

< 修 士 論 文 >

論文題目

連続晶析における粒度分布遷移
過程の状態空間モデルによる表現
(要 旨)

滋 賀 大 学 大 学 院
デ ー タ サ イ エ ン ス 研 究 科
デ ー タ サ イ エ ン ス 専 攻

修了年度：2021 年度

学籍番号：6020117

氏 名：松井 宏司

指導教員：河本 薫

提出年月日：2022 年 1 月 12 日

背景と目的

本研究は、滋賀大学と住友金属鉱山株式会社の共同研究である。住友金属鉱山では、晶析と呼ばれる技術を用いて工業製品の原料となる様々な結晶を製造し、顧客へと納品している。納品する結晶はその品質を担保する必要がある、満たさないものは不良品となる。よって、品質面で許容できる結晶をより多く製造できる運転条件で製造装置を稼働できることは、企業にとって大きな利益となる。結晶の品質は粒度などによって管理されている。結晶の粒度とは、結晶の大きさやそのばらつき具合のことで、粒度分布を用いて表現される。一方、晶析装置の運転条件が粒度分布に及ぼす影響については解明されていないことが多い。そのため、粒度分布を制御するための運転条件の管理は、製造現場の「勘と経験」に頼らざるを得ない状況である。このような背景を踏まえ、本研究では、安定な品質を実現する運転条件を検討するために、晶析装置の運転条件が粒度分布に与える影響を時系列的に分析した。

晶析と先行研究

晶析とは、物質精製および結晶粒子製造を目的として行われる工業的結晶化である。結晶の特性は、個々の結晶の大きさや、集合体の大きさのばらつきなどの性質によって決まる。工業的には、求める結晶の含有率が高いことが望まれる。ここで結晶の品質管理方法として、粒度の管理が挙げられる。粒度から晶析装置内の結晶の配合率が推定できるため、結晶の粒度を管理することが、結晶の品質管理につながる。工業的には、品質的に許容できる粒度の範囲となるように、溶質濃度・供給速度等を調整することが求められる。本研究で用いた実験装置は、溶液を連続で供給し続ける晶析装置であり、2つの溶液を反応槽へと供給して結晶を析出させ、結晶をカメラで撮像し、画像処理によって結晶の粒径を計測する。粒径は球相当径と呼ばれるもので測られ、これは結晶が球体であると仮定したときの結晶の直径のことである。先行研究となる秋山らの研究は、実験データから立てた、溶液濃度を濃くすることで大きい結晶の割合が増加するという仮説から、粒径域ごとに溶液濃度に依存して結晶が大きくなる割合が異なるというモデルを提案した。しかし、画像輝度の低下によって結晶が検出しにくくなりデータに影響を与えることや、モデルの検証やパラメータ推定方法の見直しを課題点として挙げている。

分析

本研究では、画像輝度が低下しにくいように実験装置に改良を加えた。また、画像処理のロジックに不備がみられたため、その補正処理を加えた。実験によって得られたデータの観察から、溶液濃度の増加によって、結晶の成長により大きい粒径域の結晶ができること、および結晶の生成が促進されていることが示唆された。また、時間経過とともに、観測結晶数が減少することが分かった。以上のことから、「濃度の増加によって、核生成・核成長が促進される。ただし、この程度は粒径域

によって異なる。」という仮説を立てた。この仮説に基づき、濃度に依存して核生成・核成長が促進される状態空間モデルを構築した。このモデルについて、MCMC を用いてベイズ推定を行うことで、確率的に観測される各粒径域の結晶から、直接観測できない反応槽内の結晶の真の個数が濃度に依存して変化していく様子を推定することができる。

結果と今後の課題

MCMC 法によって計算されたパラメータの事後分布は、概ねすべてのパラメータについて収束したと判断された。先行研究のモデルを実験データに適用したところ、6 μm 以下の粒径では当てはまりが良いが、それより大きい粒径域では当てはまらなかった。また、本研究で提案したモデルのパラメータを推定したところ、濃度に比例して結晶の成長確率が大きくなることが示唆されたが、一定の濃度を超えると極端に成長確率が減少した。理由として、モデルが凝集と結晶をひとくくりにして表現してしまっていることが考えられる。濃度が高いと、結晶成長よりも凝集が起きやすくなり、急激に粒径が大きくなっている可能性がある。今後、撮像時の画像処理ロジックの改善や、凝集現象のモデリング、粒径分布のモデリングなど多くの課題が残されている。本研究のモデルは、晶析理論的には不十分であるかもしれないが、工業的な実用性を備えるモデル開発方法の1つのアプローチになると考えている。今後の研究でこれらの課題が解決され、将来的には実際の製造現場で用いられるような数理モデルの開発が進むことが望まれる。そして、「勘と経験」による運転条件の決定から、「明確な分析基準」による運転条件の決定が可能になることで、現場の負担や、人材の教育コストといった負担が軽減できることを期待される。