

工業晶析技術に関する共同開発プロジェクトの 国際動向について

Perspective on the International Direction of Collaborative Projects in Industrial Crystallization

山崎 康夫

Yasuo YAMAZAKI

1 はじめに

工業晶析は、機能性固体を大量に生産する技術として、当社でも広く用いられていて、特に、異性体分離や高純度物質など困難な分離にしばしば検討・応用されている。晶析は、非平衡状態の液(気)相中の速度論的現象を利用する分離操作¹⁾であるため、スケールアップが難しい単位操作の一つであると言われているが、一方で1,000~10,000倍のスケールアップが成功した例も多い。

この高度分離に対して、日米欧ではそれぞれ特色ある共同開発プロジェクトが立ち上がっている。各プロジェクトには、既存技術の水準や技術哲学を反映している。

本稿では、当社の寄与の元に進められている、DOEのProjectについて述べる。

DOEのProjectは、晶析プロセスを積極的に取り入れることにより、現在消費している分離精製に要するエネルギーを削減するために、晶析プロセスのシミュレータを開発する米国エネルギー省のプロジェクトである。プロジェクトメンバーは、ソフトウェア開発部門、学術アドバイス部門、工業評価部門に分かれて、2001年より3年間の活動を行うことになっている。当社は、Dow Chemical, Eli Lillyとともに、工業評価部門の正規メンバーとして、当初から参加している。プロジェクトのゴールであるシミュレータのブレイクスルーは、次の4点である。

- (1) 飽和溶解度の計算は、活量係数を考慮した厳密解を用いる。
- (2) 装置内のフローパターンは、CFD(コンピュータ流体工学)により、高速に行う。

(3) 晶析現象の動力学は、現在確認できる全ての方法で計算し、あてはめる。

(4) GUIは表計算ソフトを用い、OOP(オブジェクト・オリエンテッド・プログラミング)手法を活用する。

2 DOE¹⁾のプロジェクト

プロジェクト名は、「溶液晶析のための新規な晶析装置設計とプロセス最適化ツールの開発」²⁾である。開発期間は、2001年10月1日より2004年9月までで、DOEから補助金を受給しているのは、OLIシステムズ社(受給番号: DE-FC07-01ID14087)であり、Fluent社に業務委託している。

また、ユタ大学、アイオワ州立大学、マイケル・ハウンスロー教授、アラン・マイヤーソン教授、ドライスワミ・ラムクリシュナ博士も共同受給者である。その他パートナーとして、ダウ・ケミカル、日本化学工業、イーライリリーおよびAIChE/DIPPRの各社が、in kind Contributor²⁾として、本プロジェクトに協力することになった。

2.1 DOEのプロジェクトの目的

この新技術は、米国の経済、雇用、環境、エネルギー効率、工業生産性、ならびに世界での競争力を著しく向上させることになるであろう。本プロジェクトが成功し

¹⁾ 米国エネルギー省(Department of Energy)

²⁾ 米国の共同開発研究の形態のひとつで、会社の資源を用いた企業活動を通じて、活動費用を負担することで公益的なプロジェクト推進に間接的に寄与する方式をいう。

たときの省エネルギー効果は、蒸発や冷却に必要な条件の削減や熱伝達の向上、攪拌動力の最適化、立ち上げや停止時間や損失の減少、濾過性と混合効率の向上、化学プロセスと晶析装置構成にとって可能となる新たな選択肢、などが挙げられる。また生産性や経済的競争力については、工学的生産性の向上、プロセス効率の向上、損失や再作業や廃棄物の削減、費用のかかるプロセス数の減少、プロセス制御と製品品質の改善、研究所や工場における試験コストとそのリスクの最小化(シミュレーション利用による)、などがあげられるであろう。さらに環境の側面からは、プロセス制御の改善、外乱や過渡特性によるプロセス損失や廃棄物、規格外物質の削減、実プラント試験前の仮想試験によるリスクの削減、廃水溶液から金属を回収して再利用する際の水処理プロセスとその操作の改善、燃焼損失の減少、などによる成果が考えられるであろう。

2.1.1 晶析が寄与する省エネルギー性

化学、医薬品業界を通じて、晶析は主要な製造プロセスのひとつである。多くのバルク化学品、特殊化学品、そして医薬品は、連続あるいは回分晶析プロセスで製造されている。Dupont社R. Davies氏の調査によると、今日では主要化学企業における80%以上の事例において、工業薬品は粉粒子状に(あるいは粉粒子を經由して)生産されていると考えられる。産業における粉粒体の重要性を認識するために、世界中のバルク化学品の量が年間 10^8 トンを上回っている(米国においては年間~6千万トン)ことを考えてみると、肥料に関しては年間 10^6 トン以上になり、ここで控えめに見積もって製品1トンごとに1.5トンもの水が蒸発しているとすると、米国でのエネルギー需要はほぼ0.2Quadとなる³。ほんの6%の省エネルギー効果(典型的なケーススタディでは、省エネルギー効果は優に6%を超えている)を達成することが可能だとすると、米国における省エネルギー効果は年間 1.2×10^{13} BTU以上可能となる。DuPont社の有機化合物(ナイロンなど)の生産等いくつかの例により実証されていることは、本テクノロジーによる省エネルギーへの貢献に関するこの推測はかなり控えめなものといえるだろう。例えば、単にプロセスに蒸発ではなく冷却を使用するという変更をするだけで、ひとつの工場における節減は年間5万ドル、さらに10%の生産増加を可能にする。プロセス制御を改善することにより、さらに生産性を向上して副産物を減らし、環境への廃棄物や損失を減少させることが期待される。より徹底的なプロセス変更、たとえば高圧晶析や貧溶媒の使用などにより、従来のアプローチと比較して50%の省エネルギーを達成し

得るかもしれない。DOE OIT(米国エネルギー省 Office of Industrial Technologies)が提供している、エネルギー効率推測のためのWebベースのエネルギー評価ツール(www.energetics.com/chemtool)を使って省エネルギー効果を計算したところ、2020年における予測として、無機化学品については年間 1.18×10^{13} BTU、有機化学品については 1.07×10^{13} BTU、合計で 2.25×10^{13} BTUのエネルギー節約が年間で達成できると推定される。

2.1.2 晶析シミュレーションソフトウェアに求められるもの

工業晶析プロセスによる固体物の生産は、精密な設計ソフトウェアやプロセスモデリング用ツールによって達成可能である最大の有効性、経済性、エネルギー効率性にまだ達してはいない。晶析はエネルギー集約的であるが、多くの特殊な、あるいは大量の固体製品を生産、単離する用途にかなり利用されている。これらの操作のエネルギー効率と生産性が充分ではない要因は、製品品質を予測、制御したり、プロセスや装置の性能を最適化することができないことによる。

