高圧力下における塩化リチウム水溶液の粘性率[†]

中井 武裕* 友田 好昭*
澤村 精治** 谷口 吉弘**

Viscosity of Aqueous Lithium Chloride Solution under High Pressure

by

Takehiro NAKAI*, Yoshiaki TOMODA*, Seiji SAWAMURA**
and Yoshihiro TANIGUCHI**

The viscosity of aqueous lithium chloride (LiCl) solution was measured at 0.1-375 MPa, at 278.2-318.2 K, and 0.5-4.0 mol kg⁻¹. The Jones-Dole *B* coefficients for LiCl in water were obtained from the concentration dependence of the viscosity, and were divided into each ionic contribution. In the studied ranges of pressure and temperature, the *B* for Li⁺ ion decreases monotonically with increasing pressure. However, the *B* for Cl⁻ ion increases with pressure up to 100-200 MPa. Pressure dependence of the *B* for alkali metal ions (Li⁺, Na⁺, K⁺ and Cs⁺) were discussed supposing that the *B* consists of three terms, that is, Einstein effect (*B_E*), dielectric friction effect for solvent (*B_D*), and structural effect of solvent (*B_S*).

Key words: High-pressure, Viscosity, Lithium chloride, Alkali metal ions, Jones-Dole *B* coefficient

1 はじめに

希薄電解質溶液の粘性率の濃度依存性は Jones-Dole 式¹⁾によってうまく再現される。

$$\eta/\eta_0 = 1 + Ac^{1/2} + Bc \quad (1)$$

ここで η と η_0 はそれぞれ溶液および純溶媒の粘性率、 c は溶液の容量モル濃度、 A と B はその溶液に固有の定数である。特に係数 B はイオン-溶媒間相互作用を反映していることから、イオン種、溶媒、温度等の違いによる B の挙動は、イオンの溶媒和の物理化学的解釈を行う上で注目されてきた。²⁾

圧力は温度とならび水の構造や諸物性を変える重要な環境因子であり、特に室温以下の温度で、水の性質の圧力効果に異常な振る舞いが多く見出されている。例えば、277K 付近の密度極大の高圧力下での消失、圧力に対する粘性率の極小、³⁾ 粘性流の活性化エネルギーの極小、⁴⁾ NMR のスピン-格子緩和時間の極大^{5), 6)} 等である。これらに代表される水の特性が、 B 係数の圧力効果に如何に反映されるかということを明瞭にすることが本研究の目的である。 B 係数の圧力効果については、これまでに我々が行なった一連の研究以外では報告例がない。アルカリ金属塩化物水溶液の B 係数では NaCl,⁷⁾ KCl,^{8), 9)} CsCl^{10), 11)} について報告してきたが、今回は LiCl を追加し、Li⁺ イオンの B 係数の圧力依存性を他のアルカリ金属イオン (Na⁺, K⁺ および Cs⁺) の場合と比較する。

2 実験方法

2.1 試料

無水塩化リチウム (ナカライテスク社製特級試薬) は使用前に 403K で 3 日以上乾燥させたものを用いた。水

は脱イオン後、2 回蒸留したものを用いた。電解質水溶液の濃度は 0.5, 1.0, 2.0, 3.0, 4.0 mol kg⁻¹ に化学天秤で調製した。その他試料調製の詳細は前報⁷⁾ と同じである。

2.2 粘性率測定

常圧の粘性率はウペローデ型粘度計により、また高圧力下の粘性率は当研究室で製作した転落球型粘度計¹²⁾ により測定した。転落球型粘度計による粘性率算出の基本式は次に示す通りである。

$$\eta = K(\rho_b - \rho_s)t, \quad (2)$$

ここで ρ_b と ρ_s はそれぞれ粘度計内の球の密度および試料溶液の密度、 t は試料溶液で満たされた試料管を傾斜させた時に球が一定距離を通過する時間、また K は各温度、圧力において水で校正したセル定数である。粘度計は ± 0.01 K 以内に温度制御した恒温槽に設置しており、 t は ± 0.01 s の精度で読みとれる。圧力は精度 ± 0.5 MPa のフルスケール 700MPa ブルドン管式圧力ゲージ (Heise 社製) で読みとった。

