

(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
2022年12月8日(08.12.2022)



(10) 国際公開番号

WO 2022/255372 A1

(51) 国際特許分類:
B01D 9/02 (2006.01) *C07C 57/055* (2006.01)
C07C 51/43 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2022/022160

(22) 国際出願日: 2022年5月31日(31.05.2022)

(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 2021-093031 2021年6月2日(02.06.2021) JP

(71) 出願人:株式会社日本触媒(**NIPPON SHOKUBAI CO., LTD.**) [JP/JP]; 〒5410043 大阪府大阪市中央区高麗橋4丁目1番1号 Osaka (JP).

(72) 発明者: 福本 隼也 (**FUKUMOTO, Toshiya**); 〒6711282 兵庫県姫路市網干区興浜字西沖992番1号 株式会社日本触媒内 Hyogo (JP). 迎 真志(**MUKAE, Masashi**); 〒6711282 兵庫県姫路市網干区興浜字西沖992番1号 株式会社日本触媒内 Hyogo (JP). 松田 敬幸(**MATSUDA, Takayuki**); 〒6711282 兵庫県姫路市網干区興浜字西沖992番1号 株式会社日本触媒内 Hyogo (JP).

(74) 代理人: 弁理士法人 **W i s e P l u s (WISEPLUS IP FIRM)**; 〒5320003 大阪府大阪市淀川区宮原3丁目5番36号 Osaka (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, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, 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, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, 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, ST, 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).

(54) Title: PURIFICATION APPARATUS

(54) 発明の名称: 精製装置

(57) **Abstract:** The present invention provides a method for stably obtaining a product. The present invention provides a purification apparatus for compounds which comprises a tank used in the purification apparatus and a hydraulic washing column, said purification apparatus being characterized in that: the tank is a crystallization tank that generates a slurry containing crystals of the compound and/or a maturation tank that is capable of holding the crystals of the compound in a suspended state in the tank and is provided with an agitator having an agitation shaft and a bearing part; and the purification apparatus further comprises a line for extracting, from the tank, the slurry containing the crystals of the compound to be supplied to the hydraulic washing column, and a line for flowing, between the agitation shaft and the bearing part in the tank, a mother liquid derived from the slurry containing the crystals of the compound to be supplied to the hydraulic washing column and/or a melt in which the crystals are melt.

(57) 要約: 本発明は、安定して製品を得る方法を提供する。本発明は、精製装置に用いられる槽と、液圧式洗浄カラムとを有する化合物の精製装置であって、該槽は、化合物の結晶を含むスラリーを生成する晶析槽及び／又は槽内で化合物の結晶を懸濁状態で保持できる熟成槽であり、攪拌軸及び軸受け部を有する攪拌機を備え、該精製装置は、更に、化合物の結晶を含むスラリーを、該槽から抜き出し、液圧式洗浄カラムに供給するためのライン、及び、該液圧式洗浄カラムに供給される化合物の結晶を含むスラリー由来の母液及び／又は該結晶を融解した融解液を、該槽における該攪拌軸と該軸受け部との間に流すためのラインを有することを特徴とする精製装置である。

添付公開書類：

一 国際調査報告（条約第21条(3)）

明 細 書

発明の名称：精製装置

技術分野

[0001] 本発明は、精製装置に関する。より詳しくは、精製装置、化合物の製造方法、及び、化合物の精製方法に関する。

背景技術

[0002] 精製装置は、例えば樹脂の原料等として用いられる化合物を精製するために、工業的に広く利用されている。化学工業の多くの分野において、不純物がより低減された高品質の化合物を得ることが求められており、そのためのより優れた精製装置が種々検討されている。

[0003] 工業上、化合物の精製前の粗製化合物の多くは、連続式の精製工程を経ることで精製されている。例えば、原料ガスを接触気相酸化反応させて得られたアクリル酸含有ガスを、捕集、晶析精製し、残留母液に含まれるアクリル酸のマイケル付加物を分解して捕集工程に戻すアクリル酸の製造方法が開示されている（例えば、特許文献1参照）。

[0004] 上記精製工程では、より高純度の化合物を高い収率で得るために、化合物の結晶を含むスラリーを生成する槽（晶析槽）や化合物の結晶を成長させる槽（熟成槽）が用いられる。従来の、晶析槽や熟成槽を用いた精製方法が、特許文献2～4に開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特開2007-182437号公報

特許文献2：特開2005-28214号公報

特許文献3：特開2012-140471号公報

特許文献4：特開2002-204937号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] 上記のように、化合物を製造するための、より優れた精製装置が求められており、安定して製品（化合物）を得る方法が望まれていた。本発明は上記現状に鑑みてなされたものであり、安定して製品を得る方法を提供することを目的とするものである。

課題を解決するための手段

[0007] 本発明者らは、安定して製品を得る方法について検討し、精製装置に用いられる槽と、液压式洗浄カラムとを有する精製装置に着目した。そして、槽が、化合物の結晶を含むスラリーを生成する晶析槽及び／又は槽内で化合物の結晶を懸濁状態で保持できる熟成槽であり、攪拌軸及び軸受け部を有する攪拌機を備え、該精製装置が、更に、化合物の結晶を含むスラリーを、該槽から抜き出し、液压式洗浄カラムに供給するためのライン、及び、該液压式洗浄カラムに供給される化合物の結晶を含むスラリー由来の母液及び／又は該結晶を融解した融解液を、該槽における該攪拌軸と該軸受け部との間に流すためのラインを有することで、該槽の使用時に、回転している攪拌軸と静止している軸受け部との間に結晶を含むスラリーが混入することを防止し、結晶による攪拌軸や軸受けの摩耗を防ぐことができ、また、化合物が重合性物質の場合、該攪拌軸と該軸受け部との間での摺動による重合・凍結を充分に防止することができ、安定して製品を得ることができることを見出し、本発明に到達したものである。

[0008] すなわち、本発明は、精製装置に用いられる槽と、液压式洗浄カラムとを有する化合物の精製装置であって、該槽は、化合物の結晶を含むスラリーを生成する晶析槽及び／又は槽内で化合物の結晶を懸濁状態で保持できる熟成槽であり、攪拌軸及び軸受け部を有する攪拌機を備え、該精製装置は、更に、化合物の結晶を含むスラリーを、該槽から抜き出し、液压式洗浄カラムに供給するためのライン、及び、該液压式洗浄カラムに供給される化合物の結晶を含むスラリー由来の母液及び／又は該結晶を融解した融解液を、該槽における該攪拌軸と該軸受け部との間に流すためのラインを有することを特徴とする精製装置である。

発明の効果

[0009] 本発明の精製装置を用いることで、装置を長時間安定して稼働できるようになり、生産性の向上や保全費用の削減ができる。

図面の簡単な説明

[0010] [図1]図1は、本発明の精製装置が有する槽の一例を側面側から見た断面模式図である。

[図2a]図2 aは、本発明の精製装置において、本発明を適用可能なラインの例を示す模式図である。

[図2b]図2 bは、本発明の精製装置において、本発明を適用可能なラインの他の例を示す模式図である。

[図3]図3は、図1に示した槽が備える攪拌機の一部を側面側から見た模式図である。

[図4]図4は、図1に示した槽が備える攪拌機の軸受け部を側面側から見た断面模式図である。

[図5]図5は、本発明の精製装置において、本発明を適用可能なラインの他の例を示す模式図である。

発明を実施するための形態

[0011] 以下、本発明を詳細に説明する。

なお、以下において記載する本発明の個々の好ましい特徴を2つ以上組み合わせたものもまた、本発明の好ましい形態である。

[0012] 以下においては、先ず、本発明の精製装置について記載する。次いで、本発明の化合物の製造方法、本発明の化合物の精製方法について順に説明する。

[0013] (本発明の精製装置)

本発明の精製装置は、精製装置に用いられる槽と、液圧式洗浄カラムとを有する。更に、本発明の精製装置は、上述したラインを有する。以下では、槽、液圧式洗浄カラム、ライン、その他の装置等について順に説明する。

[0014] <槽>

上記槽は、化合物の結晶を含むスラリーを生成する晶析槽及び／又は槽内で化合物の結晶を懸濁状態で保持できる熟成槽である。熟成槽は化合物の結晶を一定時間保持することで化合物の結晶を成長させる。

上記槽は、槽内に、攪拌軸及び軸受け部を有する攪拌機を備える。

上記軸受け部は、攪拌機の攪拌軸の少なくとも一部を収容し、攪拌軸との間に隙間を有するものであればよい。該軸受け部は、攪拌機の攪拌軸の少なくとも一部と接していてもよく、接していなくてもよい。

上記軸受け部が、攪拌機の攪拌軸の少なくとも一部と接している場合、攪拌機の攪拌軸の少なくとも一部と直接接していてもよく、玉やころ（棒）、シャフトスリーブを介して接触していてもよい。

例えば、上記軸受け部は、攪拌機の攪拌軸の先端部を収容し、該先端部を支えるものであることが好ましい。

なお、本明細書中、上記軸受け部における、攪拌軸の少なくとも一部を収容するための、底面部及び／又は側面部に囲まれてなる内部を、軸受け部の内部ともいう。

[0015] 上記攪拌機の攪拌軸は、その向きは特に限定されないが、槽の天板側から底面側への方向に沿って設けられていることが好ましい。該攪拌軸が、槽の天板側から底面側への方向に沿って設けられているとは、該攪拌軸が、槽の天板及び底面に接していなくてもよく、その方向（軸方向）が、槽の天板側から底面側への方向といえるものであればよい。

中でも、上記攪拌機は、その攪拌軸方向が、垂直方向に対して $0 \sim 30^\circ$ の範囲内となるように設けられていることがより好ましく、 $0 \sim 15^\circ$ の範囲内となるように設けられていることが更に好ましく、 $0 \sim 10^\circ$ の範囲内となるように設けられていることが一層好ましく、 $0 \sim 5^\circ$ の範囲内となるように設けられていることが特に好ましく、垂直方向に設けられていることが最も好ましい。

