液体および超臨界二酸化炭素中におけるポリ(*tert*-ブチルメタクリレート)-*block*-ポリ(1,1-ジヒドロパーフルオロオクチルメタクリレート)ジブロック共重合体の光散乱解析—自己組織化の可逆的制御をめざして

吉田 絵里^{*1,2}・Sharon L. WELLS^{*1}・Joseph M. DeSIMONE^{*1,3}

(受付 2001 年 4 月 19 日・審査終了 2001 年 7 月 26 日)

要 旨 二酸化炭素に両親媒性のブロック共重合体であるポリメタクリル酸 *tert*-ブチル-*block*-ポリ(メタクリル酸 1,1-ジヒドロパーフルオロオクチル)ジブロック共重合体 (P'BMA-*block*-PFOMA) の、液体および超臨界二酸化炭素中でのミセル形成について光散乱解析を用いて検討を行った。動的な光散乱解析の結果、P'BMA セグメントの分子量が 4000 以上のブロック共重合体は、超臨界二酸化炭素中で分子量分布の狭いミセルを形成することがわかった。特に、半径が 13~21 nm の範囲にあるミセルを形成する P'BMA-*block*-PFOMA は、CO₂ 密度 0.87~1.04 g/cm³ にミセルから単量体への転移をもつことが見いだされた。その転移は温度およびジブロック共重合体を構成する両方のポリマー鎖長に依存した。本研究は、CO₂ 中におけるブロック共重合体のミセルから単量体への転移が、ジブロック共重合体のセグメント鎖長によって制御されることを初めて実証したものである。このことは、CO₂ の溶媒特性だけでなくジブロック共重合体のセグメント鎖長の選択によっても、共重合体の自己組織化の制御が可能であることを示している。

1 緒 言

近年、地球環境保全の見地から超臨界二酸化炭素が注目されている。化学工業の製造過程で消費される有機溶媒は、年間 1 千万トン以上に上り、地球環境を汚染している。中でもハロゲン系の溶媒は、オゾン層の破壊といった深刻な問題をひき起こしている。超臨界二酸化炭素は、これらの有機溶媒の代替物となり得ることから、工業的用途の重要性が高まっている。二酸化炭素は入手が容易でしかも低コストである。また、無毒、無臭でリサイクルが可能な環境低負荷型の化合物でもある。さらに、ほかの超臨界流体と比べて臨界条件 ($T_c=31.1^\circ\text{C}$, $P_c=73\text{ atm}$) が温和であることから¹⁾、超臨界二酸化炭素は、酵素^{2),3)} や香料⁴⁾、医薬品⁵⁾、高反応性単量体⁶⁾ といった熱に敏感な化合物のアプリケーションに優れている。二酸化炭素を溶媒とする加工技術は、エネルギー量の多い乾燥工程を省くことができるなど、工業的なメリットも多い。これらの特徴を利用して、すでに超臨界二酸化炭

素を溶媒とする工業的用途の開発が行われており、コーヒー豆からの脱カフェイン化や⁷⁾、香料や化粧品の製造を目的とした植物からの天然油脂の抽出、ドライクリーニングへの応用例がある。一方で、超臨界二酸化炭素にはほとんどの汎用ポリマーが溶解しないという特徴がある⁸⁾。これは、二酸化炭素のファンデルワールス力が極めて弱いことに基づいている。超臨界二酸化炭素へは、凝集エネルギー密度および表面張力の小さいポリジメチルシロキサンやフッ素系ポリマーが高い溶解性を示すことが知られている⁸⁾。したがって、これらのポリマーと、超臨界二酸化炭素に難溶のポリマーからなる共重合体は、超臨界二酸化炭素中で自己組織化し、ミセルを形成することが報告されている。例えば、ポリエチレンオキシドを側鎖に有するパーフルオロアクリル酸エステルのグラフト共重合体は、可逆的なミセルを形成することが小角 X 線散乱解析からわかっている⁹⁾。また、ポリスチレンとポリ(1,1-ジヒドロパーフルオロオクチルアクリレート) (PFOA) からなるジブロック共重合体は自己組織化して、親油性のポリスチレンセグメントをコアに、PFOA をコロナとするコア-シェル型のミセルを形成することが小角中性子散乱解析によって見いだされている¹⁰⁾。さらに、ポリ酢酸ビニル-*block*-ポリ(1,1,2,2-テトラヒドロパーフルオロオクチルアクリレート) では、ミセルが形成されるだけでなく、ミセルから単量体への転移が二酸化炭素密度によって誘発されることが光散乱

