

Molecular Connectivity法을 이용한 有機化合物과 二成分 混合物에 對한 物理化學의 性質에 關한 研究(II)

金宜洛* · 閔廣燮 · 李明載† · 金相海 · 鄭鳳鎭

啓明大學校 自然科學大學 化學科

† 카톨릭 醫科大學 化學科

(1992. 1. 21 접수)

The Study of Physical Properties for the Organic Compounds and their Binary Mixture according to Molecular Connectivity Method

Ui-Rak Kim*, Kyung-Sub Min, Myung-Jae Lee[†], Sang-Hae Kim, and Bong-Jin Jeong

Department of Chemistry, Keimyung University, Daegu 704-701, Korea

[†]Department of Chemistry, Catholic Medical College, Seoul 137-701, Korea

(Received January 21, 1992)

요 약. 기체 및 액체 상태의 여러가지 유기화합물(alcohol, acetate, alkane, acid 및 substituted NH₂)과 이성분계 혼합용액(*n*-alkane/1-chloroalkane)에 대한 점성도를 계산하기 위하여, 분자의 크기, 가지의 형태, 환상구조, 불포화의 정도, 분극성 등이 분자의 성질에 미치는 영향을 잘 설명하여 주는 molecular connectivity index, Wiener index 및 ad hoc descriptor 방법을 이용하였다. 그 결과 기체 상태에 대해서는 Wiener index 방법이, 액체 상태에 대해서는 ad hoc descriptor 방법이 그리고 이성분계에 대해서는 molecular connectivity index 방법이 우수한 방법임을 알 수 있었으며, 각각의 방법으로 구한 최적 상관관계식을 이용하여 점성도를 계산하였고, 이와같이 구한 이론치와 점성도의 실측치를 비교할 때, 매우 잘 일치하는 결과를 얻을 수 있었다.

ABSTRACT. The viscosities of organic compounds (alcohols, acetates, alkanes, acids, substituted NH₂) in liquid states, gas states and the binary mixtures of *n*-alkane/1-chloroalkane were calculated by molecular modeling techniques. The molecular descriptors of molecular modeling technique are Molecular connectivity indices, Wiener indices and ad hoc descriptors, which can encode the information of compound properties about the effect of size, branching, cyclization, unsaturation, heteroatom content, polarizability, and so on. The successful results among method have been Molecular connectivity indices, binary mixtures of *n*-alkane/1-chloroalkane, Wiener indices for gas state and ad hoc descriptor for liquid states. Also we obtained the regression equations for viscosities using molecular modeling indices for gas, liquid states and binary mixtures of *n*-alkane/1-chloroalkane. The calculated viscosity values for organic compounds are in good agreement with experimental results.

서 론

Maxwell이 운동론(kinetic theory)을 이용하여 묽은기체의 점성도(viscosity)에 대하여 연구한 이후, 기체, 액체 및 이성분 혼합용액의 점성도에 대하여 많은 연구가 이루어지고 있다¹⁻³.

본 연구에서는 분자의 구조와 점성도와의 관계를 규명하기 위하여 분자구조와 여러가지 성질을 기술

하는 Molecular modeling technique인 molecular connectivity index⁴⁻⁶, Wiener index⁷⁻¹⁰ 및 ad hoc descriptor¹¹⁻¹³ 방법 등으로, 기체 및 액체 상태의 여러가지 유기화합물(alcohol, acetate, alkane, acid 및 substituted NH₂)과 이성분계 혼합용액(*n*-alkane/1-chloroalkane)에 대하여 점성도를 계산한 값과 실측치를 비교하여 어느 방법이 좋은 방법인지를 밝

힘으로써, 유사한 물질들의 점성도를 직접 측정하지 않고, 간단한 이론적 계산으로 점성도를 예측하여, 여러 분야에서 이용할 수 있게 하였다.

계산방법

Data

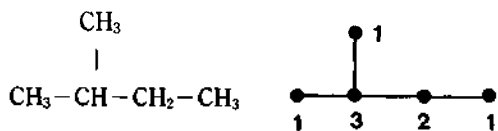
여러가지 유기화합물의 점성도와 modeling parameter와의 상관계를 규명하기 위하여, 20°C에서 액체상태인 acetate, acid, alkane, alcohol계열 및 NH₂를 갖는 유기화합물들과 100°C에서 기체상태인 유기화합물의 실측치^{14,15}를 이용하였으며, 이성분계 용액의 점성도는 A. Antonio 등¹⁶이 발표한 실측치를 이용하였다.

Parameters

Molecular connectivity index⁴⁻⁶. 수소원자를 제외한 탄소 골격구조에서, 인접하여 결합하고 있는 원자의 수에 따라 Δ_i 값을 정하고, 이들 값을 이용하여 molecular connectivity index, χ 를 계산할 수 있다. 가장 간단한 영차 connectivity index, ${}^0\chi$ 는 각 원자에 대하여 다음과 같은 식으로부터 구할 수 있다.

$${}^0\chi = \sum_{atom} (\delta_i)^{-1/2} \quad (1)$$

즉, 2-methylbutane에 대하여 적용해 보면 다음과 같다.



$${}^0\chi = 1/\sqrt{1} + 1/\sqrt{3} + 1/\sqrt{2} + 1/\sqrt{1} + 1/\sqrt{1} = 4.264$$

또한 각 골격구조에서 두 원자 사이를 한 결합단위로 분해하여, 다음과 같이 일차 connectivity index, ${}^1\chi$ 를 구할 수 있다.

$${}^1\chi = \sum_{bond} (\delta_i \cdot \delta_j)^{-1/2}$$

같은 방법으로, 세원자 또는 네원자 사이를 연결한 2-결합단위, 3-결합단위 등으로 나누어 ${}^2\chi$, ${}^3\chi$ 를 구할

Table 1. δ and δ' values for hetero atoms

Atom(group)	Type of molecule	δ	δ'
-OH	alcohol	1	5
=O	Carbonyl	1	6
-O-	ether	2	6
-NH ₂	pri-amine	1	3
-NH-	sec-amine	2	4
>N-	tert-amine	3	5
=N	nitrile	1	5
-N=	pyridine	2	5
-N<	nitro	3	5

수 있고, 확장하여 n 차 connectivity index, ${}^n\chi$ 를 구할 수 있다.

$${}^2\chi = \sum (\delta_i \cdot \delta_j \cdot \delta_k)^{-1/2} \quad (2)$$

$${}^3\chi = \sum (\delta_i \cdot \delta_j \cdot \delta_k \cdot \delta_l)^{-1/2} \quad (3)$$

⋮

$${}^n\chi = \sum (\delta_1 \cdot \delta_2 \cdot \delta_3 \cdots \delta_{n+1})^{-1/2} \quad (4)$$

특히 다중 결합을 갖거나, hetero atom을 갖는 화합물들은 δ_i 값 대신 hetero atom이 몇개의 수소원자와 결합하고 있느냐에 따라 주어지는 valence δ 값을 이용한다. 이때 valence δ 인 δ' 값의 일반식을 나타내면 다음과 같다.

$$\Delta' = Z' - h$$

여기서 Z' 는 원자의 최외각 전자수이고, h 는 결합하고 있는 수소원자의 수이다. 이와같이 나타낸 hetero atom의 δ' 값을 나타내면 Table 1과 같다.