高度な計算やシミュレーション技術が提供することのできるツールの用途は、(1)プロセス運転条件とその構成の改善、(2)信頼性の高い晶析装置設計、(3)既存プロセスの運転パラメータ最適化のためのシミュレータによる仮想実験、(4)結晶粒径分布(CSD)と純度の両方での製品品質の向上、(5)多大なるコスト削減に結びつくスケールアップ、(6)医薬品産業にとって重要な、開発に要する時間の大幅短縮、などである。これらの問題点を解決することにより、年間 10^{13} BTUをはるかに超えるエネルギー節約につながるようになるだろう。これは、熱伝達や混合における改善や攪拌動力の最適化、代替の溶媒系など新たな低コストのプロセス化学、そしてプロセスの収率と原単位の改善などに依るものである。

現在は、このような計算、シミュレーションツールが充分になったとはいえ、技術開発のポイントは、i)無機系、非イオン性固体、混合溶媒系など産業上とても重要な化学系での溶解度と過飽和度について、信頼のおける予測をするための手法およびデータと、ii)核化や成長、溶解、凝集、破碎、分級除去、流体力学、混合、熱伝達、さらにその時間的空間的な変化について、厳密に議論ができるシミュレーション用ソフトウェア・ツールである。

産業にとって重要な2つのレベルのシミュレーションモデルに対処することが非常に大事である。その2つとは、(a)プロセス用フローシートモデル、(b)プロセス

³ エネルギーの単位: 1Quad = 1.055×10^{18} J, = 10^{18} BTU

の構成要素に関する計算流体力学 (CFD) モデル、である。合わせて重要なことは商用ソフトウェア製品として結果を提供することであり、これにより実際の工業晶析プロセスの性能を予測、最適化することができるようになるのである。

本プロジェクトが取り組んでいるのは、晶析を用いた固体の生産、分離工程におけるエネルギー効率ならびに生産性に関するものである。その全体的な目的は晶析シミュレーション技術とソフトウェア・ツールの開発であり、産業界における製品品質の予測、制御を行う能力、ならびに工程や装置性能を最適化する能力を、エネルギー使用を減らしながら著しく向上させることを目指している。本プロジェクトが関わっているのは、産業界にとって重要な以下の二段階のシミュレーションモデルである。

(1) プロセスフローシートモデル。(2) プロセス構成部分の数値流体力学 (CFD: Computational Fluid Dynamics) モデル。

本プロジェクトの成果は、以下に述べるような市販ソフトウェア製品の形で提供されて、産業界は実際の工業晶析プロセスの性能を予測、最適化できるようになるであろう。

・ Crystal Analyzer は、以下の3つの要素を持ち、プロセスレベルのモデリングを行う。(1) 固体/液体平衡と過飽和度を予測するための溶解度解析で、水溶液および有機、混合溶媒の強力な熱力学的モデルを提供する。(2) 強力な晶析プロセスシミュレーションのためのコンパートメント・モデルで、重要な速度論的現象を全て含む。(3) プロセスフローシート解析。

・ Crystal Simulator は、構成部分レベルでのモデリングを行う。流量、熱伝達、溶解度、反応速度、結晶粒径分布 (CSD)、滞留時間などについて、空間的、時間的な変化予測を晶析装置の容器全体に渡り CFD に基づいて行うことができ、さらにプロセスと装置設計の詳細について最適化ができるようになる。

2.1.3 晶析ソフトウェア開発の背景

今まで全てのシミュレーション手法を制限してきたのは、利用者について、工学的に非常に高い要求(労働コスト、専門性レベルといった点について)をしているからである。そのため製造現場などでのルーチン的な利用が難しく、一部の従業員による高度な設計用途ととしてしか利用されなかったのである。また、晶析プロセスと装置構成があまりにも多様であるために、それぞれの解析研究が専門的で試行錯誤的な手続きになっていることが、この問題の大きさに影響している。これらを解決するために、(1) ソフトウェアのインターフェースを晶析

専用に仕立てること、(2) 組み込まれたデータベースを通じて必要な溶解度データへの迅速なアクセスを可能にすること、(3) 産業界との密接な対話から同定された最も重要な晶析装置構成用テンプレートの開発をすること、(4) モデル化する上で多くの選択肢が自動的に選択されるように TAB から導き出された専門知識を本ソフトウェアに埋め込むこと、などについて取り組まなければならない。その結果として期待されるのは、操作が共通な2つのソフトウェア・ツールである Crystal Analyzer と Crystal Simulator が、今までに例を見ないほど簡単に使用できるようなものになることである。

このソフトウェアモデルが経済的競争力を持つために性能上必要なことは、実際の産業で用いられている系に対する試験や有効性の確認をしたときに結晶粒径分布を信頼度良く表示、予測できることや、ユーザーが特定の応用に取り組んだり研究するために「化学的性質」や装置構成を追加できる機能を含んでいること、そして商品として入手可能(文書化されたものや訓練を含む)で既存の人気ソフトウェア製品との互換性があること、などである。こういった要求事項は、本開発の主目的として取り組みが行われている。これらの商品化を阻むような法的な要求事項は全く存在しないと思われる。

晶析は広く用いられているエネルギー集約的なプロセスであるにもかかわらず、最も効果的で経済的なエネルギー効率の高い固体生産ではないが、晶析シミュレーションソフトウェアによる厳密設計や工程モデリングツールを用いることにより可能であろうと思われる。先進的な計算やシミュレーション技術を用いたツールは、以下の困難かつ重要な要望を解決しなければならない。

- (1) 産業上重要な化学系について溶解度と過飽和度を信頼性高く予測する手法。ここには非イオン性固体や混合溶媒系が含まれる。
- (2) 現象を厳密に説明できる信頼性の高いシミュレーション、性能予測ソフトウェア。ここでいう現象とは、核化、成長、溶解、凝集、破壊、分級除去、種晶添加、流体力学、混合、熱伝達などであり、さらにその時間的、空間的な変化も含まれる。

作業の一年目は、新しいソフトウェア・ツール開発を支援する技術や基盤となるソフトウェアに関する三つの分野に取り組んでいる。第一の分野は熱力学的なモデルとデータで、実際の産業システムにおける安定固体と過飽和度を正確に予測するために必要である。第二の分野は現象論的モデルの同定、開発、評価であり、核化や成長、溶解、凝集、破壊などを数学的に記述することである。またこの第二分野には、これらの現象論的モデルを

厳密な化学平衡や質量収支方程式と一緒に解決するために必要な数値的解決の手法も含まれる。第三の分野は、晶析プロセスを扱うために必要なソフトウェアのコードの開発である。プロセス・モデルに関しては、パラメータとして「結晶粒径分布」をフローシート中に持ち込む機能や、フローシート中で固体を扱う(分級除去、シード添加など)機能などが含まれなければならない。CFDモデルに関しては、多相(固体/液体)流体力学や熱伝達についての対応と、工業晶析装置の形状寸法モデリングを簡素化するためのテンプレート開発などがある。