^{*1} Department of Chemistry, University of North Carolina at Chapel Hill (Venable and Kenan Laboratories, Chapel Hill, NC 27599-3290, USA)

^{*2} 京都工芸繊維大学繊維学部 (☎606-8585 京都市左京区松ヶ崎御所海道町)

^{*3} Department of Chemical Engineering, North Carolina State University (P. O. Box 7905, Raleigh, NC 27695-7905, USA)

解析から明らかにされている¹¹⁾。本報では、二酸化炭素への溶解性をもっとも高いポリマーの1つであるポリ(1,1-ジヒドロパーフルオロオクチルメタクリレート)(PFOMA)と、もっとも溶解性の乏しいポリ(*tert*-ブチルメタクリレート)(P'BMA)からなるジブロック共重合体の液体および超臨界二酸化炭素中における自己組織化の挙動について、光散乱解析から明らかにした結果について述べる。

2 実験

2.1 装置

¹H NMR 測定は、Bruker ARX-500 NMR スペクトロメーターを用いて行った。静的および動的な光散乱実験は、波長 514 nm のアルゴンイオンレーザー (Coherent Innova 70-3) により、Brookhaven Instruments 製 BI 9000 を用いて行った¹¹⁾。

2.2 試料

P'BMA-*block*-PFOMA ジブロック共重合体は既法により合成した¹²⁾。

2.3 曇点の測定

曇点は、体積可変型セル中で内容物が完全に不透明になった点を曇点とした。

3 結果・考察

リビングアニオン重合により合成した、分子量分布の狭い ($M_w/M_n < 1.08$)、P'BMA と PFOMA からなる P'BMA-*block*-PFOMA ジブロック共重合体について、液体および超臨界二酸化炭素中における自己組織化の挙動を、アルゴンレーザーを用いる光散乱解析により検討を行った (Scheme 1)。結果を Table 1 に示す。P'BMA セグメントの分子量が 4000 より小さいときにはミセルは

形成されなかったが、それよりも大きい共重合体ではいずれもミセルが形成されることがわかった。P'BMA セグメントと PFOMA の分子量が近いほぼ等しい P'BMA-*block*-PFOMA 共重合体、13 K-*block*-20 K (= 13000-*block*-20000)、35 K-*block*-35 K、および 41 K-*block*-45 K では、100 nm 以上の半径をもつ会合体の形成が観察された。これらのサンプルでは、二酸化炭素への溶解性の指標となる曇点における二酸化炭素密度 (曇点密度 (ρ_{cp}), $\rho_{cp} = 0.845 \sim 0.857 \text{ g/cm}^3$) がほかのサンプルの曇点密度 ($\rho_{cp} = 0.794 \sim 0.836 \text{ g/cm}^3$) に比べて高いことがわかった。このことは、これらの共重合体がほかのものに比べて二酸化炭素への溶解性が低いことを意味している。さらに、ほかのサンプルではミセル半径は二酸化炭

P'BMA-*b*-PFOMA

Scheme 1.

Table 1. Characterization of P'BMA-*block*-PFOMA diblock copolymers

M_n P'BMA- <i>block</i> -PFOMA	Unit ratio 'BMA/FOMA	Density at CP ^{a)} (g/cm ³)	Hydrodynamic radii of micelles ^{b)} (nm)
3.7 K- <i>block</i> -41 K	0.301	0.828	— ^{c)}
3.9 K- <i>block</i> -44 K	0.291	0.794	— ^{c)}
6.9 K- <i>block</i> -48 K	0.476	0.826	13.8
11 K- <i>block</i> -91 K	0.386	0.832	18.4
13 K- <i>block</i> -20 K	2.19	0.845	137.9
16 K- <i>block</i> -52 K	1.05	0.835	20.6
18 K- <i>block</i> -65 K	0.892	0.824	26.9
28 K- <i>block</i> -48 K	1.93	0.836	35.4
29 K- <i>block</i> -86 K	1.10	0.820	40.1
35 K- <i>block</i> -35 K	3.23	0.855	106.3
40 K- <i>block</i> -71 K	1.86	0.820	52.6
41 K- <i>block</i> -45 K	3.01	0.857	131.2
66 K- <i>block</i> -270 K	0.805	0.832	20.5

^{a)}Cloud point observed at 30°C. ^{b)}Estimated at 25°C. ^{c)}No micelles were formed.