2.3 密度と圧縮ひずみ測定

常圧の水溶液の密度 ρ_s^0 は、内容積 10cm³ のオストワルド型ピクノメーターを用いて測定した。高圧力下の水溶液の密度 ρ_s は、圧縮ひずみ k と ρ_s^0 によって式 (3) で定義される。

$$\rho_s = \rho_s^0 / (1 - k), \quad (3)$$

ここで k は次式で定義される。

$$k = (V^0 - V^p) / V^0, \quad (4)$$

ここで V^0 と V^p はそれぞれ常圧および高圧力下での試料のモル体積である。LiCl 水溶液の圧縮ひずみは前報⁸⁾ と同

† 原稿受理 平成 9 年 12 月 15 日 Received Dec. 15, 1997

* 立命館大学大学院 〒525-8577 草津市野路東町, Graduate Student, Dept. of Chem., Ritsumeikan Univ., Noji-higashi, Kusatsu, 525-8577

** 正会員 立命館大学理工学部化学科 〒525-8577 草津市野路東町, Dept. of Chem., Ritsumeikan Univ., Noji-higashi, Kusatsu, 525-8577

様, 内容積 7cm^3 の水銀トラップ式ピエゾメーターにより測定した. 圧力は精度 $\pm 0.5\text{MPa}$ のフルスケール 400MPa ブルドン管式圧力ゲージ (Heise 社製) で読みとり, 温度は $\pm 0.1\text{K}$ 以内に制御した.

3 結果と考察

3・1 密度と圧縮ひずみ

LiCl 水溶液の圧縮ひずみの値を Table I に示す. この実験値は圧力 p (MPa) の関数として Tait 式 (式 (5)) に標準偏差 5×10^{-3} 以下でフィットできる.

$$k = a \log[(b + p)/(b + 0.1)] \tag{5}$$

そのパラメータ a, b を Table II に示す. 高圧力下の水溶液の密度 ρ_s は, Table II の a, b と式 (5) から見積もった k を式 (3) に代入して得た.

3・2 粘性率

Table III に粘性率の値を示す. Fig. 1 には粘性率の圧

Table I. Compression ($k/\%$) of aqueous lithium chloride solution.

p / MPa	$m / \text{mol kg}^{-1}$				
	0.5	1.0	2.0	3.0	4.0
278.2 K					
50	2.00	1.87	1.77	1.67	1.58
100	3.73	3.55	3.35	3.15	2.98
150	5.32	5.03	4.73	4.50	4.28
200	6.74	6.44	6.03	5.74	5.46
250	8.00	7.68	7.24	6.89	6.56
300	9.16	8.84	8.35	7.98	7.61
350	10.25	9.91	9.40	9.00	8.62
298.2 K					
50	1.96	1.87	1.76	1.61	1.48
100	3.54	3.42	3.29	3.05	2.85
150	5.05	4.85	4.60	4.32	4.02
200	6.44	6.12	5.82	5.53	5.21
250	7.70	7.39	6.95	6.57	6.27
300	8.80	8.50	8.05	7.62	7.32
350	9.86	9.53	9.04	8.62	8.30
318.2 K					
50	1.88	1.79	1.64	1.58	1.42
100	3.44	3.32	3.14	2.93	2.77
150	4.87	4.59	4.38	4.20	3.90
200	6.04	5.85	5.56	5.28	5.01
250	7.34	7.05	6.66	6.34	6.13
300	8.47	8.13	7.73	7.40	7.15
350	9.45	9.15	8.68	8.27	8.03

Table II. Density at 0.1 MPa and parameters of Tait's equation for aqueous lithium chloride solution.

