

아세톤-물 및 포름酸-물 混合溶媒中에서의 알칼리 鹽化物溶液의 電導度

趙炳麟 · 李英子* · 金光鎬**

仁荷大學校 工科大學 化學工學科

(1977. 11. 19 接受)

Electric Conductance of Dilute Solutions of Alkali Chlorides in Acetone-Water and Formic Acid-Water Mixtures

Byung-Rin Cho, Yong-Ja Lee* and Kwang-Ho Kim**

Department of Chemical Engineering, Inha University, Inchon, Korea

(Received Nov. 19 1977)

要 約. 여러組成의 아세톤-물 및 포름酸-물 中에서 각각 알칼리鹽化物(LiCl, NaCl, KCl, RbCl, CsCl)의 稀薄溶液의 電導度를 30°에서 측정하였다.

아세톤-물 混合溶媒中에서의 알칼리鹽化物의 電導度의 結果를 Debye-Hückel-Onsager 式으로 解析하였고, 溶媒組成에 따르는 極限當量電導度의 变化를 電解質의 選擇的 溶媒和現象으로 설명하였다.

포름酸-물 中에서의 알칼리鹽化物의 稀薄solution의 電導度는 溶媒自體의 强한 이온霧團氣 때문에 그 변화를 比較解析할 수가 없었다.

ABSTRACT. The electric conductances of dilute solutions of alkali chlorides (LiCl, NaCl, KCl, RbCl, CsCl) in a series of acetone-water and formic acid-water mixtures were determined respectively at 30°C.

The results of the conductances of alkali chlorides in acetone-water mixtures were analysed by the Debye-Hückel-Onsager equation and the variations of limiting equivalent conductances with the compositions of acetone-water mixtures were explained in terms of selective solvation of electrolytes.

The conductances of dilute solutions of alkali chlorides in formic acid-water could not be analysed because of the strong ionic atmosphere of solvent itself.

1. 序 論

性質이 비슷한 溶媒이면서 誘電常數를 연속적으로 变화시킬 수 있는 것은 混合溶媒의 경우이며, 이 混合溶媒中에서 電解質의 電導度를 측정

하여 이온의 會合理論 및 溶質-溶媒間의 相互作用을 구명하려는 研究가 混合溶媒로서 dioxane-물^{1~8}, 메탄올-물^{9,10}, 에탄올-아세톤¹¹, tert-butyl alcohol-물¹², 1-프로판올-아세톤¹³ 等에 대해서 이루어졌다.

著者는 前報¹⁴에서 2-프로판올-물 混合溶媒中에서 LiCl, NaCl 및 KCl의 稀薄溶液의 電導度를 측정하여 그 결과를 誘電常數, 粘度 및 選擇

*Seoul Health Junior College, Seoul, Korea

**National Central Vocational Training Institute, Incheon, Korea

的 溶媒和의 입장에서 해석한 바가 있다. Padova¹⁵는 热力學的方法으로 partial molar free energy 개념으로 알칼리鹽化物이 아세톤보다는 물을, 그리고 물보다는 포름酸을選擇的으로 더 溶媒和하리라는 結論을 내린 바 있다.

本研究에서는 LiCl, NaCl, KCl, RbCl 및 CsCl을 溶質로 택하여 여러組成의 아세톤-물 및 포름酸-물의 각混合溶媒中에서의 電導度를 측정하고 그結果를 Debye-Hückel-Onsager式으로 고찰하고混合溶媒中에서의選擇的溶媒와의 관점에서 고찰해 보고자 한다.

2. 實驗

2-1. 試藥

물은一次蒸溜水를 pyrex 유리 증류장치로 KMnO₄첨가증류(2회), K₂Cr₂O₇첨가증류하여 사용하였으며 30°C에서의比電導度가 1.6×10⁻⁶ ohm⁻¹·cm⁻¹이었다. 본 실험에서와 같은 방법으로 精製된 물은比電導度가 25°C에서 0.8×10⁻⁶ohm⁻¹·cm⁻¹로서電導度水로 사용됨을 文獻¹⁶에서 볼 수 있다.