Table 1 및 Table 2과 같은 방법으로 구한 valence δ 을 이용하여, (1)~(4)식과 같은 방법으로 valence connectivity index, ${}^n\chi'$ 를 구할 수 있고, 이렇게 구한 ${}^0\chi'$, ${}^1\chi'$, ${}^2\chi'$, ${}^3\chi'$, ..., ${}^n\chi'$ 등이 molecular connectivity index법의 parameter값으로 이용된다.

Wiener index⁷⁻¹⁰. Wiener index, W 는 탄소 골격원자 사이의 탄소-탄소 결합을 단위길이로 하여, 결합 원자간 거리를 합한 값이다. 예를들어 2-methylbutane을 살펴보면, Wiener index W 는 다음과 같다.

Table 2. The skeleton formulas of butane, butene, butyne and benzene with δ^* values and $1X^*$ indices

	δ^*	$1X^*$
CH ₃ -CH ₂ -CH ₂ -CH ₃		1.914
CH ₃ -CH ₂ -CH=CH ₂		1.524
CH ₃ -CH ₂ -C≡CH		1.404
		2.000

	0				
CH ₃	1	0			
	2	1	0		
CH ₃ -CH-CH ₂ -CH ₃	3	2	1	0	
	2	1	2	3	0
	$W=8+4+3+3+0=18$				

일반적으로 W 는 분자내 각 원자들의 결합구조에 의한 분자내 상호인력을 잘 설명하는 값으로서, 분자의 사슬길이가 길수록 그 값이 큰 값을 나타내며, 같은 원자의 수이더라도 사슬 이성체(extended isomer)보다 가지 달린 이성체(branched isomer)가 적은 값을 나타낸다. W 은 W 를 탄소원자수의 제곱 (N_c^2)로 나눈 값으로 reduced wiener index라 한다. 또한 3개의 C-C결합을 단위값으로 하여 얻어지는 P_3 값은 2-methyl butane의 경우($C_1-C_2-C_3-C_4$), ($C_3-C_2-C_3-C_4$)로서 두가지가 얻어지며, 임의의 분자가 인접한 분자에 미치는 극성의 크기 등 입체효과를 잘 설명하므로, polarizability factor라고도 한다.

또한 Wiener index W 에 P_3 의 값을 합하여 구한 modified wiener index, W_{mod} 도 parameter로 이용된다. 한편, Platt¹⁷에 의해 도입된 "f" parameter는 분자의 탄소 골격 구조에서, 각 C-C결합을 한 단위로 하여 그 주위에 결합된 탄소의 수를 나타낸다. 예를 들면, 2-methylbutane의 경우 $f=2(C_1-C_2)+3(C_2-C_3)+1(C_3-C_4)+2(C_2-C_3)=8$ 이 된다.

또한 atomic site parameter, S_i ¹⁸가 이용되는데, 이는 어떤 형태로 원자 i 로부터 다른 원자까지의 단위길이의 합으로 얻어진다. 이것은 형태로 원자가

갖는 전하 밀도가 분자내의 다른 원자에 미치는 영향을 잘 설명한다. 예를들면 iso-butanol의 경우, 산소 원자에 대한 atomic site parameter, $S_{ox}=3+3+2+1=9$ 가 된다.

ad hoc descriptor¹¹⁻¹³. 최근 연구된 ad hoc descriptor는 분자구조의 가장 간단한 정량적 기술방법으로 여러가지 분자의 특성을 설명하는데 유용하게 사용된다. 사용되는 parameter로서는 탄소원자의 수 (N_c), 말단에 위치한 methyl group의 수(T_m) 그리고 3개의 결합을 갖는 말단 methyl group의 수(T_3) 등이 있다.

Wiener index에서의 P_3 parameter가 여기에서도 사용되며, 이때 $1/N_c$, N_c^2 , T_3^2 그리고 T_m^2 등이 parameter로서 역시 이용된다.

결과 및 고찰

일성분계 유기화합물의 계산. 20°C 액체상태인 유기화합물들과 100°C 기체상태에서의 여러가지 화합물에 대한 점성도를 구하기 위하여, 계산방법에서와 같은 방법으로 parameter값을 구하여 Table 3에 나타내었다.

다음은 Table 3의 parameter값과 점성도의 실측치를 최소 자승법을 이용하여 중회귀 분석한 결과, 화합물들의 점성도 계산에 사용되는 parameter의 종류 그리고 이들 각각의 parameter를 사용할 때 얻어지는 상관계수와 표준편차를 구하여 Table 4에 나타내었다.

먼저 acetate류에 대한 점성도와 parameter의 상관관계를 살펴보면, ad hoc descriptor 방법에서는 탄소원자의 수 N_c 와 Wiener index 방법에서는 N_c 와 W 이 주된 parameter로 사용됨을 알 수 있다. 한편 acid종은 높은 극성으로 인하여, 분자내 수소결합 혹은 분자간 수소결합에 의해 이합체(dimer)가 형성되기 쉬운 특성을 갖고 있다. 이러한 분자들의 계산에 사용된 parameter들을 살펴보면, ad hoc descriptor법의 경우, 이들 특성에 부합되는 P_3 가 도입됨으로서 더 좋은 상관관계를 보여주며, 또한 Wiener index법의 경우, N_c 와 W , parameter의 사용으로, 분자내 알킬기의 크기에 따른 영향을 잘 설명하고 있다. alkane류의 경우, 분자의 극성, 다중