[0016] 上記軸受け部は、例えば、攪拌軸の先端部の底面側を覆う底面部、及び／又は、攪拌軸の先端部の側面側を覆う側面部から構成されていることが好ま

しい。例えば、上記軸受け部が、攪拌軸の先端部の側面側を覆う側面部のみから構成されていてもよい。その場合、攪拌軸の下側（底面側）は、軸受け部で覆われておらず、液やスラリーが溜まる構造ではないが、上記軸受け部と、攪拌軸の先端部の側面側との間の隙間に上記母液及び／又は融解液を流し、この隙間に結晶を含むスラリーが混入することを防止することで、本発明の効果を発揮できる。なお、側面部は、リング状のリング部等とすることができる。

上記軸受け部の上面は、その一部又は全部が覆われていないものである。この上面を介して、軸受け部内の液を流し出すことができる。

上記底面部は、水平方向に対して傾斜があってもよいが、水平であることが好ましい。

[0017] 上記軸受け部は、その大きさは特に限定されず、攪拌機の大きさに応じて適宜設定できるが、例えば、その内径が10～500mmであることが好ましい。

なお、上記軸受け部の内径は、上記槽を上面側から見たときに、上記槽の内径の1/1000以上であることが好ましく、1/800以上であることがより好ましい。

上記軸受け部の内径は、好ましくは、上記槽の内径の1/5以下である。

本明細書中、軸受け部の内径は、軸受け部を攪拌軸方向から見たときに、軸受け部が、攪拌軸の側面側を覆う部分の内径であり、当該部分の内側が円形状以外の形状である場合は、当該部分の内側に対応する輪郭線上の2点間の距離（水平面上の距離）のうち最大のものを言う。

槽の内径とは、上記槽を上面側から見たときの内径を言い、槽が円柱形状以外の形状である場合は、上記槽を上面側から見たときに、槽の内壁面に対応する輪郭線上の2点間の距離（水平面上の距離）のうち最大のものを言う。

[0018] また上記軸受け部は、その内部の高さ（深さ）は特に限定されず、攪拌機の大きさに応じて適宜設定できるが、例えば30～500mmであることが

好ましい。

なお、上記軸受け部の内部の高さは、上記槽内部の高さに対して、 $1/1000$ 以上であることが好ましく、 $1/800$ 以上であることがより好ましく、 $1/500$ 以上であることが更に好ましい。

上記軸受け部の内部の高さは、上記槽内部の高さに対して、 $1/5$ 以下であることが好ましく、 $1/10$ 以下であることがより好ましい。

なお、本明細書中、軸受け部の内部の高さとは、軸受け部の内部全体の平均の高さをいう。また、軸受け部に上面及び／又は底面が存在しない場合、軸受け部の側面部の内側における高さを軸受け部の内部の高さとすることができる。

槽内部の高さとは、槽内の上面全体の平均高さと槽内の底面全体の平均高さとの差をいう。

また上記攪拌軸と上記軸受け部の間の距離（最短距離）は、 $0.01 \sim 50 \text{ mm}$ の範囲内であることが好ましく、 $0.05 \sim 10 \text{ mm}$ の範囲内であることがより好ましい。

軸受け部の材料は、特に限定されないが、ステンレス等の金属、樹脂、炭素繊維等のカーボン系素材、ガラス、これらの混合材料等が挙げられ、好ましくはカーボン系素材、カーボン系素材入り金属、ガラス入りテフロン（登録商標）等が挙げられる。

[0019] 上記槽は、その使用時に攪拌機を用いることで、槽の少なくとも一部を懸濁状態とすることができる。槽中の懸濁状態となった箇所では、一定時間結晶を保持することができ、結晶を十分に成長させたうえで、例えば槽の底面付近からスラリー等として抜き出すことができる。例えば熟成槽では、一定時間結晶を保持することで、オストワルド熟成により細かな結晶が融解し、大きな結晶が更に成長し、結晶径分布が狭くなる。これにより、高品質の結晶を得ることができ、このような結晶を次工程の液圧式洗浄カラムでの精製工程に供することで、液圧式洗浄カラムでの精製効率をより向上させることができる。また、晶析槽であっても、一定時間結晶を保持することで熟成槽

と同等の効果が期待できる。

[0020] 上記槽では、該液圧式洗浄カラムに供給される化合物の結晶を含むスラリー由来の母液及び／又は該結晶を融解した融解液を、槽における上記攪拌軸と上記軸受け部との間に流すことで、該攪拌軸と該軸受け部との間に結晶を含むスラリーが混入することを防止し、結晶による攪拌軸や軸受けの摩耗を防ぐことができ、攪拌軸や軸受けの交換頻度が低下することで、保全費用を削減できる。また、該攪拌軸と該軸受け部との間で、上記化合物が重合性物質の場合、摺動により重合したり凍結したりすることを十分に防止することができ、上述した攪拌機の作用を十分に保持することができ、長期間にわたって安定して製品を得ることができる。また、液圧式洗浄カラム内の圧力を利用して、母液及び／又は融解液を槽の上記軸受け部に好適に移送できる。

なお、上記攪拌軸と上記軸受け部との間に流す液としては、例えば、後述するように、液圧式洗浄カラムから抜き出した母液、液圧式洗浄カラムから抜き出した結晶の融解液を含む循環液を取り出したものが好適なものとして挙げられる。

[0021] 上記攪拌機は、軸受け部を有する限り、公知の攪拌機を使用することができる。また、攪拌機の材質としては、特に限定されないが、ステンレス等の金属が好適なものとして挙げられる。

上記攪拌機が有する攪拌軸の長さは、上記槽内部の高さに対して、 $1/5$ 以上であることが好ましく、 $1/2$ 以上であることがより好ましく、 $4/5$ 以上であることが更に好ましい。

攪拌軸の長さは、その上限値は特に限定されず、上記槽内部の高さと同じであってもよい。

[0022] 上記攪拌軸の直径は、攪拌機の大きさに応じて適宜設定できるが、例えば $10\sim500\text{ mm}$ であることが好ましい。

なお、上記攪拌軸の直径は、上記槽を上面側から見たときに、上記槽の内径の $1/1000$ 以上であることが好ましく、 $1/800$ 以上であることがより好ましい。

上記攪拌軸の直径は、好ましくは、上記槽の内径の $1/5$ 以下である。

- [0023] 上記攪拌機が有する攪拌翼の長さ（攪拌軸から攪拌翼の先端までの距離）は、上記槽を上面側から見たときに、上記槽の内径の $1/10$ 以上であることが好ましく、 $1/8$ 以上であることがより好ましい。

上記攪拌翼の長さは、通常、上記槽の内径の $1/2$ 以下である。

上記攪拌翼は、軸方向に複数存在していてもよい。言い換えれば、上記攪拌機は、多段翼を有するものであってもよい。該攪拌翼が軸方向に複数存在する場合、いずれか1つの攪拌翼が上述した好ましい内径の範囲内であることが好ましいが、すべての攪拌翼が上述した好ましい内径の範囲内であることがより好ましい。

- [0024] 上記槽は、通常、底面付近に、化合物の結晶を含むスラリーを槽から抜き出すための抜き出し口を備える。

なお、後述する図1等では、上記結晶を含むスラリーの抜き出し口が、槽内に1つだけある場合を示しているが、槽内に複数設けられていてもよい。

- [0025] 上記槽は、槽内に、邪魔板（バッフル）を備えていてもよい。該邪魔板は、例えば、槽の天板側から底面側へ方向に沿って設けられていることが好ましい。

また上記邪魔板は、槽の底面側に設けられていることが好ましい。

上記邪魔板が、槽の底面側に設けられているとは、上記邪魔板の重心の高さが、槽の容量で下半分となる箇所に位置していることを言う。

上記邪魔板の材料としては、例えばステンレス等の金属、樹脂等が挙げられる。

上記邪魔板は、上記槽内に複数設けられていてもよい。

- [0026] 上記熟成槽での化合物の滞留時間は、精製される化合物の種類に合わせて適宜調整すればよいが、洗浄カラムに送液するスラリーの粒度分布を整え、洗浄カラムでの還流比（洗浄液流量／精製化合物流量）を低減する観点からは、滞留時間は0.5～6時間であることが好ましい。化合物が（メタ）アクリル酸である場合、より好ましくは1～5時間であり、更に好ましくは1

、 2 ～ 4 . 5 時間である。

なお上記滞留時間は、熟成槽の懸濁部の容量を、熟成槽から次工程（後段）に係る液圧式洗浄カラムにスラリーを供給する流量で除した値として計算される。

晶析槽については、必要な伝熱面積等から槽サイズが決定される。晶析槽での化合物の滞留時間は運転条件により成り行きとなる。

[0027] 上記槽は、天板付近に、化合物の結晶を含むスラリーを槽に供給するための供給口を更に備えることが好ましい。これにより、化合物の結晶を含むスラリーを槽に好適に供給できる。

後述する図 1 では、槽へスラリーを送液するライン 5 2 は 1 つだけであり、上記スラリーの供給口が、槽 2 1 に 1 つだけ設けられている場合を示しているが、槽に複数設けられていてもよい。また、上記供給口を構成するノズル（ライン 5 2）は、その先端を曲げてスラリーを槽のタンク内壁面に沿わせて供給するようにしてもよいし、その先端を液中に配置してスラリーを液中に供給するようにしてもよい。

[0028] 上記槽は、天板付近に、上澄部の母液を槽から抜き出すための抜き出し口を更に備えることが好ましい。抜き出した母液は、リサイクルすることができ、これにより化合物の収率を向上できる。例えば、抜き出した母液は、前工程（前段）に係る槽に返送することができる。該抜き出し口を構成するノズル又はパイプは、その材質に特に限定はなく、例えば金属又は合金から構成されるものとすることができる。