아세톤은 KANTO 製 C.P. 級을 精溜裝置에서 2회 증류하여 中間溜分을 약 50% 취하여 사용하였으며 30°C에서의比電導度가 3.6×10⁻⁸ ohm⁻¹·cm⁻¹이었다. (文獻值¹⁷: 6×10⁻⁸ ohm⁻¹·cm⁻¹, 25°C)

포름酸은 E. Merck 製 G.R. 級을 그대로 사용하였으며, 30°C에서의比電導度가 1.8×10⁻⁵ ohm⁻¹·cm⁻¹이었다 (文獻值¹⁷: 6.4×10⁻⁵ ohm⁻¹·cm⁻¹, 25°C).

電解質로서의 LiCl, NaCl, KCl은 E. Merck 製 G.R. 級을, RbCl, CsCl은 MITSWA 製 G.R. 級을 5~8 mmHg 壓力下에서 15시간 동안 70~80°C에서 건조하여 사용하였다.

2-2. 溶液의 調製

아세톤-물 및 포름酸-물의 각混合溶媒는 아세톤 및 포름酸의 몰分率이 0.0, 0.1, 0.2, 0.3 0.4인 것을 택하였으며 (重量組成으로서는 아세톤은 0.00, 26.39, 44.65, 58.03, 68.20%이고 포름酸은 0.00, 22.12, 38.98, 52.27, 63.01%이다), 각溶媒에 대하여 각電解質의 농도가

0.2 mole·l⁻¹인溶液을 만들고, 이것으로부터稀釋法으로 여러 농도의溶液을 만들었다. 이때에 모두 室溫에서 重量基準으로 調製하였으며 密度를 측정하여 mole·l⁻¹ 단위로 환산하였다. 密度測定試料液의 농도는 0.002~0.05 mole·l⁻¹ (6種), 電導度測定試料液은 아세톤-물 溶媒일 경우는 0.00015~0.002 mole·l⁻¹ (8種), 포름酸-물 溶媒의 경우는 0.001~0.02 mole·l⁻¹ (7種) 이었다.

2-3. 裝置

(1) 密度測定. 溶液의 密度는 前報¹⁸에서와 같이 30.00±0.01 °C로 定溫조절된 水槽에서 25 ml pycnometer로 측정하였으며, 이때 모든秤量에서 空氣의 浮力補正을 하였다.

(2) 電導度測定. 溶液의 電導度測定에는 Beckman Model RC 18-A Conductivity Bridge를 사용하였으며, cell은 마개가 있는 250 ml pyrex 製 Erlenmeyer flask에 白金黑電極을 封入한稀釋型容器를 사용하여, 30.00±0.01 °C로 조절된 恒溫水槽에 靜置하고 1 kHz에서 측정하였다. 사용한 3個 cell의 cell constant는 0.0424, 0.0544, 0.0361 cm⁻¹이었다.

(3) 粘度測定. 각混合溶媒의粘度測定에는 前報¹⁹에서와 같은密閉式 Ubbelohde粘度計를 사용하였으며 (흐름시간: 30 °C의 물에 대해서 1229秒) 표준액으로서 물, 벤젠, 에탄올을 택하여 다음의 Poiseuille式²⁰으로 calibration하였다.

$$\eta = \pi dghr^4 t / 8lv - m \cdot d \cdot v / 8\pi lt$$

$$\text{즉 } \eta = C \cdot d \cdot t - Dd/t$$

표준액의粘度 η poise, 密度 d g·ml⁻¹, 託름시간 t sec로부터 결정된 C 및 D 의 值은 각각 6.523 × 10⁻⁶ cm²·sec⁻², 0.027 cm²이었다.

3. 結果 및 考察

3-1. 混合溶媒의 密度, 粘度 및 誘電常數

本實驗에서 측정한 여러組成의 아세톤-물 및 포름酸-물混合溶媒의 30 °C에서의 密度(d_0 g·ml⁻¹)와粘度(η_0 poise)를 Table 1에 종합하였으며, 또한 아세톤-물混合溶媒의誘電常數(ϵ)의文獻值²¹를附記하였다. 포름酸-물系의誘

Table 1. Properties of acetone-water and formic acid-water (d_0 : density, η_0 : viscosity, ϵ : dielectric constant).

