(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2015 年 2 月 12 日(12.02.2015)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2015/020073 A1

(51) 国際特許分類:
C07H 13/06 (2006.01) *C07B 61/00* (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2014/070677

(22) 国際出願日: 2014 年 8 月 6 日(06.08.2014)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:
特願 2013-166980 2013 年 8 月 9 日(09.08.2013) JP

(71) 出願人: 第一工業製薬株式会社 (DAI-ICHI KOGYO SEIYAKU CO., LTD.) [JP/JP]; 〒6008873 京都府京都市下京区西七条東久保町５５番地 Kyoto (JP).

(72) 発明者: 楠井 啓介(KUSUI Keisuke); 〒6008873 京都府京都市下京区西七条東久保町５５番地 第一工業製薬株式会社内 Kyoto (JP). 谷越 宏史(TANIKOSHI Hirofumi); 〒6008873 京都府京都市下京区西七条東久保町５５番地 第一工業製薬株式会社内 Kyoto (JP). 手塚 正樹(TEZUKA Masaki); 〒6008873 京都府京都市下京区西七条東久保町５５番地 第一工業製薬株式会社内 Kyoto (JP).

(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:
— 国際調査報告（条約第 21 条(3)）

WO 2015/020073 A1

(54) **Title**: METHOD FOR PRODUCING SUCROSE FATTY ACID ESTER

(54) 発明の名称 : ショ糖脂肪酸エステルの製造方法

(57) **Abstract**: Provided is a method for producing sucrose fatty acid ester having suppressed coloration and a negligible amount of residual organic solvent. A method for producing sucrose fatty acid ester that acquires sucrose fatty acid ester from a reaction mixture obtained by reacting sucrose and fatty acid lower alkyl ester in the presence of an alkali catalyst in a reaction solvent, wherein the method for producing sucrose fatty acid ester includes a predetermined extraction step, purification step, and vacuum drying step.

(57) 要約: 着色が抑制されかつ有機溶媒の残存量が極僅かなショ糖脂肪酸エステルの製造方法を提供すること。 反応溶媒中、アルカリ触媒の存在下、ショ糖と脂肪酸低級アルキルエステルとを反応させて得た反応混合物からショ糖脂肪酸エステルを取得する、ショ糖脂肪酸エステルの製造方法であって、所定の抽出工程、精製工程、および、減圧乾燥工程を含んでなる、ショ糖脂肪酸エステルの製造方法。

明　細　書

発明の名称 ： ショ糖脂肪酸エステルの製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、ショ糖脂肪酸エステルの製造方法に関する。さらに詳しくは、着色が抑制されかつ有機溶媒の残存量が極僅かなショ糖脂肪酸エステルを得ることができる、ショ糖脂肪酸エステルの製造方法に関する。

背景技術

[0002] ショ糖脂肪酸エステルは、化学反応における助剤、食品、化粧品、医薬品、洗剤等への添加剤、包装容器等への帯電防止剤等に代表される、種々の用途に用いられている化合物であり、優れた生分解性および界面活性能を示す。

[0003] ショ糖脂肪酸エステルは、例えば、ショ糖と脂肪酸アルキルエステルとを、反応溶媒中、触媒存在下に反応させることにより得られる。この場合、反応終了後、ショ糖脂肪酸エステルを含む反応混合物が得られるが、該反応混合物からショ糖脂肪酸エステルを取得する方法としては、例えば、該反応混合物を有機溶媒と水とを用いた液液抽出に付した後、得られる有機溶媒溶液を水で連続向流式抽出に付して反応溶媒であるジメチルスルホキシドを殆ど含まない有機溶媒溶液を取得し、この有機溶媒溶液から溶媒を留去する方法が知られている（特許文献１）。

[0004] しかし、特許文献１の方法では、有機溶媒の除去が充分でないという問題、および、ショ糖脂肪酸エステルが極めて着色しやすいものであるが故、乾燥後のショ糖脂肪酸エステルの着色を充分に抑制できないという問題があった。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特開平７－２２８５９０号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] 本発明は、着色が抑制され、かつ有機溶媒の残存量が極僅かなショ糖脂肪酸エステルの製造方法を提供しようとするものである。

課題を解決するための手段

[0007] 本発明者らは、上記課題の解決に向けて鋭意検討を進めた結果、目的物を得るための減圧乾燥工程を、１以上の減圧乾燥機を用いて、機内の圧力および／または加熱温度を少なくとも２段階以上変化させる一連の工程とした上で、その第一段階および最終段階の機内圧力および加熱温度を、それぞれ所定の範囲内とすることにより、着色をほぼ抑えかつ溶媒の残存量を極僅かにすることができることを見出し、更に検討を重ねて、本発明を完成した。

[0008] すなわち、本発明は、反応溶媒中、アルカリ触媒の存在下、ショ糖と脂肪酸低級アルキルエステルとを反応させて得た反応混合物からショ糖脂肪酸エステルを取得する、ショ糖脂肪酸エステルの製造方法であって、

（１）該反応混合物を、有機溶媒と水を用いた液液抽出に付し、有機溶媒相にショ糖脂肪酸エステルを抽出する抽出工程、

（２）軽液供給口および重液供給口を備えた向流分配型抽出装置を用いて、上記抽出工程（１）で得られた有機溶媒相と精製用溶媒のうち、より比重の重い方を重液供給口から供給すると共に、より比重の軽い方を軽液供給口から供給して、有機溶媒相および精製用溶媒を向流接触させる精製工程、および、

（３）上記精製工程（２）で得られた有機溶媒相を、１つ以上の減圧乾燥機により、機内の圧力および／または加熱温度を少なくとも２段階以上変化させて減圧乾燥する、一連の減圧乾燥工程であって、

該減圧乾燥工程の第一段階の機内圧力が大気圧以下であり、かつ、その加熱温度が２０℃以上２００℃以下であり、

該減圧乾燥工程の最終段階の機内圧力が１０ｋＰａ・ａｂｓ以下、かつ、その加熱温度が２０℃以上２００℃以下である、減圧乾燥工程

を含んでなる、ショ糖脂肪酸エステルの製造方法に関する。

[0009] 減圧乾燥工程（３）において、減圧乾燥機の少なくとも一つは、二軸押出機であることが好ましい。

[0010] 減圧乾燥工程（３）において、一連の減圧乾燥工程は、２～９段階までのいずれかの段階からなるものであることが好ましい。

[0011] 減圧乾燥工程（３）において、精製工程（２）で得られた有機溶媒相におけるショ糖脂肪酸エステルの含有量は、１０～８０重量％であることが好ましい。

[0012] また、本発明は、前記製造方法により得られる、ガードナー色数が３以下、かつ、有機溶媒の残存量が１０ｐｐｍ以下である、ショ糖脂肪酸エステルに関する。

発明の効果

[0013] 本発明のショ糖脂肪酸エステルの製造方法によれば、着色が抑制され、かつ、有機溶媒の残存量が極僅かなショ糖脂肪酸エステルを得ることができる。より具体的には、着色についてはガードナー色数が３以下のものが、残存溶媒量については１０ｐｐｍ以下のものを得ることができる。

発明を実施するための形態

[0014] 本発明を構成する各要素について、以下説明する。

[0015] （目的物）

本発明において、ショ糖脂肪酸エステルとは、ショ糖と脂肪酸とのエステルである。該脂肪酸としては、通常、炭素数６～３０の飽和または不飽和脂肪酸が挙げられる。該炭素数としては、好ましくは８以上である。一方、該炭素数は、好ましくは２２以下である。飽和脂肪酸としては、例えば、カプロン酸、カプリル酸、カプリン酸、ラウリン酸、ミリスチン酸、パルミチン酸、ステアリン酸、ベヘニン酸などが挙げられる。不飽和脂肪酸としては、例えば、リノール酸、オレイン酸、リノレイン酸、エルカ酸、リシノール酸などが挙げられる。

[0016] 本発明の目的物は、色相がガードナー色数３以下、好ましくは２以下であり、かつ、有機溶媒の残存量が１０ｐｐｍ以下、好ましくは、５ｐｐｍ以下

である。

[0017] 本発明のショ糖脂肪酸エステルにおいて、ショ糖のアルコール部分のエステル化の割合の平均値（以下、「平均エステル化度」という）は、特段限定されるものではないが、本発明の溶媒の除去方法は、ショ糖脂肪酸エステルが着色し易いとされる平均エステル化度が６．０以下の場合に、特に好適に適用できる。

[0018] （エステル交換反応）

本発明において、ショ糖脂肪酸エステルは、ショ糖と脂肪酸低級アルキルエステルとを、常法により、エステル交換反応に付すことにより製造することができる。エステル交換反応は、全還流下実施することができる。あるいは、エステル交換反応は、始めは反応溶媒を留出させながら行い、一定量反応溶媒を留出させて以降、留出させることなく全還流しながら行うことが好ましい。こうすることで、エステル交換反応を促進させるとともに、留出させた反応溶媒を回収し、再利用することができる。このような留出させるべき反応溶媒の一定量としては、例えば、反応溶媒全体の０．１～３０重量％、好ましくは１～２０重量％程度である。

[0019] ショ糖は、市販のものをいずれも使用することができる。また、ショ糖は、ショ糖脂肪酸エステル製造時に未反応であったショ糖を回収したもの（回収糖）でもよい。形態としては、固体の状態であってもよいし、溶媒に溶解した溶液状態であってもよい。なお、回収糖を使用する場合、後述する中和工程で生成する塩などを含むものであってもよい。

[0020] 脂肪酸低級アルキルエステルとしては、上述の脂肪酸と低級脂肪族アルコールとのエステルが挙げられる。低級脂肪族アルコールとしては、例えば、炭素数１～４のものが挙げられ、具体的には、メタノール、エタノール、プロパノール、ブタノールなどが挙げられる。脂肪酸低級アルキルエステルは、１種または任意の割合からなる２種以上の混合物を用いてもよい。脂肪酸低級アルキルエステルは、通常、ショ糖１モルに対して０．１～１５モル使用するが、０．２モル以上であることが好ましく、１０モル以下であること

が好ましい。

[0021] エステル交換反応に用いる反応溶媒としては、反応を好適に進行させるものである限り、この分野で通常使用するものをいずれも使用できるが、そのような反応溶媒としては、例えば、トリメチルアミン、トリエチルアミン、Ｎ－メチルモルホリン、ピリジン、キノリン、ピラジン、メチルピラジン、Ｎ，Ｎ－ジメチルピペリジン等の第三級アミン類、ホルムアミド、Ｎ，Ｎ－ジメチルホルムアミド、２－ピロリドン、Ｎ－メチル－２－ピロリドン等のアミド類、ジメチルスルホキシド等のジアルキルスルホキシド類等が挙げられるが、中でもピリジン、Ｎ，Ｎ－ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシドが好ましく、熱的安定性、ショ糖に対する溶解性および安全性の点から、ジメチルスルホキシド（以下、ＤＭＳＯと略記する。）が最も好ましい。反応溶媒は単独で用いることも、２種以上を混合して用いることもできる。

[0022] 反応溶媒の使用量は、通常、反応混合物中、３０～９０重量％であることが好ましく、５０重量％以上がより好ましく、８５重量％以下がより好ましい。また、反応溶媒は、水分含有量が０．１重量％以下であることが好ましい。