後述する図 1 では、上記母液の抜き出し口が、槽 2 1 に 1 つだけ設けられている場合を示しているが、槽に複数設けられていてもよい。

なお、本明細書中、上澄部は、上記槽の使用時に、スラリー由来の母液（上澄液）が存在することとなる箇所である。また、懸濁部は、上記槽の使用時に、化合物の結晶を含むスラリー（懸濁液）が存在する箇所である。邪魔板の大きさ、形状、配置等により、上澄部・懸濁部の範囲を決めることができる。

[0029] 上記槽は、上記結晶を含むスラリーの供給口と上記母液の抜き出し口との間に、該槽の天板側から底面側へ方向に沿って設けられている仕切り板を更に備えていてもよい。これにより、上記母液の抜き出し口に結晶が混入することをより一層防止できる。

上記仕切り板の大きさは、上記槽の大きさに応じて適宜設定することができる。

上記仕切り板の材料としては、例えばステンレス等の金属、樹脂等が挙げられる。

上記仕切り板は、槽内に1つだけ設けられていてもよく、複数設けられていてもよい。

[0030] 上記槽は、天板付近に、上記母液の抜き出し口に化合物の結晶が混入しないようにする堰部を更に備えていてもよい。

上記堰部は、槽内に1つだけ設けられていてもよく、上記母液の抜き出し口が複数設けられている場合は、該母液の抜き出し口ごとに設けられているものとするこで、槽内に複数設けられていてもよいし、複数の母液の抜き出し口に対して共通の堰部としてもよい。

[0031] 上記槽は、その大きさは特に限定されないが、例えば、その内径が100～5000mmであることが好ましい。またその高さが1000～10000mmであることが好ましい。

[0032] 上記晶析槽又は熟成槽の本体又は周辺には、温度計、圧力計、液面計（レーダー式等）、レベルスイッチ（フロート式等）等の計装機器類を設けてもよい。また、上記熟成槽の側板等にサイトグラス（のぞき窓）を設けてもよく、その場合はこれらをカバーで覆うことができる。また熟成槽の天板、側板等にマンホール、ハンドホール（メンテナンス時に内部に手を入れるための穴）等を設けてもよく、熟成槽の天板等にラプチャー等を設けてもよい。これらの設置数に限定はない。

[0033] <液圧式洗浄カラム>

本発明の精製装置は、結晶を含む循環スラリーの抜き出し口及び抜き出し

た結晶の融解液を含む循環液の返送口が設けられた液圧式洗浄カラム、結晶を含むスラリーを液圧式洗浄カラムに供給するパイプ、該液圧式洗浄カラム内の結晶を含むスラリーを濾過するフィルター、該フィルターに接続される母液を抜き出すパイプ、及び該抜き出し口から抜き出した循環スラリーに含まれる結晶を融解する設備を含んで構成される。

[0034] 上記フィルターに接続される、母液を抜き出すパイプは、通常、フィルターの上側に配置される。抜き出した母液の少なくとも一部を、上記槽における上記攪拌軸と上記軸受け部との間に流すことが本発明の精製装置における好ましい形態の1つである。なお、抜き出した母液の残りは、例えば、槽に天板側から供給したり、液圧式洗浄カラムに供給される、結晶を含むスラリーと混合したうえで、液圧式洗浄カラム入口から液圧式洗浄カラム内に供給し、再利用することができる。このようにして、液圧式洗浄カラム内部にスラリーを好適に供給することができる。このようにして化合物の精製が行われ、高純度の化合物が得られる。また、抜き出した母液の残りを、凍結を防止するため、液圧式洗浄カラムに設けられたノズルに流すことも可能である。

上記フィルターは、その材質に特に限定はなく、例えばステンレス等の金属から構成されるもの、ポリテトラフルオロエチレン（PTFE）、ポリエーテルエーテルケトン（PEEK）等の樹脂から構成されるものとすることができ、後者が好ましい。また、上記パイプは、その材質に特に限定はなく、例えば金属又は合金から構成されるものとすることができる。

[0035] 本発明の精製装置は、上記液圧式洗浄カラム内の結晶を含むスラリーを濾過するフィルターに接続される、ダミーパイプを更に含んでもよい。

上記ダミーパイプは、通常、フィルターの下側に配置される。また、上記ダミーパイプは、その材質に特に限定はないが、例えばポリテトラフルオロエチレン（PTFE）、ポリエーテルエーテルケトン（PEEK）、パーフルオロアルコキシアリカン（PFA）等の樹脂から構成されるものが好ましい。

[0036] 上記液圧式洗浄カラムの本体又は周辺には、温度計（多点式等）、圧力計、界面計（光学式等）等の計装機器類を設けてもよい。

[0037] 本発明の精製装置は、更に、液圧式洗浄カラムにおける結晶を含むスラリーの抜き出し口（本明細書中、製品抜き出し口ともいう。）と融解する設備とを接続する抜き出しライン、及び、当該融解する設備と上記液圧式洗浄カラムに設けられた、抜き出した結晶の融解液を含む循環液の返送口とを接続する返送ラインを有していてもよい。上記抜き出しラインは、上記液圧式洗浄カラムの底面付近に設置することが好ましい。本発明の精製装置の使用時において、該抜き出しライン、該返送ラインは、循環スラリー又は融解液を含む循環液が循環するものであってもよい。本明細書中、この循環経路をメルトループとも言う。

循環経路のうち、循環スラリーが流れる部分は、循環液に液圧式洗浄カラムの結晶が導入されて循環スラリーとなってから、循環スラリーに含まれる結晶が融解されるまでの部分である。例えば、上述したメルトループにおいて、液圧式洗浄カラムの底部における、返送口から返送された循環液が、液圧式洗浄カラム内で結晶と混ざり合うことで循環スラリーとなり、循環スラリーの抜き出し口と融解する設備との間の経路（抜き出しライン）を流通するものであってもよい。

[0038] 本発明の精製装置は、液圧式洗浄カラム内の結晶床から結晶を抜き出す機構を含んでいてもよい。

結晶床から結晶を抜き出す機構は、特に限定されず、特表2005-509009号公報に記載されるローターブレード又はスクレーパ、欧州特許第1469926号明細書に記載される液動圧による機構等が挙げられ、これらの1種又は2種以上を使用できる。上記ローターブレード又はスクレーパの材質としてはステンレス等の金属であることが好ましい。

[0039] 上記融解する設備としては、通常は加熱器が用いられる。加熱器としては、結晶を含むスラリーに効率的に熱を伝える構造、例えば、垂直多管式熱交換器、水平多管式熱交換器、二重管式熱交換器、スパイラル熱交換器、プレ

ート熱交換器、蛇管式熱交換器、電気ヒーター等が挙げられる。当該加熱器は、メルトループ中に設けられ、循環スラリー（融解後は循環液）がメルトループ中に設けられたポンプによって循環する強制循環式であることが好ましい。

[0040] 本発明の精製装置は、更に、結晶を融解する設備で得られる融解液を含む循環液の一部を液圧式洗浄カラムに返送する機構（返送機構）を含んでいてもよい。

上記返送機構は、上記循環液の一部を、循環液の他の部分と分けて、液圧式洗浄カラムに返送するために用いられる機構であればよく、例えば、上記融解する設備と上記返送口とを接続する返送ラインから分岐して、製品抜き出し口に接続される製品抜き出しラインがある場合に、該分岐路が挙げられる。該分岐路としては、例えばT字路（丁字路）が挙げられる。

上記返送機構としては、例えば、結晶を融解する設備で得られる融解液を含む循環液の一部を、その少なくとも一部が結晶を洗浄する洗浄液となるように、液圧式洗浄カラムに返送する機構が挙げられる。

上記返送口は、循環液を上向きに返送できるように、液圧式洗浄カラムの底部に設けられたものであることが好ましい。

[0041] 本発明の精製装置は、更に、結晶を融解する設備で得られる融解液を含む循環液の一部を抜き出して、槽における攪拌軸と軸受け部との間に流すための機構を含んでいてもよい。上記機構は、上記循環液の一部を、循環液の他の部分と分けて、槽に返送するために用いられる機構であればよく、例えば、化合物の結晶を、液圧式洗浄カラムから抜き出して加熱融解し、加熱融解して得られた融解液を含む循環液の一部を、該槽における該攪拌軸と該軸受け部との間に流すためのラインが挙げられる。

なお、本明細書中、上記循環液は、上記母液及び上記融解液からなるものといえる。

[0042] 本発明の精製装置が含む液圧式洗浄カラムは、その大きさは特に限定されないが、例えば、そのカラム内（結晶室内）の内径が30～2000mmで

あることが好ましい。またその高さが1500～15000mmであることが好ましい。

上記液圧式洗浄カラム内の結晶を含むスラリーを濾過するフィルターは、その大きさは特に限定されないが、例えば、その内径が10～30mmであることが好ましい。またその高さが20～300mmであることが好ましい。

上記フィルターは、例えば、円形の孔やスリット（切り込み）、矩形の孔が多数設けられたものが挙げられる。また、その形状は特に限定されないが、パイプと同様の形状、例えば円柱形状等が挙げられる。

フィルターの孔形状が円形である場合、その径は、結晶のサイズにより適宜調整すればよいが、例えば50～500 μ mであることが好ましい。また、その孔数としては特に限定はなく、例えば圧力損失等に応じて調整すればよい。

[0043] 上記フィルターに接続される、母液を抜き出すパイプは、上述したように、通常、フィルターの上側に配置される。

上記フィルターに接続される、母液を抜き出すパイプは、特に限定されないが、例えば工業的規模の液圧式洗浄カラムにおいては、液圧式洗浄カラム断面積1m²当たり50～350本のパイプが並列に接続されたものであることが好ましい。