	$m / \text{mol kg}^{-1}$				
	0.5	1.0	2.0	3.0	4.0
278.2 K					
$\rho_s^0 / \text{g cm}^{-3}$	1.0120	1.0239	1.0455	1.0654	1.0843
a	0.3254	0.3500	0.3469	0.3544	0.3584
b / MPa	328.3	380.2	404.7	441.2	474.5
298.2 K					
$\rho_s^0 / \text{g cm}^{-3}$	1.0090	1.0201	1.0416	1.0615	1.0802
a	0.3264	0.3316	0.3075	0.3247	0.3887
b / MPa	347.9	373.2	363.1	417.2	552.4
318.2 K					
$\rho_s^0 / \text{g cm}^{-3}$	1.0022	1.0134	1.0349	1.0549	1.0736
a	0.3156	0.3232	0.3126	0.3069	0.3836
b / MPa	352.7	382.4	391.9	407.0	563.3

Table III. Viscosity of aqueous lithium chloride solution.

p / MPa	$m / \text{mol kg}^{-1}$				
	0.5	1.0	2.0	3.0	4.0
278.2 K					
0.1	1.617	1.721	1.944	2.187	2.451
25	1.582	1.687	1.912	2.157	2.422
50	1.559	1.665	1.891	2.136	2.400
75	1.543	1.649	1.875	2.121	2.385
100	1.534	1.640	1.866	2.112	2.377
125	1.532	1.638	1.864	2.110	2.375
150	1.535	1.641	1.867	2.113	2.378
175	1.543	1.649	1.875	2.122	2.389
200	1.556	1.661	1.889	2.137	2.406
225	1.572	1.677	1.904	2.153	2.424
250	1.590	1.694	1.922	2.173	2.448
275	1.613	1.717	1.944	2.196	2.473
300	1.638	1.741	1.968	2.221	2.501
325	1.665	1.767	1.994	2.249	2.533
350	1.694	1.795	2.019	2.276	2.566
375	1.726	1.824	2.048	2.307	2.602
298.2 K					
0.1	0.956	1.024	1.167	1.326	1.505
25	0.949	1.015	1.160	1.323	1.503
50	0.948	1.015	1.160	1.322	1.506
75	0.949	1.015	1.161	1.326	1.508
100	0.953	1.020	1.166	1.330	1.515
125	0.958	1.025	1.172	1.338	1.523
150	0.967	1.035	1.182	1.347	1.532
175	0.976	1.044	1.192	1.359	1.544
200	0.988	1.057	1.204	1.369	1.554
225	1.000	1.067	1.215	1.382	1.568
250	1.012	1.079	1.226	1.392	1.579
275	1.026	1.093	1.241	1.408	1.595
300	1.043	1.111	1.258	1.424	1.609
325	1.058	1.123	1.270	1.437	1.624
350	1.074	1.139	1.285	1.452	1.640
375	1.093	1.159	1.304	1.469	1.655
318.2 K					
0.1	0.642	0.687	0.789	0.899	1.021
25	0.644	0.691	0.791	0.901	1.019
50	0.648	0.695	0.795	0.905	1.023
75	0.655	0.701	0.802	0.911	1.028
100	0.662	0.709	0.809	0.919	1.035
125	0.669	0.716	0.819	0.930	1.044
150	0.678	0.726	0.827	0.938	1.055
175	0.686	0.734	0.838	0.950	1.067
200	0.697	0.745	0.847	0.959	1.078
225	0.705	0.754	0.858	0.971	1.090
250	0.717	0.765	0.869	0.982	1.104
275	0.726	0.776	0.880	0.995	1.119
300	0.738	0.787	0.892	1.007	1.131
325	0.749	0.799	0.905	1.020	1.144
350	0.761	0.811	0.917	1.033	1.159
375	0.773	0.823	0.930	1.047	1.173

力依存性を示す. 高圧力下の電解質水溶液の粘性率のデータは, 常圧のそれと比較して非常に少ないが, Lee らが 4.5mol kg^{-1} の LiCl 重水溶液の粘性率を 303.2K で 400MPa まで測定しており¹³⁾ 唯一我々の結果を比較できる. この報告によると, 粘性率は極小を持たず加圧とともに増加しているので, 傾向は室温以上の我々の結果と一致している. さらに常圧に対する高圧粘性率の比 η (350MPa)/ η (0.1MPa) を比較すると, Lee らのデータでは 1.11 であり, それと対応する我々のデータは Table III から補外すると 4.5mol kg^{-1} 303.2K で 1.10 となる. 重水と軽水の違いがあるとは言え, 似た挙動を示している.