Solvent		d_0 (g·mL ⁻¹)	η_0 (poise)	ϵ^*
Water		0.99564	0.008007	76.73
Acetone-water (mole fraction acetone)	0.1	0.95749	0.011708	61.59
	0.2	0.92411	0.011769	50.33
	0.3	0.89520	0.009955	41.98
	0.4	0.86982	0.007811	35.69
Formic acid-water (mole fraction formic acid)	0.1	1.04502	0.009222	—
	0.2	1.08743	0.010319	—
	0.3	1.11704	0.011161	—
	0.4	1.14451	0.012117	—

*Ref. 21

Table 2. Coefficient for density increment, θ for solutions of alkali chlorides in acetone-water and formic acid-water at 30°C.

Solvent	d_0 (g·mL ⁻¹)	θ				
		LiCl	NaCl	KCl	RbCl	CsCl
Water	0.99568	0.0216	0.0406	0.0472	0.0936	0.1238
Acetone-water (mole fraction acetone)	0.1	0.95732	0.0371	0.0428	0.0606	0.1032
	0.2	0.92412	0.0408	0.0448	0.0676	0.1058
	0.3	0.89537	0.0460	0.0596	0.0653	0.0942
	0.4	0.86972	0.0508	0.0610	0.0635	0.0895
Formic acid-water (mole fraction formic acid)	0.1	1.04479	0.0446	0.0535	0.0664	0.0863
	0.2	1.08762	0.0253	0.0404	0.0483	0.0887
	0.3	1.11868	0.0244	0.0414	0.0442	0.0830
	0.4	1.14469	0.0234	0.0382	0.0424	0.0821

電常數値는 문헌에서 찾을 수가 없었다.

Table 1에서 지적할 수 있는 것은 아세톤-물系에서 아세톤의 몰分率이 0.2인組成에서 粘度가 最大이다. 이것은 물에 아세톤을 가할 때 아세톤分子의 단순한 bulk effect로 물構造를 파괴하며, 0.2 몰分率에 이르면 물構造는 완전히 파괴되고 아세톤分子와 물分子는 close-packed structure를 이루어 粘度가 最大 값을 나타내는 것으로 해석된다. 混合溶媒에서의 이와같은 성질은, 메탄올-물²², 에탄올-물²³, 2-프로판올-물¹⁸에서도 관찰되었다.

3-2. 溶液의 密度. 여러組成의 아세톤-물 및 포름酸-물의 각混合溶媒中에서의 알칼리鹽化物의稀薄溶液의 密度測定結果, 농도(C mole·L⁻¹)

對 密度(d g·mL⁻¹) 사이에 直線關係가 성립하므로 $d=d_0+\theta C$ 에 따라 最小 自乘法으로 정한 d_0 및 θ 의 值을 Table 2에 종합하였다.

3-3. 當量電導度

1價-1價의 強電解質의 稀薄溶液에 대하여 完全解離를 가정하고 이온을 點電荷로 볼 때에 電場의 영향으로 생기는 이온霧圍氣의 非對稱效果 및 溶媒의 粘性效果를 고려한 아래와 같은 Debye-Hückel-Onsager 式^{24~26}이 제안되었다. 이것은 電導度에 대한 極限式으로서稀薄溶液일 때 A 와 $C^{1/2}$ 와의 사이에 直線關係가 성립한다.

$$A = A_0 - \left[\frac{8.20 \times 10^5}{(\epsilon T)^{3/2}} A_0 + \frac{82.4}{(\epsilon T)^{1/2} \eta_0} \right] C^{1/2} \\ = A_0 - SC^{1/2} \quad (1)$$

여기서 A : 각 농도 C 에서의 當量電導度 [$\text{ohm}^{-1} \cdot \text{cm}^2$], A_0 : 極限當量電導度, ϵ : 溶媒의 誘電常數, η_0 : 溶媒의 粘度 [poise], T : 絶對溫度 [$^\circ\text{K}$] 이다.

(1) 아세톤-물中의 알칼리鹽化物. 本 實驗에서 여러 組成의 아세톤-물 中에서 LiCl, NaCl, KCl, RbCl, CsCl의 0.00015~0.002 mole $\cdot l^{-1}$ (8種)의 溶液의 當量電導度 A 를 결정하여 $C^{1/2}$ 에 대해서 plot 하였더니 直線 관계가 잘 성립하며 아세톤의 몰分率이 0.4인 경우의例를 Fig. 1에 나타내었다. 이 A vs. $C^{1/2}$ plot에서 最小自乘法으로 얻은 極限當量電導度 A_0 의 値을 Table 3에, 그리고 實驗的인 極限기울기 S' 및 (1)式으로 구한 計算值 S 를 Table 4에 종합하였다. 또한 Fig. 1에는 極限기울기의 計算值를 點線으로 비교 표시하였다.