2.1.4 化学工学の現状

混合溶媒電解質の基本的な枠組みは既に開発⁸⁾されており、本データベースを埋めていく作業が進行中であるが、産業界にとって関心のある化学系を優先的に取り上げることとする。実際の系で課題となることのひとつに、複数の固相が考えられる場合での適切な安定固相の予測がある。回帰分析を行ったデータが存在するような系に対しては、現状のOLI社の枠組みはかなり精密である。しかし回帰分析を行ったデータの範囲外にあるような三成分以上の系に関しては、現存のシステムでは一部制限がある場合がある。OLI社ではこの制約に対処するためのアプローチを開発しており、そのアプローチを本プロジェクトでデータが入手可能になりしだい評価するつもりである。産業部門運営委員会(ISG, Industrial Stirring Group)との会合が催され、産業界ならびに AIChE / DIPPR の代表者などが参加している。本プロジェクトにより得られる主要な製品のうちの1つとして、溶解度データベースの開発をこのグループが進めることになる。この ISG のアプローチは、先のデータベースに含めるべき系について産業界から意見を求めることと、そのデータ収集と評価の手法に関するもの、さらにこの最終製品の範囲と形式、などである。

第二の分野は現象モデルの同定や開発、評価に関するものであるが、晶析速度論モデルづくりに使われる定義式を組み合わせた晶析現象理論の包括的リストは一部を除いて完成している。これらのモデルと提案されている計算上のポピュレーション・バランス理論を記述した内部報告書を作成中である。種々の「定義づけの方程式」を同時にかつ OLI 社の厳密な熱力学モデルを用いながらテストを行うために、堅牢ではあるが柔軟性も持ち合わせている手法が必要であろうことがはっきりした。このことを遂行するために、Excel ベースの研究用 VBA ツールの活用を提案している。このツールは本プロジェクトにおける全ての研究者により、実験データの解析ならびに晶析の速度論的理論のテストと開発を進めるために

使用されることになる。

第三の分野の中で晶析プロセス/化学モデルの開発に関連して、複雑な化学的性質と溶解度、現象の速度論モデル、数値的解決の手法、ならびに実験データによる妥当性確認などを含む、コンパートメント・モデルの構造設計を開始した。CFD 晶析装置モデルに関連して、晶析支援を目的として Fluent の多相モデルを熱および質量輸送へ機能拡張するための開発を始めた。モーメントの求積法⁴を結晶の凝集と破碎現象に拡張しながら、CFD のためのポピュレーション・バランス手法の試作版を評価した。

2.1.5 プロジェクトの成果の配布方法

本プロジェクトにより、晶析プロセスのモデル化や設計、最適化のための新しい大変意義のある技術が開発されることになる。同様な機能を持つ商用ソフトウェアは存在しないが、本プロジェクトチームは、我々と競合する開発をしている英国の2団体(BHR Solutions 社、Process Systems Enterprise 社)の動向を注意深く見守っている。両団体の技術とも、本プロジェクトのアプローチと同様の要素を持っている。それは晶析用にプロセスフローシートシミュレーションと CFD を組み合わせるといふこと、そしてコンパートメント・モデルという概念である。しかし両団体とも、OLI 社の溶液化学予測の枠組みとデータベースという厳格な基礎を欠いている。さらに両団体の計画とも、シミュレーション用ソフトウェア・ツールの位置付けはコンサルティング業務の付属物というものであり、必要とされる簡単操作を設計エンジニアが広範に採用するようには奨励しない、という戦略である。

この技術を商品化するに際して、法規制上の問題は全く考えられない上に、このツールは、商用晶析設備の建設や改良のために規制当局の許可が必要となるあらゆるものを支援することになるはずである。本プロジェクトの結果として特許を取得するということは予定していないが、OLI 社や Fluent 社が支配的に所有することになる知的所有権のある技術が完成すれば、商用ソフトウェアライセンスを通じて広く一般に利用可能となる。またこういった機能は、従来型のプロセスシミュレーション用ソフトウェア(Aspen Plus, HYSIS)を通じて利用可能になる可能性があるが、この趣旨に沿った議論は始められたばかりである。このことにより、開発されるこの新技術を最も広範囲に利用できる方法で、なおかつ最も短い時間で市場に浸透させることができるようになる。推定では化学プロセス業界(CPI)の企業の 50% 以上が、

⁴ QMOM : Quadrature Method Of Moments

この新製品に関心を持つと考えている。

この技術を商品化する際に鍵となるのは、特に工業晶析プロセスに適用可能な高度で使いやすい商用ソフトウェアの定義、開発である。OLI 社と Fluent 社ともに、特定の応用範囲をもつソフトウェアプログラムを開発、商品化した経験をもつ会社である。広汎に商品として成立させる上でキーとなるステップを以下に示す。

1. 専門家の検討と評価による、健全な技術計画と研究開発の実施。
2. 産業界からの意見と工業的な実際の系から得られるデータを用いた、モデル開発および妥当性確認。
3. 潜在ユーザーにより定義された機能やインターフェースの特徴を有する、市場主導型のソフトウェア開発。
4. 米国内の主要化学品、医薬品企業との強力な関係をここに、OLI 社と Fluent 社の現在の CPI 業界の顧客、両社のエージェントや販売スタッフ、さらに Aspen Tech や Hyprotech といったマーケティングパートナーなどを通じて行うソフトウェアのマーケティングと販売。
5. 産業界や大学関係のパネルメンバー (TAB)、技術論文、専門家協会などの会合、OLI 社 / Fluent 社のパートナー企業のセミナーや研修、さらに物理 / 化学データベースや分子モデルなど他の晶析用ソフトウェア・ツールなどを通じた技術移転。
6. 新しい製品技術を統合化することによる、OLI 社 / Fluent 社のソフトウェア研修、専用顧客サポート用の経営資源の最大限の活用。

特にこれらのステップの各々に対処するために、各分野の先端にいる人々によるサブプロジェクトチームを編成した。プロジェクトの成果としての最終製品を商品化することが、チームの目的である。4番、5番目のステップに関して言えば、Fluent 社と OLI 社双方が現在利用可能な、成功する見込みの高い販売チャンネルを活用するというのがその計画である。OLI 社の最大の強みのひとつは CPI 業界を形成している主要企業に深く浸透していることであり、その数は現在主要 CPI 企業の 75 社を超えるまでになっている。本プロジェクトで開発される製品は、少なくとも OLI 社の顧客ベースの 50% 以上に対して有望であると考えられる。Fluent 社も CPI 業界の中で同様な業務関係を結んできており、このことは Crystal Simulator 製品の商品化を加速することになるであろう。Fluent 社には米国の CPI 業界のみに焦点をあてた事業体もある。

2.2 初年度の計画と実績³⁾

プロジェクト検討会議は、2001年2月5～6日にかけ

て催され、産業界からの参加者と大学の晶析専門家をめ研究チーム全体が集まった。この会議では、現在までの仕事、技術的なアプローチ、ならびに最終製品のコンセプトについて批判的な眼で検討を行った。この会議に基づいて、作業計画をたて、2001年度の仕事の大部分は、既に進行中の作業(前項に詳述)を継続することにした。Excel ベースの研究用 VBA ツールの完成が鍵となっているが、それはモデル構成部分を試験したり数値的解決アルゴリズムを洗練させるのに不可欠であるからである。