[0023] エステル交換反応は、アルカリ触媒の存在下に行う。反応系が実質的に非水系であると、アルカリ触媒は反応系内に懸濁状態で存在する。アルカリ触媒としては、例えば、アルカリ金属水素化物（炭酸水素ナトリウム、炭酸水素カリウム等）、アルカリ金属水酸化物（水酸化リチウム、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム等）、アルカリ金属塩（炭酸ナトリウム、炭酸カリウム等）等が有効であり、特に炭酸カリウム、炭酸ナトリウム等が好ましい。アルカリ触媒は単独で用いることも、２種以上を併用することもできる。これらアルカリ触媒の使用量は、通常、ショ糖および脂肪酸アルキルエステル１重量部に対して、０．１～２．０重量部であることが好ましく、０．２重量部以上であることがより好ましく、１．０重量部以下であることがより好ましい。

[0024] エステル交換反応の反応温度は、通常、８０～１２０℃であることが好ましいが、９０℃以上がより好ましく、１００℃以下がより好ましい。反応圧力は、通常０．２～４３ｋＰａ、好ましくは０．７～３２ｋＰａである。反応時間は、特に限定されないが、通常、１～５０時間であることが好ましく、２時間以上がより好ましく、４０時間以下であることがより好ましい。

[0025] ショ糖と脂肪酸低級アルキルエステルの反応は、反応溶媒の還流下に実施することが望ましい。これにより、反応中に副生するアルコールを容易に反応系外に除去することができる。

[0026] エステル交換反応は、酸を添加し、アルカリ触媒を中和することによって、反応を停止させる。酸としては、通常、ギ酸、酢酸、プロピオン酸、シュウ酸、コハク酸、安息香酸、酒石酸、乳酸、リンゴ酸、炭酸、クエン酸およびマレイン酸などの有機酸、塩酸、硫酸などの無機酸が挙げられ、このうち、生体に対する影響等の観点からは、乳酸、リンゴ酸、クエン酸などが好ましい。反応を停止する際には、反応混合物のｐＨが約５．０～７．５の範囲となるように、好ましくは約５．５～６．５となるように、より好ましくは約６．０となるように、これら酸を添加するのが好ましい。酸としては単独で用いることも、２種以上を併用することもできる。

[0027] ショ糖は水酸基を８個有しているので、生成したショ糖脂肪酸エステルは、理論上、モノエステルからオクタエステルまでの混合物であり、原料の使用割合により生成エステルの組成を調整することができる。かくして得られたショ糖と脂肪酸低級アルキルエステルとの反応混合物は、目的物であるショ糖脂肪酸エステルの他、反応溶媒、未反応原料、アルカリ触媒、酸等を含有するものである。

[0028] （抽出工程）

本発明における抽出工程は、上記反応混合物を、有機溶媒と水を用いた液液抽出に付し、有機溶媒相にショ糖脂肪酸エステルを抽出する工程である。このとき、水相には、反応溶媒、未反応原料、アルカリ触媒、酸、アルカリ触媒と酸による中和塩等が移行する。

[0029] この液液抽出においては、反応混合物中の反応溶媒の濃度が高すぎると、その水相への移行が不十分となりやすい。したがって、反応混合物中の反応溶媒の濃度が高い場合には、予め、その一部を留去して濃度を低下させておくのが好ましい。好ましい反応溶媒の濃度としては、反応混合物中、３０重量％以下、より好ましくは２０重量％以下である。一方、反応溶媒の濃度の下限は、高粘度化し過ぎたりまたは固化しない限り特に限定はないが、好ましくは、反応混合物中、５重量％以上、より好ましくは１０重量％以上である。該留去の方法は特に限定されず、例えば、減圧および加熱できる攪拌槽によるバッチ式留去や、薄膜蒸発装置（「薄膜蒸発機」や「薄膜蒸発器」ともいう。また、椀型、筒型（縦型、横型など）など、いずれのタイプも含む。以下同様。）を用いて、減圧下、６０～１５０℃の温度で実施することができる。こうして留去させた反応溶媒は、回収して、エステル交換反応に再利用することができる。

[0030] 液液抽出は、反応混合物に有機溶媒（抽出溶媒）と水を加え、該混合物を攪拌することにより実施することができる。液液抽出に用いる有機溶媒としては、炭素数４～１０のアルコールもしくはケトン、または、酢酸エチル等が挙げられる。このようなアルコールとしては、例えば、ｎ－ブチルアルコール、イソブチルアルコール、ｔ－ブチルアルコール、ｎ－アミルアルコール、イソアミルアルコール、ｎ－ヘキサノール、シクロヘキサノールが挙げられ、ケトンとしては、例えば、メチルエチルケトン、ジエチルケトンまたはメチルイソブチルケトンが挙げられる。このうち、酢酸エチル、メチルエチルケトン、イソブチルアルコールが好ましい。

反応混合物に対する有機溶媒の使用量は、通常、反応混合物中のショ糖脂肪酸エステル１重量部に対して、０．５～２０重量部、好ましくは１～１０重量部である。一方、水の使用量は、通常、有機溶媒１重量部に対して、水０．０５～１０重量部、好ましくは０．５～２重量部である。攪拌は、通常、０．５～４時間行えば充分である。有機溶媒は、単独で用いることも、２種以上を混合して用いることもできる。なお、液液抽出において、水として

は、通常使用する水の他、次の精製工程で回収した精製用溶媒を、当該「水」に代えて、使用することもできる。

[0031] 液液抽出は、有機溶媒と水との混液のｐＨを調節してから行うことが好ましい。そうすることで、ショ糖脂肪酸エステルの加水分解を抑制し、かつ、効率的な有機溶媒相への抽出にも寄与するからである。具体的には、該混液のｐＨは５．５～６．５であることが好ましい。ｐＨの調整には、上記アルカリ触媒の中和に用いた酸を適宜使用することができる。

[0032] また、液液抽出は、安定操業の観点から、塩析剤を添加して行うことが好ましい。塩析剤の種類は任意であるが、ｐＨ調整に用いた酸の塩が好ましい。そのような塩のうち、好ましいものとしては、炭酸アルカリ（カリウム、ナトリウムなど）、クエン酸アルカリ（カリウム、ナトリウムなど）、乳酸アルカリ（カリウム、ナトリウムなど）、硫酸アルカリ（カリウム、ナトリウムなど）等が挙げられる。液液抽出は、通常、塩析剤の濃度が５０ｐｐｍ以上の条件下で行なわれるが、安定操業性および経済性の点等から５００～３０００ｐｐｍの範囲で行うことが好ましい。

[0033] また、液液抽出工程においては、所望により、混合物に漂白剤を添加して、その着色を低減することが好ましい。こうすることで、より着色が抑えられた、目的物たるショ糖脂肪酸エステルを得ることが可能となる。漂白剤としては、例えば、過酸化水素、亜塩素酸ナトリウム、次亜塩素酸ナトリウムおよびオゾンなどの酸化剤、亜硫酸ナトリウム、ピロ亜硫酸カリウム、ピロ亜硫酸ナトリウムおよび次亜硫酸ナトリウムなどの還元剤が挙げられる。また、活性炭などの吸着剤も使用可能である。漂白剤の添加量は、ショ糖脂肪酸エステル１００重量部に対して、０．１～５．０重量部であることが好ましく、０．３重量部以上であることがより好ましく、３．０重量部以下であることがより好ましい。

[0034] 液液抽出は、上記操作に従い得た混合物を攪拌することにより実施する。混合物の攪拌は、通常、４０～８０℃の温度で実施することができ、５０℃以上であることがより好ましく、７０℃以下であることがより好ましい。ま

た、攪拌時間は、通常、１～８時間であることが好ましく、２時間以上であることがより好ましく、６時間以下であることがより好ましい。

[0035] 攪拌終了後、漂白剤を添加していた場合には、過剰の漂白剤を分解するか、または、残留する漂白剤を除去する。すなわち、漂白剤として酸化剤を加えた場合は還元剤を用いて、逆に漂白剤として還元剤を加えた場合は酸化剤を用いて、過剰の漂白剤を分解する。これら還元剤または酸化剤の使用量は、漂白剤の残存量１当量に対し、０．９～１．５当量（すなわち、残存する漂白剤のすべてを分解するために必要な量の９０～１５０質量％）であることが好ましく、１．０当量以上であること、または、１．２当量以下であることがより好ましい。また、漂白剤として吸着剤を使用した場合には、混合物中に残留する漂白剤を、例えば、ろ過などにより、除去する。

[0036] 漂白剤を分解または除去した後、混合物を静置して有機溶媒相と水相に分離させたのち、両相をそれぞれ分取する。このとき、ショ糖脂肪酸エステルは有機溶媒相に含まれる。一方、水層には、未反応のショ糖、反応溶媒、反応工程で生成した塩などが含まれる。なお、分取した有機溶媒相は、以下の精製工程に供する。また、分取した水相は、水や有機溶媒を減圧留去することにより、反応溶媒と未反応のショ糖を回収し（回収糖）、エステル交換反応に再利用することができる。

[0037] （精製工程）

本発明における精製工程は、軽液供給口および重液供給口を備えた向流分配型抽出装置により、上記抽出工程で得られた有機溶媒相を、精製用溶媒を用いて精製する工程であり、有機溶媒相と精製用溶媒のうち、より比重の重い方を重液供給口から供給すると共に、より比重の軽い方を軽液供給口から供給して、有機溶媒相および精製用溶媒を向流接触させ、有機溶媒相に残る反応溶媒等の低減を目的とするものである。

[0038] 精製工程を開始するにあたり、精製用溶媒のｐＨは５．０～６．０に調整しておくことが好ましい。そうすることで、ショ糖脂肪酸エステルの加水分解を抑制し、かつ、向流分配を容易ならしめることに寄与するからである。

ｐＨの調整は、上記アルカリ触媒の中和に用いた酸を使用して適宜行うことができる。

[0039] 本発明で用いる「軽液供給口および重液供給口を備えた向流分配型抽出装置」とは、より比重の軽い軽液とより比重の重い重液をそれぞれの供給口から供給した場合に、両液が効率よく向流接触できるよう設計された抽出装置をいう。本発明においては、向流接触により、有機溶媒相に残る反応溶媒等が精製用溶媒へ移行し、その後、有機溶媒相および精製用溶媒がそれぞれ回収され、回収された有機溶媒相は次の精製工程に供される。この操作が、有機溶媒相に残留する反応溶媒の濃度が、１ｐｐｍ以下、好ましくは０．５ｐｐｍ以下、より好ましくは０．２ｐｐｍ以下になるまで繰り返される。

[0040] 該向流分配型抽出装置は、縦型（塔型）および横型のいずれの形式のものであってもよい。また、内部に効率的な向流を可能ならしめるための堰を設けた堰型のものであってもよい。また、操作の効率性の観点からは、回収された有機溶媒相を連続して再供給することができる、連続式のものが好ましい。向流分配型抽出装置としては、この分野で通常使用されるものをいずれも使用することができるが、具体的には、多孔板抽出塔、堰板型抽出塔（例えば、ＷＩＮＴＲＡＹ（商品名、日揮社製）など）、バッフル抽出塔、回転円盤塔などの段塔型抽出装置；スプレー塔、充填塔、脈動型抽出塔などの微分型接触装置等を挙げることができる。

[0041] 精製用溶媒としては、水を使用することができ、または、水と上記抽出工程で使用した有機溶媒との混液を使用することができる。精製用溶媒としては、基本的には水を用いるものであるが、該精製工程を連続して行う場合、予め精製用溶媒として、水に上記抽出工程で使用した有機溶媒の所定量を混和したものを用いれば、精製用溶媒における水と該有機溶媒との混和比率を変化させることなく、安定的に精製工程を実施することができるので好ましい。なお、回収された精製用溶媒は、前記のとおり、抽出工程における「水」に代えて、再利用することができる。