Fig. 1 및 Table 4에서 알 수 있는 S 와 S' 間의 좋은一致는 本 實驗에서의 아세톤-물 混合溶媒의 경우 즉 誘電常數가 35 이상인 경우에는 1價-1價의 強電解質은 解離가 거의 完全하여 Onsager式이 잘 성립하고 있음을 나타낸다.

또한 各 電解質에 대하여 溶媒組成에 따르는 A_0 의 변화를 나타낸 Fig. 2 또는 Table 3을 보면 아세톤의 몰分率이 0.2에 이르는 동안은 A_0

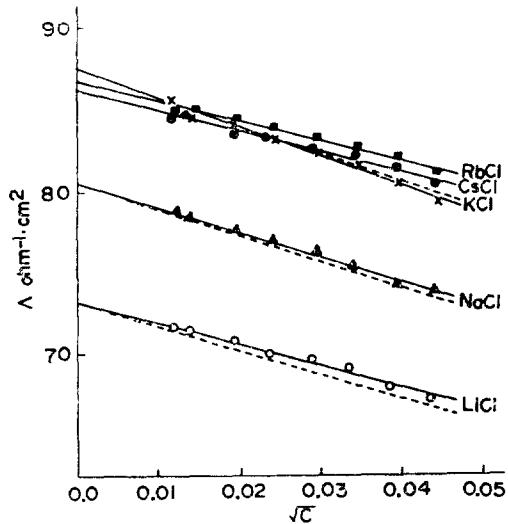


Fig. 1. A vs. $C^{1/2}$ plot for alkali chlorides in 0.4 mole fraction acetone-water at 30°C (as typical one) — : observed, : calculated.

Table 3. Limiting equivalent conductance, A_0 for alkali chlorides in acetone-water at 30°C.

Solvent (mole fraction acetone)	A_0 ($\text{ohm}^{-1} \cdot \text{cm}^2$)				
	LiCl	NaCl	KCl	RbCl	CsCl
0.0	140.0	150.2	167.4	179.2	182.2
0.1	81.4	90.1	105.5	108.9	108.6
0.2	71.9	77.8	88.8	90.8	88.4
0.3	69.5	77.3	84.0	88.1	87.5
0.4	73.2	80.4	87.6	86.9	86.6

Table 4. Limiting slope of Onsager equation for alkali chlorides in acetone-water at 30°C.

Solvent (mole fraction acetone)	Limiting slope (S' : observed, S : calculated)									
	LiCl		NaCl		KCl		RbCl		CsCl	
	S'	S	S'	S	S'	S	S'	S	S'	S
0.0	98.1	94.5	99.3	96.2	111.3	106.1	120.5	108.9	118.3	109.6
0.1	88.3	77.6	93.1	80.4	105.3	85.4	108.3	86.5	110.4	86.4
0.2	105.0	88.0	110.3	90.5	120.6	95.3	123.2	96.2	115.6	95.1
0.3	125.6	113.1	140.6	117.5	145.9	121.3	120.8	123.7	121.6	123.3
0.4	132.3	154.7	148.1	159.6	178.4	165.2	120.0	164.7	123.8	164.4

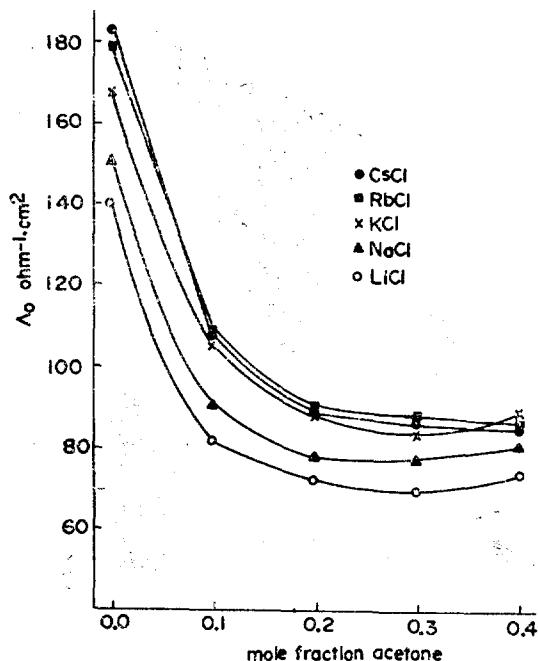


Fig. 2. A_0 of alkali chlorides in acetone-water as a function of solvent composition at 30 °C.