素の圧力の変化には依存しないのに対し、これらのサンプルでは会合体の半径が圧力の増加に伴って減少することがわかった。以上のことから、この3種類のジブロック共重合体は、ほかの共重合体とは異なる会合数や形状のミセルや会合体を形成しているのではないと思われる。

FOMA セグメントの分子量がほぼ等しい 6.9 K-*block*-48 K, 16 K-*block*-52 K, および 28 K-*block*-48 K の3種類のサンプルを用いて、PFOMA セグメントの分子量が一定という仮定のもとに、P'BMA セグメントの分子量、および FOMA に対する 'BMA のユニット比 ('BMA/FOMA) とミセル半径との関係を調べた。結果を Fig. 1 および Fig. 2 に示す。ミセル半径は P'BMA セグメントの分子量に対しても、'BMA/FOMA に対してもほぼ直線的に増加することがわかった。このことから、PFOMA

セグメントの分子量が一定の条件では、ミセル半径は、コアを形成する P'BMA セグメントの分子量によって決定されることが明らかとなった。さらに、半径が 13 から 21 nm の範囲にあるミセルを形成する P'BMA-*block*-PFOMA ジブロック共重合体は、二酸化炭素密度 0.87~1.04 g/cm³ の範囲にミセルから単量体への転移をもつことが見いだされた。そこで、16 K-*block*-52 K のサンプルを用いて、ミセルから単量体への転移について詳しく検討を行った。Fig. 3 は、共重合体濃度 1.54×10^{-3} g/cm³ における、二酸化炭素密度の増加に伴う 16 K-*block*-52 K サンプルの分布を示したものである。二酸化炭素密度 (ρ) 0.869 g/cm³ では、半径 20 nm 付近にミセルに由来する分布が観察された。 $\rho = 0.980$ g/cm³ では、半径 5~25 nm の範囲に幅広い分布が見られ、さらに、 $\rho = 1.03$ g/cm³ では、5 nm 付近に単量体に基づく分布が観察された。ミセルと単量体の分布がどちらも極めて狭く、かつ同様な分布が観察されたことから、分子量分布の狭いジ

Fig. 1. Plots of micelle size versus molecular weight of P'BMA segments (M_n of PFOMA segments ≈ 50 K).

Fig. 2. Plots of micelle size versus unit ratio of 'BMA to FOMA (M_n of PFOMA segments ≈ 50 K).

Fig. 3. Intensity distribution obtained using the Contin method for concentration of a copolymer with a molecular weight of $M_n=16$ K-*block*-52 K: $c=1.54 \times 10^{-3}$ g/cm³ and CO₂ densities: (a) $\rho=0.869$ g/cm³; (b) $\rho=0.980$ g/cm³; (c) $\rho=1.03$ g/cm³.

Fig. 4. Variation of the aggregation number with the CO₂ density at 25°C for five concentrations of a copolymer with a molecular weight of $M_n=16$ K-block-52 K: (●) $c=3.68 \times 10^{-4}$ g/cm³; (▲) $c=7.58 \times 10^{-4}$ g/cm³; (▼) $c=1.54 \times 10^{-3}$ g/cm³; (■) $c=3.03 \times 10^{-3}$ g/cm³; (◆) $c=5.00 \times 10^{-3}$ g/cm³.

ブロック共重合体からは分布の狭いミセルが形成されることもわかった。次に、5種類の濃度を用いて、ミセルから単量体への転移を会合数の変化から検討した。Fig. 4に、各濃度における会合数と二酸化炭素密度との関係を示す。16 K-block-52 Kの共重合体は、会合数80~140程度のミセルを形成していることがわかった。会合数はいずれも二酸化炭素密度の増加とともに減少し、最終的に1に達した。また、共重合体の濃度が低いほど会合数が1に到達する二酸化炭素密度は小さいことがわかった。このことは、共重合体の濃度が低いミセルほど単量体への崩壊が容易に起こることを意味している。Fig. 5は、各濃度における二酸化炭素密度とミセル半径との関係を示したものである。ミセル半径は、共重合体濃度に依存せずほぼ20 nmを保持していることがわかる。二酸化炭素密度を上げていくと、ミセル半径はある点から減少しはじめ、最終的に約5 nmで一定になった。ミセル半径が減少しはじめた点、つまりミセルから単量体への転移点の二酸化炭素濃度は、共重合体の濃度が高くなるのに伴って高密度側にシフトしていくことがわかった。さらに、ミセル半径が減少し始めてから単量体半径に至るまでの転移の幅は、共重合体濃度が高いほど狭くなっていくことがわかった。このことは、高濃度のミセルほどいったん崩壊が始まると迅速に崩壊が進むことを意味している。