[0042] 該精製工程は、安定操業の観点から、精製用溶媒に塩析剤を添加して行う

ことが好ましい。塩析剤の種類は任意であるが、ｐＨ調整に用いた酸の塩が好ましい。そのような塩のうち、好ましいものとしては、クエン酸アルカリ（カリウム、ナトリウムなど）、乳酸アルカリ（カリウム、ナトリウムなど）、硫酸アルカリ（カリウム、ナトリウムなど）等が挙げられる。精製工程は、通常、塩析剤の濃度が５０ｐｐｍ以上の条件下で行なわれるが、安定操業性および経済性の点等から５００～３０００ｐｐｍの範囲で行うことが好ましい。

[0043] 精製工程における温度は、生成物の分解や着色を抑制するとの観点から、４０～８０℃であることが好ましい。

[0044] 精製工程における重液および軽液の供給量は、装置の種類、有機溶媒の種類等により異なるが、例えば、装置として堰板型抽出塔を用い、有機溶媒としてイソブチルアルコールを使用する場合、重液たる精製用溶媒と軽液たるイソブチルアルコール相との供給量の割合は、５／１～１／５（容量比）の範囲であることが好ましい。

[0045] かかる精製工程を経て、ショ糖脂肪酸エステルを含む有機溶媒相を得ることができる。該有機溶媒相は、ショ糖脂肪酸エステルを含み、かつ、有機溶媒と水とを含んでなるものである。

[0046] （減圧乾燥工程）

本発明において、減圧乾燥工程は、上記精製工程で得た有機溶媒相を減圧乾燥し、これに含まれる有機溶媒と水を留去し、目的物であるショ糖脂肪酸エステルを単離する工程である。

[0047] 本発明にかかわる減圧乾燥工程は、精製工程を経て得られた、ショ糖脂肪酸エステルを含み、かつ、有機溶媒と水とを含んでなる有機溶媒相を、１つ以上の減圧乾燥機により、機内の圧力および／または加熱温度を少なくとも２段階以上変化させて減圧乾燥する一連の工程からなるものであり、第一段階の減圧乾燥工程の機内圧力が大気圧以下であり、かつ、その加熱温度が２０℃以上２００℃以下であり、最終段階の減圧乾燥工程の機内圧力が１０ｋＰａ・ａｂｓ以下、かつ、その加熱温度が２０℃以上２００℃以下であるも

のである。ここで、「機内圧力」とは、減圧乾燥機内の気相の圧力をいい、該機内圧力は、常法により、例えば、該気相に接するように設置された圧力計などにより測定することができる。圧力計は、例えば、減圧乾燥機内の気相に接する限り、その設置位置は限定されず、例えば、減圧乾燥機からの排気管内であってもよい。「加熱温度」とは、上記混合物を加熱するために用いる、減圧乾燥機のジャケットやコイルに流通させる熱媒体（温水、蒸気、油など）や電気ヒータなどの温度をいう。

[0048] 乾燥工程に供する有機溶媒相におけるショ糖脂肪酸エステルの濃度は、１０重量％以上であることが好ましく、より好ましくは３０重量％以上である。該濃度が１０重量％未満では、工業的に非効率である。一方、該濃度は、８０重量％以下であることが好ましく、より好ましくは５０重量％以下である。該濃度が、８０重量％を超えると非常に粘度が高く、減圧乾燥機に適応し難い傾向がある。なお、各段階の減圧乾燥の実施にあたっては、ショ糖脂肪酸エステルの濃度が上記範囲内となるように、必要に応じ、水を添加して、ショ糖脂肪酸エステルの濃度を調整する。

[0049] 本発明において減圧乾燥機とは、機内圧力および加熱温度を所定の圧力および所定の温度に維持した条件下減圧乾燥できるものであれば特に限定されず、そのような機能を有する機械や器具のいずれをも本発明の目的に使用することができる。本発明の減圧乾燥機の具体例としては、例えば、攪拌槽などのバッチ型のものや、フラッシュ蒸留機、薄膜蒸発装置、ドラムドライヤー、押出機、ベルトドライヤーなどの連続型のものなどが挙げられる。各々の減圧乾燥機には、様々な種類のものが含まれる。例えば、押出機には、一軸押出機や二軸押出機などが含まれ、これら押出機には、それぞれスクリュー径の異なるものやスクリュー形状が異なるものなどが多種存在する。

[0050] 減圧乾燥機としては、少なくとも一つが押出機であることが好ましく、特に、二軸押出機であることが好ましい。二軸押出機を使用する場合、ショ糖脂肪酸エステルの着色抑制および有機溶媒の残存量低減の面で有利である。

[0051] 本明細書において、「１段階の減圧乾燥」とは、一の減圧乾燥機により、

機内圧力および加熱温度を所定の圧力および所定の温度に維持した条件下減圧乾燥することをいう。ここにおいて、「一の減圧乾燥機」とは、単一の減圧乾燥機を意味する他、例えば、ある種の押出機の如きに、減圧乾燥機内を、２以上の区画に仕切ることにより、各区画において、個別に圧力および温度の設定ができる場合には、該区画をもって、本発明の「一の減圧乾燥機」を意味するものとする。

[0052] したがって、２段階以上の、一連の減圧乾燥は、少なくとも１段階以上の減圧乾燥を行う機器を、単独または二つ以上用いて実施することができ、例えば、一の機器内にて機内圧力および／または加熱温度を２段階以上変化させることにより実施してもよい。この場合において、機内圧力および／または加熱温度は、少なくとも２段階以上変化させればよく、かかる条件が達成される限り、連続した二以上の段階において、機内圧力および加熱温度を変化させないことも可能である。ここで、「一連」とは、減圧乾燥の途中に、減圧乾燥以外の他の工程（例えば、精製工程など）を組み入れないことを意味する。

[0053] 減圧乾燥において、「機内圧力および／または加熱温度を変化させる」とは、「圧力」および／または「温度」を、「不連続に変化させる」ことをいう。

[0054] 段階数は、目的物の品質およびそれを得るための効率性の観点からは、２～９までのいずれかの段階数であることが好ましい。

[0055] ＜圧力＞

本発明において、第一段階の減圧乾燥工程における機内圧力としては、大気圧以下であり、好ましくは８０ｋＰａ・ａｂｓ以下、より好ましくは６０ｋＰａ・ａｂｓ以下である。大気圧を超える場合には、脱溶媒のために必要な加熱温度が高くなり過ぎるため、ショ糖脂肪酸エステルが着色し易くなる傾向がある。一方、同圧力は、好ましくは３ｋＰａ・ａｂｓ以上、より好ましくは４ｋＰａ・ａｂｓ以上である。３ｋＰａ・ａｂｓ未満では、フラッシュや飛沫同伴による閉塞が発生し易くなる傾向がある。また、該機内圧力は

、最終段階の機内圧力よりも高いものであることが好ましい。

[0056] 最終段階の減圧乾燥工程における機内圧力は、１０ｋＰａ・ａｂｓ以下であり、好ましくは２ｋＰａ・ａｂｓ以下、より好ましくは０．６ｋＰａ・ａｂｓ以下である。１０ｋＰａ超では、残存溶媒を十分に低減でき難くなったり、あるいはショ糖脂肪酸エステルの温度を高くすることが必要となるために着色し易くなる傾向がある。一方、同圧力の下限値としては、特に制限はなく、可能な範囲で低ければ低いほど好ましい。

[0057] なお、本発明においては、減圧乾燥工程の最終段階の機内圧力は、第一段階の機内圧力よりも低いものであることが好ましい。

[0058] ＜温度＞

本発明において、第一段階の減圧乾燥工程における加熱温度は、２０～２００℃である。２００℃超では、着色が抑えられない傾向がある一方、２０℃未満では、残存溶媒を十分に低減でき難くなる傾向があり、これを解決するには、例えば、機内圧力を著しく高真空とする必要があり、設備費が高額となる傾向がある。加熱温度の上限値としては、１６０℃以下が好ましく、より好ましくは１４０℃以下である。同温度の下限値としては、６０℃以上が好ましく、より好ましくは１００℃以上である。

[0059] 一方、最終段階の減圧乾燥工程における加熱温度は、２０～２００℃である。２００℃超では、着色が抑えられない傾向がある一方、２０℃未満では、残存溶媒を十分に低減でき難くなる傾向がある。加熱温度の上限値としては、１６０℃以下が好ましく、より好ましくは１４０℃以下である。同温度の下限値としては、６０℃以上が好ましく、より好ましくは８０℃以上、さらに好ましくは１００℃以上である。

[0060] 第一段階と最終段階の間の、中間段階における機内圧力および加熱温度は、上述した圧力および温度の範囲内において、適宜設定することができる。但し、該中間段階に限らず、本減圧乾燥工程においては、温度を高くすればするほど着色傾向が増すので、第一段階で採用した圧力と温度、および、最終段階で採用予定の圧力および温度をも勘案して適宜決定する。

[0061] ＜処理時間、処理流量＞

１段階の減圧乾燥について、処理時間および処理流量を説明する。バッチ型の減圧乾燥機を使用する場合の処理時間は、特に限定されないが、一般的には０．５～２０時間である。２０時間を越えると、ショ糖脂肪酸エステルが着色する恐れがある。一方、連続式の減圧乾燥機を使用する場合の処理流量は、装置の大きさによるため特に限定されないが、一般的には０．５～１００００ｋｇ／時間である。

[0062] ＜その他＞

減圧乾燥機として押出機（好ましくは、二軸押出機）を使用する場合において、スクリューの回転数は、その他の条件に合わせて適宜設定すればよいが、一般的には、１００～１５００ｒｐｍであることが好ましい。

[0063] 上記減圧乾燥工程を経て、目的物であるショ糖脂肪酸エステルを単離することができる。

[0064] （粉砕工程）

こうして単離したショ糖脂肪酸エステルは、塊状である場合、さらに粉砕工程に付すことにより、ショ糖脂肪酸エステルの粉末とすることができる。該粉砕は、常法により実施することができる。例えば、上記で得られた塊状のショ糖脂肪酸エステルは、ハンマミル、ケージミル、軸流型ミル、アニュラミルまたはせん断型ミルなどの高速回転ミルによる粉砕に加えて、超音速ジェットノズル方式、対向ノズル方式または旋回気流方式を有するジェットミルなどの粉砕機の１種以上による粉砕を組み合わせることにより、微粉末化することができる。

[0065] こうして得られるショ糖脂肪酸エステルは、着色が抑制されかつ有機溶媒の残存量が極僅かなものであるため、各種用途、すなわち、化学反応における助剤、洗剤等への添加剤、包装容器等への帯電防止剤などの他、飼料、化粧品、食品、医薬品等の添加剤としても、好適に使用することができる。

[0066] なお、理論に拘束されることは意図しないが、本発明においては、溶媒の減圧乾燥にあたり、ショ糖脂肪酸エステルの濃度が比較的低い第一段階にお

いては、機内圧力を高めに保つことにより、ショ糖脂肪酸エステルと溶媒とを含んでなる混合物の突沸を防ぎつつ、かつ、加熱温度を所定の範囲内にすることによりショ糖脂肪酸エステルの着色をも防止した上で、その後ショ糖脂肪酸エステルの濃度が比較的高くなった最終段階においては、機内圧力を低めに設定して減圧乾燥の効率を高め、もって、着色抑制および効率性を兼ね備えた有機溶媒の除去を実現するものであると考えられる。

[0067] 本明細書において、単に「部」というときは、「重量部」を意味する。ガードナー色数はＪＩＳ　Ｋ　００７１に準じて、ショ糖脂肪酸エステルのテトラヒドロフラン溶液（濃度：２００ｇ／Ｌ）を用いて測定される。ショ糖脂肪酸エステルにおける「有機溶媒」（ｐｐｍ）の量は、ガスクロマトグラフィー（ＧＣ）により、求めた値である。ショ糖脂肪酸エステルにおいて「平均エステル化度」に言及する場合、その値は、下記式に従い求めた値である。