Table 3. Parameter values for various organic compounds

	${}^0\chi^r$	${}^1\chi^r$	${}^2\chi^r$	${}^3\chi^r$	${}^4\chi^r$	${}^5\chi^r$	N_c	W	W_r	f	P_3	T_m	T_3
Methyl acetate	3.317	1.317	0.696	0.288	0.000	0.000	3	18	2	8	2	2	
Ethyl acetate	4.024	1.904	0.925	0.348	0.203	0.000	4	32	2	10	3	2	2
Propyl acetate	4.731	2.404	1.340	0.509	0.246	0.144	5	52	2.08	12	4	2	2
Butyl acetate	5.438	2.904	1.694	0.803	0.360	0.174	6	78	2.167	14	5	2	2
Hexyl acetate	6.852	3.904	2.401	1.303	0.745	0.402	8	158	2.469	18	7	2	2
2,3-dimethylhexyl acetate	8.593	4.671	3.704	2.247	0.955	0.510	10	247	2.47	25	11	4	5
2,2-dimethylhexyl acetate	8.645	4.551	4.358	1.626	0.973	0.579	10	252	2.52	28	9	4	4
Acetic acid	2.356	0.928	0.519	0.000	0.000	0.000	2	9	2.25	6	6	1	0
Propionic acid	3.063	1.488	0.747	0.303	0.000	0.000	3	18	2	8	2	1	2
Butyric acid	3.569	2.023	1.077	0.512	0.158	0.000	4	20	1.25	6	4	1	1
Isobutyric acid	3.732	1.879	1.576	0.365	0.000	0.000	4	18	1.125	8	2	2	2
Salicylic acid	5.111	2.729	1.822	1.135	0.655	0.342	7	115	2.347	26	15	0	0
Hydrazine	1.155	0.333	0.000	0.000	0.000	0.000	0	1	1	0	0	0	0
Aniline	4.233	2.199	1.411	0.800	0.453	0.257	5	42	1.68	16	8	0	0
m-bromoaniline	6.469	3.535	2.953	1.675	1.207	0.544	6	56	1.556	20	10	0	0
Toluidine	4.887	2.616	1.857	1.189	0.587	0.310	7	60	1.224	20	11	1	3
Ethane	2.000	1.000	0.000	0.000	0.000	0.000	2	1	0.25	0	0	2	0
Propane	2.707	1.414	0.707	0.000	0.000	0.000	3	4	0.444	2	0	2	0
Pentane	4.121	2.414	1.354	0.707	0.354	0.000	5	20	0.8	6	2	2	2
Isopentane	4.285	2.270	1.802	0.817	0.000	0.000	5	18	0.72	8	2	3	2
Hexane	4.828	2.914	1.707	0.957	0.500	0.250	6	35	0.972	8	3	2	2
Isohexane	4.992	2.770	2.183	0.866	0.577	0.000	6	22	2.2	10	3	3	3
Heptane	5.536	3.414	2.061	1.207	0.677	0.354	7	56	1.143	10	4	2	2
Isoheptane	5.699	3.270	2.536	1.135	0.612	0.408	7	52	1.061	12	4	3	3
n-octane	6.243	3.914	2.414	1.457	0.854	0.479	8	83	1.297	12	5	2	2
n-nonane	6.950	4.414	2.768	1.707	1.030	0.604	9	118	1.457	14	6	2	2
n-decane	7.657	4.194	3.121	1.957	1.207	0.729	10	163	1.63	16	7	2	2
n-dodecane	9.071	5.914	3.828	2.457	1.561	0.979	12	284	1.972	20	9	2	2
n-hexadecane	1.900	7.914	5.243	3.457	2.268	1.479	16	678	2.638	28	13	2	2
2,2-dimethyl heptane	7.328	4.061	4.018	1.530	0.905	0.500	9	104	1.284	20	6	4	4
1,1,3-trimethyl hexane	7.276	4.164	4.523	1.655	1.415	0.354	9	102	1.269	18	7	4	5
2-propyl heptane	7.820	4.808	3.390	2.082	1.380	0.637	10	148	1.48	18	8	3	4
1,2-dimethyl cyclopropane	3.862	2.305	2.190	1.276	0.236	0.000	5	16	0.64	14	3	2	2
2,2,3-trimethyl butane	6.077	2.943	3.521	1.732	0.000	0.000	6	32	0.889	17	6	5	4
Ethylene	1.414	0.500	0.000	0.000	0.000	0.000	2	1	0.25	0	0	2	0
Propylene	2.285	0.986	0.408	0.000	0.000	0.000	3	4	0.444	2	0	2	0
Trimethylethylene	4.077	1.866	1.366	0.577	0.000	0.000	5	13	0.52	8	2	3	2
Benzene	3.464	2.000	1.155	0.667	0.385	0.222	6	27	0.75	12	6	0	0
Diethyl ether	3.823	1.992	0.782	0.408	0.204	0.000	4	20	1.25	6	2	2	2
Methanol	1.447	0.447	0.000	0.000	0.000	0.000	1	1	1	0	0	1	0
Ethanol	2.154	1.023	0.316	0.000	0.000	0.000	2	4	1	2	0	1	0
n-propanol	2.861	1.523	0.724	0.224	0.000	0.000	3	10	1.111	4	1	1	1
Isopropanol	3.025	1.413	1.094	0.000	0.000	0.000	3	9	1	6	0	2	0
n-chlorobutane	4.317	2.552	1.451	0.776	0.423	0.000	4	20	1.25	6	2	1	1
n-chlorooctane	7.145	4.552	2.865	1.776	1.079	0.638	8	120	1.875	14	6	1	1
n-chlorooctadecane	14.216	9.552	6.401	4.276	2.847	1.888	16	1138	3.445	30	16	1	1

Table 4. Regression coefficients and standard deviations for one-, two- and three-parameter models