16 K-block-52 Kの共重合体濃度と転移点の二酸化炭素密度 (ρ_{tr}) との関係を示す (Fig. 6c)。二酸化

Fig. 5. Effect of the CO₂ density on the hydrodynamic radius for concentration of a copolymer with a molecular weight of $M_n=16$ K-block-52 K: (a) $c=3.68 \times 10^{-4}$ g/cm³; (b) $c=7.58 \times 10^{-4}$ g/cm³; (c) $c=1.54 \times 10^{-3}$ g/cm³; (d) $c=3.03 \times 10^{-3}$ g/cm³ at 25°C.

炭素密度 0.85 g/cm³ 以下の範囲に共重合体と二酸化炭素の2相領域 (T) が観察される。この領域では共重合体が二酸化炭素に完全には溶解せず、二酸化炭素中で一部沈殿として存在している。0.85 g/cm³ 以上の二酸化炭素密度で共重合体は二酸化炭素に完全に溶解し、均一の溶液となる。ミセル領域 (M) は、0.85~1.05 g/cm³ の密度範囲に観察され、ミセル領域と単量体領域 (U) の境界線が転移点を表している。3.9 K-block-44 K, 6.9 K-block-48 K, 16 K-block-52 K, および 28 K-block-48 K の4種類の P'BMA-block-PFOMA ジブロック共重合体について、PFOMA セグメントの分子量を一定とみなして、P'BMA セグメントの分子量と相図との関係を調べた。結果を Fig. 6a~d にまとめる。P'BMA セグメントの分子量の増大に伴って、曇点が二酸化炭素の高密度側にシフトしていくのがわかる。このことは、P'BMA セグメントの分子量が大きいほど、二酸化炭素への溶解性が乏しくなることを示している。3.9 K-block-44 K について、

Fig. 6. Phase diagrams for four copolymers with molecular weights : (a) $M_n=3.9$ K-block-44 K ; (b) $M_n=6.9$ K-block-48 K ; (c) $M_n=16$ K-block-52 K ; (d) $M_n=28$ K-block-48 K, in the copolymer concentration- CO_2 density plane at 25°C . T : the two phase region, M : the micelle region, and U : the unimer region.

この共重合体はミセル形成を示さなかったため、その相図は2相領域と単量体領域の2つの領域によって構成される。一方、28 K-block-48 Kはミセルは形成するが、この二酸化炭素密度の範囲にはミセルから単量体への転移は示さなかったため、その相図は2相領域とミセル領

Fig. 7. Phase diagrams for three copolymers with molecular weights : (a) $M_n=13$ K-block-20 K ; (b) $M_n=16$ K-block-52 K ; (c) $M_n=11$ K-block-91 K, in the copolymer concentration- CO_2 density plane at 25°C . T : the two phase region, M : the micelle region, and U : the unimer region.

域からなる。6.9 K-block-48 Kは16 K-block-52 Kと同様に、ミセルから単量体への転移を示すため、相図には2相、ミセル、および単量体のすべての領域が観察された。この共重合体の相図では、ミセル領域が16 K-block-52 Kのそれと比べて二酸化炭素の低密度側、および共重合体の高濃度側にシフトしていることがわかる。このことは、P'BMAセグメントの短いジブロック共重合体がミセルを形成するには、より高い共重合体濃度が必要であることを意味している。

次に、PFOMAセグメントの分子量と相図との関係を調べるために、13 K-block-20 K、16 K-block-52 K、および11 K-block-91 Kのジブロック共重合体を用い、P'BMAセグメントの分子量をほぼ一定とみなして検討を行った。結果をFig. 7に示す。13 K-block-20 Kはミセ

Fig. 8. Effect of the CO₂ density on the hydrodynamic radius for two copolymers with molecular weights of (a) $M_n = 16$ K-block-52 K and (b) $M_n = 11$ K-block-91 K, for copolymer concentration of $c = 2 \times 10^{-3}$ g/cm³.