가 급격히 감소되고, 아세톤의 몰 분率이 0.3, 0.4에 이르는 동안은 큰 변화가 없으며, 도리어 LiCl, NaCl, KCl은 0.3 몰 분率 아세톤-물에서 A_0 는最小值를 나타내고, 0.4 몰 분率 아세톤-물 안에서는 다시 증가하고 있다. 또한, 순수한 물 안에서는 A_0 의 크기가 LiCl, NaCl, KCl, RbCl, CsCl의順으로 증가하는 것이 0.4 몰 분率 아세톤-물 안에서는 LiCl, NaCl, CsCl, RbCl, KCl의順으로 바뀐다.

위와 같은現象은 아세톤-물混合溶媒中에서 알칼리鹽化物이 물分子를選擇的으로溶媒和(水和)한다고 전제하므로서 설명이 된다. 즉 물에 아세톤을 가해가는 초기에 있어서는 아세톤分子의 단순한 bulk effect로 물의水素結合이 절단되어 물의 monomer가生成되므로서 이온을安定化시키는水和의促進으로實質의인 이온의有効크기가增大되므로 A_0 가 급격히 감소된다. Table 1에서, 0.2 몰 분率 아세톤-물에서粘度가最大인 것은 물構造의 완전 파괴에 의한close packed structure 때문일 것으로 해석한 것과도부합된다. 0.2 몰 분率 아세톤-물에 이르는 동안

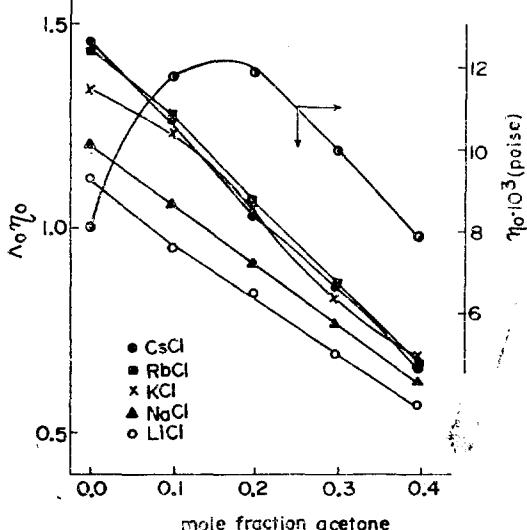


Fig. 3. Limiting Walden product for alkali chlorides in acetone-water and viscosity of acetone-water.

의 A_0 의 급격한減少는溶媒의粘度증가때문일 것으로 해석할 수도 있으나, Fig. 3에서 볼 수 있는 Walden 積 $A_0\eta_0$ 의減少는,選擇的溶媒和(水和)의促進에의한實質의인水和이온의有効크기의增大가 A_0 減少에대해서더支配의인것으로판단된다. 이와같은選擇的溶媒和에기인된Walden積의감소는CH₃OH-CH₃NO₂系²⁷또는CH₃OH-MEK(methyl ethyl ketone)系²⁸에대해서報告된바있다.

그러나아세톤의양이더증가하여0.3,0.4 몰 분率에이르면아세톤의存在로水和가방해되어 A_0 가계속감소하지않는것으로해석된다. 더욱,元來bare ion의크기가작으므로서水和effec가크게나타났든LiCl,NaCl,KCl은아세톤의존재로因한水和의방해로,0.4 몰 분率 아세톤-물 안에서 A_0 가다시증가하고있는것으로판단된다.