Compounds	Connectivity indices			Wiener indices			ad hoc descriptor		
	parameter	r	s.e.	parameter	r	s.e.	parameter	r	s.e.
Acetates	$^0\chi^c$	0.994	0.015	N_c	0.991	0.012	N_c^2	0.997	0.094
	$^0\chi^c \ ^2\chi^c$	0.995	0.014	N_c, W_c	0.999	0.005	N_c^2, N_c	0.998	0.112
	$^0\chi^c \ ^2\chi^c \ ^1\chi^c$	0.995	0.014	N_c, W_c, f	0.999	0.005	$N_c^2, N_c, 1/N_c$	0.999	0.000
Acids	$^4\chi^c$	0.959	0.254	W	0.958	0.114	N_c^2	0.938	0.141
	$^4\chi^c \ ^3\chi^c$	0.966	0.358	W, W_c	0.994	0.015	$N_c^2, 1/N_c$	0.977	0.085
	$^4\chi^c \ ^3\chi^c \ ^0\chi^c$	0.995	0.300	W, W_c, N_c	0.999	0.010	$N_c^2, 1/N_c, P$	0.999	0.010
	$^2\chi^c$	0.950	0.451	W_c	0.870	0.584	P	0.793	.917
Substituted NH ₂	$^2\chi^c \ ^3\chi^c$	0.969	0.233	W, P	0.880	0.610	P, T_m	0.946	0.44 ^o
	$^2\chi^c \ ^3\chi^c \ ^1\chi^c$	0.999	0.071	W, P, N_c	0.960	0.805	P, T_m, N_c	0.998	0.10 ^o
	$^1\chi^c$	0.962	0.548	W	0.999	0.011	N_c^2	0.984	0.112
Alkanes	$^1\chi^c \ ^3\chi^c$	0.970	0.536	W, N_c	0.999	0.0111	N_c^2, N_c	0.999	0.017
	$^1\chi^c \ ^2\chi^c \ ^1\chi^c$	0.970	0.537	W, N_c, f	0.999	.010	$N_c^2, N_c, 1/N_c$	0.999	0.032
	$^0\chi^c$	0.932	1.515	N_c	0.963	0.331	N_c	0.963	0.331
Alcohols	$^0\chi^c \ ^4\chi^c$	0.988	1.455	N_c, W	0.974	0.274	$N_c, 1/N_c$	0.988	0.189
	$^0\chi^c \ ^4\chi^c \ ^1\chi^c$	0.989	0.448	N_c, W, W_c	0.976	0.962	$N_c, 1/N_c, P$	0.992	0.151
	$^2\chi^c$	0.899	4.436	N_c	0.746	6.674	N_c	0.746	6.674
Gas States	$^2\chi^c \ ^4\chi^c$	0.917	3.878	N_c, P	0.801	6.643	N_c, N_c^2	0.813	5.829
	$^2\chi^c \ ^4\chi^c \ ^5\chi^c$	0.989	3.870	N_c, P, W_c	0.927	3.675	N_c, P_c^2, P	0.827	5.609

결합, 비공유 전자쌍 등이 존재하지 않으므로 분자 간의 인력은 매우 작게 나타난다. 따라서 이들 분자종의 경우에는 분자내 상호작용이 점성도에 더 큰 영향을 미치며, 따라서 주된 parameter는 $^1\chi, W$ 및 N_c 등이 된다. 일반적으로 alcohol은 점성도가 다른 형태의 분자종보다 훨씬 크게 나타나는데, 이러한 특성은 alcohol에 있는 수산기(-OH)에 의한 수소 결합에 기인한 것으로 생각된다. 따라서 ad hoc descriptor법의 경우 분자의 입체효과(steric effect)를 잘 설명하는 P_3 parameter의 이용으로 보다 우수한 결과를 얻을 수 있다.

마지막으로 100°C에서 기체상태인 여러가지 유기 화합물의 점성도에서는, 기체분자 상호간에 작용하는 인력이 액체에 비하여 매우 적고, 유동하는 특성을 가지고 있으므로, 분자 그 자체의 크기와 질량 등에 크게 영향을 받을 것으로 예측되며, 사용된 parameter 역시 분자의 길이 및 분자 사슬의 형태 등과 밀접한 관계가 있는 W_c 및 N_c 등이 주로 쓰이고 있다. Table 3 전체를 살펴보면 액체에 대하여는 이들 세가지 방법은 모두 0.98 이상의 높은 상관계수(r) 값과 작은 표준편차(s.e.)로서, 점성도의 실측치와

좋은 상관관계를 보여준다. 그러나 기체상태에서 ad hoc descriptor법의 경우, 상관계수가 0.827이고 표준편차는 5.609로서 비교적 저조한 결과를 보이나, Wiener index법을 사용함으로써 해결할 수 있다. 따라서 다음과 같은 결론을 내릴 수 있다. 기체 상태에 대해서는 Wiener index 방법이, 기체와 액체 모두에 대해서는 molecular connectivity index법에 최적 방법으로 고려된다.

다음은 여러가지 parameter값을 이용하여, 실측치와의 상관관계 분석에 의해 구한 최적 상관관계식을 Table 5~7에 나타내었다.

Table 5는 molecular connectivity index 방법을 이용할 때 점성도의 이론적 계산을 위한 최적 상관관계를 나타낸 것으로, 공통적으로 3개 이하의 parameter를 이용하여 비교적 정확한 점성도의 계산이 가능함을 보여준다. acetate, alkane, alcohol류의 경우, 두개의 parameter로서 상관계수가 0.98 이상인 좋은 결과를 얻을 수 있었다. 다만 alkane의 경우에 표준편차(0.536)가 다소 저조하게 나타나는데, 이는 n-hexadecane의 경우 긴 사슬구조로 인하여 큰 분자간 상호인력이 나타나는데, molecular connecti-

Table 5. Multiple regression equations for viscosity using molecular connectivity indices

Acetates	$= 0.1398 {}^0\chi^r + 0.0485 {}^2\chi^r - 0.1297$
	$n=10 \quad r=0.9948 \quad \text{s.e.}=0.014$
Acids	$= -0.7076 {}^0\chi^r + 2.3555 {}^2\chi^r + 1.001 {}^4\chi^r + 2.9748$
	$n=5 \quad r=0.9951 \quad \text{s.e.}=0.300$
Substituted	$= 1.4994 {}^1\chi^r + 4.397 {}^2\chi^r - 6.8194 {}^3\chi^r + 0.4554$
	$n=5 \quad r=0.997 \quad \text{s.e.}=0.071$
Alkanes	$= 0.0833 {}^0\chi^r + 0.3631 {}^2\chi^r - 0.2653$
	$n=14 \quad r=0.9697 \quad \text{s.e.}=0.536$
Alcohols	$= 0.9469 {}^0\chi^r + 3.8271 {}^2\chi^r - 0.7969$
	$n=11 \quad r=0.9880 \quad \text{s.e.}=1.455$
Gas states	$= -27.8223 {}^2\chi^r + 11.6694 {}^4\chi^r + 19.6278 {}^5\chi^r$
	$+ 137.2735$
	$n=16 \quad r=0.9436 \quad \text{s.e.}=3.870$

Table 6. Multiple regression equations for viscosity using Wiener index

Acetates	$= 0.0852 N_c + 0.4764 W_r - 0.8310$
	$n=10 \quad r=0.9991 \quad \text{s.e.}=0.0045$
Acids	$= -0.0161 W + 0.6682 N_c + 1.4244 W_r$
	$- 3.4505$
	$n=5 \quad r=0.9994 \quad \text{s.e.}=0.0100$
Substituted	$= -1.4612 N_c + 3.0760 W_r + 0.8594 P + 1.1435$
	$n=5 \quad r=0.9798 \quad \text{s.e.}=0.803$
Alkanes	$= 0.0047 W + 0.1462$
	$n=14 \quad r=0.9999 \quad \text{s.e.}=0.0112$
Alcohols	$= 0.0344 W + 0.5153 N_c + 0.0179$
	$n=11 \quad r=0.9740 \quad \text{s.e.}=0.2743$
Gas states	$= -13.4761 N_c - 10.6503 W_r + 5.8506 P$
	$+ 148.4511$
	$n=16 \quad r=0.9626 \quad \text{s.e.}=3.6756$

vity index 방법으로는 이러한 효과를 잘 설명하기 힘들기 때문에, 계산치(1.649)가 실측치(3.340)와 비교할 때 크게 벗어나며, 이에 따라 큰 편차를 보임에 의한 것이다.