本プロジェクト初年度における、第一の重要な分野は熱力学フレームワークとデータベース化である。OLI 社は混合溶媒電解質 (MSE) のフレームワークに飛躍的な改良を加え、データベースを埋めていく作業が進行中で、MSE の改良により、熱化学データ適合・予測モデルの堅牢性は OLI 社の水溶性のフレームワークに採用されている手法を使う場合に比べ、飛躍的に改善される。新しいアルゴリズム(これをヘルガソン直接法と呼ぶ)は以下を実現する。1)定常状態の特性を計算する計算時間を飛躍的に短縮。2)特に 100 以上の高温など、より幅広い温度・気圧範囲における予測の正確度を高める。3)固相・液相平衡定数(一般的には K fits と呼ばれる)への経験則をできる限り使用せず、代わりに適切な修正を加えた固相熱化学特性を使用することにより、モデルの固体予測能力を大幅に向上させる。これは、冷却、蒸発などで晶析に特に関連する低温・高温での固体溶解度予測にとりわけ役立つものとなる(注:これは、安定固体相の手法を陳腐化する重要な開発である)。さらに、溶解度が中程度以上で、熱容量が妥当に把握されている固体については、固体溶解度データを使い、濃度が高い場合は特に、活量係数パラメータの回帰分析に制約を加えられる可能性もある(実験データの回帰分析に確実に密接する)。

データバンクに関しては、OLI 社は文献の徹底的な検証を実施し、産業界のチーム・メンバーが特定したシステム用の実験データの出典を確認した。関連資料を収集し、Excel のスプレッドシート上に要約した。これらの資料は、今後、最近開発された MSE システム用の熱力学モデルのパラメータ回帰分析に利用される。

本プロジェクト初年度における第二の重要な分野は、厳密な晶析モデルに必要とされる現象モデルの同定、開発、評価である。この開発の最初の主要管理点である主要な組成要素の特定と予備段階モデルの組み立ては、2002年1月に完了した。高度な速度論的現象の予備段階モデルには、速度論モデル選択肢の包括的なリストとそれらに対する核発生、成長、凝集、破碎、および溶解の定義式が含まれている。OLI 社は本プロジェクト協力者

の文献・理論等，多様な情報源を使いこのモデルを組み立てた。その手法は，ISG のメンバーに検証されており，現在も発展中である。晶析装置の操作条件により制御現象が異なるため，各現象ごとの複合的モデルが必要である。このプログラムのユーザーは，プログラムの支援を受けながら，自由に利用するモデルを選択することができる。OLI 社が開発した Excel ベースの VBA 研究ツールは，仮想的に組み合わせた晶析現象モデルを素早くテストし，実験データや操作データと対照，モデル・パラメータの回帰分析を行うことができる。必要なプログラム・モジュールのうちの数種は開発済みで，それには過飽和度の計算や平衡固相の予測（例：最大固体有効性）が含まれている。

ユタ大学は実験室にて晶析速度論モデルを評価の上，パイロット・スケールし，OLI 社のコンパートメント・モデルのモデル・パラメータを展開する。新しい制御システムとデータ収集システムを導入するための実験装置への改造はほぼ完了した。ここでは，2つの実験システムが選択された。1)CaCl₂-NaCl-KCl 系のパイロット・スケールでの冷却晶析と，2)アジピン酸の pH スウィング晶析，である。また本プロジェクト，および外部研究者らの実験データを集積するため web サイトを計画中である。晶析の組成や化学物質に関する数件の優れたデータ源がすでに明確になっている。

アイオワ州立大学は Taylor-Couette 反応槽内での流れと乱流領域の分析や水溶液中の高分子粒子を使った凝集実験を含む実験作業を実施する。これらの実験は，CFD 晶析モデルの適切な現象モデルとモデル・パラメータの定義に役立てられる。実験システムの製作・組み立ては完了した。

本プロジェクト初年度における第三の重要な分野は，晶析過程を扱うために必要なソフトウェア・コードの開発である。晶析過程・化学モデル，および Crystal Analyzer に関しては，完全混合コンパートメント・モデルの数値解手法のテストが行われた。

Fluent の Mix Sim に基づいた CFD ベースのソフトウェア・ツール，Crystal Simulator の CFD 晶析装置モデルに関して，Fluent の多相能力に，晶析支援に必要な熱および質量移動に対する機能を拡張する開発が継承された。Fluent 6.0 に新採用の，Mixture Model と名づけられた独自の多相方式は，過大な計算を要せずに晶析装置のフローを模す有望な方法である。Mixture Model では単一系列（平均化された質量）のモーメントと乱流の式を解くことで，層内すべての結晶と母液の体積分率をたえず把握できる。境界条件，ソースターム，相間移動現象（例えば晶析熱の取り扱いなど）を含む熱移動の新しい

枠組みは完成した。熱移動に続き，化学種の移動と反応の取り扱いに着手している。Fluent 社はこうした拡張機能の初期開発テストを支援する初期検証マトリクスの定式化を開始した。

Fluent 社とアイオワ州立大学は引き続き CFD に応用可能な粒子ポピュレーション・バランスモデルの共同研究を進めている。アイオワ州立大学は Fluent のユーザー定義機能（UDF）と文献から得た実験データを用いて，モーメント求積法の試作版を製作した。ユーザー定義機能に基づいた試作版の妥当性を確認後，Fluent に直接，モーメント求積法が統合されるが，支障なく統合可能と予想される。モーメント求積法の妥当性は分析溶液の比較と核発生，結晶成長，凝集のモンテカルロ・シミュレーションにより確認されている。モデルは非常に良好に機能し，閉回路での結晶粒径分布（PSD）のモーメントに有効な解を得ることができる。アイオワ州立大学はモーメント求積法を破砕と溶解に拡張する作業を開始し，手法は開発済みで，開発作業は次期に継続される。

晶析装置設計理論や重要な化合物系などに関する本プロジェクト・メンバー以外の産業界からの広範なインプットをまとめる作業を行った。OLI 社と Fluent 社の顧客を対象に反応・意見を求める調査をしたが，思わしい回答が少なかったため，適切な企業を選定して接触することとした。

2.3 ISG 会議

産業運営グループ（ISG）の第一回会議は 2001 年 10 月 25 日に行われ，参加者は以下の通りであった。

George Thomson	AIChE/DIPPR
Noel Scrivner	デュボン社
Paul Mathias	Aspen Technology
Ashok Dewan	Equilon
Terry Ring	ユタ大学
Sumnesh Gupta	ダウ社（電話参加）
Tim Frank	ダウ社（電話参加）
Marshall Rafal	OLI社
Steve Sanders	OLI社
Dave Linz	OLI社
Andre Anderko	OLI社
Peiming Wang	OLI社
Ron Springer	OLI社
Lewis Collins	Fluent 社