ルは形成するが転移は示さなかったもので、28 K-block-48 Kと同様に、その相図は2相領域とミセル領域からなる。一方、PFOMAセグメントが16 K-block-52 Kのほぼ2倍の分子量をもつ11 K-block-91 Kの相図には、2相、ミセル、および単量体のすべての領域が観察された。11 K-block-91 Kの相図では6.9 K-block-48 Kと同様に、ミセル領域が16 K-block-52 Kの相図と比べて高濃度側にシフトし、11 K-block-91 Kがミセルを形成するにはより高い共重合体濃度が必要であることがわかった。そこで、濃度が一定の条件下で、11 K-block-91 Kと16 K-block-52 Kのミセルから単量体への転移について、ミセル半径と二酸化炭素密度との関係から検討を行った (Fig. 8)。ミセルおよび単量体の大きさは、11 K-block-91 Kと16 K-block-52 Kとで大差はなかった。一方、11 K-block-91 Kは16 K-block-52 Kに比べて極めて低い二酸化炭素密度に転移点をもつことがわかった。この2種類のジブロック共重合体の転移密度の違いを会合数と二酸化炭素密度との関係から検討を行った。Fig. 9に、共重合体濃度 2×10^{-3} g/cm³における会合数と二酸化炭素密度との関係を示す。16 K-block-52 Kによって形成されるミセルの会合数が85であるのに対し、11 K-block-91 Kでは15程度の極めて小さい会合数をもつミセルが形成されていることがわかった。このことによって、11 K-block-91 Kによってつくられるミセルでは、16 K-block-52 Kのそれよりも単量体への崩壊が容易に起こり、転移点が二酸化炭素の低密度側に現れることが明らかになった。

P'BMA-block-PFOMA ジブロック共重合体の曇点における二酸化炭素密度は、温度の上昇に伴って直線的に減少することが見いだされている¹³⁾。ミセルから単量体へ

Fig. 9. Variation of the aggregation number with the CO₂ density at 25°C for two copolymers with molecular weights: (●) $M_n = 16$ K-block-52 K and (▲) $M_n = 11$ K-block-91 K, for copolymer concentration of $c = 2 \times 10^{-3}$ g/cm³.

Fig. 10. Phase diagrams for a copolymer with a molecular weight of $M_n = 6.9$ K-block-48 K at three temperatures: $T = 25^\circ\text{C}$ (circle), $T = 45^\circ\text{C}$ (triangle), and $T = 65^\circ\text{C}$ (square).

の転移点の温度依存性について、6.9 K-block-48 Kを用いて検討を行った。結果をFig. 10に示す。ミセル領域が温度の上昇とともに、二酸化炭素の低密度側、かつ共重合体の高濃度側にシフトしているのがわかる。このことは、温度が高いほどミセルの崩壊が容易に起こることを意味している。以上の結果から、二酸化炭素中におけるP'BMA-block-PFOMA共重合体の自己組織化は、共重合体の濃度や二酸化炭素密度に加えて、温度によっても制御が可能であることがわかった。

4 結 論

本研究は、二酸化炭素中でブロック共重合体のミセルから単量体への転移が、ジブロック共重合体のブロック鎖長によってコントロールされることを例証した最初の論文である。このことは、ブロック共重合体のミセルへの自己組織化が、二酸化炭素の密度だけでなくジブロック共重合体のブロック鎖長の選択によっても制御が可能であることを示唆している。また、転移点の二酸化炭素密度が温度に依存することから、液体および超臨界二酸化炭素中での CO₂-両親媒性ジブロック共重合体の自己組織化は、二酸化炭素密度 (圧力)、ブロック鎖長、さらに温度の 3 つのファクターを用いて、可逆的に制御できることが明らかとなった。

謝 辞 Kenan Center および NSF Science and Technology Center に多大なご助力を賜りましたことに感謝の意を表します。

文 献

1) E. L. Quinn and C. L. Jones, "Carbon Dioxide", Reinhold, New York, N.Y. (1936), p. 283.

