

早稲田大学大学院 先進理工学研究科

博士論文審査報告書

論文題目

晶析現象の数理モデル化と晶析プロセス最適化への応用

Mathematical Modeling of Crystallization Phenomena and Its
Application to Crystallization Process Optimization

申請者

海野 城衣

Joi UNNO

応用化学専攻 化学工学研究

2022年2月

晶析プロセスにより高付加価値結晶製品を製造する場合、製品品質として粒径を制御することが要求され、回分冷却晶析手法が多用される。この手法では、時間的に過飽和が低下することで、核化、成長速度が変化する。製品結晶の粒径は、核化と成長のバランスで決まるため、種晶の添加方法や冷却方法の両面からの制御手法が研究されてきている。しかしながら、最適な制御条件を得るためには、多くの実験回数、時間を必要としている。本研究では、この課題を解決すべく、晶析基礎現象の速度過程の数理モデルに基づく数値シミュレーションを用いて、最適な種晶添加や冷却の手法を見出し、粒径を制御することを目指している。そのための鍵となる数理モデルに含まれる未知のパラメータを得るための簡便な実験手法を提案している。

以下、各章の評価を記載する。

第1章では、種晶添加や冷却により粒径を制御する既往の研究を整理し、解決すべき課題や解決方向を明確にしている。

第2章では、晶析現象の各速度過程のパラメータ推定手法を提案している。二次核化と成長の数理モデルを定義した上で、回分晶析過程の溶質濃度や粒径分布の変化を各速度過程と収支に基づく数式で表現した。さらに必要な速度パラメータを、インライン測定技術で取得した情報を駆使して推定する手法を見出したことは高く評価できる。L-アルギニンとアセトアミノフェンを実験系として晶析過程を実測し、取得した速度パラメータを用いたシミュレーション結果と対比したところ、許容できる範囲で一致することを明らかにしたことは工学的価値がある。

第3章では、第2章で課題を指摘した破碎や凝集を考慮することでシミュレーションの改善を試みている。破碎および凝集現象の数理モデル化を行い、解析に必要な速度パラメータを実測あるいはフィッティングにより入手している。破碎と凝集を考慮して改良したシミュレーションにより、第2章で示唆された誤差を緩和できたことは、シミュレーションの精度の向上に貢献するものと評価できる。

第4章では、晶析現象の数値シミュレーションにより、種晶条件、および冷却条件の同時最適化を検討している。パーシャルシーディングとプログラム冷却に基づく仮想実験系を構築し、粒径分布をシミュレーションし、粒径分布の変動係数を用いて評価した。一次核と二次核を区別して製品への寄与を検討でき、かつパーシャルシーディングに最適な条件があることを見出したことは、工学的に価値が高い。これにより、指定した冷却時間内で最小の粒径分布の変動係数を与える、最適な種晶添加量と冷却温度プロファイルを推算できる手法を見出したことは高く評価できる。

第5章は本論文で得られた成果について要約している。

以上のように、本論文は晶析装置やプロセスにおいて晶析過程をモデル化し、最適な操作条件をシミュレーションで設計可能とすることにより、プロセス開発の効率化を推進するとともに、晶析工学の深化に大きく貢献する。

よって、本論文は、博士（工学）の学位論文として価値のあるものと認める。

2022年1月

審査員：（主査） 早稲田大学 教授 工学博士（早稲田大学）

平沢 泉 （署名） _____

早稲田大学 教授 博士（工学）（東京大学）

野田 優 （署名） _____

東京農工大学 教授 博士（工学）（東京工業大学）

滝山 博志 （署名） _____