本 ISG 会議の目的は，i)本晶析プロジェクトの全体についての背景説明を ISG に対して行うこと，ii)ISG の役

割と責任について明確にすること, iii) OLI 社の作業計画と初期成果の再検討を行うこと, iv) データベース作業への取り組み方, ならびに OLI 社と ISG の次に続く段階を明示することである。

2.3.1 現状の技術と重点課題

まず始めに, Dave Linz 氏がこの DOE 晶析プロジェクトの概観について, とりわけ Task 1, 熱力学的枠組み, ならびに溶解度データベースを中心に説明を行い, ISG は以下の領域の事柄に関して概観と指針を示している。

- ・溶解度解析と SLE(固液平衡) 予測に関する熱力学的枠組み
- ・データ収集, 評価, 選択, 回帰手法などを含めた, 溶解度データベースに対する取り組み方
- ・本研究に含まれることになる, 工業晶析にとって優先的に関心のある化合物系の選択と優先順位の検討
- ・最終成果となるデータベースの内容と形式

Steve Sanders 氏が結晶粒径分布の予測モデルの開発のための計画について発表した。これは化学的性質(過飽和度) と粒子の速度論的現象(核化, 成長, 溶解, 凝集, 破砕など) に基づいたものである。Marshall Rafal 氏は OLI 社の Task 1 に対する取り組み方について発表をした。その中で, データ検索手法, 回帰手法, 溶解度解析と固体物の予測, そして最終成果の形式などに関する議論が行われた。

これらの発表に続いて, 以下の 6 つの話題についての議論が会議の中で行われた。その目的は, これら 6 つの点に対する ISG の反応を得てその同意を得ることである。

1. 混合溶媒電解質(MSE) の熱力学的枠組み
2. 複雑な混合物から生成する安定な固体物の予測への取り組み
3. 溶解度データベースのデータ収集, 回帰手法, および取り組み方
4. 化合物系の選択
 - a. 晶析モデル開発を支援できるようなモデル的システム
 - b. 最終データベースのための, 優先度が高く工業的に使用されるシステム
5. 最終成果の形式
6. 次に続く段階

1 から 3 の項目について, ISG は基本的に OLI 社の(Marshall Rafal 氏が発表を行ったような) 取り組み方に

同意をした。この作業は, 先に述べた OLI 社の新しい MSE の枠組みと OLI 社で通常行われている細心の注意を払ったデータ手順を用いて進めることになる。固体系列について, K 対 T の関係のための外挿/ 熱力学的な整合性の手順について議論が交わされ, 相応な取り組みであるとみなされた。この鍵となるのは, 不変な点における傾きを正しくすることである。十分に資料がある三分系の現存するデータを使用して, この外挿技法の妥当性を評価することができることが認識された。

データの再検討については, OLI 社がこのデータ再検討を行い記録を残すことになっており, その記録が ISG によって再度吟味されることになる。この OLI 社の計画案の中には, まず最も信頼のおける情報源の調査を行ってから他の確認データを捜し求める, ということが含まれている。OLI 社はでき得る限り高いデータ品質を保証するために, 厳しい熱力学的な妥当性試験と三段階の規則を適用する。参考のため, DIPPR は 911 および 801 方針手引書を OLI 社に提供する。OLI 社はそのデータ再検討手順についての全てを記録として残すことになっている。「このデータはどの位よいものなのか」と「どのくらい合致しているのか」を知ることが重要である。また, OLI ソルバーの誤差解析機能を何らかの形で用いることで, 溶解度(および過飽和度) が基本的な熱力学的性質からどれだけ影響を受けやすいのかということに関する知見を(データ合致性を基にして) 得られるかも知れない, との提案があった。

より明快にするために, 上記の検討範囲というのは熱力学的な溶解度データであり, 速度論ではない, ということを繰り返さなければならぬ。熱力学的データの作成は可能な限り徹底的に行うべき(例えば浸透圧係数など) であるという提案があった。

データを探す過程において, Science Citation Index をツールとして用いたらどうかという提案があった。OLI 社はこの取り組み方に詳しく, 実際にこれを用いている。NIST の熱力学的データの情報源が Web 上にあるとの言及があったが, この情報源はデータベースを Web で利用可能にする際のモデルとなり得る。また Beilstein と Gmelin についても利用可能な情報源として話が及んでいる。

2.3.2 化合物系の選定

この項目については 2 つの側面がある。最初の側面は, モデルとなる 2 つのシステムとして 1 つは無機物もう 1 つは有機物を選び, 晶析速度論と晶析プロセスのモデル開発の基礎とすることである。このことは現在進行しているモデル開発と研究室作業に関連しているので, できるだけ早く決定する必要がある。二番目の側面は, 最終

成果であるデータベースに含める化合物系の選択である。重要なのは、業界にとって関心の優先度が高い晶析システムを網羅するようなデータベースとすることである。

この2つのモデルとなるシステムに関して言えば、その選択基準は以下のようになる。

1. 水系もしくは混合溶媒系、あるいはその両方において、品質の高い溶媒データをすぐに利用できること。
2. 晶析操作を行うことができ、なおかつ結晶粒径分布 (CSD) が入手可能であること。この中には現存する研究室データと工場データのみならず、工場における工業的データでこの先得られる見込みのものも含まれており、これらはモデルの妥当性評価に用いられる。
3. システムの用途が広く、広範囲にわたって適用可能なこと。つまり、1) 工業プロセスに適用可能な広範囲の試験条件の下で、有益な結果が得られるようなシステム。そして、2) 主たる晶析プロセスの構成を代表するようなシステム。この晶析プロセス構成の例としては、蒸発/冷却、pH スィング/反応、貧溶媒、そして回分/連続などがある。
4. 一般的な大学の研究室で、その化学物質を安全・衛生上の懸念がないこと。

提案されているモデル的システムは以下の通りである。

無機化合物系
<ul style="list-style-type: none"> ・ CaCl₂ / NaCl / KCl / H₂O ・ 石膏 / NaCl / Na₂SO₄ ・ リン酸 + 消石灰 ==> リン酸カルシウム ・ 燐鉱石 + 硫酸 ==> 石膏 + リン酸

有機化合物系
<ul style="list-style-type: none"> ・ ニコチン酸 / H₂O / エタノール (ニコチン酸ナトリウム) (MSU はこのシステムについて発表を行った) ・ 安息香酸 (安息香酸ナトリウム) ・ アジピン酸 ・ テレフタル酸

本データベースで対象にすべき産業上用いられる化合物系に関しては、以下のような点が考慮される。1) 単一の溶質と混合溶質 (三成分系) を網羅すること、2) 水溶液系と混合溶媒系を網羅すること、3) 重要な準安定系を調査すること、4) CSD と速度論的データがすぐに入手できるようなシステムの特定を試みること、5) 産業上優先度の高い化合物系を網羅するために、公表されている