또한, 순수한 물 안에서는水和된이온의有効크기가Li⁺,Na⁺,K⁺,Rb⁺,Cs⁺의차례로작아지므로같은차례로 A_0 가증가하는것이, 0.4 몰 분率 아세톤-물 안에서는아세톤의存在로因한水和의방해로非水和이온의크기順으로바뀌어가기때문에, A_0 가LiCl,NaCl,CsCl,RbCl,KCl의차례로증가하는현상이나타난

Table 5. Specific Conductivity of alkali chlorides solutions in 0.4 mole fraction formic acid-water at 30°C (as typical one).

C (mole·l ⁻¹)	$(k - k_0) \cdot 10^6$ (ohm ⁻¹ ·cm ⁻¹)					$*k_0 \cdot 10^6 = 66.1$ ohm ⁻¹ ·cm ⁻¹
	LiCl	NaCl	KCl	RbCl	CsCl	
0.0200	17.0	16.5	17.1	16.0	16.3	16.6
0.0150	11.4	11.7	13.0	11.9	12.5	12.1
0.0100	8.7	8.7	9.0	8.5	9.1	8.8
0.0075	6.1	6.0	7.0	5.7	6.4	6.2
0.0048	4.2	3.8	4.7	3.5	3.8	4.0
0.0025	2.5	2.1	2.9	2.0	2.1	2.3
0.0010	1.5	1.0	1.6	1.0	1.0	1.2

Table 6. Average specific conductivity of alkali chlorides in formic acid-water at 30°C.

C (mole·l ⁻¹)	$(k - k_0) \cdot 10^6$ (ohm ⁻¹ ·cm ⁻¹)			
	(Mole fraction of formic acid)			
	0.1	0.2	0.3	0.4
0.0200	23.3	18.6	18.7	16.6
0.0150	18.0	14.0	14.1	12.1
0.0100	13.5	11.8	10.8	8.8
0.0075	9.5	6.9	7.5	6.2
0.0048	5.8	4.5	5.0	4.0
0.0025	3.1	2.8	3.1	2.3
0.0010	1.0	0.9	1.5	1.2

것으로 해석된다. 이와 같은 현상은 前報¹⁴에서 이소프로판-물中의 LiCl, NaCl, KCl에 대하여 관찰된 바 있으며, 아세톤 보다 물分子를 選擇的으로 溶媒和 하리라는 Padova¹⁵의 热力學的 인結論과 잘 부합된다.

(2) 포름酸-물 中의 알칼리鹽化物. 本 實驗에서 여러 組成의 포름酸-물 안에서 LiCl, NaCl, KCl, RbCl, CsCl의 0.001~0.02 mole·l⁻¹(7種)溶液의 電導度를 측정한 결과 混合溶媒 自體의 強한 이온雰圍氣 때문에 稀薄濃度의 알칼리 鹽化物만의 電導度를 溶媒組成 및 電解質 종류에 따라 比較 解析할 수가 없었다. 0.4摩分率 포름酸-물의 경우, 溶液과 溶媒와의 比電導度의 差 ($k - k_0$)를 Table 5에 例示하였다. 즉 각 농도에서 ($k - k_0$) 값은 電解質 종류에 관계없이 비슷한 값을 나타내므로, 그 平均值를 附記하였다. 이와 같은 방법으로 각 混合 溶媒에서 定한 ($k - k_0$)

의 平均值를 Table 6에 종합하였다. 이 表에서의 ($k - k_0$) 값으로 부터 계산되는 Λ 의 값은 0.8~1.2 ohm⁻¹·cm²이며, 溶媒 自體의 이온强度가 크므로 稀薄농도의 溶質의 電導度는 차폐되고 마는 것으로 해석된다.

4. 結 論

本 實驗의 結果를 考察한 내용을 要約하면 다음과 같다.

물 및 아세톤-물 混合溶媒中에서 알칼리鹽化物은 0.00015~0.002 mole·l⁻¹의 농도 범위에서 Λ vs. $C^{1/2}$ plot가 直線을 나타내며 그 기울기의 實驗值가 Debye-Hückel-Onsager 式에 의한 計算值와 좋은一致를 보였다.