[0068] ＜平均エステル化度の求め方＞

平均エステル化度＝Ｘとする次式において、下記OHV、AV、MwSug、MwFaを代入してＸを算出する。

（ショ糖１分子中のOH基の数－Ｘ）

＝(サンプル１ｇ中のOH基のモル数)／(サンプル１ｇ中のショ糖脂肪酸エステルのモル数)

＝((OHV－AV)／(１０００×５６．１１))／｛１／(MwSug＋(MwFa－１８)Ｘ)｝

OHV：ショ糖脂肪酸エステルの水酸基価

AV：ショ糖脂肪酸エステルの酸価

MwSug：ショ糖の分子量

MwFa：構成脂肪酸の平均分子量

実施例

[0069] 実施例にもとづいて本発明を詳細に説明するが、本発明はこれらのみに限定されるものではない。

[0070] ［実施例１］

（エステル交換反応）

反応器にＤＭＳＯ３４５．７重量部を仕込み、９０℃、３．７ｋＰａの条件下で、ＤＭＳＯの水分含有量が０．０６重量％となるまで全還流を行った。ここに、炭酸カリウム０．２６重量部、ショ糖６７．２重量部およびステアリン酸メチル２１．４重量部を加え、９５℃、３．７ｋＰａの条件下で、ＤＭＳＯを留出させながら反応を行い、ＤＭＳＯの留出量が４２．９重量部に到達して以降は、ＤＭＳＯを留出させずに全還流の下反応を行った。合計４時間反応させた後、ｐＨが６．０になるように９０重量％乳酸水溶液を加えて、反応を停止した。留出させたＤＭＳＯは再利用のため回収した。

[0071] （抽出工程）

攪拌槽（以下、表中において、攪拌槽を用いたことを表示する場合、単に、「攪拌」と記載する。）を用いて、上記反応混合物の固形分が８４．０重量％となるまで、ＤＭＳＯを減圧留去し、濃縮した。留去したＤＭＳＯは再利用のため回収した。

[0072] ここに、０．１重量％硫酸カリウム水溶液２４０重量部およびイソブチルアルコール（ＩＢＡ）２４０重量部、さらに５重量％炭酸カリウム水溶液を加えてｐＨ７．８に調整し、さらに３５重量％過酸化水素水溶液１．１４重量部を加えて４時間攪拌した。続いて、ピロ亜硫酸カリウム１０重量％水溶液を用いて、過酸化水素の残存量に対して１．２当量比のピロ亜硫酸カリウムとなるように加え、これにより過酸化水素を分解した。この溶液を５％炭酸カリウム水溶液でｐＨが６．０となるように調整した後、静置して２層に分離させ、上層（ＩＢＡ相）と下層（水相）を分取した。ＩＢＡ相は、次の精製工程へ送った。一方、水相は、その中に含まれるＤＭＳＯと未反応のショ糖を再利用すべく、実施例２での利用に供した。

[0073] （精製工程）

上記で得たＩＢＡ相を、多孔板抽出塔（以下、表中において、多孔板抽出塔を用いたことを表示する場合、単に、「多孔」と記載する。）を用いて精

製した。すなわち、塔内温度を６０℃とし、軽液供給口から、精製工程で得られたＩＢＡ相を、重液供給口から、精製用溶媒（水／イソブチルアルコール／硫酸カリウム＝９２．９／７／０．１（重量比）、ｐＨ＝５．５）を、供給量がＩＢＡ相／精製用溶媒＝２／１（容量比）となるように供給し、連続的に向流分配させ、その結果得られるＩＢＡ相たる上層において、ＤＭＳＯ濃度が０．２ｐｐｍになるまで、該精製工程を繰り返した。

[0074]（減圧乾燥工程）

上記で得たＩＢＡ相（ショ糖ステアリン酸エステル（ＳＥ）１２重量%、イソブチルアルコール（ＩＢＡ）７０重量%、および、水１８重量%）について、その所定量を、表１記載の条件で減圧乾燥し、溶媒である水およびイソブチルアルコールを除去した。二段目以降においては、その開始にあたり、適宜、水を添加して、ＳＥ濃度を調整した（各表中、二段目以降において、「ＳＥ濃度」とあるのは、当該段目の減圧乾燥工程開始前のＳＥ濃度である）。なお、この工程を通じて留去させたイソブチルアルコールおよび水は、再利用（例えば、抽出工程での再利用）に供すべく、回収した。

[0075]＜減圧乾燥に使用した機器＞

攪拌槽（攪拌）：容量５m^3の攪拌槽、アンカ翼あり

ドラムドライヤー（ドラム）：ダブルドラムドライヤー、伝熱面積０．２m^2、ドラム径２００ｍｍ

フラッシュ蒸発機（フラッシュ）：フラッシュタンク容量２００Ｌ、加熱管電熱面積０．

８m^2（予備加熱用）

二軸押出機（二軸）：スクリュー径２５ｍｍ

薄膜蒸発装置（薄膜）：伝熱面積０．５m^2

[0076]（粉砕工程）

乾燥処理後のショ糖ステアリン酸エステルは、高速回転ミルを用いて粗粉砕を行い、さらに、ジェットミルを用いて微粉砕することにより、ショ糖ステアリン酸エステル粉末とした。

[0077] 上記で得たショ糖ステアリン酸エステルについて、ＩＢＡ残存量を測定し、色相を評価した。

[0078] （有機溶媒（ＩＢＡ）の残存量の測定）

ＪＥＣＦＡ（Ｊｏｉｎｔ ＦＡＯ／ＷＨＯ Ｅｘｐｅｒｔ Ｃｏｍｍｉｔｔｅｅ ｏｎ Ｆｏｏｄ Ａｄｄｉｔｉｖｅｓ，ＦＡＯ／ＷＨＯ合同食品添加物専門家会議）で評価・設定された食品添加物規格(Ｆｏｏｄ Ａｄｄｉｔｉｖｅ ｓｐｅｃｉｆｉｃａｔｉｏｎ）ＩＮＳ４７３（Ｓｕｃｒｏｓｅ Ｅｓｔｅｒｓ ｏｆ Ｆａｔｔｙ Ａｃｉｄｓ）記載の方法に準じて測定した。

[0079] （色相）

上記で得たショ糖ステアリン酸エステルの各サンプルの色相は、ＪＩＳＫ ００７１に準じて、ショ糖脂肪酸エステルのテトラヒドロフラン溶液（濃度：２００ｇ／Ｌ）を用いてガードナー色数により評価した。結果を表１に示す。

[0080] ［実施例２］

（再利用のための処理）

実施例１の抽出工程で得られた下層たる水相２６３重量部に対して、ＤＭＳＯを７０．５重量部加えた。この溶液を９０℃に加熱し、２．７ｋＰａの条件下で、水およびイソブチルアルコールを除去することにより、３５重量％ショ糖ＤＭＳＯ溶液を得た。

（エステル交換反応～粉砕工程）

ＤＭＳＯ３４５．７重量部に代えて、ＤＭＳＯ２８０．７重量部および上記３５重量％ショ糖ＤＭＳＯ溶液１００重量部の混合物を用い、さらに、ショ糖の使用量を３２．２重量部とした以外は、実施例１と同様の操作を行い、ショ糖ステアリン酸エステル粉末を得た。

[0081] 得られたショ糖ステアリン酸エステルについて、上記と同様にして、ＩＢＡ残存量を測定し、色相を評価した。結果を表１に示す。

[0082] ［実施例３］

ショ糖の使用量を４０．０重量部、ステアリン酸メチルの使用量を１７２

．０重量部、ＤＭＳＯの使用量を２６５．４重量部および炭酸カリウムを０．５６重量部とし、反応初期で留出させるＤＭＳＯを４９．８重量部とした以外は実施例１と同様の操作を行い、ショ糖ステアリン酸エステル粉末を得た。

[0083] 得られたショ糖ステアリン酸エステルについて、上記と同様にして、ＩＢＡ残存量を測定し、色相を評価した。結果を表１に示す。

[0084] ［実施例４］

ステアリン酸メチル２１．４重量部を炭素数８～１８の偶数脂肪酸メチル（炭素数８および１０の脂肪酸メチル：５重量％、ラウリン酸メチル：７０重量％、炭素数１４、１６および１８の脂肪酸メチル：２５重量％の混合物）１８．７重量部に、ＤＭＳＯの使用量を３３３．９重量部に、炭酸カリウムの使用量を０．２９重量部にそれぞれ変更した以外は、実施例１と同様の操作を行い、所定のショ糖脂肪酸エステル粉末を得た。

[0085] 得られた所定のショ糖脂肪酸エステルについて、上記と同様にして、ＩＢＡ残存量を測定し、色相を評価した。結果を表１に示す。

[0086]

[表1]

表 1

			実施例																						
			1-1	1-2	1-3	1-4	1-5	1-6	1-7	1-8	1-9	1-10	1-11	1-12	1-13	1-14	1-15	1-16	1-17	2-1	2-2	3-1	3-2	4-1	4-2
抽出工程前のDMSO濃縮			撹拌	撹拌	撹拌	撹拌	撹拌	撹拌	撹拌	撹拌	撹拌	撹拌	撹拌	撹拌	撹拌	撹拌	撹拌	撹拌	撹拌	撹拌	撹拌	撹拌	撹拌	撹拌	撹拌
精製工程			多孔	多孔	多孔	多孔	多孔	多孔	多孔	多孔	多孔	多孔	多孔	多孔	多孔	多孔	多孔	多孔	多孔	多孔	多孔	多孔	多孔	多孔	多孔
供給液組成（重量%）		SE	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%
		IBA	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%
		水	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%
一段目	装置		撹拌	撹拌	ドラム	フラッシュ	薄膜	撹拌	ドラム	薄膜	フラッシュ	薄膜	二軸	撹拌	撹拌	薄膜	薄膜	薄膜	二軸	フラッシュ	薄膜	撹拌	二軸	ドラム	薄膜
	加熱温度	[℃]	120	120	130	120	140	120	130	140	120	140	140	120	120	140	140	140	140	120	140	120	140	130	140
	機内圧力	[kPa]	10	10	3	10	15	10	3	15	10	15	50	10	10	15	15	15	50	10	15	10	50	3	15
	処理時間	[h]	6	6	—	—	—	6	—	—	—	—	—	6	6	—	—	—	—	—	—	6	—	—	—
	処理流量	[kg/h]	—	—	2	15	130	—	2	130	15	130	56	—	—	130	130	130	56	15	130	—	56	2	130
二段目	装置		薄膜	二軸	薄膜	薄膜	二軸	薄膜	薄膜	薄膜	二軸	二軸	二軸	フラッシュ	ドラム	薄膜	薄膜	二軸	二軸	二軸	二軸	薄膜	二軸	薄膜	薄膜
	SE濃度	[%]	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60	25	25	25	23	60	60	60	60	60	60	60	60
	加熱温度	[℃]	130	140	130	130	140	130	130	130	140	140	140	120	130	130	130	140	140	140	140	130	140	130	130
	機内圧力	[kPa]	8	0.2	8	8	0.2	12	12	12	0.3	0.3	0.3	1	3	12	12	0.3	0.3	0.3	0.3	12	0.3	12	12
	処理流量	[kg/h]	50	10	50	50	10	95	95	95	56	56	56	15	2	95	95	56	56	56	56	95	56	95	95
三段目	装置							二軸	二軸	薄膜	二軸	二軸	二軸	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	二軸	二軸	二軸	二軸	二軸	二軸	薄膜
	SE濃度	[%]						75	75	75	99<	99<	99<	25	25	25	25	25	99<	99<	99<	75	99<	75	75
	加熱温度	[℃]						140	140	120	140	140	140	130	130	120	120	120	140	140	140	140	140	140	120
	機内圧力	[kPa]						0.2	0.2	8	0.6	0.6	0.6	12	12	30	30	30	0.6	0.6	0.6	0.2	0.6	0.2	8
	処理流量	[kg/h]						10	10	50	30	30	30	95	95	50	50	50	30	30	30	10	30	10	50
四段目	装置													薄膜	薄膜	薄膜	二軸	二軸	二軸						
	SE濃度	[%]												75	75	75	60	60	99<						
	加熱温度	[℃]												120	120	120	140	140	140						
	機内圧力	[kPa]												8	8	8	0.6	0.6	0.6						
	処理流量	[kg/h]												50	50	50	30	30	30						
評価	精製後の組成	SE	99%<	99%<	99%<	99%<	99%<	99%<	99%<	99%<	99%<	99%<	99%<	99%<	99%<	99%<	99%<	99%<	99%<	99%<	99%<	99%<	99%<	99%<	99%<
		IBA	8 ppm	3 ppm	5 ppm	5 ppm	4 ppm	<1 ppm	3 ppm	4 ppm	1 ppm	<1 ppm	<1 ppm	2 ppm	<1 ppm	5 ppm	<1 ppm	<1 ppm	<1 ppm	<1 ppm	2 ppm	4 ppm	<1 ppm	2 ppm	3 ppm
		水	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%
	色相		1	1	1	1	1	1	1	2	1	1	1	2	1	1	1	1	1	1	1	1	1	2	1