上位 50 種化学物質のリストを確認することである。

可能な限り徹底的に研究する化合物系をまずどれにするか、について決定をする。そしてあまり詳細には検討しないものをどれにするのか、についても決定する。鍵となるような工業晶析プロセス、問題点、課題などについて代表的な化合物系を網羅する。この中には、CSD 制御、混合塩中の共晶、共通イオン効果と異種イオン効果、などが含まれる。これに関して、産業界からの広範囲な情報提供を求める。

本データベースでは深く掘り進める (徹底的に研究する) ことが重要であり、広範囲に (多くのデータ数を) というのではない、という提案があった。データの入手しやすさを基にして、いくらかは妥協をすることが必要になるであろう。このプロジェクトでは、データ不足を埋めるような実験作業を対象とする資金援助は受けていない (ただし、本プロジェクトで使われることになる2つの化合物系に対して、ある程度の限られた作業は可能である)。本プロジェクトの中で鍵となるような情報の欠落は、将来産業界によって提供されるであろう DIPPR プロジェクトによって取り組まれると期待している。

DIPPR 会員、ISG と DOE のプロジェクト協賛会社、そして Aspen 社や OLI 社、Fluent 社の顧客などに対して広範囲に渡る依頼を出すべきである、という決議があった。この情報提供の依頼のために用いることができるような電子メールの案は、OLI 社が作成する。この産業界からの情報提供の必要性については、DIPPR 委員会での会合で討論することになる。

2.4 第2年度の計画と実績

第2年度の作業の中心は、前項に記述された進行中の作業の継続となる⁴⁾。

2 大学の実験システムが確認され、実験が開始される。OLI 社は追加モジュールを開発し、それらを Excel ベースの VBA 研究ツールに組み込み、定常状態の完全混合槽型晶析装置、MSMPR (完全混合コンパートメント・モデル) の試験を行う。またプラグ・フローのコンパートメント・モデルに必要な数学理論も完成されなければならない。速度論モデル選択肢と計算方法を評価、精度を高める作業も継続する。

Fluent 社は多相質量移動の推進力について検討し、加えて、晶析装置容器の主要メーカー (例: HPD, Swenson など) に接触し、大型晶析装置設計の課題点への理解を一層深め、晶析装置を一連の形体 (幾何学的特徴) に分解する研究を行う。この研究結果はソフトウェアとして構成され、新しい設計手法を産み出すものとなる。Fluent 社は CFD モデルの製作を能率化する「テンプレ

ート」に組み込み可能な、サイズ比率に関する設計経験則と個々の形体に共通する空間の定義に着手する。CFD モーメント求積法の計算を高速化する取り組みも続行される。CFD モデルに破砕と溶解を取り入れる調査・研究も行う。

初年度の仕事は、新しいソフトウェア・ツール開発の支援となる技術とソフトウェアの構造基盤における三分野への取り組みである。第一の分野は、熱力学モデルとデータで、実際の産業システムでの安定固体と過飽和度の正確な予測の為に必要とされる。第二の分野は、現象学的モデルの同定、開発、評価であり、核発生、成長、溶解、凝集、破砕などを数学的に説明するために使われることになる。この第二の分野は、これらの現象学的モデルを、厳密な化学平衡や質量収支方程式と同時に解決するために必要な数値的解決手法も含む。加えて、二つの大学における、現象学的モデルの開発と検証を支援するための実験的プログラムへの準備及び着手も、この第二分野には含まれている。第三の分野は晶析プロセスを取り扱うために必要な、ソフトウェア・コードの開発である。プロセス・モデルに関しては、フローシートモデルでのストリームパラメータとして「結晶粒径分布」を計算する能力や、フローシート中で固体を取り扱う能力（例えば、分級除去、種晶添加など）、そしてユーザーインターフェースなどがこれに含まれる。CFD モデルについては、多相（固体/液体）流体力学や熱伝達についての対応と、工業晶析装置幾何学モデリングを簡素化するためのテンプレート開発などが含まれる。

2.4.1 化学熱力学と速度論の現状

初年度の本プロジェクトにおける第一重要分野は、熱力学フレームワークとデータベースである。今期、OLI社は混合溶媒電解質(MSE)フレームワークを継続して行い、温度相関係数の改善という成果を得た。これは、晶析プロセスで取り扱う複雑な化合物系における正確な固体予測に関わっている。また、作業はデータベースの関連付けのために引き続き行われている。

VLE とエンタルピーの同時回帰分析の結果として、OLI社は中間領域の活量係数項の温度依存を変化させた。中間領域項は以下二つのパラメータから成っている：それは定数パラメータとイオン強度パラメータである。どちらのパラメータも現在は以下の温度依存を有している： $A + BT + C/T$ ($1/T$ replaces T^2)。新しい温度依存により VLE データ、エンタルピーデータともに良い動作を示すことが数回の試験によって証明された。この改良によって、混合溶液電解質(MSE)の活量係数パラメータは、現時点では概して各種異なるデータの同

時分析によって決定されている。これらのデータには全圧及び分圧、水の活量(浸透係数)、塩の活量係数、希釈熱、熱容量、固体溶解度及び水の溶解度などが含まれる。混合溶媒電解質(MSE)モデルの多成分塩水溶液に対する動作試験のため、 $\text{NH}_4\text{NO}_3/\text{NaNO}_3$ 水溶液システムの MSE パラメータについて開発され、実験データに大変良く一致する結果が得られた。これによって、混合溶媒電解質(MSE)モデルが三成分系固体溶解度データを非常に高い濃度まで関連付けることが出来ることが初めて示されたことになる。

さらに、産業界のチーム・メンバーが特定した、無機化合物系のほとんどに対して未加工実験資料データベースが開発された。これらのデータは、次期の回帰分析に使用される。

本プロジェクトの初年度における第二の重要な分野は、厳密な晶析モデルのための、現象モデルの同定、開発、評価である。

この期において、最終製品の基礎となるコンパートメント・モデルの目覚ましい進歩がみられた。ユタ大学とアイオワ州立大学での実験プログラムも現在良好な状態で進行中で、完全混合コンパートメント・モデルに関する数値解手法の最初のテストがおこなわれた。

これは以下のための関連プログラム・モジュールを含んでいる：(1)流入状態の特定(2)運用データの同定と転換(3)計算モデル設定(例：成長モデルタイプ、パラメータ選択など)(4)最大結晶密度決定(5)推定結晶密度における過飽和比決定(6)離散型結晶粒径間隔の選択(7)核発生と成長率の計算(8)ポピュレーション・バランス式(PBE)解決(9)マテリアル・バランスの終結。

