

平成 10 年度入学 大学院博士後期課程 物質生産工学専攻 機能性高分子化学講座

氏 名 楊 斌 ( Yang Bin)

論文題目 Unsteady Agitation Method Applied for Suspension Polymerization of Styrene

和訳題目 非定常攪拌によるスチレンの懸濁重合

- **Abstract**

Mixing in a broad sense include distributive mixing and dispersion mixing. An unsteady agitation, where the rotational direction and speed of a impeller is alternated with time, provides the efficient mixing of fluid in a vessel and have been widely researched in the distributive mixing systems in recent years, however, it is few used in the dispersion mixing systems even though its application significance in this field. Therefore, in this research the unsteady agitation method is applied for a styrene suspension polymerization process, which can be looked as a liquid-liquid dispersion process, in which the physical properties of the dispersed-phase vary continuously with the polymerization proceeding, and the influences on the droplet dispersion characteristics, the final average particle size and the particle size distribution (PSD) are firstly detailed investigated. The content outline is showed as the following.

In Chapter 1, the background and the purpose of this research are described.

In Chapter 2, a review of the previous researches on suspension polymerization of styrene are described.

In Chapter 3, the dispersion of the styrene monomer in aqueous solution of polyvinyl alcohol stabilizer is studied experimentally. The validity of assuming local isotropy in the experiments is confirmed. Parameters affecting the initial StM dispersion, such as stirring time, turbulence intensity, type and concentration of suspending agent and volume fraction of styrene have been studied in detail and the results are compared with the existing theories.

In Chapter 4, the unsteady agitation methods are used in the whole suspension polymerization process of styrene and the effects of agitation speed and periodic time interval of the impeller co-reverse rotating on the final particle size and PSD, compared with the case in which the steady agitation was used, are investigated. The results show with the unsteady agitation method used the final particle size can be arbitrarily controlled with a proper combination of the agitation speed and the periodic time interval, and the unif

ormity of the final PSD can be improved dramatically.

In Chapter 5, the polymerization process is divided into four stages and the unsteady agitation methods are used in the different stages respectively in every experimental run. The optimum operation of obtaining the most uniform PSD products is achieved.

In Chapter 6, a tracer dye technique is used to investigate the effect of the co-reverse rotational of impeller method, agitation speed and periodic time interval on the coalescence characteristics during the styrene suspension process. It is found that the extent of coalescence decreased when the co-reverse rotational method is used and when the periodic time interval is decreased which can be explained due to the reduction of coalescence frequency as the co-reverse rotational method is used. It is also found that the extent of coalescence increased with an increase in the agitation speed which is considered to result from the effect of agitation speed on collision frequency. These results can reasonably explain the results in Chapters 4 and 5.

In Chapter 7, a general conclusion is given.

#### (和訳)

非定常攪拌とは、一定方向に一定の攪拌速度で攪拌翼を回転させるいわゆる定常攪拌と異なる攪拌操作のことであり、回転方向や攪拌速度を操作過程において臨機応変に変化させる攪拌操作のことである。近年、この非定常攪拌が分配混合にたいして有効であることが種々報告されるようになってきているが、分散混合に関する基礎的な研究は数少なく、当然の事ながら実操作へ応用した場合の意義にたいする検討もほとんど行われていない。スチレンの懸濁重合は液液分散操作であり、その分散相の物性が重合反応の進行とともに連続的に変化する。本研究ははじめて非定常攪拌方法をこのスチレン懸濁重合に応用し、そのスチレンモノマー液滴の分散特性、さらに最終粒子径と粒子径分布への影響を検討した。以下に、本論文の内容を概説する。

第1章は緒論であり、非定常攪拌に関する主な既知の知見を明らかにし、本研究の目的と期待される成果について論じた。

第2章では、スチレンの懸濁重合に関する既往の研究について調査した。

第3章では、スチレンモノマーのPVA水溶液中における分散特性について実験を行った。その結果、局所等方性乱流理論が有効であることが示唆された。また攪拌時間、乱流強度さらにはPVA安定剤の種類と濃度等のパラメーターがスチレンモノマーの初期分散特性におよぼす影響も検討され、過去に提案されている理論と比較、検討した。

第4章ではスチレンの懸濁重合に非定常攪拌等を応用し、その攪拌速度と攪拌翼回転方向の反転周期が最終粒子径と粒子径分布におよぼす影響を実験により検討した。さらに、定常攪拌の結果と比較、検討した。その結果、非定常攪拌の場合は定常攪拌の場合より粒子径分布が極めて狭くすることができ、しかも平均粒子径を任意にコントロールできる可能性があることを明らかにした。

第5章では、スチレン懸濁重合過程を4つの段階に分けて、各段階において定常攪拌と非定常攪拌とを使い分けて、反応過程中の液滴径と液滴径分布の変化、最終粒子径と粒子径分布を検討し、均一な最終粒子径分布を得るための最適な操作条件を明らかにした。

第6章では着色トレーサー法を用いてスチレン懸濁重合過程における合一について検討した。すなわち、非定常攪拌を適用した場合の攪拌速度および攪拌翼回転方向の反転周期が重合過程における液滴の合一へ及ぼす影響について検討した。その結果、非定常攪拌を用いて、しかも攪拌翼回転方向の反転周期を短くすることにより液滴の合一頻度が低下することが分かった。一方、攪拌速度の増加とともに合一頻度が上昇した。本章で得られた実験結果は第4章と第5章の結果を合理的に説明した。

第7章は総論であり、本研究の成果と今後の研究課題について総括した。