[0087] ［実施例５］

抽出工程において、攪拌槽に代えて、薄膜蒸発装置（以下、表中において、薄膜蒸発装置を用いたことを表示する場合、単に、「薄膜」と記載する。）を用いた以外は実施例１と同様の操作を行い、ショ糖ステアリン酸エステル粉末を得た。

[0088] 得られたショ糖ステアリン酸エステルについて、上記と同様にして、ＩＢＡ残存量を測定し、色相を評価した。結果を表２に示す。

[0089] ［実施例６］

（再利用のための処理）

実施例５の抽出工程で得られた下層たる水相２６３重量部に対して、ＤＭＳＯを７０．５重量部加えた。この溶液を９０℃に加熱し、２．７ｋＰａの条件下で、水およびイソブチルアルコールを除去することにより、３５重量％ショ糖ＤＭＳＯ溶液を得た。

（エステル交換反応～粉砕工程）

ＤＭＳＯ３４５．７重量部に代えて、ＤＭＳＯ２８０．７重量部および上記３５重量％ショ糖ＤＭＳＯ溶液１００重量部の混合物を用い、さらに、ショ糖の使用量を３２．２重量部とした以外は、実施例５と同様の操作を行い、ショ糖ステアリン酸エステル粉末を得た。

[0090] 得られたショ糖ステアリン酸エステルについて、上記と同様にして、ＩＢＡ残存量を測定し、色相を評価した。結果を表２に示す。

[0091] ［実施例７］

ショ糖の使用量を４０．０重量部、ステアリン酸メチルの使用量を１７２．０重量部、ＤＭＳＯの使用量を２６５．４重量部および炭酸カリウムを０．５６重量部とし、反応初期で留出させるＤＭＳＯを４９．８重量部とした以外は実施例５と同様の操作を行い、ショ糖ステアリン酸エステル粉末を得た。

[0092] 得られたショ糖ステアリン酸エステルについて、上記と同様にして、ＩＢＡ残存量を測定し、色相を評価した。結果を表２に示す。

[0093] ［実施例８］

ステアリン酸メチル２１．４重量部をラウリン酸メチル（純度：７０重量％、炭素数８～１０の脂肪酸メチル：５重量％、炭素数Ｃ１４～１８の脂肪酸メチル：２５重量％）１８．７重量部に、ＤＭＳＯの使用量を３３３．９重量部に、炭酸カリウムの使用量を０．２９重量部にそれぞれ変更した以外は、実施例５と同様の操作を行い、ショ糖ステアリン酸エステル粉末を得た。

[0094] 得られたショ糖ステアリン酸エステルについて、上記と同様にして、ＩＢＡ残存量を測定し、色相を評価した。結果を表２に示す。

[0095]

[表2]

表 2

			実施例																							
			5-1	5-2	5-3	5-4	5-5	5-6	5-7	5-8	5-9	5-10	5-11	5-12	5-13	5-14	5-15	5-16	5-17	6-1	6-2	7-1	7-2	8-1	8-2
抽出工程前のDMSO濃縮			薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜
精製工程			多孔	多孔	多孔	多孔	多孔	多孔	多孔	多孔	多孔	多孔	多孔	多孔	多孔	多孔	多孔	多孔	多孔	多孔	多孔	多孔	多孔	多孔	多孔
供給液組成（重量%）	SE		11%	11%	11%	11%	11%	11%	11%	11%	11%	11%	11%	11%	11%	11%	11%	11%	11%	11%	11%	11%	11%	11%	11%
	IBA		71%	71%	71%	71%	71%	71%	71%	71%	71%	71%	71%	71%	71%	71%	71%	71%	71%	71%	71%	71%	71%	71%	71%
	水		18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%
一段目	装置		攪拌	攪拌	ドラム	フラッシュ	薄膜	攪拌	ドラム	薄膜	フラッシュ	薄膜	二軸	攪拌	攪拌	薄膜	薄膜	薄膜	二軸	フラッシュ	薄膜	攪拌	二軸	ドラム	薄膜
	加熱温度	[℃]	120	120	130	120	140	120	130	140	120	140	140	120	120	140	140	140	140	120	140	120	140	130	140
	機内圧力	[kPa]	10	10	3	10	15	10	3	15	10	15	50	10	10	15	15	15	50	10	15	10	50	3	15
	処理時間	[h]	6	6	—	—	—	6	—	—	—	—	—	6	6	—	—	—	—	—	—	6	—	—	—
	処理流量	[kg/h]	—	—	2	15	130	—	2	130	15	130	56	—	—	130	130	130	56	15	130	—	56	2	130
二段目	装置		薄膜	二軸	薄膜	薄膜	二軸	薄膜	薄膜	薄膜	二軸	二軸	二軸	フラッシュ	ドラム	薄膜	薄膜	二軸	二軸	二軸	二軸	薄膜	二軸	薄膜	薄膜
	SE濃度	[%]	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60	25	25	25	23	60	60	60	60	60	60	60	60
	加熱温度	[℃]	130	140	130	130	140	130	130	130	140	140	140	120	130	130	130	140	140	140	140	130	140	130	130
	機内圧力	[kPa]	8	0.2	8	8	0.2	12	12	12	0.3	0.3	0.3	1	3	12	12	0.3	0.3	0.3	0.3	12	0.3	12	12
	処理流量	[kg/h]	50	10	50	50	10	95	95	95	56	56	56	15	2	95	95	56	56	56	56	95	56	95	95
三段目	装置							二軸	二軸	薄膜	二軸	二軸	二軸	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	二軸	二軸	二軸	二軸	二軸	二軸	二軸	薄膜
	SE濃度	[%]						75	75	75	99＜	99＜	99＜	25	25	25	25	25	99＜	99＜	99＜	75	99＜	75	75
	加熱温度	[℃]						140	140	120	140	140	140	130	130	120	120	120	140	140	140	140	140	140	120
	機内圧力	[kPa]						0.2	0.2	8	0.6	0.6	0.6	12	12	30	30	30	0.6	0.6	0.6	0.2	0.6	0.2	8
	処理流量	[kg/h]						10	10	50	30	30	30	95	95	50	50	50	30	30	30	10	30	10	50
四段目	装置													薄膜	薄膜	薄膜	二軸	二軸	二軸						
	SE濃度	[%]												75	75	75	60	60	99＜						
	加熱温度	[℃]												120	120	120	140	140	140						
	機内圧力	[kPa]												8	8	8	0.6	0.6	0.6						
	処理流量	[kg/h]												50	50	50	30	30	30						
評価	精製後の組成	SE	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜
		IBA	10 ppm	5 ppm	7 ppm	5 ppm	4 ppm	2 ppm	＜1 ppm	6 ppm	2 ppm	＜1 ppm	＜1 ppm	3 ppm	3 ppm	4 ppm	＜1 ppm	＜1 ppm	＜1 ppm	＜1 ppm	2 ppm	＜1 ppm	＜1 ppm	3 ppm	6 ppm
		水	＜1%	＜1%	＜1%	＜1%	＜1%	＜1%	＜1%	＜1%	＜1%	＜1%	＜1%	＜1%	＜1%	＜1%	＜1%	＜1%	＜1%	＜1%	＜1%	＜1%	＜1%	＜1%	＜1%
	色相		1	2	1	2	1	1	2	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	2	1	1	2	1	1

[0096] ［実施例９］

精製工程において、多孔板抽出塔に代えて、堰板型抽出塔（商品名：ＷＩＮＴＲＡＹ、日揮社製。以下、表中において、堰板型抽出塔を用いたことを表示する場合、単に、「堰板」と記載する。）を用いた以外は実施例１と同様の操作を行い、ショ糖ステアリン酸エステル粉末を得た。

[0097] 得られたショ糖ステアリン酸エステルについて、上記と同様にして、ＩＢＡ残存量を測定し、色相を評価した。結果を表３に示す。

[0098] ［実施例１０］

（再利用のための処理）

実施例９の抽出工程で得られた下層たる水相２６３重量部に対して、ＤＭＳＯを７０．５重量部加えた。この溶液を９０℃に加熱し、２．７ｋＰａの条件下で、水およびイソブチルアルコールを除去することにより、３５重量％ショ糖ＤＭＳＯ溶液を得た。

（エステル交換反応～粉砕工程）

ＤＭＳＯ３４５．７重量部に代えて、ＤＭＳＯ２８０．７重量部および上記３５重量％ショ糖ＤＭＳＯ溶液１００重量部の混合物を用い、さらに、ショ糖の使用量を３２．２重量部とした以外は、実施例９と同様の操作を行い、ショ糖ステアリン酸エステル粉末を得た。

[0099] 得られたショ糖ステアリン酸エステルについて、上記と同様にして、ＩＢＡ残存量を測定し、色相を評価した。結果を表３に示す。

[0100] ［実施例１１］

ショ糖の使用量を４０．０重量部、ステアリン酸メチルの使用量を１７２．０重量部、ＤＭＳＯの使用量を２６５．４重量部および炭酸カリウムを０．５６重量部とし、反応初期で留出させるＤＭＳＯを４９．８重量部とした以外は実施例９と同様の操作を行い、ショ糖ステアリン酸エステル粉末を得た。

[0101] 得られたショ糖ステアリン酸エステルについて、上記と同様にして、ＩＢＡ残存量を測定し、色相を評価した。結果を表３に示す。

[0102] ［実施例１２］

ステアリン酸メチル２１．４重量部をラウリン酸メチル（純度：７０重量%、炭素数８～１０の脂肪酸メチル：５重量%、炭素数１４～１８の脂肪酸メチル：２５重量%）１８．７重量部に、ＤＭＳＯの使用量を３３３．９重量部に、炭酸カリウムの使用量を０．２９重量部にそれぞれ変更した以外は、実施例９と同様の操作を行い、ショ糖ステアリン酸エステル粉末を得た。

[0103] 得られたショ糖ステアリン酸エステルについて、上記と同様にして、ＩＢＡ残存量を測定し、色相を評価した。結果を表３に示す。

[0104]

[表3]