아세톤-물 混合溶媒中的 아세톤의 摩分率이 0.2에 이르는 아세톤의 첨가는 알칼리鹽化物의 물分子에 대한 選擇的 溶媒和(水和)를 促進하므

로서 水和이온의 有効 크기를 增大시켜 A_0 의 급격한 감소를 가져 온다. 그러나 아세톤量이 더 증가된 0.3, 0.4 몽分率에서는 아세톤의 存在로 水和가 방해되어 A_0 가 계속 감소하지 않으며, 도리어 LiCl, NaCl, KCl은 A_0 가 다시 증가하고 있다. 그리고, 순수한 물안에서는 A_0 의 증가가 水和이온의 크기가 감소하는 順인 LiCl, NaCl, KCl, RbCl, CsCl 이든 것이 0.4 몽分率 아세톤-물안에서는 水和가 방해되므로서 A_0 의 증가가 LiCl, NaCl, CsCl, RbCl, KCl의 順으로 바뀐다.

포름酸-물混合溶媒中에서의 알칼리鹽化物의 電導度는 溶媒自體의 이온 強度가 크기 때문에 이것에 차폐되므로, 混合溶媒組成, 電解質 종류에 따라 比較解析할 수가 없었다.

本研究는 1976年度 產學協同財團의 學術研究費로 수행되었으며 이에 深甚한 謝意를 表한다.

引用文獻

- R. M. Fuoss and C. A. Kraus, *J. Amer. Chem. Soc.*, **79**, 3304 (1957).
- J. E. Lind, Jr. and R. M. Fuoss, *J. Phys. Chem.*, **65**, 999 (1961).
- J. E. Lind, Jr., and R. M. Fuoss, *ibid.*, **65**, 1414 (1961).
- J. E. Lind, Jr., and R. M. Fuoss, *ibid.*, **66**, 1727 (1962).
- R. W. Kunze and R. M. Fuoss, *ibid.*, **67**, 911 (1963).
- R. W. Kunze and R. M. Fuoss, *ibid.*, **67**, 914 (1963).
- J. C. Justice and R. M. Fuoss, *ibid.*, **67**, 1707 (1963).
- T. H. Leong and L. A. Dunn, *ibid.*, **76**, 2294 (1972).
- F. Accascina, A. D'Aprano and R. M. Fuoss, *J. Amer. Chem. Soc.*, **81**, 1058 (1959).
- C. J. Hallada and G. Atkinson, *J. Amer. Chem. Soc.*, **83**, 3759 (1961).
- G. Pistoia and G. Pecci, *J. Phys. Chem.*, **74**, 1450 (1970).
- T. L. Broadwater and R. L. Kay, *ibid.*, **74**, 3802 (1970).
- D. F. Evans, J. Thomas, J. A. Nadas and M. A. Matesich, *ibid.*, **75**, 1714 (1971).
- B. R. Cho, Y. J. Lee and J. B. Kim, *J. Korean Chem. Soc.*, **20**, 260 (1967).
- J. Padova, *J. Phys. Chem.*, **72**, 796 (1968).
- S. Glasstone, "An Introduction to Electrochemistry", 7th Ed., P. 45, D. Van Nostrand Co., Inc.
- Langés Handbook of Chemistry, 10th Ed., P. 1220, Mc Graw-Hill Book Co., New York, 1967.
- B. R. Cho, *J. Korean Chem. Soc.*, **15**, 95 (1971).
- B. R. Cho, Y. J. Lee and I. Lee, *ibid.*, **15**, 159 (1971).
- F. T. Tuan and R. M. Fuoss, *J. Phys. Chem.*, **67**, 1343 (1963).
- J. Timmermans, "The Physicochemical Constants of Binary Systems in Concentrated Solutions" Vol. 4, P. 46, Elsevier Publishing Co., Inc., New York, 1960.
- S. K. Yoon and I. Lee, *J. Korean Chem. Soc.*, **13**, 9 (1969).
- I. Lee and J. B. Hyne, *Can. J. Chem.*, **46**, 2333 (1968).
- P. Debye and E. Hückel, *Physik. Z.*, **24**, 185, 305 (1923), **25**, 145 (1924).
- L. Onsager, *Trans. Faraday Soc.*, **23**, 341 (1927).
- P. Debye and H. Falkenhagen, *J. Phys. Chem.*, **33**, 1121 (1929).
- R. C. Miller and R. M. Fuoss, *J. Amer. Chem. Soc.*, **75**, 3076 (1953).
- F. M. Sacks and R. M. Fuoss, *ibid.*, **75**, 5172 (1953).