Table 6는 Wiener index 방법을 이용하여 구한 최적 상관관계식을 나타낸 것으로, 둘 또는 세개의 parameter를 이용하여 점성도의 계산이 가능함을 보여준다. 특히 alkane류의 경우에는 한개의 parameter로서도 상관계수 0.999와 표준편차 0.100로서, 실측치에 거의 일치하는 계산값을 얻을 수 있는데, 이는 alkane류의 분자 특성에 의해 분자내 상호작용을 잘 설명하는 Wiener index, W 가 최적 상관관계식에서 중요한 parameter로서 이용됨을 잘 설

Table 7. Multiple regression equations for viscosity using ad hoc descriptor

Acetates	$= 0.3367 N_c - 0.0113 N_c^2 + 2.1246 1/N_c$
	$- 1.2365$
	$n=10 \quad r=0.9999 \quad \text{s.e.}=0.0000$
Acids	$= -0.2032 P + 0.1163 N_c^2 + 2.1872 1/N_c$
	$- 0.2534$
	$n=5 \quad r=0.9996 \quad \text{s.e.}=0.0100$
Substituted	$= -1.0885 N_c - 2.4810 T_m + 1.2413 P + 0.9458$
NH ₂	$n=5 \quad r=0.9977 \quad \text{s.e.}=0.1015$
Alkanes	$= -0.2126 N_c + 0.0235 N_c^2 + 0.7272$
	$n=14 \quad r=0.9996 \quad \text{s.e.}=0.0173$
Alcohols	$= -0.2126 N_c + 0.0235 N_c^2 + 0.7272$
	$n=14 \quad r=0.9996 \quad \text{s.e.}=0.0173$
Alcohols	$= 1.4584 N_c - 0.1824 P + 2.1450 1/N_c - 2.9108$
	$n=11 \quad r=0.9922 \quad \text{s.e.}=0.1513$
Gas states	$= -16.8259 N_c + 1.9892 P + 0.9180 N_c^2$
	$+ 142.8084$
	$n=16 \quad r=0.8270 \quad \text{s.e.}=5.6092$

명한다.

Table 7은 ad hoc descriptor를 이용하여 계산된 최적 상관관계식을 나타낸 것으로, 역시 세개 미만의 parameter로서 점성도의 계산이 가능함을 나타낸다. 액체 상태일 때 상관계수는 0.990 이상이며 표준편차는 0.100 미만으로 실측치에 잘 일치하는 값을 보여준다. 특히 acetate류의 경우에는 상관계수가 0.999로서 거의 1이며 표준편차는 0.000으로 실측값과 계산값의 좋은 일치를 나타낸다. 그러나 분자 상호간의 인력의 작용이 거의 없고 분자 자체의 구조적인 측면(분자량의 크기, 사슬의 구조)에 의해 결정되는 기체상태의 점성도는 명확하게 예측하기 어려운 단점을 갖고 있다.

다음은 Table 5에서 Table 7까지의 최적 상관관계식에, 앞에서 구한 parameter를 적용하여 계산된 점성도의 계산치와 실험적으로 얻어진 실측치를 Table 8과 Table 9에 나타내었다.

Table 8의 결과에서, acetate류의 경우 molecular connectivity index 방법은 산소가 가진 전하밀도 (electron density)와 분자사슬의 구조적인 특이성으로 설명하기 어렵기 때문에, 다른 방법을 이용한 결과보다는 저조한 결과를 보이나, 비교적 실측치에 가까운 값이 얻어진다. 이 경우 ad hoc descriptor 방법을 이용하면 실측치에 가장 근사한 결과를 나

Table 8. Viscosity of various organic compounds in liquid state at 20°C

Compound	Obsed ^a	Calc(1) ^a	Calc(2) ^b	Calc(3) ^c
Methyl acetate	0.38	0.37	0.38	0.38
Ethyl acetate	0.46	0.47	0.46	0.46
Propyl acetate	0.59	0.60	0.59	0.59
Butyl acetate	0.73	0.71	0.74	0.73
Hexyl acetate	—	0.94	1.03	1.00
2,3-dimethylhexyl acetate	—	1.25	1.20	1.21
2,2-dimethylhexyl acetate	—	1.29	1.20	1.21
2-rpopylamyl acetate	—	1.21	1.29	1.21
Acetic acid	1.31	1.31	1.30	1.30
Propionic acid	1.10	1.06	1.11	1.11
Butyric acid	1.54	1.61	1.57	1.54
Isobutyric acid	1.36	1.36	1.34	1.34
Salicylic acid	2.71	2.69	2.71	2.71
Hydrazine	0.97	0.95	1.14	0.95
Aniline	4.40	4.47	2.94	4.35
m-bromoaniline	6.81	6.80	6.27	6.83
Toluidine	4.39	4.39	4.13	4.50
o-pentidine	6.08	6.05	6.72	5.89
Pentane	0.24	0.19	0.24	0.25
Isopentane	0.22	0.22	0.23	0.25
Hexane	0.33	0.33	0.31	0.29
Isohexane	0.31	0.28	0.30	0.29
Heptane	0.41	0.46	0.41	0.39
Isoheptane	0.38	0.42	0.39	0.39
n-octane	0.54	0.59	0.55	0.52
n-nonane	0.71	0.72	0.72	0.71
n-decane	0.92	0.86	0.93	0.95
n-hexadecane	3.34	1.65	3.35	3.32
2,2-dimethyl heptane	—	0.63	0.64	0.72
1,1,3-trimethyl hexane	—	0.68	0.63	0.72
2-propyl heptane	—	0.89	0.85	0.95
1,2-dimethyl cyclopropane	—	0.25	0.22	0.25

^aTaken from reference 14, ^bCalculated with Table 5, ^cCalculated with Table 6, ^dCalculated with Table 7.