Fig. 1. Pressure dependence of the viscosity for aqueous lithium chloride solution.¹⁾ Ref. 17.

3・3 Jones-Dole *B* 係数

3・3・1 LiCl の *B* 係数 *B* 係数の算出に式 (1) を適用できるのは、通常 0.1 mol dm⁻³ 以下の濃度までであり、それ以上の高濃度領域では拡張型の Jones-Dole (式 (6))¹⁴⁾ を用いて解析する必要がある。式 (6) から算出した *B* 値と式 (1) から算出した *B* 値とは数 % 以内で一致することが知られる。¹⁵⁾

$$\eta/\eta_0 = 1 + Ac^{1/2} + Bc + Dc^2 \quad (6)$$

式 (6) を変形すると式 (7) のようになる。

$$(\eta/\eta_0 - 1 - Ac^{1/2})/c = B + Dc \quad (7)$$

この式の *A* は次に示す Falkenhagen と Vernon の理論式¹⁶⁾ から見積もった。

$$A = \frac{0.2577(\lambda_+^0 + \lambda_-^0)}{\eta_0(\epsilon_0 T)^{1/2} \lambda_+^0 \lambda_-^0} \left[1 - 0.6863 \left(\frac{\lambda_+^0 - \lambda_-^0}{\lambda_+^0 + \lambda_-^0} \right)^2 \right] \quad (8)$$

ここで *T* は絶対温度、 η_0 と ϵ_0 はそれぞれ溶媒の粘性率と誘電率¹⁸⁾、 λ_+^0 と λ_-^0 はイオンの極限モル電導率である。Li⁺ と Cl⁻ イオンの高圧力下での極限モル電導率の値は文献値¹⁹⁾を用いて計算した。298.2K において *A*

Fig. 2. $(\eta/\eta_0 - 1 - Ac^{1/2})/c$ against *c* for aqueous lithium chloride solution at 278.2K, 298.2K and 318.2 K. ■, 0.1 MPa; ●, 100 MPa; ▲, 200 MPa; ◆, 300 MPa; ▼, 375 MPa.

(LiCl) は 0.1, 200MPa でそれぞれ 0.0068, 0.0062dm^{3/2} mol^{-1/2} となる。また温度に対しては、0.1MPa において 278.2, 298.2, 318.2K でそれぞれ 0.0068, 0.0070, 0.0071 dm^{3/2} mol^{-1/2} と変化する。²⁰⁾ これらの値から *A* 値は温度、圧力に対して直線的に変化するとみなして、各温度とも 375MPa まで補外して見積もった。この *A* 値と粘性率から式 (7) の左辺を計算した。Fig. 2 は容量モル濃度 *c* に対して式 (7) の左辺をプロットしたものである。容量モル濃度への変換は Table II の密度の値を用いて行った。何れの圧力でも直線関係が得られており、切片から *B* 値を見積もることができる。0.1MPa において *B* 値は 278.2, 298.2, 318.2K でそれぞれ 0.126, 0.136, 0.138 dm³ mol⁻¹ である。Out と Los の *B* 値は 278.2, 298.2, 318.2K でそれぞれ 0.1246, 0.1367, 0.1416 dm³ mol⁻¹ であり²⁰⁾、また 298.2K では Laurence と Wolfenden が 0.139dm³ mol⁻¹²¹⁾、Desnoyers と Perron が 0.138dm³ mol⁻¹²²⁾ と見積もっている。何れも我々の値と一致している。Fig. 3 には高圧力下での *B* 係数の挙動を示した。この図によると測定温

Fig. 3. Pressure dependence of B for lithium chloride in water at 278.2 K (■), 298.2 K (●), and 318.2 K (▲).

