Trans IChemE 2003, 81, 1311.

Zematis, J.F.J; Clar, D.M; Rafal, M; Scrivner, N.C. (Handbook of Aqueous Electrolyte Thermodynamics) Ed.: New York: American Institute of Chemical Engineers, 1986;