表 3

			実施例																							
			9-1	9-2	9-3	9-4	9-5	9-6	9-7	9-8	9-9	9-10	9-11	9-12	9-13	9-14	9-15	9-16	9-17	10-1	10-2	11-1	11-2	12-1	12-2
抽出工程前のDMSO濃縮			攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌
精製工程			堰板	堰板	堰板	堰板	堰板	堰板	堰板	堰板	堰板	堰板	堰板	堰板	堰板	堰板	堰板	堰板	堰板	堰板	堰板	堰板	堰板	堰板	堰板
供給液組成（重量%）	SE		13%	13%	13%	13%	13%	13%	13%	13%	13%	13%	13%	13%	13%	13%	13%	13%	13%	13%	13%	13%	13%	13%	13%
	IBA		70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%
	水		17%	17%	17%	17%	17%	17%	17%	17%	17%	17%	17%	17%	17%	17%	17%	17%	17%	17%	17%	17%	17%	17%	17%
一段目	装置		攪拌	攪拌	ドラム	フラッシュ	薄膜	攪拌	ドラム	薄膜	フラッシュ	薄膜	二軸	フラッシュ	攪拌	薄膜	薄膜	薄膜	二軸	フラッシュ	薄膜	攪拌	二軸	ドラム	薄膜
	加熱温度	[℃]	120	120	130	120	140	120	130	140	120	140	140	120	120	140	140	140	140	120	140	120	140	130	140
	機内圧力	[kPa]	10	10	3	10	15	10	3	15	10	15	50	10	10	15	15	15	50	10	15	10	50	3	15
	処理時間	[h]	6	6	—	—	—	6	—	—	—	—	—	6	6	—	—	—	—	—	—	6	—	—	—
	処理流量	[kg/h]	—	—	2	15	130	—	2	130	15	130	56	—	—	130	130	130	56	15	130	—	56	2	130
二段目	装置		薄膜	二軸	薄膜	薄膜	二軸	薄膜	薄膜	薄膜	二軸	二軸	二軸	フラッシュ	ドラム	薄膜	薄膜	二軸	二軸	二軸	二軸	薄膜	二軸	薄膜	薄膜
	SE濃度	[%]	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60	25	25	25	23	60	60	60	60	60	60	60	60
	加熱温度	[℃]	130	140	130	130	140	130	130	130	140	140	140	120	130	130	130	140	140	140	140	130	140	130	130
	機内圧力	[kPa]	8	0.2	8	8	0.2	12	12	12	0.3	0.3	0.3	1	3	12	12	0.3	0.3	0.3	0.3	12	0.3	12	12
	処理流量	[kg/h]	50	10	50	50	10	95	95	95	56	56	56	15	2	95	95	56	56	56	56	95	56	95	95
三段目	装置							二軸	二軸	薄膜	二軸	二軸	二軸	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	二軸	二軸	二軸	二軸	二軸	二軸	薄膜
	SE濃度	[%]						75	75	75	99＜	99＜	99＜	25	25	25	25	25	99＜	99＜	99＜	75	99＜	75	75
	加熱温度	[℃]						140	140	120	140	140	140	130	130	120	120	120	140	140	140	140	140	140	120
	機内圧力	[kPa]						0.2	0.2	8	0.6	0.6	0.6	12	12	30	30	30	0.6	0.6	0.6	0.2	0.6	0.2	8
	処理流量	[kg/h]						10	10	50	30	30	30	95	95	50	50	50	30	30	30	10	30	10	50
四段目	装置													薄膜	薄膜	薄膜	二軸	二軸	二軸						
	SE濃度	[%]												75	75	75	60	60	99＜						
	加熱温度	[℃]												120	120	120	140	140	140						
	機内圧力	[kPa]												8	8	8	0.6	0.6	0.6						
	処理流量	[kg/h]												50	50	50	30	30	30						
評価 精製後の組成	SE		99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜
	IBA		10 ppm	4 ppm	6 ppm	5 ppm	2 ppm	<1 ppm	<1 ppm	4 ppm	<1 ppm	<1 ppm	<1 ppm	3 ppm	4 ppm	4 ppm	<1 ppm	<1 ppm	<1 ppm	2 ppm	<1 ppm	<1 ppm	<1 ppm	<1 ppm	4 ppm
	水		<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%
色相			2	1	1	1	1	1	1	1	1	1	2	1	1	1	1	1	1	2	1	1	2	1	1

[0105] ［実施例１３］

抽出工程において、攪拌槽に代えて、薄膜蒸発装置を用いた以外は実施例９と同様の操作を行い、ショ糖ステアリン酸エステル粉末を得た。

[0106] 得られたショ糖ステアリン酸エステルについて、上記と同様にして、ＩＢＡ残存量を測定し、色相を評価した。結果を表４に示す。

[0107] ［実施例１４］

（再利用のための処理）

実施例１３の抽出工程で得られた下層たる水相２６３重量部に対して、ＤＭＳＯを７０．５重量部加えた。この溶液を９０℃に加熱し、２．７ｋＰａの条件下で、水およびイソブチルアルコールを除去することにより、３５重量％ショ糖ＤＭＳＯ溶液を得た。

（エステル交換反応～粉砕工程）

ＤＭＳＯ３４５．７重量部に代えて、ＤＭＳＯ２８０．７重量部および上記３５重量％ショ糖ＤＭＳＯ溶液１００重量部の混合物を用い、さらに、ショ糖の使用量を３２．２重量部とした以外は、実施例１３と同様の操作を行い、ショ糖ステアリン酸エステル粉末を得た。

[0108] 得られたショ糖ステアリン酸エステルについて、上記と同様にして、ＩＢＡ残存量を測定し、色相を評価した。結果を表４に示す。

[0109] ［実施例１５］

ショ糖の使用量を４０．０重量部、ステアリン酸メチルの使用量を１７２．０重量部、ＤＭＳＯの使用量を２６５．４重量部および炭酸カリウムを０．５６重量部とし、反応初期で留出させるＤＭＳＯを４９．８重量部とした以外は実施例１３と同様の操作を行い、ショ糖ステアリン酸エステル粉末を得た。

[0110] 得られたショ糖ステアリン酸エステルについて、上記と同様にして、ＩＢＡ残存量を測定し、色相を評価した。結果を表４に示す。

[0111] ［実施例１６］

ステアリン酸メチル２１．４重量部をラウリン酸メチル（純度：７０重量

%、炭素数８～１０の脂肪酸メチル：５重量%、炭素数１４～１８の脂肪酸メチル：２５重量%）１８．７重量部に、ＤＭＳＯの使用量を３３３．９重量部に、炭酸カリウムの使用量を０．２９重量部にそれぞれ変更した以外は、実施例１３と同様の操作を行い、ショ糖ステアリン酸エステル粉末を得た。

[0112] 得られたショ糖ステアリン酸エステルについて、上記と同様にして、ＩＢＡ残存量を測定し、色相を評価した。結果を表４に示す。

[0113]

[表4]

表 4

				実施例																						
				13-1	13-2	13-3	13-4	13-5	13-6	13-7	13-8	13-9	13-10	13-11	13-12	13-13	13-14	13-15	13-16	13-17	14-1	14-2	15-1	15-2	16-1	16-2
抽出工程前のDMSO濃縮				薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜
精製工程				堰板	堰板	堰板	堰板	堰板	堰板	堰板	堰板	堰板	堰板	堰板	堰板	攪拌	堰板	堰板	堰板	堰板	堰板	堰板	堰板	堰板	堰板	堰板
供給液組成（重量%）	SE			12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%
	IBA			70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%
	水			18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%	18%
一段目	装置			攪拌	攪拌	ドラム	フラッシュ	薄膜	攪拌	ドラム	薄膜	フラッシュ	薄膜	二軸	攪拌	攪拌	薄膜	薄膜	薄膜	二軸	フラッシュ	薄膜	攪拌	二軸	ドラム	薄膜
	加熱温度	[℃]		120	120	130	120	140	120	130	140	120	140	140	120	120	140	140	140	140	120	140	120	140	130	140
	機内圧力	[kPa]		10	10	3	10	15	10	3	15	10	15	50	10	10	15	15	15	50	10	15	10	50	3	15
	処理時間	[h]		6	6	—	—	—	6	—	—	—	—	—	6	6	—	—	—	—	—	—	6	—	—	—
	処理流量	[kg/h]		—	—	2	15	130	—	2	130	15	130	56	—	—	130	130	130	56	15	130	—	56	2	130
二段目	装置			薄膜	二軸	薄膜	薄膜	二軸	薄膜	薄膜	薄膜	二軸	二軸	二軸	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	二軸	二軸	二軸	二軸	二軸	薄膜	二軸	薄膜	薄膜
	SE濃度	[%]		60	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60	25	25	25	23	60	60	60	60	60	60	60	60
	加熱温度	[℃]		130	140	130	130	140	130	130	130	140	140	140	120	130	130	130	140	140	140	140	130	140	130	130
	機内圧力	[kPa]		8	0.2	8	8	0.2	12	12	12	0.3	0.3	0.3	1	3	12	12	0.3	0.3	0.3	0.3	12	0.3	12	12
	処理流量	[kg/h]		50	10	50	50	10	95	95	95	56	56	56	15	2	95	95	56	56	56	56	95	56	95	95
三段目	装置								二軸	二軸	薄膜	二軸	二軸	二軸	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	二軸	二軸	二軸	二軸	二軸	二軸	二軸	薄膜
	SE濃度	[%]							75	75	75	99＜	99＜	99＜	25	25	25	25	25	99＜	99＜	99＜	75	99＜	75	75
	加熱温度	[℃]							140	140	120	140	140	140	130	130	120	120	120	140	140	140	140	140	140	120
	機内圧力	[kPa]							0.2	0.2	8	0.6	0.6	0.6	12	12	30	30	30	0.6	0.6	0.6	0.2	0.6	0.2	8
	処理流量	[kg/h]							10	10	50	30	30	30	95	95	50	50	50	30	30	30	10	30	10	50
四段目	装置														薄膜	薄膜	薄膜	二軸	二軸	二軸						
	SE濃度	[%]													75	75	75	60	60	99＜						
	加熱温度	[℃]													120	120	120	140	140	140						
	機内圧力	[kPa]													8	8	8	0.6	0.6	0.6						
	処理流量	[kg/h]													50	50	50	30	30	30						
評価	精製後の組成	SE		99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜
		IBA		8 ppm	4 ppm	5 ppm	7 ppm	4 ppm	3 ppm	2 ppm	7 ppm	<1 ppm	3 ppm	2 ppm	3 ppm	3 ppm	3 ppm	<1 ppm	<1 ppm	<1 ppm	<1 ppm	3 ppm	<1 ppm	<1 ppm	2 ppm	5 ppm
		水		<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%
	色相			1	1	1	2	1	1	2	1	2	1	1	1	1	1	1	1	2	2	1	1	1	2	1

[0114] ［実施例１７］

精製工程において、多孔板抽出塔に代えて、バッフル抽出塔（以下、表中において、バッフル抽出塔を用いたことを表示する場合、単に、「バッフル」と記載する。）を用いた以外は実施例１と同様の操作を行い、ショ糖ステアリン酸エステル粉末を得た。

[0115] 得られたショ糖ステアリン酸エステルについて、上記と同様にして、ＩＢＡ残存量を測定し、色相を評価した。結果を表５に示す。

[0116] ［実施例１８］

（再利用のための処理）

実施例１７の抽出工程で得られた下層たる水相２６３重量部に対して、ＤＭＳＯを７０．５重量部加えた。この溶液を９０℃に加熱し、２．７ｋＰａの条件下で、水およびイソブチルアルコールを除去することにより、３５重量％ショ糖ＤＭＳＯ溶液を得た。