度範囲において B 係数は加圧とともに減少するのみであり, NaCl, KCl, CsCl で観測された 100-200MPa 付近での極大は見られない. ただし 278.2K では 0.1-100MPa の範囲で上に凸の曲線になっており, さらに低温になると極大を生じるかもしれない. また Fig. 3 の三本の等温曲線は加圧とともに収束し, 100MPa 以上でほぼ一本の線になっている.

電解質の B 係数は, 個々のイオンの寄与の和 [$B(\text{MX}) = B(\text{M}^+) + B(\text{X}^-)$] として表されることが知られている. しかしながら, 実験的には直接個々のイオンの B 係数を求めることができないため, これまでいくつかのイオン分割法が提案されてきた. 例えば Kaminsky は $B(\text{K}^+) = B(\text{Cl}^-)^{23}$ を, Nightingale は $B(\text{Rb}^+) = B(\text{Br}^-)^{24}$ を基準とした分割法を提案しているが, それぞれに一長一短がある. 本研究では便宜上 Kaminsky の方法を採用し, これが高圧力下でも成り立つとして解析した. その結果を Fig. 4 に示す. Li^+ イオンの B は何れの温度でも加圧とともに減少するのに対し, Cl^- イオンでは加圧とともに最初増加した後, 極大を経て減少する. また圧力一定の下での温度依存性に着目すると Li^+ は温度とともに減少し, 一方 Cl^- では B は温度とともに増加する. $B(\text{Li}^+)$ と $B(\text{Cl}^-)$ の挙動は圧力依存性のみならず温度依存性においても異なる挙動を示す.

より詳細に B 係数の解釈をするために Kalugin らは B を三つの寄与, すなわち Einstein 効果 (B_E), 配向効果 (B_D), 構造的効果 (B_S) に分類している.²⁵⁾ これと類似の概念は Stokes と Mills によっても提案されている.²⁶⁾ Einstein 効果は溶質のサイズや形に起因し, B に正の寄与をする. ここで言う配向効果は誘電摩擦効果に相当する. 誘電摩擦はイオン周囲の溶媒双極子の誘電緩和の遅れから生じる摩擦で, その影響はイオンの表面電荷密度とともに大きくなる. この効果も B に正の寄与をする. 構造効果は溶媒の構造形成, 構造破壊効果のことである. この構造形成効果と構造破壊効果は, それぞれ B に正

Fig. 4. Pressure dependence of B for Li^+ and Cl^- in water at 278.2 K (■), 298.2 K (●), and 318.2 K (▲). ---, B_D ; ···, B_E .

と負の寄与をする. B はこれらの因子の和として次のように書き表すことができる.

$$B = B_E + B_D + B_S \quad (9)$$

よく知られているように B_E は式 (10) によって表される. B_D の寄与は伊吹と中原によって, Hubbard-Onsager の電気流体力学方程式から式 (11) のように導かれている.²⁷⁾

$$B_E = \frac{4\pi R^3}{3} \frac{N}{1000}, \quad (10)$$

$$B_D = R_{\text{HO}}^3 \frac{N}{1000} \exp \left(2.631 + \sum_{j=1}^4 a_j \left[\frac{R}{R_{\text{HO}}} \right]^j \right), \quad (11)$$

ここで N はアボガドロ数, a_j は展開係数,²⁷⁾ R は結晶イオン半径,²⁸⁾ そして R_{HO} は溶媒パラメータで, Hubbard-Onsager 理論の中で次のように定義される.^{29), 30)}

$$R_{\text{HO}} = \left(\frac{e^2(\epsilon_0 - \epsilon_\infty)\tau_D}{16\pi\eta\epsilon_0^2} \right)^{1/4} \quad (12)$$

ここで τ_D は溶媒の誘電緩和時間,³¹⁾ ϵ_∞ は溶媒の高周波誘電率³²⁾である. 式 (10)~(12) から, Li^+ と Cl^- イオンの B_E と B_D の寄与をそれぞれ見積もって Fig. 4 に示した.