타낸다. 한편 2,3-dimethylhexyl acetate, 2,2-dimethylhexyl acetate 및 2-propylamyl acetate는 실측치를 얻지 못하였지만, 이론적 계산을 통해 얻은 이들 계산값은, 실측치를 예측할 수 있으므로, 실험하는 사람들에게 유용하게 이용될 수 있다. 다음은 acid

Table 9. Viscosity of various organic compounds in liquid state at 100°C

Compound	Obsed ^a	Calc(1) ^a	Calc(2) ^b	Calc(3) ^c
Ethane	114.30	109.45	118.63	112.93
Propane	110.90	97.93	102.99	100.59
Pentane	84.10	85.30	83.7	85.61
Isopentane	86.00	83.64	84.60	85.61
Ethylene	127.70	123.36	118.64	112.83
Propylene	107.60	109.85	102.99	110.59
Benzene	95.51	96.96	94.11	100.59
Methyl acetate	100.00	104.00	98.12	86.84
Ethyl acetate	94.30	92.35	90.40	104.57
Diethyl ether	93.50	90.63	92.54	96.16
Methanol	123.03	124.83	124.22	94.17
Ethanol	108.00	108.80	110.65	126.90
n-propanol	94.36	97.50	101.74	112.83
Isopropanol	98.13	97.96	97.07	102.59
Trimethyl ethylene	84.90	92.10	84.60	100.59
2,2,3-trimethyl butane	77.93	79.59	79.39	81.94

^aTaken from reference 14, ^bCalculated with Table 5, ^cCalculated with Table 6, ^dCalculated with Table 7.

류와 NH₂기를 가지고 있는 유기화합물들 그리고 alkane류의 경우로서, 모두가 실측치와 매우 가까운 값으로 얻어진음 볼 수 있다. 특히 NH₂기를 갖고 있는 화합물들은, 분자량의 크기에 따라 분자 상호간의 인력 변화와 분자 상호간의 인력의 저해요인을 설명하는 T_m parameter를 이용하는 ad hoc descriptor 방법의 사용으로, 보다 우수한 결과를 얻을 수 있었다. 그러나 alkane류의 경우 molecular connectivity index 방법을 이용할 때, n-hexadecane의 실측치와 계산치는 각각 3.340과 1.649로서 실측치에 크게 벗어나는데, 이는 분자 사슬의 길이가 길수록 인접한 분자 상호간의 인력의 영향이 커지는 요인을 잘 설명하는, Wiener index(계산치 3.322)나 ad hoc descriptor(계산치 3.322)를 이용하여 계산할 수 있다.

다음은 100°C에서 기체 상태인 유기화합물의 점성도 실측치와 계산치를 나타낸 것이다. 기체상태는 ad hoc descriptor를 이용한 경우, 상관계수 0.827과 표준편차 5.609로서 계산치가 많이 벗어난다. 그러나 Wiener index를 이용한 경우 상관계수 0.963과 표준편차 3.676으로 다른 방법에 비하여 실측치와 근

Table 10. Numerical values of the constants in Eqs. 5, 6 and 8 used for predicting viscosity of binary mixtures

Systems	G (eq 5)	v_{12} (eq 6)	v_{21} (eq 6)	α_{12} (eq 8)	α_{21} (eq 8)
<i>n</i> -decane/1-chlorobutane	0.228	0.9398	0.7239	0.1452	-0.0283
<i>n</i> -decane/1-chlorooctane	-0.166	1.1821	1.1647	-0.0749	0.0340
<i>n</i> -dodecane/1-chlorooctane	-0.073	1.5859	1.4341	-0.0303	-0.0135
<i>n</i> -dodecane/1-chlorooctadecane	0.281	3.4361	5.6590	0.1763	0.0045
<i>n</i> -pentane/1-chlorooctane	0.111	0.5928	0.9025	0.1561	0.0337
<i>n</i> -pentane/1-chlorooctadecane	2.040	3.3203	4.4211	1.3120	0.5437

*These constants in eqs 5, 6 and 8 will yield the viscosities of the liquid mixtures in centistokes units.

사한 값으로 주어진다.

이들 결과를 종합하여 보면, 일반적으로 molecular connectivity index를 이용한 경우, 기체 및 액체상태 모두에 대하여 좋은 결과를 나타내고, Wiener index를 이용한 경우에는 기체상태에 대하여, ad hoc descriptor를 이용한 경우에는 액체상태에 대하여 각각 우수한 결과를 나타낸다.

이성분계 유기화합물의 계산. *n*-alkane/1-chloroalkane의 이성분계 혼합물(binary mixture)에 대한 점성도의 이론적 계산에 대하여 살펴보면 다음과 같다. 액체상태 이성분계 혼합물의 점성도를 예측하기 위해서는 많은 연구가 수행되었지만, 이들은 실험에 의하여 측정된 구성 성분의 점성도 값을 직접 이용하여 계산하는 경험적인 방법으로 연구되어지고 있다.

예를들어 Grunberg와 Nisson식을 살펴보면

$$\ln v_m = X_1 \ln v_1 + X_2 \ln v_2 + X_1 X_2 G \quad (5)$$

여기서는 G 는 Grunberg 상수로서 각 계에 대한 특정 상수이다.

M_c Allisten은 Eyring의 절대 반응속도에 토대들 둔 다음과 같은, 반 경험적인 식을 제안하였다.

$$\ln v_m = X_1^2 \ln v_1 + 3X_1^2 X_2 \ln v_{12} + 3X_1 X_2^2 \ln v_{21} + X_2^2 \ln v_2 - \ln(X_1 + X_2 M_2/M_1) + 3X_1 X_2 \ln[(2 + M_2/M_1)/3] + 3X_1 X_2 \ln[(1 + 2M_2/M_1)^3 + X_2^3 \ln(M_2/M_1)] \quad (6)$$

이 식에서 v_{12} 와 v_{21} 은 경험적 실측치로부터 계산된 이성분 parameter이며, X_1 , X_2 는 물질 각각의 몰분율(mole fraction)이고 M_1 , M_2 는 분자량이다.