（エステル交換反応～粉砕工程）

ＤＭＳＯ３４５．７重量部に代えて、ＤＭＳＯ２８０．７重量部および上記３５重量％ショ糖ＤＭＳＯ溶液１００重量部の混合物を用い、さらに、ショ糖の使用量を３２．２重量部とした以外は、実施例１７と同様の操作を行い、ショ糖ステアリン酸エステル粉末を得た。

[0117] 得られたショ糖ステアリン酸エステルについて、上記と同様にして、ＩＢＡ残存量を測定し、色相を評価した。結果を表５に示す。

[0118] ［実施例１９］

ショ糖の使用量を４０．０重量部、ステアリン酸メチルの使用量を１７２．０重量部、ＤＭＳＯの使用量を２６５．４重量部および炭酸カリウムを０．５６重量部とし、反応初期で留出させるＤＭＳＯを４９．８重量部とした以外は実施例１７と同様の操作を行い、ショ糖ステアリン酸エステル粉末を得た。

[0119] 得られたショ糖ステアリン酸エステルについて、上記と同様にして、ＩＢＡ残存量を測定し、色相を評価した。結果を表５に示す。

[0120] ［実施例２０］

ステアリン酸メチル２１．４重量部をラウリン酸メチル（純度：７０重量%、炭素数８～１０の脂肪酸メチル：５重量%、炭素数１４～１８の脂肪酸メチル：２５重量%）１８．７重量部に、ＤＭＳＯの使用量を３３３．９重量部に、炭酸カリウムの使用量を０．２９重量部にそれぞれ変更した以外は、実施例１７と同様の操作を行い、ショ糖ステアリン酸エステル粉末を得た。

[0121] 得られたショ糖ステアリン酸エステルについて、上記と同様にして、ＩＢＡ残存量を測定し、色相を評価した。結果を表５に示す。

[0122]

[表5]

表 5

			実施例																					
			17-1	17-2	17-3	17-4	17-5	17-6	17-7	17-8	17-9	17-10	17-11	17-12	17-13	17-14	17-15	17-16	17-17	18-1	18-2	19-1	19-2	20-1	20-2
抽出工程前のDMSO濃縮			攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌
精製工程			バッフル	バッフル	バッフル	バッフル	バッフル	バッフル	バッフル	バッフル	バッフル	バッフル	バッフル	バッフル	バッフル	バッフル	バッフル	バッフル	バッフル	バッフル	バッフル	バッフル	バッフル	バッフル	バッフル
供給液組成（重量%）	SE		11%	11%	11%	11%	11%	11%	11%	11%	11%	11%	11%	11%	11%	11%	11%	11%	11%	11%	11%	11%	11%	11%	11%
	IBA		70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	70%
	水		19%	19%	19%	19%	19%	19%	19%	19%	19%	19%	19%	19%	19%	19%	19%	19%	19%	19%	19%	19%	19%	19%	19%
一段目	装置		攪拌	攪拌	ドラム	フラッシュ	薄膜	攪拌	ドラム	薄膜	フラッシュ	薄膜	二軸	攪拌	攪拌	薄膜	薄膜	薄膜	二軸	フラッシュ	薄膜	攪拌	二軸	ドラム	薄膜
	加熱温度	[℃]	120	120	130	120	140	120	130	140	120	140	140	120	120	140	140	140	140	120	140	120	140	130	140
	機内圧力	[kPa]	10	10	3	10	15	10	3	15	10	15	50	10	10	15	15	15	50	10	15	10	50	3	15
	処理時間	[h]	6	6	—	—	—	6	—	—	—	—	—	6	6	—	—	—	—	—	—	6	—	—	—
	処理流量	[kg/h]	—	—	2	15	130	—	2	130	15	130	56	—	—	130	130	130	56	15	130	—	56	2	130
二段目	装置		薄膜	二軸	薄膜	薄膜	二軸	薄膜	薄膜	薄膜	二軸	二軸	二軸	フラッシュ	ドラム	薄膜	薄膜	二軸	二軸	二軸	二軸	薄膜	二軸	薄膜	薄膜
	SE濃度	[%]	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60	25	25	25	23	60	60	60	60	60	60	60	60
	加熱温度	[℃]	130	140	130	130	140	130	130	130	140	140	140	120	130	130	130	140	140	140	140	130	140	130	130
	機内圧力	[kPa]	8	0.2	8	8	0.2	12	12	12	0.3	0.3	0.3	1	3	12	12	0.3	0.3	0.3	0.3	12	0.3	12	12
	処理流量	[kg/h]	50	10	50	50	10	95	95	95	56	56	56	15	2	95	95	56	56	56	56	95	56	95	95
三段目	装置							二軸	二軸	薄膜	二軸	二軸	二軸	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	二軸	二軸	二軸	二軸	二軸	二軸	薄膜
	SE濃度	[%]						75	75	75	99＜	99＜	99＜	25	25	25	25	25	99＜	99＜	99＜	75	99＜	75	75
	加熱温度	[℃]						140	140	120	140	140	140	130	130	120	120	120	140	140	140	140	140	140	120
	機内圧力	[kPa]						0.2	0.2	8	0.6	0.6	0.6	12	12	30	30	30	0.6	0.6	0.6	0.2	0.6	0.2	8
	処理流量	[kg/h]						10	10	50	30	30	30	95	95	50	50	50	30	30	30	10	30	10	50
四段目	装置													薄膜	薄膜	薄膜	二軸	二軸	二軸						
	SE濃度	[%]												75	75	75	60	60	99＜						
	加熱温度	[℃]												120	120	120	140	140	140						
	機内圧力	[kPa]												8	8	8	0.6	0.6	0.6						
	処理流量	[kg/h]												50	50	50	30	30	30.						
評価	精製後の組成	SE	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜
		IBA	7 ppm	4 ppm	8 ppm	5 ppm	2 ppm	<1 ppm	<1 ppm	5 ppm	<1 ppm	<1 ppm	2 ppm	3 ppm	5 ppm	2 ppm	<1 ppm	<1 ppm	<1 ppm	<1 ppm	<1 ppm	<1 ppm	2 ppm	3 ppm	4 ppm
		水	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%
	色相		1	1	1	2	1	1	1	1	2	1	1	1	1	2	1	1	1	2	2	1	1	1	1

[0123] ［実施例２１］

抽出工程において、攪拌槽に代えて、薄膜蒸発装置を用いた以外は実施例１７と同様の操作を行い、ショ糖ステアリン酸エステル粉末を得た。

[0124] 得られたショ糖ステアリン酸エステルについて、上記と同様にして、ＩＢＡ残存量を測定し、色相を評価した。結果を表６に示す。

[0125] ［実施例２２］

（再利用のための処理）

実施例２１の抽出工程で得られた下層たる水相２６３重量部に対して、ＤＭＳＯを７０．５重量部加えた。この溶液を９０℃に加熱し、２．７ｋＰａの条件下で、水およびイソブチルアルコールを除去することにより、３５重量％ショ糖ＤＭＳＯ溶液を得た。

（エステル交換反応～粉砕工程）

ＤＭＳＯ３４５．７重量部に代えて、ＤＭＳＯ２８０．７重量部および上記３５重量％ショ糖ＤＭＳＯ溶液１００重量部の混合物を用い、さらに、ショ糖の使用量を３２．２重量部とした以外は、実施例２１と同様の操作を行い、ショ糖ステアリン酸エステル粉末を得た。

[0126] 得られたショ糖ステアリン酸エステルについて、上記と同様にして、ＩＢＡ残存量を測定し、色相を評価した。結果を表６に示す。

[0127] ［実施例２３］

ショ糖の使用量を４０．０重量部、ステアリン酸メチルの使用量を１７２．０重量部、ＤＭＳＯの使用量を２６５．４重量部および炭酸カリウムを０．５６重量部とし、反応初期で留出させるＤＭＳＯを４９．８重量部とした以外は実施例２１と同様の操作を行い、ショ糖ステアリン酸エステル粉末を得た。

[0128] 得られたショ糖ステアリン酸エステルについて、上記と同様にして、ＩＢＡ残存量を測定し、色相を評価した。結果を表６に示す。

[0129] ［実施例２４］

ステアリン酸メチル２１．４重量部をラウリン酸メチル（純度：７０重量

%、炭素数８～１０の脂肪酸メチル：５重量%、炭素数１４～１８の脂肪酸メチル：２５重量%）１８．７重量部に、ＤＭＳＯの使用量を３３３．９重量部に、炭酸カリウムの使用量を０．２９重量部にそれぞれ変更した以外は、実施例２１と同様の操作を行い、ショ糖ステアリン酸エステル粉末を得た。

[0130] 得られたショ糖ステアリン酸エステルについて、上記と同様にして、ＩＢＡ残存量を測定し、色相を評価した。結果を表６に示す。

[0131]

[表6]

表 6

			実施例																							
			21-1	21-2	21-3	21-4	21-5	21-6	21-7	21-8	21-9	21-10	21-11	21-12	21-13	21-14	21-15	21-16	21-17	22-1	22-2	23-1	23-2	24-1	24-2
抽出工程前のDMSO濃縮			薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜
精製工程			バッフル	バッフル	バッフル	バッフル	バッフル	バッフル	バッフル	バッフル	バッフル	バッフル	バッフル	バッフル	バッフル	バッフル	バッフル	バッフル	バッフル	バッフル	バッフル	バッフル	バッフル	バッフル	バッフル
供給液組成（重量%）	SE		12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%	12%
	IBA		69%	69%	69%	69%	69%	69%	69%	69%	69%	69%	69%	69%	69%	69%	69%	69%	69%	69%	69%	69%	69%	69%	69%
	水		19%	19%	19%	19%	19%	19%	19%	19%	19%	19%	19%	19%	19%	19%	19%	19%	19%	19%	19%	19%	19%	19%	19%
一段目	装置		攪拌	攪拌	ドラム	フラッシュ	薄膜	攪拌	ドラム	薄膜	フラッシュ	薄膜	二軸	攪拌	攪拌	薄膜	薄膜	薄膜	二軸	フラッシュ	薄膜	攪拌	二軸	ドラム	薄膜
	加熱温度	[℃]	120	120	130	120	140	120	130	140	120	140	140	120	120	140	140	140	140	120	140	120	140	130	140
	機内圧力	[kPa]	10	10	3	10	15	10	3	15	10	15	50	10	10	15	15	15	50	10	15	10	50	3	15
	処理時間	[h]	6	6	—	—	—	6	—	—	—	—	—	6	6	—	—	—	—	—	—	6	—	—	—
	処理流量	[kg/h]	—	—	2	15	130	—	2	130	15	130	56	—	—	130	130	130	56	15	130	—	56	2	130
二段目	装置		薄膜	二軸	薄膜	薄膜	二軸	薄膜	薄膜	薄膜	二軸	二軸	二軸	フラッシュ	ドラム	薄膜	薄膜	二軸	二軸	二軸	二軸	薄膜	二軸	薄膜	薄膜
	SE濃度	[%]	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60	60	25	25	25	23	60	60	60	60	60	60	60	60
	加熱温度	[℃]	130	140	130	130	140	130	130	130	140	140	140	120	130	130	130	140	140	140	140	130	140	130	130
	機内圧力	[kPa]	8	0.2	8	8	0.2	12	12	12	0.3	0.3	0.3	1	3	12	12	0.3	0.3	0.3	0.3	12	0.3	12	12
	処理流量	[kg/h]	50	10	50	50	10	95	95	95	56	56	56	15	2	95	95	56	56	56	56	95	56	95	95
三段目	装置							二軸	二軸	薄膜	二軸	二軸	二軸	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	薄膜	二軸	二軸	二軸	二軸	二軸	二軸	二軸	薄膜
	SE濃度	[%]						75	75	75	99＜	99＜	99＜	25	25	25	25	25	99＜	99＜	99＜	75	99＜	75	75
	加熱温度	[℃]						140	140	120	140	140	140	130	130	120	120	120	140	140	140	140	140	140	120
	機内圧力	[kPa]						0.2	0.2	8	0.6	0.6	0.6	12	12	30	30	30	0.6	0.6	0.6	0.2	0.6	0.2	8
	処理流量	[kg/h]						10	10	50	30	30	30	95	95	50	50	50	30	30	30	10	30	10	50
四段目	装置													薄膜	薄膜	薄膜	二軸	二軸	二軸						
	SE濃度	[%]												75	75	75	60	60	99＜						
	加熱温度	[℃]												120	120	120	140	140	140						
	機内圧力	[kPa]												8	8	8	0.6	0.6							
	処理流量	[kg/h]												50	50	50	30	30							
評価	精製後の組成	SE	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜	99%＜
		IBA	7 ppm	5 ppm	6 ppm	4 ppm	3 ppm	<1 ppm	2 ppm	6 ppm	<1 ppm	<1 ppm	<1 ppm	2 ppm	4 ppm	7 ppm	<1 ppm	<1 ppm	<1 ppm	<1 ppm	3 ppm	2 ppm	<1 ppm	<1 ppm	4 ppm
		水	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%	<1%
	色相		1	1	1	2	1	1	1	1	1	1	2	1	1	1	1	1	1	1	2	1	1	1	1