[0044] 本発明の精製装置は、上記液圧式洗浄カラムの外壁面を加熱する機構を更に含んでいてもよい。

上記液圧式洗浄カラムの外壁面を加熱する機構としては、特に限定されないが、熱媒や、蒸気トレース、電気トレース、カラムの環境温度を調整する公知の加熱器等が挙げられ、例えば、熱媒等により上記液圧式洗浄カラムの一部を加熱して行うものであってもよいが、上記液圧式洗浄カラムの実質的に全体を加熱して行うもの（ジャケット式）であることが好ましい。

[0045] 上記加熱する機構が、例えばジャケット式である場合、その材質は、特に限定されず、金属（例えば、SUS、炭素鋼〔Carbon steel〕）

製であってもよく、樹脂製であってもよい。

上記ジャケットの外側には、更に、保温材やトレースなどを設置することも可能である。上記ジャケットの構造は、特に限定されない。

[0046] 上記ジャケット内部には、特に限定されないが、バッフル等、熱伝達を促進する構造が設けられていてもよい。

上記ジャケットの平均厚み（熱媒が流れる部分の空間の幅）は、例えば5～200mmであることが好ましい。

上記ジャケットの液圧式洗浄カラムの壁面を介した熱流束は、 $100\text{ W}/\text{m}^2$ 以上が好ましく、 $200\text{ W}/\text{m}^2$ 以上がより好ましく、 $500\text{ W}/\text{m}^2$ 以上が更に好ましい。

上記ジャケットの液圧式洗浄カラムの壁面を介した熱流束は、その上限値は特に限定されないが、通常は $4000\text{ W}/\text{m}^2$ 以下である。

また、上記化合物の融点と上記ジャケットに供給される熱媒の温度差は、 1°C 以上が好ましく、 2°C 以上がより好ましく、 5°C 以上が更に好ましい。またその上限値は特に限定されないが、通常は 20°C である。

上記ジャケットの側面壁に、サイトグラスやハンドホールを設けてもよい。その場合は、これらをカバーで覆うことができる。サイトグラスやハンドホールを設ける場合、その設置数に限定はない。

[0047] なお、上記熱媒としては、特に限定されず、水、不凍液、メタノール水（メタノール水溶液）、ガス、蒸気等が挙げられる。上記熱媒は、精製する化合物の凝固点等を考慮して適宜選択すればよい。

[0048] 後述するように、結晶を含むスラリーを液圧式洗浄カラムに供給するパイプや、パイプの先端に接続されていてもよい供給ノズル（スラリー供給口）は、その数は特に限定されず、1つでもよく、複数でもよい（図2a、図2b、図5では、結晶を含むスラリーを液圧式洗浄カラムに供給するパイプが、1つの場合を示している。）。

上記供給ノズルは、その先端に、スラリーを分散させる分散機構を有していてもよい。

上記液圧式洗浄カラムは、分散室や、中央押しのけ体（特表2005-509010号公報参照。）を更に含んでもよい。

[0049] <化合物の結晶を含むスラリーを、槽から抜き出し、液圧式洗浄カラムに供給するためのライン>

本発明の精製装置は、更に、化合物の結晶を含むスラリーを、槽から抜き出し、液圧式洗浄カラムに供給するためのラインを有する。該ラインは、例えば、槽における化合物の結晶を含むスラリーの抜き出し口から、液圧式洗浄カラムにおける結晶を含むスラリーの供給口まで延びるパイプ、並びに、必要に応じて、パイプの端部に接続される、槽における化合物の結晶を含むスラリーの抜き出し口を構成するノズル、及び、液圧式洗浄カラムにおける結晶を含むスラリーの供給口を構成するノズルから構成されるものとして行うことができる。結晶を含むスラリーの抜き出しには、例えばポンプを用いることができ、ポンプとしては、遠心ポンプ、ダイヤフラムポンプ、ロータリーポンプ等が好ましい。

上記ラインは、その数は特に限定されず、1つでもよく、複数でもよい（図2a、図2b、図5では、〔熟成〕槽から洗浄カラムへスラリーを送液するためのライン53が、1つの場合を示している。）。

上記液圧式洗浄カラムにおける結晶を含むスラリーの供給口を構成するノズルは、その先端に、スラリーを分散させる分散機構を有していてもよい。

[0050] <該液圧式洗浄カラムに供給される化合物の結晶を含むスラリー由来の母液及び／又は該結晶を融解した融解液を、該槽における該攪拌軸と該軸受け部との間に流すためのライン>

本発明の精製装置は、更に、該液圧式洗浄カラムに供給される化合物の結晶を含むスラリー由来の母液及び／又は該結晶を融解した融解液を、該槽における該攪拌軸と該軸受け部との間に流すためのラインを有する。

上記ラインとしては、例えば、化合物の結晶を含むスラリー由来の母液を、液圧式洗浄カラムから抜き出し、抜き出した母液の少なくとも一部を、槽における攪拌軸と軸受け部との間に流すためのライン、該化合物の結晶を、

液圧式洗浄カラムから抜き出して加熱融解し、加熱融解して得られた融解液を含む循環液の一部を、該槽における該攪拌軸と該軸受け部との間に流すためのラインが好適なものとして挙げられる。

化合物の結晶を含むスラリー由来の母液は、液圧式洗浄カラムに供給された化合物の結晶を含むスラリーから固形分を除いて得られるものであり、該化合物の結晶を含むスラリーから、例えば濾過、上澄み液の抜き出し等の方法で固形分を除いて得られるものとすることができるが、少なくとも濾過により固形分を除いて得られるものであることが好ましい。例えば、上述したように、フィルターを用いて結晶を含むスラリーを濾過し、該フィルターに接続されるパイプを用いて母液を抜き出すものとすることができる。

融解液を含む循環液は、上述したメルトループを循環するものである。この循環液をメルトループから抜き出して、該槽における該攪拌軸と該軸受け部との間に流すことができる。

[0051] 上記槽が熟成槽である場合、本発明の精製装置は、更に、上記熟成槽の前段としての晶析槽を含むものとすることができる。

本発明の精製装置が、上記晶析槽を更に含む場合、本発明の精製装置は、1つ又は複数の晶析槽を有することができる。本発明の精製装置が複数の晶析槽（1～N番の晶析槽）を有する場合、これら複数の晶析槽は、直列に接続されていることが好ましい。この場合、本発明の精製装置は、通常、所望により固液分離装置を介して、晶析槽から晶析槽へと化合物の結晶を含むスラリーを送液するためのラインを有する。また、この場合、本発明の精製装置は、少なくとも1つの晶析槽に、化合物を含む被精製液を供給するためのラインを有する。また、本発明の精製装置は、少なくともN番目の晶析槽に、化合物の結晶を含むスラリーを上記熟成槽に供給するためのラインを有することが好ましい。

本発明の精製装置が晶析槽及び熟成槽を含む場合、晶析槽及び熟成槽の少なくとも1つの槽が本発明の槽であればよい。

[0052] 本発明の精製装置は、更に、上記液圧式洗浄カラムから製品を搬出するた

めのラインを有することが好ましい。

本発明の精製装置は、更に、母液を、後段側の槽又は装置から、前段側の槽又は装置に返送するためのラインを有していてもよい。

また本発明の精製装置は、上記スラリーの送液量や、上記母液の返送量を制御する機構を更に含んでいてもよい。該制御機構としては、例えば、各種ラインに取り付けたバルブ等が挙げられる。

本発明の精製装置は、その他の精製装置に一般的に用いられる装置を適宜含んでいてもよい。

また本発明の精製装置は、結晶を含むスラリー等の凍結防止の観点から、槽やカラムの外壁面の全部又は一部を加熱するための機構を備えていてもよく、本発明の精製装置自体が、温調されたケーシングの中（大きくは建屋内等）にあってもよい。

[0053] 図1は、本発明の精製装置が有する槽の一例を側面側から見た断面模式図である。結晶を含むスラリーが、槽へスラリーを送液するライン52を介して、槽21内に供給される。次いで、槽21の攪拌機の攪拌軸を回転させることで、槽内の少なくとも一部が懸濁状態となり、懸濁部において、結晶を含むスラリーを一定時間保持でき、スラリー中の結晶を成長させることができる。その後、槽の底面付近から、槽から洗浄カラムへスラリーを送液するためのライン53を介して、結晶を含むスラリーを抜き出すことができる。

[0054] 図1に示す本発明の精製装置は、槽における攪拌軸と軸受け部との間に母液及び／又は融解液を流すためのライン14を備えており、このライン14を通して、軸受け部3内に母液及び／又は融解液を流すことができる。これにより、攪拌軸と軸受け部との間（軸受け部内）に結晶を含むスラリーが混入することを防止し、結晶による攪拌軸や軸受け部の摩耗を防ぐことができ、また、化合物が重合性物質の場合、該攪拌軸と該軸受け部との間で、摺動による重合・凍結を十分に防止することができ、安定して製品を得ることができる。

[0055] なお、図1に示すように、槽において、上澄部に設けた母液の抜き出し口

からライン 7 2 を介して母液を回収することも可能である。ここで、上澄部に仕切り板を設けることで、スラリーの供給口であるノズルと母液の抜き出し口とを隔てることができ、母液の抜き出し口に結晶が混入することを防止できる。更に、母液の抜き出し口を、堰部で覆うことができ、これによっても母液の抜き出し口に結晶が混入することを防止できる。

[0056] 図 2 a は、本発明の精製装置において、本発明を適用可能なラインの例を示す模式図である。結晶を含むスラリーは、槽 2 1 から抜き出され、槽から洗浄カラムへスラリーを送液するためのライン 5 3 を通って、液圧式洗浄カラム 4 1 内に供給される。液圧式洗浄カラム 4 1 内では、結晶が下方に移動して結晶ベッドが形成される。そしてカラムの下部で結晶ベッドの削り取り、循環液への懸濁、加熱融解が行われる。得られた融解液を含む循環液の一部は高純度の化合物 5 として搬出される。残りの循環液の一部（洗浄液）は液圧式洗浄カラム 4 1 に戻され、結晶ベッドと向流接触させて結晶が洗浄される。