Heric은 이성분계 혼합물에 대하여 다음과 같은

Table 11. Multiple regression equations for viscosity of binary mixtures using molecular connectivity indices

<i>n</i> -decane/1-chlorobutane	$= 0.8148 {}^0\chi - 0.7246 {}^1\chi - 0.0424 {}^2\chi + 0.1926$	$n=9$	$r=0.9989$	$s.e.=0.005$
<i>n</i> -decane/1-chlorooctane	$= 1.1284 {}^0\chi - 3.1339 {}^1\chi - 0.14010 {}^2\chi - 0.4184$	$n=9$	$r=0.9912$	$s.e.=0.0072$
<i>n</i> -decane/1-chlorooctane	$= 5.1789 {}^0\chi - 0.400 {}^1\chi - 4.5414 {}^2\chi + 2.3079$	$n=9$	$r=0.9950$	$s.e.=0.0056$
<i>n</i> -decane/1-chlorooctadecane	$= -5.5901 {}^0\chi + 9.2036 {}^1\chi - 1.6621$	$n=9$	$r=0.9940$	$s.e.=0.152$
<i>n</i> -pentane/1-chlorooctane	$= 0.9510 {}^0\chi - 1.3086 {}^1\chi - 2.0051$	$n=9$	$r=0.9938$	$s.e.=0.0252$
<i>n</i> -pentane/1-chlorooctadecane	$= 0.4326 {}^0\chi + 0.4789 {}^1\chi - 0.1479 {}^2\chi + 3.5205$	$n=9$	$r=0.9821$	$s.e.=0.3470$

식을 제안하였다.

$$\log v = X_1 \log v_1 - X_2 \log v_2 + X_2 \log M_2 - \log(X_1 M_1 + X_2 M_2) + \delta_{12} \quad (7)$$

여기서 δ_{12} 는 편차함수(deviation funtion)로 다음과 같다.

$$\delta_{12} = X_1 X_2 [\alpha_{12} + \alpha_{12}'(X_1 - X_2)]$$

α_{12} 와 α_{12}' 는 parameter로서 최소 자승법으로 결정된다. 각 식에 대응되는 parameter는 Table 10에 나타내었다.

한편, 본 연구에서는 앞에서 설명된 molecular connectivity index와 Wiener index로서 이들 이성분계 혼합물에 대하여 점성도를 계산해 본 결과 Table 11과 Table 12와 같은 최적 상관관계식을 구하였으며, 이들 식으로부터 구한 결과와 앞서 제시된 경험적 방법을 통해 계산된 결과를 Table 13에 나타내었다.

이때 평균퍼센트 오차(% average deviation)는 다음과 같이 구하였다.

$$\% \text{ average error} = \frac{1}{n} \frac{|\text{Calc} - \text{Expt}|}{\text{Expt}} \times 100$$

여기서 n 은 측정횟수.

Table 12. Multiple regression equations for viscosity of binary mixtures using Wiener indices

<i>n</i> -decane/1-chlorobutane	$= 2.4017 W_r - 0.0164 W_{mod} - 1.4138$		
	$n = 9$	$r = 0.9976$	$s.e. = 0.0223$
<i>n</i> -decane/1-chlorooctane	$= -0.0683 W + 1.4169 N_c + 0.008 W_r - 2.0814$		
	$n = 9$	$r = 0.9879$	$s.e. = 0.0101$
<i>n</i> -dodecane/1-chlorooctane	$= -0.0033 W + 0.192 N_c - 0.0327$		
	$n = 9$	$r = 0.9959$	$s.e. = 0.0079$
<i>n</i> -dodecane/1-chlorooctadecane	$= 0.0037 W + 0.01536 W_r + 0.1169 f - 2.8322$		
	$n = 9$	$r = 0.9975$	$s.e. = 0.1603$
<i>n</i> -pentane/1-chlorooctane	$= 2.4017 W_r - 0.0164 W_{mod} - 1.4138$		
	$n = 9$	$r = 0.9976$	$s.e. = 0.0223$
<i>n</i> -pentane/1-chlorooctadecane	$= -0.0373 W + 0.0421 W_{mod} - 0.9005$		
	$n = 9$	$r = 0.9837$	$s.e. = 0.4554$

Table 13. Average deviation percentage of the calculated viscosities from the experimental data

Systems	% error				
	eq 5	eq 6	eq 7	M.C.I. ^a	W.I. ^b
<i>n</i> -decane/1-chlorobutane	0.48	0.40	0.47	0.88	1.18
<i>n</i> -decane/1-chlorooctane	0.52	0.34	0.37	0.63	0.88
<i>n</i> -dodecane/1-chlorooctane	0.37	0.35	0.37	0.63	0.88
<i>n</i> -dodecane/1-chlorooctadecane	0.56	0.55	0.58	4.10	6.79
<i>n</i> -pentane/1-chlorooctane	0.64	0.59	0.69	4.6	4.8
<i>n</i> -pentane/1-chlorooctadecane	0.56	0.55	0.58	4.08	9.57

^aCalculated from equations of Table 11, ^bCalculated from equations of Table 12.

Table 13의 결과에서처럼 molecular connectivity index나 Wiener index의 경우, 여러가지 경험적 방법으로 구한 값보다는 약간 저조한 결과를 나타내고 있다. 그러나 복잡한 실험적 과정과 많은 para-

Table 14. Viscosity in binary mixtures of *n*-pentane/1-chlorooctadecane

Mole fraction	Obsed ^a	Calc(1) ^a	Calc(2) ^b
0.1	6.0009	5.4309	5.4694
0.2	4.945	4.5623	4.7816
0.3	3.092	2.9022	4.0938
0.4	2.962	3.3600	3.4061
0.5	2.325	2.6697	2.7184
0.6	1.613	1.9794	1.6097
0.7	1.157	1.2892	1.3429
0.8	0.7477	0.5989	0.6552
0.9	0.431	0.0914	0.0326

^aTaken from reference 16, ^bCalculated from equations of Table 11, ^cCalculated from equations of Table 12.

Table 15. Viscosity in binary mixtures of *n*-decane/1-chlorobutane

Mole fraction	Obsed ^a	Calc(1) ^a	Calc(2) ^b
0.1	0.4681	0.4668	0.4593
0.2	0.5006	0.4969	0.5043
0.3	0.5437	0.5403	0.5464
0.4	0.5768	0.5843	0.5916
0.5	0.6297	0.6250	0.6333
0.6	0.6636	0.6724	0.6768
0.7	0.7109	0.7104	0.7204
0.8	0.7607	0.7505	0.7639
0.9	0.8110	0.8044	0.8059

^aTaken from reference 16, ^bCalculated from equations of Table 11, ^cCalculated from equations of Table 12.

Table 16. Viscosity in binary mixtures of *n*-dodecane/1-chlorooctane

Mole fraction	Obsed ^a	Calc(1) ^a	Calc(2) ^b
0.1	1.143	1.134	1.130
0.2	1.151	1.155	1.152
0.3	1.177	1.177	1.174
0.4	1.185	1.185	1.196
0.5	1.218	1.218	1.218
0.6	1.232	1.243	1.240
0.7	1.262	1.261	1.261
0.8	1.288	1.288	1.285
0.9	1.317	1.309	1.307

^aTaken from reference 16, ^cCalculated from equations of Table 11, ^bCalculated from equations of Table 12.