結果とアルゴリズムに関して、徹底的な検証が行われた。複合完全混合と、核発生と成長のケースがテストされ、解析的に求められた結果と比較された。最終的に、全ての相違点はモデル仮定と一致した。凝集モデルが、粒径独立あるいは粒径依存カーネル付きで、ポピュレーション・バランス式(PBE)に追加された。モデルの結果検証のために、Michael Hounslow 博士が著した「粒径依存型の核発生、成長、凝集の解析的解決テクニック」を適用した。初めての実施コンパートメント・モデルが結果的にその成果と見なされることになり、その時点で、種晶添加や分級除去の現象が付け加えられて、コンパートメント・モデルは更なる検討のためのリサーチ・ツールにおいて使用可能となる。

2.4.2 晶析装置内流動状態の実測とモデル式

ユタ大学は実験室にて晶析速度論的モデルを評価の

上、パイロット・スケールし、OLI社のコンパートメント・モデルのためのモデル・パラメータを展開する。晶析反応槽と制御システムは現時点で完全に揃っている。このシステムは、反応物質温度や、リアクター pH を使った時あるいは他の濃度測定尺度を使った時の、流量、攪拌回転数 (rpm)、反応槽温度などを管理・制御するシステムは以下のことを計測する。反応系供給温度、反応槽温度、生成物温度、内外反応槽冷却温度 (冷却流量がわかっている時、晶析熱計測を可能とする)、攪拌回転数 (rpm)、pH、反応槽生成系の電気伝導度などである。

滞留時間分布実験としては、パルスインプットによる動特性実験を行った。高回転数で低流量の場合、滞留時間分布は指数関数的な減少を示し、これは、理想的な攪拌槽型反応槽に予想されたものと一致した。低回転数の場合、滞留時間分布は、混合の不十分な攪拌槽型反応槽に典型的なデッド・ゾーンとバイパスの徴候を見せた。邪魔板の追加は、この低回転数不十分混合への傾向を減少させる。高速フーリエ変換を用いたこれらのデータのさらなる分析は、データのばらつきのパワー・スペクトルを示している。低めの振動数では 0.015 Hz と 0.02 Hz で数回の最高到達点を示すが、これはデッド・ゾーンに典型的な、槽容量の偏差を消去したりゆっくりと変化させたりする長周期の事象を示唆している。高振動数の場合は、最高到達点は ~ 1 Hz で、これは、攪拌回転数 (またはその倍振動) とバイパスに典型的に見られる短周期の事象を示唆している。熱電対の応答速度は 2 秒 (0.5 Hz) である。0.5 Hz を超える振動数では、データは熱電対のノイズを示すことになる。この周波数分析を、指数関数を用いた従来の最高適合に付け加えて使用することで、基準データの指数回帰を用いた場合にはあまり観察されることのない、反応槽における滞留時間分布の不規則性を診断することが出来る。さらに、流動フローの時間依存モデリングにより、滞留時間分布の周波数応答の予測が可能になり、これによってモデルの妥当性を示すことができた。

アイオワ州立大学は、Taylor-Couette 反応槽内部の流れと乱流領域の分析や、水溶液中の高分子粒子を用いた凝集実験などを含む、実験を行っている。この部分の主な目的は、晶析槽の固液システム中での粒子凝集の調査であり、そして数値流体力学 (CFD) に基づいた予測能力と信頼性のあるモデルの開発である。

凝集は実験的に連続式 Taylor-Couette 反応槽で研究されている。高分子粒子が反応槽の底に供給され、流線に沿ったその変化のようすが CCD カメラを使って観測される。サンプルが反応槽放水口より取り出され、第二段階の独立した測定は、コールタ式粒度分布測定装置に

よって行われる。凝集は、市販の CFD コード (Fluent 社) 内のポピュレーション・バランス方程式解答 (モーメント求積法を通じて) によってモデリングされる。流量領域予測が有効化される必要があり、この目的の為に、PIV (Particle Image Velocimetry) 測定法が実行され、Fluent 予測を有効化するために使用される。Taylor-Couette 反応槽におけるフロー領域の準備段階的調査が遂行されており、実験結果との比較は、アルミニウム粉を用いた可視実験に確認した。PIV 測定は、重なり合った軸フローは用いず、反応槽の接線方向で実施した。調査対象となった部分には、約三倍の環状ギャップ拡張があり、速度領域は良好な定義で知られている。四つの異なった流体力学の方法が検出・分析されている：(1) Laminar Taylor Vortex Flow、(2) Wavy Vortex Flow、(3) Modulate Taylor Flow、(4) Turbulent Vortex Flow。

2.4.3 ソフトウェアの開発状況

本プロジェクト 2 年度における第三の重要分野は、晶析プロセスを扱うために必要なソフトウェア・コードと基盤の開発である。晶析プロセス / 化学モデル、Crystal Analyzer、に関しては、PBE モデルの包括的テストを可能にするためのソフトウェア基盤と、完全混合コンパートメント・モデルの数値解決手法に対して、開発が遂行された。この作業はスケジュールどおりに遂行されている。

CFD ベースのソフトウェア・ツール、Crystal Simulator に関しては、引き続いて、Fluent の多相能力に対して、晶析支援に必要な熱および質量移動の機能拡張の開発が行われた。質量移動のための新しいフレームワークが実施された。化学反応機能のプログラミングが始められた。(結晶成長速度論はインターフェース“反応”としてモデル化される) 多相系の熱と質量移動に関する検証テストケースマトリックスが決定された。

Fluent 社とアイオワ州立大学は、粒子ポピュレーション・バランスのモデリングと微視的混合のリサーチのため、引き続き共同研究を行った。Fluent 6 に関して、コンパイルされたユーザー定義機能 (UDF) を用いながら、モーメント求積法 (QMOM) を実行することができた。コンパイル型 UDF は、インタプリタ型 UDF に対して選ばれたのだが、その理由は、コンパイル型の方がより早く柔軟だからである。シミュレーションの実例 (Serra, Colomer & Casamitjana, 1997) によって、CFD コードにおけるメソッドの利用に確信を得、メソッドは現在、アイオワ州立大学の実験データのモデリングへの使用と、Fluent 多相混合モデルへの統合への準備が出来ている。アイオワ州立大学によってプロトタイプ化された Fluent

ユーザー定義機能(UDFs)は、コンパイルされたフォーマットに変換されたが、それは、電算時間と必要メモリの削減と、外部ファイルから晶析速度論パラメータを読むことが出来るようにするためである。

晶析装置設計の機能と、重要な化合物系に関するインプットを増大させる努力は、今期も引き続いて行われた。産業界の専門家たちは、産業界でもっとも普及している晶析装置のタイプは、回分式晶析装置(幅広く様々なジオメトリーを使用)と、強制循環型晶析装置(ほとんどが蒸発式)であろうという推論をたてた。これらの二つの装置種類がFluent社のインプットテンプレート開発努力の主要なターゲットとなるであろう。ドラフトチューブパッフル型(DTB)晶析装置は、優先順位としてはその次になると思われる。