[0132] ［比較例１］

減圧乾燥工程において、表７記載の条件で減圧乾燥し、溶媒である水およびイソブチルアルコールを除去した以外は実施例１と同様の操作を行い、ショ糖ステアリン酸エステル粉末を得た。

[0133] 得られたショ糖ステアリン酸エステルについて、上記と同様にして、ＩＢＡ残存量を測定し、色相を評価した。結果を表７に示す。

[0134] ［比較例２］

減圧乾燥工程において、表７記載の条件で減圧乾燥し、溶媒である水およびイソブチルアルコールを除去した以外は実施例５と同様の操作を行い、ショ糖ステアリン酸エステル粉末を得た。

[0135] 得られたショ糖ステアリン酸エステルについて、上記と同様にして、ＩＢＡ残存量を測
定し、色相を評価した。結果を表７に示す。

[0136] ［比較例３］

減圧乾燥工程において、表７記載の条件で減圧乾燥し、溶媒である水およびイソブチルアルコールを除去した以外は実施例９と同様の操作を行い、ショ糖ステアリン酸エステル粉末を得た。

[0137] 得られたショ糖ステアリン酸エステルについて、上記と同様にして、ＩＢＡ残存量を測定し、色相を評価した。結果を表７に示す。

[0138] ［比較例４］

減圧乾燥工程において、表７記載の条件で減圧乾燥し、溶媒である水およびイソブチルアルコールを除去した以外は実施例１３と同様の操作を行い、ショ糖ステアリン酸エステル粉末を得た。

[0139] 得られたショ糖ステアリン酸エステルについて、上記と同様にして、ＩＢＡ残存量を測定し、色相を評価した。結果を表７に示す。

[0140] ［比較例５］

減圧乾燥工程において、表７記載の条件で減圧乾燥し、溶媒である水およびイソブチルアルコールを除去した以外は実施例１７と同様の操作を行い、

ショ糖ステアリン酸エステル粉末を得た。

[0141] 得られたショ糖ステアリン酸エステルについて、上記と同様にして、ＩＢＡ残存量を測定し、色相を評価した。結果を表７に示す。

[0142] ［比較例６］

減圧乾燥工程において、表７記載の条件で減圧乾燥し、溶媒である水およびイソブチルアルコールを除去した以外は実施例２１と同様の操作を行い、ショ糖ステアリン酸エステル粉末を得た。

[0143] 得られたショ糖ステアリン酸エステルについて、上記と同様にして、ＩＢＡ残存量を測定し、色相を評価した。結果を表７に示す。

[0144]

[表7]

表 7

				比較例											
				1-1	1-2	2-1	2-2	3-1	3-2	4-1	4-2	5-1	5-2	6-1	6-2
抽出工程前のDMSO濃縮				攪拌		薄膜		攪拌		薄膜		攪拌		薄膜	
精製工程				多孔		多孔		堰板		堰板		パッフル		パッフル	
供給液組成（重量%）		SE		12%	12%	11%	11%	13%	13%	12%	12%	11%	11%	12%	12%
		IBA		70%	70%	71%	71%	70%	70%	70%	70%	70%	70%	69%	69%
		水		18%	18%	18%	18%	17%	17%	18%	18%	19%	19%	19%	19%
一段目	装置			攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌	攪拌
	加熱温度		[℃]	120	120	120	120	120	120	120	120	120	120	120	120
	機内圧力		[kPa]	10	10	10	10	10	10	10	10	10	10	10	10
	処理時間		[h]	6	30	6	30	6	30	6	30	6	30	6	30
	処理流量		[kg/h]	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
評価	精製後の組成	SE		91%	93%	90%	91%	90%	92%	90%	93%	90%	93%	91%	91%
		IBA		64800 ppm	44600 ppm	58200 ppm	46200 ppm	58600 ppm	44800 ppm	64800 ppm	36000 ppm	72800 ppm	55400 ppm	68200 ppm	58000 ppm
		水		2.2%	1.9%	3.4%	3.5%	3.4%	3.5%	3.2%	2.9%	1.8%	0.9%	2.0%	3.1%
	色相			1	5	1	5	1	5	1	5	1	5	1	5

産業上の利用可能性

[0145] 本発明によれば、着色が抑制され、かつ有機溶媒の残存量が極僅かなショ糖脂肪酸エステルの製造方法を提供することができる。

請求の範囲

[請求項1] 反応溶媒中、アルカリ触媒の存在下、ショ糖と脂肪酸低級アルキルエステルとを反応させて得た反応混合物からショ糖脂肪酸エステルを取得する、ショ糖脂肪酸エステルの製造方法であって、

（１）該反応混合物を、有機溶媒と水を用いた液液抽出に付し、有機溶媒相にショ糖脂肪酸エステルを抽出する抽出工程、

（２）軽液供給口および重液供給口を備えた向流分配型抽出装置を用いて、上記抽出工程（１）で得られた有機溶媒相と精製用溶媒のうち、より比重の重い方を重液供給口から供給すると共に、より比重の軽い方を軽液供給口から供給して、有機溶媒相および精製用溶媒を向流接触させる精製工程、および、

（３）上記精製工程（２）で得られた有機溶媒相を、１つ以上の減圧乾燥機により、機内の圧力および／または加熱温度を少なくとも２段階以上変化させて減圧乾燥する、一連の減圧乾燥工程であって、

該減圧乾燥工程の第一段階の機内圧力が大気圧以下であり、かつ、その加熱温度が２０℃以上２００℃以下であり、

該減圧乾燥工程の最終段階の機内圧力が１０ｋＰａ・ａｂｓ以下、かつ、その加熱温度が２０℃以上２００℃以下である、減圧乾燥工程を含んでなる、ショ糖脂肪酸エステルの製造方法。

[請求項2] 減圧乾燥工程（３）において、減圧乾燥機の少なくとも一つが、二軸押出機である、請求項１記載のショ糖脂肪酸エステルの製造方法。

[請求項3] 減圧乾燥工程（３）において、一連の減圧乾燥工程が、２～９段階までのいずれかの段階からなるものである、請求項１または２記載のショ糖脂肪酸エステルの製造方法。

[請求項4] 減圧乾燥工程（３）において、精製工程（２）で得られた有機溶媒相におけるショ糖脂肪酸エステルの含有量が、１０～８０重量％である、請求項１～３のいずれか１項に記載のショ糖脂肪酸エステルの製造方法。

[請求項5] 請求項１～４のいずれか１項に記載のショ糖脂肪酸エステルの製造方法により得られる、ガードナー色数が３以下、かつ、有機溶媒の残存量が１０ｐｐｍ以下である、ショ糖脂肪酸エステル。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2014/070677

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C07H13/06(2006.01)i, *C07B61/00*(2006.01)n

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
C07H13/06, C07B61/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2014
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2014	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2014

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
CAplus/REGISTRY(STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 7-228590 A (Mitsubishi Chemical Corp.), 29 August 1995 (29.08.1995), claims; examples & US 5565557 A & EP 659760 A2 & CN 1107855 A	1-5
Y	JP 7-206889 A (Mitsubishi Chemical Corp.), 08 August 1995 (08.08.1995), claims; paragraphs [0022], [0023], [0029] to [0031] (Family: none)	1-5

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search 02 October, 2014 (02.10.14)	Date of mailing of the international search report 14 October, 2014 (14.10.14)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office Facsimile No.	Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2014/070677

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	JP 4-21693 A (Dai-Ichi Kogyo Seiyaku Co., Ltd.), 24 January 1992 (24.01.1992), example 1; page 2, upper right column, line 17 to page 3, upper left column, line 10 & EP 459172 A1	5 1-4
X A	JP 61-15893 A (Dai-Ichi Kogyo Seiyaku Co., Ltd.), 23 January 1986 (23.01.1986), examples 1 to 3; page 2, lower left column, lines 3 to 4, 11 & US 4611055 A & GB 2161806 A	5 1-4
P,Y	JP 2014-91705 A (Dai-Ichi Kogyo Seiyaku Co., Ltd.), 19 May 2014 (19.05.2014), entire text & KR 2014-057181 A & CN 103804436 A	1-5

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１４／０７０６７７

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C07H13/06(2006.01)i, C07B61/00(2006.01)n

Ｂ．　調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C07H13/06, C07B61/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２０１４年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０１４年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０１４年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

CAplus/REGISTRY(STN)

Ｃ．　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー＊	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
Y	JP 7-228590 A（三菱化学株式会社）1995.08.29, 特許請求の範囲、実施例 & US 5565557 A & EP 659760 A2 & & CN 1107855 A	1-5
Y	JP 7-206889 A（三菱化学株式会社）1995.08.08, 特許請求の範囲、段落【００２２】、【００２３】、【００２９】－【００３１】（ファミリーなし）	1-5
X A	JP 4-21693 A（第一工業製薬株式会社）1992.01.24, 実施例１、第２頁右上欄第１７行－第３頁左上欄第１０行 & EP 459172 A1	5 1-4

☑　Ｃ欄の続きにも文献が列挙されている。

☐　パテントファミリーに関する別紙を参照。

＊　引用文献のカテゴリー
「Ａ」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「Ｅ」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「Ｌ」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
「Ｏ」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「Ｐ」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献
「Ｔ」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「Ｘ」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Ｙ」特に関連のある文献であって、当該文献と他の１以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「＆」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日	国際調査報告の発送日
０２．１０．２０１４	１４．１０．２０１４

国際調査機関の名称及びあて先
日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ）
郵便番号１００－８９１５
東京都千代田区霞が関三丁目４番３号

特許庁審査官（権限のある職員）　４Ｐ　３７５９
早乙女　智美
電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４９２

Ｃ（続き）．　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー＊	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
Ｘ Ａ	JP 61-15893 A (第一工業製薬株式会社) 1986.01.23, 実施例１－３、第２頁左下欄第３－４、１１行 & US 4611055 A & GB 2161806 A	5 1-4
ＰＹ	JP 2014-91705 A (第一工業製薬株式会社) 2014.05.19, 全文 & KR 2014-057181 A & CN 103804436 A	1-5