Fig. 5. Pressure dependence of B_s for alkali metal ions in water at 283.2 K (□), 298.2 K (○), and 323.2 K (△). (■: 278.2 K, ●: 298.2 K, and ▲: 318.2 K for Li^+).

B_E は R が温度、圧力に依存しないとして見積もっている。 B_D は加圧とともに減少している。常圧から200MPaまでの Li^+ イオンの B の急激な減少や Cl^- イオンの B の急激な増加は、明らかにこれら B_E や B_D からの寄与によるものでないことがわかり、式 (9) の B_s の寄与によるものと示唆される。

3・3・2 アルカリ金属イオンの B 係数の比較 Fig. 5 には式 (9) を用いて見積もった Li^+ イオンの B_s の挙動を示す。また比較のため Na^+ , K^+ (= Cl^-) および Cs^+ イオンの結果もあわせて示した。 B_s の圧力依存性に対するイオン間の相違は 200MPa 以下の低圧側において見られ、圧力係数は Li^+ , Na^+ , K^+ , Cs^+ のイオン半径の順に負から正へと大きくなっている。従来から B 係数のイオン種による正負の違いは Frank と Wen が提案したイオンの水和モデルで理解されてきた。³³⁾ このモデルでは、二つの異なった水からなる二重の水和層を想定している。イオンに接した内側の領域には、イオンに強く配向した秩序構造の水和層があり、その外側には配向性がバルク水以上に乱れた無秩序な水和層が存在する。構造形成、あるいは構造破壊効果の強さは、この二つの水和層の相対的な

大きさによってきまる。このモデルによると、イオン半径が小さいほど、クーロン力によって前者の水和層の寄与（構造形成）が大きくなるので、 B 値は大きくなる。逆にイオン半径が大きくなるにしたがって、クーロン力が弱くなり、後者の寄与（構造破壊）が相対的に強くなる。その結果 Li^+ イオンのような小さなイオンの B 係数は正で、 Cs^+ イオンのような大きなイオンの B 係数は負となる。この Frank-Wen の水和モデルに基づいて、 B 係数の圧力依存性を考察してみる。 Cs^+ イオンでは $(\partial B_s / \partial p) > 0$ となるが、これは加圧により水の構造性が弱められ、バルク水自体が無秩序な水和層のような構造性に近づき、 Cs^+ イオンの構造破壊効果が相対的に弱まるためと理解できる（無秩序層の水は圧力によって変化しにくいとみなしている）。Reddy と Berkowitz の 268K での MD 実験³⁴⁾ によるとバルク水の回転相関時間は 200MPa の加圧で 13% 低下しているのに対し、 Cs^+ イオンの水和水は 3% しか低下しない。このことは先に述べた B 値の相対的増加を裏づけるものである。一方 Li^+ イオンの場合も Cs^+ イオンと同様、バルク水破壊による B 係数増大の寄与はあると考えられるが、 $(\partial B_s / \partial p) < 0$ となることから、 B 係数減少の寄与の方がより大きいと考えられる。このことから Li^+ イオンでは、加圧によってバルク水とともに秩序性の高い水和水の構造もいくらかこわされていると考えられる。このように二つの水和層の相反する寄与が競合し、 B_s の圧力依存性に反映されていると理解できる。100-200MPa までの低圧側で B_s の圧力係数が、イオン半径の順に負から正へと変化しているのもそのためである。

本研究によって、アルカリ金属イオンの B 係数の圧力依存性が、水和水やバルク水の破壊効果と、連続媒体としての誘電摩擦の減少の効果とを反映していること、そして水の構造性が高い低圧側においては、前者の効果がより支配的であることを示唆する結果が得られた。