また液圧式洗浄カラム 4 1 内に、該液圧式洗浄カラム 4 1 内の結晶を含むスラリーを濾過するフィルター、及び、該フィルターに接続される、母液を抜き出すパイプが設けられており、結晶を含むスラリーから母液を回収することができる。このようにして化合物の結晶を含むスラリー由来の母液の一部を、槽における攪拌軸と軸受け部との間に流すためのライン 7 6 を介して、槽 2 1 内の攪拌軸と軸受け部の間に供給する。すなわち、母液は、母液の抜き出し口から、ラインを介して抜き出され、その一部が、ライン 7 6 を介して、槽 2 1 における攪拌軸と軸受け部の間に供給される。なお、母液の残りは、抜き出した母液の一部を槽に天板側から返送するためのライン 7 5 や抜き出した母液の一部を再度液圧式洗浄カラム 4 1 に送液するライン 1 3 1 を介して回収され、再利用される。例えば、ライン 7 5 を通って返送された母液を、槽 2 1 の天板から、化合物の結晶を含むスラリーとともに槽 2 1 内に供給することができる。また、ライン 1 3 1 を通って送液された母液を、ライン 5 3 で送液されるスラリーと混合したうえで、液圧式洗浄カラム 4 1

の入口から液压式洗浄カラム 4 1 内に供給し、再利用することができる。このようにライン 1 3 1 を通って送液された母液を用いることで、液压式洗浄カラム 4 1 内部にスラリーを好適に供給することができる。このようにして化合物の精製が行われ、高純度の化合物が得られる。更に、母液の残りを、液压式洗浄カラム 4 1 の天板に設けられたノズルの凍結を防止するためのラインを介して、当該ノズルに供給することも可能である。

[0057] 上記軸受け部に供給される母液は、加熱した上で供給しても良い。加熱機構としては、上記軸受け部に供給される母液を移送するライン（ライン 7 6）の経路中に、母液を通過させて加熱する加熱機器が設けられた機構、及び／又は、上記母液を移送するラインを直接加熱し、該ラインを通過する母液を加熱する機構、これら機構を併用した機構が好適なものとして挙げられる。上記加熱機器としては、例えば、垂直多管式熱交換器、水平多管式熱交換器、二重管式熱交換器、スパイラル熱交換器、プレート熱交換器等が挙げられる。上記母液を移送するラインを直接加熱し、該ラインを通過する母液を加熱する機構としては、該ラインに例えば、電気ヒーター、蒸気トレース、温水トレース、蒸気ジャケット、温水ジャケット等を設置した機構が挙げられ、該ラインを直接加熱する範囲は全部であってもよいし、一部であってもよい。これにより、軸受け部内の凍結を防止することができる。

また上記軸受け部に供給される母液は、後段の液压式洗浄カラムから抜き出したものであることから、槽内の母液に比べて、純度が同等か高く、凍りやすい（凝固点が少し高い）ものである。したがって、母液を加熱した上で供給することが好ましい。

更に、重合性物質を精製する場合、上記軸受け部に供給される母液は、精製装置内の液压式洗浄カラムから抜き出したものであることから、通常、安定剤を含む。該母液は、重合を十分に防止することができる。

図示していないが、ライン 7 5、ライン 7 6、ライン 1 3 1、液压式洗浄カラムの天板に設けられたノズルの凍結を防止するためのラインに、ポンプを設けてもよいし、バルブやオリフィス、流量計を適宜設けることにより、

各ラインを流れる母液の量を適切に調整することができる。

[0058] なお、液圧式洗浄カラム41の底部の抜き出し口から、結晶を抜き出して加熱融解し、その少なくとも一部を製品5として利用することができる。また、残りを洗浄液として洗浄カラムに戻すことができる。所望により、結晶を抜き出して加熱融解し、一部を洗浄液として洗浄カラムに戻すラインを設けることができる。

[0059] 図2bは、本発明の精製装置において、本発明を適用可能なラインの他の例を示す模式図である。

図2bで示される精製装置は、化合物の結晶を含むスラリー由来の母液を、液圧式洗浄カラムの天板から抜き出し、抜き出した母液の一部を、槽における攪拌軸と軸受け部との間に流すためのライン76の代わりに、液圧式洗浄カラムの底部から結晶を抜き出して加熱融解して得られた液の一部を槽における攪拌軸と軸受け部との間に流すためのライン59を有する。このような精製装置を用いて液を槽における攪拌軸と軸受け部との間に流すことによっても、攪拌軸と軸受け部との間に結晶を含むスラリーが混入することを防止し、結晶による攪拌軸や軸受けの摩耗を防ぐことができ、また、化合物が重合性物質の場合、攪拌軸と軸受け部との間で、摺動による重合・凍結を十分に防止することができ、本発明の効果を発揮できる。

[0060] 上記加熱融解して得られた液は、更に、加熱した上で供給しても良い。加熱機構としては、上記加熱融解して得られた液の一部を槽における攪拌軸と軸受け部との間に流すためのライン（ライン59）の経路中に、上記加熱融解して得られた液を通過させて加熱する加熱機器が設けられた機構、及び／又は、上記加熱融解して得られた液を移送するラインを直接加熱し、該ラインを通過する液を加熱する機構、これら機構を併用した機構が好適なものとして挙げられる。上記加熱機器、加熱する機構は、上述した通りである。

また上記軸受け部に供給される、上記加熱融解して得られた液は、後段の液圧式洗浄カラムから抜き出したものであることから、槽内の母液に比べて、純度が同等か高く、凍りやすい（凝固点が少し高い）ものである。したが

って、液を加熱した上で供給することが好ましい。

[0061] 図3は、図1に示した槽が備える攪拌機の一部を側面側から見た模式図である。図3では、ライン14が、供給口22を通して、攪拌機の軸受け部の底面に接続されていることが示されている。なお、図3では、図1に示した軸受け部3についての、より具体的な一例を示している。

[0062] 図4は、図1に示した攪拌機の軸受け部を側面側から見た断面模式図である。ライン14を通った母液は、軸受け部3eの底面側からその内部に供給され、攪拌軸の先端部3dと軸受け部3eとの間に流すことができる。これにより、攪拌軸の先端部3dと軸受け部3eとの間の液の凍結を十分に防止できる。また、攪拌軸の先端部3dと軸受け部3eとの間の液が易重合性成分を含む場合は、その重合を十分に防止することもできる。これにより、軸受け部3eの内部が閉塞する等し、攪拌機が使用不能となることを十分に防止できる。また、攪拌軸の先端部3dと軸受け部3eとの間に結晶を含むスラリーが混入することを防止し、結晶による攪拌軸や軸受けの摩耗を防ぐことができる。以上より、長期間にわたって化合物をより安定的に得ることが可能となる。

[0063] 図5は、本発明の精製装置において、本発明を適用可能なラインの他の例を示す模式図である。図5に示した精製装置は、晶析装置として1つの晶析槽と1つの熟成槽とを有する装置であり、晶析槽に1つ上流の槽である熟成槽から直接母液を送液するラインが設置され、最下流の槽である晶析槽から残渣（母液）を直接排出するラインが設置されている。

精製装置に供される化合物の溶液1aは熟成槽21に導入される。また、冷却機構が設置された晶析槽11で冷却され、析出した結晶を含むスラリーはライン51で固液分離装置31に送られる。固液分離装置31ではスラリーが母液と濃縮された結晶スラリーとに分離され、濃縮された結晶スラリーはライン52で隣の熟成槽21に送られ、母液はライン61で晶析槽11に戻される。また晶析槽11からライン71で精製装置外へ残渣が排出され、晶析槽11の液面が調整される。熟成槽21で結晶を成長させた後、結晶を

含むスラリーはライン 5 3 で液压式洗浄カラム 4 1 に送液される。また熟成槽 2 1 の液面調整のため、熟成槽 2 1 から晶析槽 1 1 へライン 7 2 を通して母液が直接送られる。

[0064] なお、本発明の精製装置は、その使用状態に限定されるものではなく、上述した構成を有し、本発明の精製装置の使用時に、上記母液及び／又は融解液を、槽における上記攪拌軸と上記軸受け部との間に流すことができるものであればよい。

[0065] (本発明の化合物の製造方法)

本発明は、化合物の製造方法であって、該製造方法は、化合物の結晶を含むスラリーを、攪拌軸及び軸受け部を有する攪拌機を備える槽に供給する工程、該化合物の結晶を含むスラリーを、該槽から抜き出し、液压式洗浄カラムに供給する工程、及び、該液压式洗浄カラムに供給される化合物の結晶を含むスラリー由来の母液及び／又は該結晶を融解した融解液を、該槽における該攪拌軸と該軸受け部との間に流す工程を含み、該槽は、化合物の結晶を含むスラリーを生成する晶析槽及び／又は槽内で化合物の結晶を懸濁状態で保持できる熟成槽であることを特徴とする化合物の製造方法でもある。

[0066] 本発明の化合物の製造方法において、上記槽に供給する工程、上記液压式洗浄カラムに供給する工程、及び、上記流す工程は、基本的には精製対象に対してこの順で行われるものである（例えば、図 2 a に示すように、結晶を含むスラリーが、槽へスラリーを送液するライン 5 2 を介して、槽 2 1 内に供給される。次いで、化合物の結晶を含むスラリーを、例えば槽の底面付近の抜き出し口から抜き出し、ライン 5 3 を介して、液压式洗浄カラム 4 1 に供給する。その後、該化合物の結晶を含むスラリー由来の母液を、液压式洗浄カラムの天板付近の母液の抜き出し口から抜き出し、抜き出した母液の少なくとも一部を、ライン 7 6 を介して、槽における攪拌軸と軸受け部との間に流す。）。以下では、上記槽に供給する工程、上記液压式洗浄カラムに供給する工程、上記流す工程について順に説明し、次いで、槽内で攪拌する工程、槽から母液を抜き出す工程、その他の工程について説明する。なお、連