2.5 3年度以降の計画

3年度以降の作業計画は、前項に記述された進行中の作業の継続となる⁵⁾。OLI社が完了すべき仕事は、優先無機化合物系におけるデータ回帰分析、コンパートメント・モデルとリサーチ・ツールでの使用のために必要なプログラム・モジュールの完成などを含んでいる。速度論モデル選択肢と計算テクニックの評価は、進行中である。プラグ・フローのコンパートメント・モデルに必要な数学理論はHounslow博士によって供給されている。最終製品は、工業晶析装置のプロセス・モデルで使用されるために、完全混合とプラグ・フローの両方のコンパートメント・モデルを含むことになる。

2大学の実験プログラムでの試験と、データ収集を完全実施したい。第一のユタ大学の試験は、攪拌槽型反応槽で冷却晶析を使用する。アイオワ州立大学のプロジェクトにおいては、PIV実験データが、Taylor-Couette反応槽での流れの領域を考慮しながら、数値流体力学(CFD)予測を有効化するために使用される。凝集は実験的に調査され、結果は数値流体力学(CFD)予測(モーメント求積法と連結させながら)との比較のために使用される。

ここでは、Fluent社は、多相系化学種保全の実行完了と、化学反応を伴ったさらなる進歩を計画している。晶析装置を一連の形体に分解するための、追加研究が必要である。その形体というのは、モデル新デザインをサポートするために、Crystal Simulatorにおいて、ビルディング・ブロックあるいは“テンプレート”として供給可能なものである。ポピュレーション・バランスモデル計算機能を実現するために、プロトタイプユーザーインターフェースを開発する予定である。

2.5.1 最終成果

最終成果である溶解度データベースの範囲について討論があり、本データベースには100種類ほどの化学物質が収容されるかもしれない。この点については、先の情報が産業界から集まりその報告の予備的な検討が完了した後に取り組んだ方がよい。この件は今後のISG会議の議題でもある。

この最終成果には全てのオリジナルデータを収める予定で、またデータの書面による評価と使用推奨値も同様である。(OLI社がこの化合物系の熱力学的モデリングに用いるために開発するMSEモデルのパラメータは含まれない。)また、本データベースとその報告を電子フォーマットと印刷された形で入手可能にすることで、この電子フォーマットによりデータ検索が円滑になるであろう。オリジナルデータとその評価方法その他については、IUPAC形式に従って行われる。OLI社はBYU形式(これはGeorge Thomson氏が提供する)について確認することになっている。本最終成果には、DIPPR/AIChE, DOE, OLI社, ISGの会社(デュポン, ダウ, Aspen, Equilonおよび日本化学工業)の名前を全て入れなければならない。

2.5.2 次に続く段階

・Ashok Dewan氏をISGの調整役として、OLI社がISGの議事録をまとめた。

・OLI社が依頼書の電子メール原稿を提供する。この依頼書は、本研究に含める化合物系の確認を支援するために産業界に送り出すものである。

・その後で、参加者全員がそれぞれの産業界の関係者に情報提供を依頼する。この作業はこの先4ヶ月かけて行い、ISGによる結果の再検討が2002年5月に行われるよう間に合わせる。

・この先のDIPPR委員会の会合において、George Thomson氏が産業界からの情報提供の必要性について話し合う。

・OLI社がMSEの枠組みに関する発表論文を全員に送付する。

・先にあげた判定基準に照らして、提案された有機、無機のモデル的システムをOLI社が検討する。そしてISGに報告を持ち帰り、使用すべきモデル化合物系の推薦をする。この作業はこの先2,3ヶ月で完了しなければならない。

・George Thomson氏が911/801方針手引書とBYU形式をOLI社に提供する。この目的は本プロジェクトで用いるデータ手順のOLI社による文書化を支援することである。その後、OLI社はそのデータ再検討手順について

記録をし、ISGの検討に供する。

・OLI社が産業界からの情報提供をまとめ上げて見直しを行い、この先の会合においてISGに提示できるようにする。

3 おわりに

ここで、示した、DOEのプロジェクトは、まだ開発が進行中であり、今後の成果を待たなければならないだろう。当社は、このプロジェクトの計画段階から関与してきた、数少ない米国外からの参加企業である。本論文は、米国の晶析研究の一動向を日本語で速報する初めてのものであり、研究の成果が出次第、続報していく所存である。

日本では、(社)日本粉体工業技術協会に設置された晶析分科会がある。晶析分科会は、晶析装置設計理論を中心とした講演会・講習会を開催し、各企業から開示された講演発表に基づいて、晶析プロセスの設計と晶析装置の設計理論について新たにまとめ、理論を応用して実装置に応用した例と理論を実践するための方法についてまとめ、刊行している⁶⁾。

日本において晶析技術が独特の発展を遂げてきた背景には、晶析現象は、核発生現象や成長現象が同時に進行し、相互に影響する複合現象であると考え、物質固有の現象が顕著に表れるものであると位置付けられたこと、晶析装置内の晶析特性を示す、無次元パラメータを提案し、一方で装置内現象に依存しない物質・個数収支式による設計方法を活用していることが挙げられる。すなわち日本においては、晶析現象を示す経験式と装置の収支式を組み合わせ、さらに、各社独自のノウハウを適宜用いることにより、プロセス設計を行ってきた。この複数の知識の組み合わせこそが、真の技術なのかもしれない。晶析分科会では基礎知識として、晶析装置設計理論の教育の中心として活動してきたが、これらの知識と組み合わせるやり方について、Q & Aの形式でデータベース化

しようとしている。

ヨーロッパ、EUでは、CRYSOPT(<http://crysopt.ing.uniroma1.it/>)が、産学協同研究開発の中心である⁷⁾。ここでは、産業界であげられた、技術上の問題点を学術関係者が解決するという、基本の枠組みと技術者の教育を一体化し、定期的実施している。

これらの、日米欧の3極でそれぞれの体制に適した共同研究や開発が進められているが、近い将来、それらの一部が連携する可能性もある⁹⁾。2002年の11月に開催された、「粉体工業における工業晶析シンポジウム、2002」において、3極の主要な関係者が集まり、熱心な討議を重ねてきた。

本論文が、米国の晶析技術を理解するために、微力ながらお役に立てれば幸いである。

文 献

- 1) 山崎：第38回粉体工学会夏期シンポジウム、(2002)
- 2) DOE Quarterly Progress Report: DE-FC07-011D14087, Jun. 30, (2001)
- 3) DOE Quarterly Progress Report: DE-FC07-011D14087, Jan. 30, (2002)
- 4) DOE Quarterly Progress Report: DE-FC07-011D14087, Apr. 26, (2002)
- 5) DOE Quarterly Progress Report: DE-FC07-011D14087, Jul. 30, (2002)
- 6) 晶析分科会編：「晶析プロセス・装置設計理論の応用と実践」, 化学工業社(2001)
- 7) Ulrich：2002粉体技術における工業晶析国際シンポジウム(2002)
- 9) 豊倉, 山崎：「粉体と工業」, 31, 12, 21(1999)



著 者

氏名 山崎 康夫

Yasuo YAMAZAKI

所属 情報化推進室