Table 17. Viscosity in binary mixtures of *n*-pentane/1-chlorooctane

Mole fraction	Obsed ^a	Calc(1) ^a	Calc(2) ^b
0.1	0.9664	0.9335	0.9354
0.2	0.8559	0.8455	0.8477
0.3	0.7414	0.7579	0.7601
0.4	0.6389	0.6347	0.6364
0.5	0.5441	0.5782	0.5428
0.6	0.4631	0.4943	0.4973
0.7	0.3926	0.4065	0.4096
0.8	0.3240	0.3185	0.3220
0.9	0.2747	0.2309	0.2344

^aTaken from reference 16, ^cCalculated from equations of Table 11, ^bCalculated from equations of Table 12.

Table 18. Viscosity in binary mixtures of *n*-dodecane/1-chlorooctane

Mole fraction	Obsed ^a	Calc(1) ^a	Calc(2) ^b
0.1	6.289	6.025	8.084
0.2	5.429	5.429	5.473
0.3	4.684	4.855	4.863
0.4	4.000	3.932	4.254
0.5	3.481	3.685	3.643
0.6	2.887	3.101	3.033
0.7	2.488	2.516	2.426
0.8	2.012	1.931	1.814
0.9	1.602	1.459	1.204

^aTaken from reference 16, ^cCalculated from equations of Table 11, ^bCalculated from equations of Table 12.

Table 19. Viscosity in binary mixtures of *n*-decane/1-chlorooctane

Mole fraction	Obsed ^a	Calc(1) ^a	Calc(2) ^b
0.1	1.067	1.051	1.047
0.2	1.026	1.028	1.025
0.3	0.997	1.004	0.994
0.4	0.969	0.969	0.976
0.5	0.943	0.956	0.952
0.6	0.924	0.933	0.921
0.7	0.897	0.897	10.904
0.8	0.886	0.886	0.990
0.9	0.874	0.862	0.855

^aTaken from reference 16, ^cCalculated from equations of Table 11, ^bCalculated from equations of Table 12.

를 사용하지 않고, molecular modeling 기법을 이용하여 간단하게 5% 미만의 편차로서 실측치와 잘 일치하는 결과를 얻을 수 있었다. 따라서 molecular modeling 기법을 이용하면 매우 간편하고, 비교적 정확한 이성분계 화합물의 점성도를 예측할 수 있다.

다음은 Table 11과 Table 12의 최적상관 관계식을 통해 구한 *n*-alkane/1-chloroalkane의 계산치와 실측치를 나타내어 그들을 비교하였다.

결론

molecular connectivity index, Wiener index, ad hoc descriptor 등을 이용한 계산치와 여러가지 실험적 방법으로 얻은 점성도의 실측치를 분석해 보았다.

그리고 이들의 계산을 위한 최적 방법과 최적 상관관계식을 규명한 결과, 이들 방법들은 분자의 크기, 가지의 형태, 환상구조, 불포화의 정도 및 분극성에 관한 정보를 내포하고 있음을 알았다.

일반적으로 액체상태에 대해서는, 분자간 상호작용의 의존성이 큰 ad hoc descriptor 방법이, 그리고 기체상태에 대해서는 분자구조(사슬의 구조)적인 의존성을 잘 설명하는 Wiener index 방법이 각각 우수한 방법임을 확인하였고, 기체 및 액체 상태 모두에 대하여는 분자내 상호작용의 영향의 크기가 잘 설명되는 molecular connectivity index 방법이 가장

우수한 방법임을 알 수 있었다.

또한 *n*-alkane과 1-chloroalkane의 이성분계 화합물(binary mixture)에 대하여 molecular modeling 방법을 이용하여 점성도를 계산한 결과, 지금까지 보고된 여러가지 실험식보다 훨씬 간편하게, 그리고 실측값과 잘 일치하는 결과를 얻을 수 있었다.

이상과 같이 molecular modeling techniques을 이용하여 acetate, acid, alkane, alcohol 계열과 NH₂를 갖는 유기화합물들 그리고 이성분계 혼합용액의 점성도에 대한 계산 결과들은, 지금까지 보고된 여러가지 경험식보다 더 간편하고, 실측치와 잘 일치하는 결과를 얻을 수 있었다.

본 연구는 한국 과학재단의 연구비 지원으로 수행되었으며, 이에 깊은 감사를 드립니다.

인 용 문 헌

1. L. Grunberg and A. H. Nisson, *Nature*, **164**, 799 (1949).
2. R. A. Mc Allister, *AIChE J.*, **6**, 427 (1960).
3. E. L. Heric, *J. Chem. Eng. Data*, **11**, 66 (1966).
4. M. Randic, *J. Am. Chem. Soc.*, **97**, 6609 (1975).
5. L. B. Kier and L. H. Hall, "Molecular Connectivity in Structure-Activity Analysis, Wiley, N.Y., U.S.A., 1986.
6. L. B. Kier and L. H. Hall, "Molecular Connectivity in Chemistry and Drug Research", Academic, N.Y., U.S.A., 1976.
7. H. Wiener, *J. Chem. Phys.*, **15**, 766 (1947).
8. H. Wiener, *J. Phys. Chem.*, **52**, 425 (1948).
9. H. Wiener, *J. Phys. Chem.*, **52**, 1082 (1948).
10. H. Wiener, *J. Am. Chem. Soc.*, **69**, 17, 2636 (1947).
11. P. G., Seybold, M. A. May, and U. A. Bogal, *J. Chem. Soc.*, **64**, 575 (1987).
12. P. G. Seybold, M. A. May, and M. L. Gargas, *Acta Pharm. Jugosl.*, **36**, 253 (1986).
13. D. A. Hinckley, P. G. Seybold, and D. P. Borris, *Spectro. Chem. Acta. Part A.*, **42A**, 747 (1986).
14. R. C. Weast, Ed., *CRC Hand book of Chemistry and Physics*, 70th ed, CRC, Boca Roton, F.C., 1989-1990.
15. Selected Values of Properties of Hydrocarbons and Related Compounds, Thermodynamics Research Center, Texas A & M, Research Center, College Station, U.S.A., 1985.
16. A. Antonio, P. Eduvigis, M. Pascual, and S. T. Margalta, *J. Chem. Eng. Data.*, **31**, 143 (1986).
17. J. R. Platt, *J. Phys. Chem.*, **56**, 328 (1952).
18. P. E. Needham, I. Chim, and P. G. Seybold, *J. Am. Chem. Soc.*, **110**, 4186 (1988).
19. B. K. Lemont and H. H. Lowell *J. Pharm. Sci.*, **65**, 1807 (1976).