続式の精製工程では、通常、精製装置全体として見たときに各工程が同時に行われることになる。

本明細書中、「化合物」は、本発明の製造方法で得られる化合物をいい、本発明の製造方法における原料や副生成物、溶媒を言うものではない。「化合物」は、「目的化合物」又は「目的物」と言い換えることができる。本明細書中、「不純物」は、「化合物」以外の成分、例えば、原料や副生成物、溶媒を言う。

[0067] <槽に供給する工程>

上記槽に供給する工程において、化合物の結晶を含むスラリーを、攪拌軸及び軸受け部を有する攪拌機を備える槽に供給する。該結晶を含むスラリーは、化合物の結晶と母液の懸濁液であり、言い換えると、槽に供給する化合物の結晶を含むスラリーの液部分が母液である。なお、該結晶を含むスラリーは、後述するように、化合物含有溶液（例えば、（メタ）アクリル酸水溶液又は粗（メタ）アクリル酸溶液）において結晶を生成させて得ることができるが、当該化合物含有溶液は、自ら調製したものであってもよく、他所から調達したものであってもよい。また化合物含有溶液及び次工程（洗浄カラム等）から返送される母液などを、槽（例えば、熟成槽）に供給してもよい。なお、ここで言う化合物含有溶液には、粗製化合物も含まれる。

[0068] 上記槽に供給する工程では、化合物の結晶を含むスラリーを、槽の天板付近から槽に供給することが好ましい。例えば、化合物の結晶を含むスラリーを、槽の天板に設けられたパイプ又はノズルを介して槽に供給することが好ましい。

[0069] 上記槽に供給される結晶を含むスラリー中、結晶の質量割合は、より安定して製品を得る観点からは、25質量%以上であることが好ましく、30質量%以上であることがより好ましく、35質量%以上であることが更に好ましい。

上記結晶の質量割合は、スラリーの流動性を優れたものとし、配管閉塞のリスクをより一層小さいものとする観点からは、55質量%以下であること

が好ましく、50質量%以下であることがより好ましく、45質量%以下であることが更に好ましい。

上記槽に供給される結晶を含むスラリーは、例えば、固液分離装置にて濃縮したものをを用いることができる。

なお、本明細書中、単に「槽に供給される結晶を含むスラリー」という場合、当該槽に供給される結晶を含むスラリーとは、槽に供給される直前の結晶を含むスラリーをいい、例えば、結晶を含むスラリーを槽に供給するためのパイプ又はノズル内の結晶を含むスラリーを言う。

[0070] 上記槽に供給される結晶を含むスラリーは、その母液中に上記化合物を含むことが好ましい。上記母液としては、上記化合物、上記化合物の水溶液等が挙げられる。なお、上記母液は、通常、上記化合物、水以外の不純物を含むものである。

本発明の化合物の製造方法において、上記槽に供給される結晶を含むスラリーは、その母液中の上記化合物の純度（質量割合）が99質量%以下であることが好ましい。

上記母液中の化合物の質量割合は、80質量%以上であることが好ましい。

[0071] 本発明の製造方法において、上記化合物は、反応性の二重結合を有する易重合性化合物であることが好ましい。この場合でも、上記軸受け部内で化合物の重合を十分に防止できる。

中でも、本発明の製造方法において、上記化合物は、不飽和カルボン酸であることがより好ましく、（メタ）アクリル酸であることが更に好ましく、アクリル酸であることが特に好ましい。本明細書中、（メタ）アクリル酸は、アクリル酸及び／又はメタクリル酸である。

[0072] 上記槽に供給する工程において、結晶を含むスラリーの供給速度は、特に限定されないが、工業的規模の槽においては、例えば $0.2 \times 10^3 \sim 4.0 \times 10^5 \text{ kg/h}$ である。

[0073] 上記槽に供給する工程において、結晶を含むスラリーの供給温度は、上記

化合物の融点等に応じて適宜設定することができ、概ね該化合物の純物質の融点に対して、好ましくは $-1 \sim -15^{\circ}\text{C}$ 、より好ましくは $-1.5 \sim -13.5^{\circ}\text{C}$ 、更に好ましくは $-3.5 \sim -12.5^{\circ}\text{C}$ 、特に好ましくは $-5 \sim -11.5^{\circ}\text{C}$ の範囲内で適宜調整することができる。

例えば上記化合物が（メタ）アクリル酸である場合は、結晶を含むスラリーの供給温度は、 $0 \sim 12^{\circ}\text{C}$ であることが好ましく、 $1 \sim 10^{\circ}\text{C}$ であることがより好ましく、 $2 \sim 8.5^{\circ}\text{C}$ であることが更に好ましい。

上記結晶を含むスラリーの供給温度は、上記槽に供給される直前の結晶を含むスラリー（例えば、結晶を含むスラリーを槽に供給するパイプ又はノズル内の、結晶を含むスラリー）中の母液の温度である。

[0074] なお、上記槽内は、加圧下で運転されてもよく、常圧下で運転されてもよく、減圧下で運転されてもよいが、母液を液圧式洗浄カラムから槽の上記軸受け部に好適に供給する観点から、液圧式洗浄カラム内の圧力よりも低い圧力で運転されることが好ましく、例えば、少なくとも 0.01MPa 低い圧力で運転されることが好ましい。

[0075] <液圧式洗浄カラムに供給する工程>

上記液圧式洗浄カラムに供給する工程において、化合物の結晶を含むスラリーを、槽から抜き出し、液圧式洗浄カラムに供給する。

[0076] 上記液圧式洗浄カラムに供給する工程では、先ず、化合物の結晶を含むスラリーを、槽から抜き出す。化合物の結晶を含むスラリーは、槽の底面付近から抜き出すことが好ましい。

次いで、抜き出した化合物の結晶を含むスラリーが、液圧式洗浄カラムに供給される。上記液圧式洗浄カラムに供給する工程において、化合物の結晶を含むスラリーを、液圧式洗浄カラムの天板又は天板付近から液圧式洗浄カラムに供給することが好ましい。例えば、化合物の結晶を含むスラリーを、液圧式洗浄カラムの天板に設けられたパイプ又はノズルを介して液圧式洗浄カラムに供給することが好ましい。

上記液圧式洗浄カラムに供給する工程は、遠心ポンプ、ダイヤフラムポン

プ、ロータリーポンプ等のポンプを用いて好適に行うことができる。

[0077] 上記液圧式洗浄カラムに供給される結晶を含むスラリー中、結晶の質量割合は、1質量%以上であることが好ましく、3質量%以上であることがより好ましく、5質量%以上であることが更に好ましい。

上記結晶の質量割合は、50質量%以下であることが好ましく、40質量%以下であることがより好ましく、30質量%以下であることが更に好ましく、20質量%以下であることが特に好ましい。

なお、本明細書中、単に「液圧式洗浄カラムに供給される結晶を含むスラリー」という場合、当該液圧式洗浄カラムに供給される結晶を含むスラリーとは、液圧式洗浄カラムに供給される直前の結晶を含むスラリーをいい、例えば、結晶を含むスラリーを液圧式洗浄カラムに供給するパイプ又はノズル内の結晶を含むスラリーをいう。

[0078] 上記液圧式洗浄カラムに供給される結晶を含むスラリーは、上記槽に供給される結晶を含むスラリーと同様に、その母液中に上記化合物を含むことが好ましい。上記母液としては、上記化合物、上記化合物の水溶液等が挙げられる。なお、上記母液は、通常、上記化合物、水以外の不純物を含むものである。

上記母液中の、化合物の純度、水の質量割合、化合物、水以外の不純物の質量割合の好ましい範囲は、後述する流す工程における母液中の化合物の純度、水の質量割合、化合物、水以外の不純物の質量割合の好ましい範囲と同様である。

[0079] 上記液圧式洗浄カラムに供給する工程において、結晶を含むスラリーの供給速度は、特に限定されないが、工業的規模の液圧式洗浄カラムにおいては、例えば $0.2 \times 10^3 \sim 4.0 \times 10^5 \text{ kg/h}$ である。

[0080] 上記液圧式洗浄カラムに供給する工程において、結晶を含むスラリーの供給温度は、上記化合物の融点等に応じて適宜設定することができるが、例えば $0 \sim 80^\circ\text{C}$ の範囲内で適宜調整することができる。

例えば上記化合物が（メタ）アクリル酸である場合は、結晶を含むスラリー

一の供給温度は、5～13℃であることが好ましく、6～12℃であることがより好ましい。

上記結晶を含むスラリーの供給温度は、上記液圧式洗浄カラムに供給される直前の結晶を含むスラリー（例えば、結晶を含むスラリーを液圧式洗浄カラムに供給するパイプ又はノズル内の、結晶を含むスラリー）中の母液の温度である。

[0081] <流す工程>

上記流す工程は、上記液圧式洗浄カラムに供給される化合物の結晶を含むスラリー由来の母液及び／又は該結晶を融解した融解液を、該槽における該攪拌軸と該軸受け部との間に流すものであり、例えば、上記化合物の結晶を含むスラリー由来の母液を、液圧式洗浄カラムから抜き出し、抜き出した母液の少なくとも一部を、上記槽における上記攪拌軸と上記軸受け部との間に流すか、又は、該化合物の結晶を、液圧式洗浄カラムから抜き出して加熱融解し、加熱融解して得られた融解液を含む循環液の一部を更に抜き出して、該槽における該攪拌軸と該軸受け部との間に流すことが好ましい。