2) T. W. Randolph, D. S. Clark, H. W. Blanch, and J. M. Prausnitz, *Science*, **283**, 387 (1988).
 3) Y. Ikushima, N. Saito, M. Arai, and H. W. Blanch, *J. Phys. Chem.*, **99**, 8941 (1995).
 4) E. C. Makin, U.S. Patent 4474994 (1984).
 5) B. M. Hybertson, J. E. Beehler, K. S. Rutledge, A. F. Lagalante, and R. E. Sievers, *J. Aerosol. Med.*, **6**, 275 (1993).
 6) D. J. Van Bramer, M. B. Shiflett, and A. Yokozeki, U.S. Patent 5345013 (1994).
 7) D. Leyendecker, "Selection of Conditions for an SFC Separation", in "Supercritical Fluid Chromatography", R. M. Smith ed., Royal Society of Chemists, London (1988), p. 53.
 8) M. L. O'Neill, Q. Cao, M. Fang, K. P. Johnston, S. P. Wilkinson, C. D. Smith, J. L. Kerschner, and S. H. Jureller, *Ind. Eng. Chem. Res.*, **37**, 3067 (1998).
 9) J. L. Fulton, D. M. Pfund, T. J. Romack, J. R. Combes, E. T. Samulski, J. M. DeSimone, and M. Capel, *Langmuir*, **11**, 4241 (1995).
 10) J. B. McClain, D. E. Betts, D. A. Canelas, E. T. Samulski, J. M. DeSimone, J. D. Londono, H. D. Cochran, G. D. Wignall, G. D. Chillura-Martino, and R. Triolo, *Science*, **274**, 2049 (1996).
 11) E. Buhler, A. V. Dobrynin, J. M. DeSimone, and M. Rubinstein, *Macromolecules*, **31**, 7347 (1998).
 12) E. Yoshida, S. L. Wells, and J. M. DeSimone, *Polym. Prepr., (Am. Chem. Soc., Div. Polym. Chem.)*, **41** (1), 185 (2000).
 13) E. Yoshida and J. M. DeSimone, submitted.

Light Scattering Study of Poly(*tert*-butyl methacrylate)-*block*-Poly(1,1-dihydroperfluorooctyl methacrylate) in Liquid and Supercritical Carbon Dioxide—Towards the Reversible Control of Self-Assembly

Eri YOSHIDA,^{*1,2} Sharon L. WELLS,^{*1} and Joseph M. DESIMONE^{*1,3}

^{*1}Department of Chemistry, University of North Carolina at Chapel Hill (Venable and Kenan Laboratories, Chapel Hill, NC 27599-3290, USA)

^{*2}Department of Polymer Science and Engineering, Kyoto Institute of Technology (Goshokaido-cho, Matsugasaki, Sakyo, Kyoto 606-8585, Japan)

^{*3}Department of Chemical Engineering, North Carolina State University (P. O. Box 7905, Raleigh, NC 27695-7905, USA)

Self-assembly of CO₂-soluble amphiphilic diblock copolymers consisting of poly(*tert*-butyl methacrylate) (P'BMA) and poly(1,1-dihydroperfluorooctyl methacrylate) (PFOMA) was studied in liquid and supercritical carbon dioxide. Dynamic light scattering studies demonstrated that the diblock copolymers, having a P'BMA length greater than 4000, self-assembled into micelles with narrow molecular weight distributions. The copolymers having hydrodynamic radii of micelles between 13 and 21 nm exhibited a transition from micelles to unimers in the CO₂ density range of 0.87~1.04 g/cm³. The exact transition density was dependent upon temperature and upon the length of the two polymer chains composing the diblock. This is the first light scattering study demonstrating that the micelles-to-unimers transition of block copolymers in CO₂ is controlled through variation of the block length of the diblock copolymers. This suggests that it is possible to control the self-assembly of block copolymers not only by manipulating the solvent quality of the CO₂ medium, but also by choice of the block length of the diblock copolymer.

KEY WORDS Supercritical Carbon Dioxide / Poly(*tert*-butyl methacrylate)-*block*-Poly(1,1-dihydroperfluorooctyl methacrylate) Diblock Copolymers / Micelles-to-Unimers Transition / CO₂ Density / Copolymer Concentration / Cloud Points / Aggregation Number / Hydrodynamic Radius of Micelles /

(Received April 19, 2001 : Accepted July 26, 2001)

[*Kobunshi Ronbunshu*, **58** (10), 507—513 (2001)]