参 考 文 献

- 1) G. Jones and M. Dole, J. Am. Chem. Soc., **51**, 2950 (1929).
- 2) R. W. Gurney, "Ionic Processes in Solution", Chap. 9 (1962) McGraw-Hill.
- 3) K. E. Bett and J. B. Cappi, Nature, **207**, 620 (1965).
- 4) R. A. Horne and D. S. Johnson, J. Phys. Chem., **70**, 2182 (1966).
- 5) J. Jonas, T. DeFries and D. J. Wibleur, J. Chem. Phys., **65**, 582. (1976)
- 6) T. DeFries and J. Jonas, J. Chem. Phys., **66**, 896 (1977).
- 7) S. Sawamura, Y. Yoshimura, K. Kitamura and Y. Taniguchi, J. Phys. Chem., **96**, 5526 (1992).
- 8) 中井武裕, 澤村精治, 谷口吉弘, 材料, **45**, 280 (1996).
- 9) T. Nakai, S. Sawamura, Y. Taniguchi and T. Kuboyama, Mater. Sci. Res. Int., **3**, 204 (1997).
- 10) T. Nakai, S. Sawamura and Y. Taniguchi, J. Mol. Liq., **65/66**, 365 (1995).
- 11) T. Nakai, S. Sawamura, Y. Taniguchi and Y. Yamaura,

- Mater. Sci. Res. Int., **2**, 143 (1996).
- 12) S. Sawamura, N. Takeuchi, K. Kitamura and Y. Taniguchi, Rev. Sci. Instrum., **61** 871, (1990).
- 13) Y. K. Lee, J. H. Campbell and J. Jonas, J. Chem. Phys., **60**, 3537 (1974).
- 14) G. Jones and S. K. Talley, J. Am. Chem. Soc., **55**, 624 (1933).
- 15) G. Jones and H. J. Fornwalt, J. Am. Chem. Soc., **58**, 619 (1936).
- 16) H. Falkenhagen and E. L. Vernon, Phil. Mag., **14**, 537 (1932).
- 17) International Association for the Properties of Steam "The IAPS Formulation 1985 for the Viscosity of Ordinary Water Substance" (1985).
- 18) K. R. Srinivasan and R. L. Kay, J. Chem. Phys., **60**, 3645 (1974).
- 19) M. Ueno, N. Tsuchihashi, K. Yoshida and K. Ibuki, J. Chem. Phys., **105**, 3662 (1996).
- 20) D. J. Out and J. M. Los, J. Sol. Chem., **9**, 19 (1980).
- 21) V. D. Laurence and J. H. Wolfenden, J. Chem. Soc., 1144 (1934).
- 22) J. E. Desnoyers and G. Perron, J. Sol. Chem., **1**, 199 (1972).
- 23) M. Kaminsky, Discuss. Faraday Soc., **24**, 171 (1957).
- 24) E. R. Nightingale, J. Phys. Chem., **63**, 1381 (1959).
- 25) O. N. Kalugin, M. A. Gorobetz, R. M. N. Jalah, I. N. Vjunnik and Y. N. Zavgorodnij, Z. Phys. Chem., **199**, 145 (1997).
- 26) R. H. Stokes and R. Mills, "Viscosity of Electrolytes and Related Properties" (1965) Pergamon.
- 27) K. Ibuki and M. Nakahara, J. Chem. Phys., **85**, 7312 (1986).
- 28) L. Pauling, "The Nature of the Chemical Bond", p. 514 (1960) Cornell University.
- 29) J. Hubbard and L. Onsager, J. Chem. Phys., **67**, 4850 (1977).
- 30) J. Hubbard, J. Chem. Phys., **68**, 1649 (1978).
- 31) R. Pottel, E. Asselborn, R. Eck and V. Tresp, Ber. Bunsenges. Phys. Chem., **93**, 676 (1989).
- 32) J. B. Hasted, "Water", Vol. 1 (ed. by F. Franks), p. 277 (1972) Plenum.
- 33) H. S. Frank and W. Y. Wen, Discuss. Faraday Soc., **24**, 33 (1957).
- 34) M. R. Reddy and M. Berkowitz, J. Sol. Chem., **17**, 1183 (1988).