[0082] 上記流す工程では、先ず、上記化合物の結晶を含むスラリー由来の母液及び／又は該結晶を融解した融解液を、液圧式洗浄カラムから抜き出す。ここで、母液としては、液圧式洗浄カラム内の結晶を含むスラリーから、濾過、上澄み液の抜き出し等の方法で固形分を除いて得た母液であることが好ましく、中でも、該スラリーを、フィルターを用いて濾過し、該フィルターに接続されるパイプを用いて抜き出した母液であることがより好ましい。

[0083] 上記フィルターは、その材質に特に限定はなく、例えばステンレス等の金属から構成されるもの、ポリテトラフルオロエチレン（PTFE）、ポリエーテルエーテルケトン（PEEK）等の樹脂から構成されるものとすることができ、後者が好ましい。また、上記パイプは、その材質に特に限定はなく、金属又は合金から構成されていることが好ましい。

[0084] なお、母液を抜き出す工程において抜き出した母液とは、上記母液を抜き出す工程において抜き出された直後のパイプ又はノズル内の母液であり、例

えば、上記フィルターを通過直後のパイプ内の母液である。

[0085] 液圧式洗浄カラム内は、基本的に加圧下（好ましくは、0.05～1.0 MPa Gの範囲内）で運転される。この圧力を利用して、抜き出した母液及び／又は融解液を好適に槽の上記軸受け部内に供給することができる。なお、必要に応じてポンプ等を用いても構わない。

[0086] 上記流す工程では、次いで、抜き出した母液及び／又は融解液の少なくとも一部を、上記槽における上記攪拌軸と上記軸受け部との間に流す。なお、抜き出した母液の一部を、上記槽における上記攪拌軸と上記軸受け部との間に流す場合、抜き出した母液の残りを再利用することが好ましい。例えば、抜き出した母液の残りを、液圧式洗浄カラムから取り出した母液を槽に天板側から返送するためのライン75や液圧式洗浄カラムから取り出した母液を再度液圧式洗浄カラムに送液するライン131を介して回収し、再利用することができる。例えば、ライン75を通して返送された母液を、槽の天板から、化合物の結晶を含むスラリーとともに槽内に供給することができる。また、ライン131を通った母液を、ライン53で送液されるスラリーと混合したうえで、液圧式洗浄カラム入口から液圧式洗浄カラム内に供給し、再利用することができる。このようにすることで、液圧式洗浄カラム内部にスラリーを好適に供給することができる。このようにして化合物の精製が行われ、高純度の化合物が得られる。更に、母液の残りを、洗浄カラムの天板に設けられたノズルの凍結を防止するためのラインを介して、当該ノズルに供給することも可能である。

また抜き出した融解液を含む循環液の一部を、上記槽における上記攪拌軸と上記軸受け部との間に流す場合、循環液の残りを、製品として取り出したり、洗浄液として洗浄カラムに戻すことができる。

上記母液及び／又は融解液は、実質的に結晶を含まないので、攪拌軸、軸受け部の摩耗を十分に防止することができ、フラッシング液として適している。また、当該母液及び／又は融解液は、槽内の母液に比べて、純度が同等か高いので、品質への悪影響を十分に防止できる（例えば水を攪拌軸と軸受

けとの間に流すと、不純物が増加してしまう)。更に、このような母液及び／又は融解液は、槽内の温度と比べて凝固点が高いので、凍結しやすい。そして、当該母液及び／又は融解液は、化合物が重合性物質の場合、通常、安定剤を含み、重合しにくい。

本発明の精製装置の使用時において、上記母液及び／又は融解液は、上記軸受け部内に継続的に供給されるものであってもよく、断続的に供給されるものであってもよい。

[0087] 上記槽における上記攪拌軸と上記軸受け部との間に流すために用いる母液は、質量比で、液圧式洗浄カラムから抜き出した母液の $1/3$ 以下であることが好ましく、 $1/5$ 以下であることがより好ましく、 $1/7$ 以下であることが更に好ましい。

また上記槽における上記攪拌軸と上記軸受け部との間に流すために用いる母液は、質量比で、液圧式洗浄カラムから抜き出した母液の $1/10000$ 以上であることが好ましく、 $1/8000$ 以上であることがより好ましく、 $1/5000$ 以上であることが更に好ましい。

[0088] 上記流す工程は、軸受け部の底部又は側面部等に設けられた開口部から母液及び／又は融解液を流し、攪拌軸と軸受け部との間に液を流すことでおこなうことができる。中でも、上記流す工程は、軸受け部の底部に設けられた開口部から母液及び／又は融解液を流すことが好ましい。

[0089] 上記流す工程において、母液及び／又は融解液の軸受け部への供給速度は、特に限定されないが、工業的規模の槽においては、例えば $50 \sim 10000 \text{ kg/h}$ である。

上記流す工程において、攪拌軸と軸受け部の間に流す母液及び／又は融解液の線速は、 $0.01 \sim 30 \text{ m/s}$ の範囲内であることが好ましく、 $0.1 \sim 10 \text{ m/s}$ の範囲内であることがより好ましい。

上記線速は、槽内の、母液及び／又は融解液を軸受け部に供給するラインを流れる母液及び／又は融解液の体積流量を流量計で測定し、当該ラインの攪拌軸と軸受け部の間において母液及び／又は融解液が流れる断面積で除す

ることで算出することができる。

上記流す工程において、攪拌軸と軸受け部の間に流す母液及び／又は融解液の流量は、 $0.001 \sim 20 \text{ m}^3/\text{h}$ の範囲内であることが好ましく、 $0.1 \sim 3 \text{ m}^3/\text{h}$ の範囲内であることがより好ましい。

上記流量は、上述した母液及び／又は融解液を軸受け部に供給するラインを流れる母液及び／又は融解液の体積流量であり、流量計で測定される。

[0090] 上記流す工程において、母液及び／又は融解液の軸受け部への供給温度は、上記化合物の融点等に応じて適宜設定することができるが、例えば $0 \sim 80^\circ\text{C}$ の範囲内で適宜調整することができる。

例えば上記化合物が（メタ）アクリル酸である場合は、母液及び／又は融解液の軸受け部への供給温度は、 $5 \sim 13^\circ\text{C}$ であることが好ましく、 $6 \sim 12^\circ\text{C}$ であることがより好ましい。

[0091] 上記母液は、上述したように、通常、上記化合物を含む。上記母液としては、上記化合物が融解した液、上記化合物の水溶液等が挙げられる。なお、上記母液は、通常、上記化合物、水以外の不純物を含むものである。

本発明の化合物の製造方法において、上記母液中の上記化合物の純度（質量割合）が 99 質量％以下であることが好ましく、 98 質量％以下であることがより好ましく、 97 質量％以下であることが更に好ましく、 96 質量％以下であることが特に好ましい。

上記母液中の化合物の質量割合は、 85 質量％以上であることが好ましく、 88 質量％以上であることがより好ましく、 90 質量％以上であることが更に好ましい。

[0092] 上記母液中、水の質量割合は、 0.1 質量％以上であることがより好ましく、 0.5 質量％以上であることがより好ましく、 1 質量％以上であることが更に好ましい。

上記母液中、水の質量割合は、 8 質量％以下であることが好ましく、 6 質量％以下であることがより好ましく、 4 質量％以下であることが更に好ましい。

[0093] 上記母液中、上記化合物、水以外の不純物の質量割合は、0.1質量%以上であることが好ましく、0.4質量%以上であることがより好ましく、0.8質量%以上であることが更に好ましい。

上記母液中、上記化合物、水以外の不純物の質量割合は、8質量%以下であることが好ましく、6質量%以下であることがより好ましく、4質量%以下であることが更に好ましい。

[0094] 上記化合物が（メタ）アクリル酸である場合、上記化合物、水以外の不純物としては、例えば酢酸、フルフラール等が挙げられる。

この場合、上記母液中、酢酸の質量割合は、0.1質量%以上であることが好ましく、0.3質量%以上であることがより好ましく、0.7質量%以上であることが更に好ましい。

上記母液中、酢酸の質量割合は、8質量%以下であることが好ましく、6質量%以下であることがより好ましく、4質量%以下であることが更に好ましい。

[0095] 上記化合物が（メタ）アクリル酸である場合、上記母液中、フルフラールの質量割合は、0.01質量%以上であることがより好ましく、0.05質量%以上であることがより好ましく、0.1質量%以上であることが更に好ましい。

上記母液中、フルフラールの質量割合は、2質量%以下であることが好ましく、1質量%以下であることがより好ましく、0.5質量%以下であることが更に好ましい。

上記母液は、上記軸受け部に供給される直前の母液（例えば、槽内の、母液を軸受け部に供給するライン〔パイプ〕内の、母液）である。

[0096] <槽内で攪拌する工程>

本発明の製造方法は、化合物の結晶を含むスラリーを、槽内で攪拌する工程を含んでも良い。

上記攪拌する工程では、通常、槽が備える攪拌機を用いて結晶を含むスラリーを攪拌する。

上記攪拌する工程において、攪拌機の回転数は、5～500rpmの範囲内であることが好ましく、10～300rpmの範囲内であることがより好ましい。

攪拌は、断続的なものであってもよいが、上記槽の使用、基本的に継続して行われるものであることが好ましい。

[0097] <槽から母液を抜き出す工程>

本発明の製造方法は、槽の上澄部の母液を抜き出す工程を含んでいてもよい。

抜き出した母液は、リサイクルして再利用することができる。抜き出した母液を、例えば前段の装置（例えば、熟成槽に対する晶析槽）に供給して再利用することで、上記化合物の品質を更に向上することができる。

上記母液を抜き出す工程は、ポンプ等を用いて行っても構わない。

[0098] <結晶を含むスラリーを得る工程>

本発明の製造方法は、化合物含有溶液から化合物の結晶を含むスラリーを得る工程を更に含むことが好ましい。

化合物含有溶液は、（メタ）アクリル酸水溶液又は粗（メタ）アクリル酸溶液であることが好ましい。（メタ）アクリル酸水溶液は、（メタ）アクリル酸が水に溶解した溶液をいう。粗（メタ）アクリル酸溶液は、（メタ）アクリル酸からなる溶液であって、（メタ）アクリル酸製造時の副生成物等の不純物を含むものをいう。これらは例えば、プロピレン、イソブチレンの気相酸化反応により得られた反応生成物である化合物のガスを、吸収塔で捕集および必要に応じて蒸留して得ることができるが、自ら合成して得たものに限定されず、他所から調達されたものであってもよい。（メタ）アクリル酸水溶液又は粗（メタ）アクリル酸溶液に対して、例えば冷却を行い、（メタ）アクリル酸の結晶を含むスラリーを得ることができる。

[0099] なお、上記不純物としては、例えば、プロピオン酸、酢酸、マレイン酸、安息香酸、アクリル酸ダイマー等の酸類、アクロレイン、フルフラール、ホルムアルデヒド、グリオキサール等のアルデヒド類、アセトン、プロトアネ

モニン等が挙げられる。その他、トルエン、メチルイソブチルケトン等の溶媒が含まれていることがある。

本発明の製造方法により、化合物含有溶液に含まれる不純物を十分に除去することができる。

[0100] <化合物含有溶液を得る工程>

本発明の製造方法において、上記製造方法は、原料から化合物含有溶液を得る工程を更に含むことが好ましい。

[0101] 上記化合物含有溶液を得る工程については、化合物含有溶液が得られる限り特に限定されないが、上記化合物が（メタ）アクリル酸である場合、例えば、特開2007-182437号公報（特許文献1）に記載のアクリル酸の合成工程、アクリル酸の捕集工程等により好適に行うことができる。

本発明の化合物の製造方法において、上記（メタ）アクリル酸は、プロパン、プロピレン、アクロレイン、イソブテン、メタクロレイン、酢酸、乳酸、イソプロパノール、1,3-プロパンジオール、グリセロール及び3-ヒドロキシプロピオン酸からなる群より選択される少なくとも1種を原料とすることが好ましい。また上記（メタ）アクリル酸及び／又は原料は、再生可能な原料から誘導され、バイオベースの（メタ）アクリル酸を生成しても良い。

[0102] なお、上記化合物含有溶液を得る工程では、基本的に、副生成物等の不純物が生じる。例えば、上記化合物が（メタ）アクリル酸である場合、水やプロピオン酸、酢酸、マレイン酸、安息香酸、アクリル酸ダイマー等の酸類、アクロレイン、フルフラール、ホルムアルデヒド、グリオキサール等のアルデヒド類、アセトン、メチルイソブチルケトン、トルエン、プロトアネモニン等が不純物として生じるが、本発明の製造方法に係る槽による精製等により、不純物の分離効率を優れたものとして、製品を効率よく得ることができる。

[0103] （化合物の精製方法）

本発明はまた、化合物の精製方法であって、該精製方法は、化合物の結晶

を含むスラリーを、攪拌軸及び軸受け部を有する攪拌機を備える槽に供給する工程、該化合物の結晶を含むスラリーを、該槽から抜き出し、液圧式洗浄カラムに供給する工程、及び、該液圧式洗浄カラムに供給される化合物の結晶を含むスラリー由来の母液及び／又は該結晶を融解した融解液を、該槽における該攪拌軸と該軸受け部との間に流す工程を含み、該槽は、化合物の結晶を含むスラリーを生成する晶析槽及び／又は槽内で化合物の結晶を懸濁状態で保持できる熟成槽であることを特徴とする化合物の精製方法でもある。

[0104] 本発明の精製方法により、化合物を効率よく精製することができる。

本発明の精製方法における好ましい形態は、上述した本発明の製造方法における好ましい形態と同様である。

実施例

[0105] 以下、実施例を挙げて本発明をより具体的に説明するが、本発明はもとより下記の実施例により制限を受けるものではなく、前・後記の趣旨に適合し得る範囲で適当に変更を加えて実施することも可能であり、それらはいずれも本発明の技術的範囲に包含される。

なお、以下ことわりのない場合、「％」は「質量％」を、「部」は「質量部」をそれぞれ示すものとする。

[0106] (ガスクロマトグラフィー・液体クロマトグラフィーの測定機器)

ガスクロマトグラフィー：島津製作所製GC-2014

液体クロマトグラフィー：島津製作所製LC-20AD HPLCユニットを用いて、酢酸、フルフラールの測定を行った。

[0107] (アクリル酸水溶液の入手方法)

国際公開第2010/032665号に記載の方法に従って、プロピレンを接触気相酸化してアクリル酸含有ガスを得、得られたアクリル酸含有ガスを吸収塔で処理することにより、アクリル酸水溶液を得た。

[0108] (供給スラリーの入手方法)

晶析槽に、アクリル酸水溶液を供給した。晶析槽の周壁に備えられたジャケットに冷媒を供給し、間接的に冷却することによって、晶析槽の内面に付

着した結晶を、晶析槽の内部に備えられたスクレーパで掻き取り、結晶を含むスラリー（供給スラリー）を調製した。

[0109]（精製装置）

精製装置として、以下の設備を含んで構成される、図2a、図3、図4で示した精製装置（又はその一部）と同様の精製装置を用いた。

熟成槽21：内径5000mm、内部高さ10000mm

攪拌機：攪拌軸3c（軸径135mm、軸長さ10000mm）、攪拌翼3b（攪拌翼長さ1425mm、2段）、及び、軸受け部3（図4に示したように、攪拌軸の先端部3dを覆う底面部及び側面部から構成され、上面は覆われていない。内径135.4mm、内部の高さ約150mm）から構成される。攪拌軸と軸受け部3側面部との間の距離0.2mm

液圧式洗浄カラム41

熟成槽21へスラリーを送液するライン52

熟成槽21から液圧式洗浄カラム41へスラリーを送液するためのライン53

上澄部から母液を抜き出すためのライン72

抜き出した母液の一部を熟成槽21に天板側から返送するためのライン75

抜き出した母液の一部を、熟成槽21における攪拌軸3cと軸受け部3との間に流すためのライン76

抜き出した母液の一部を再度液圧式洗浄カラム41に送液するライン131

[0110]（実施例1）

熟成槽21の天板から、アクリル酸の結晶を含むスラリーを供給し、攪拌機を用いてスラリーを攪拌し、熟成槽21内を懸濁状態で保持しながら結晶を成長させた。

ここで、液圧式洗浄カラム41に供給される化合物の結晶を含むスラリー由来の母液を、ライン76を通して、熟成槽21における攪拌軸の先端部3

dと軸受け部3 eとの間に、流量0.3 m³/h（質量比で液圧式洗浄カラムから抜き出した母液の1/400）、線速1.0 m/s、温度11℃で流した。攪拌軸の先端部3 dと軸受け部3 eとの間に流す母液の組成は、アクリル酸94.7重量%、酢酸1.8重量%、フルフラール0.1重量%であった。

結果、攪拌機は、停止することなく正常に作動し続けた。

[0111]（比較例1）

母液を、熟成槽における攪拌軸と軸受け部との間に流さなかった以外は、実施例1と同様にして、アクリル酸の結晶を含むスラリーを熟成槽に供給し、結晶を成長させた。

結果、軸受け部の重合により、攪拌機が停止し、熟成槽内の均一な懸濁状態が失われ、全体装置の停止に至った。

符号の説明

- [0112] 1 a : 化合物の溶液
3 : 軸受け部
3 b : 攪拌翼
3 c : 攪拌軸
3 d : 攪拌軸の先端部
3 e : 軸受け部
3 f : 軸受け部の台座
5 : 製品
1 1 : 晶析槽
1 4 : （熟成）槽における攪拌軸と軸受け部との間に母液及び／又は融解液を流すためのライン
2 1 : （熟成）槽
2 2 : 供給口
3 1 : 固液分離装置
4 1 : 液圧式洗浄カラム

5 1、6 1、7 1 : ライン

5 2 : (熟成) 槽へスラリーを送液するライン

5 3 : (熟成) 槽から洗浄カラムへスラリーを送液するためのライン

5 9 : 液圧式洗浄カラムの底部から結晶を抜き出して加熱融解して得られた液の一部を (熟成) 槽における攪拌軸と軸受け部との間に流すためのライン

7 2 : 上澄部から母液を抜き出すためのライン

7 5 : 抜き出した母液の一部を (熟成) 槽に天板側から返送するためのライン

7 6 : 抜き出した母液の一部を、(熟成) 槽における攪拌軸と軸受け部との間に流すためのライン

1 3 1 : 抜き出した母液の一部を再度液圧式洗浄カラムに送液するライン

請求の範囲

[請求項1] 精製装置に用いられる槽と、液圧式洗浄カラムとを有する化合物の精製装置であって、

該槽は、化合物の結晶を含むスラリーを生成する晶析槽及び／又は槽内で化合物の結晶を懸濁状態で保持できる熟成槽であり、攪拌軸及び軸受け部を有する攪拌機を備え、

該精製装置は、更に、化合物の結晶を含むスラリーを、該槽から抜き出し、液圧式洗浄カラムに供給するためのライン、及び、

該液圧式洗浄カラムに供給される化合物の結晶を含むスラリー由来の母液及び／又は該結晶を融解した融解液を、該槽における該攪拌軸と該軸受け部との間に流すためのラインを有することを特徴とする精製装置。

[請求項2] 化合物の製造方法であって、

該製造方法は、化合物の結晶を含むスラリーを、攪拌軸及び軸受け部を有する攪拌機を備える槽に供給する工程、

該化合物の結晶を含むスラリーを、該槽から抜き出し、液圧式洗浄カラムに供給する工程、及び、

該液圧式洗浄カラムに供給される化合物の結晶を含むスラリー由来の母液及び／又は該結晶を融解した融解液を、該槽における該攪拌軸と該軸受け部との間に流す工程を含み、

該槽は、化合物の結晶を含むスラリーを生成する晶析槽及び／又は槽内で化合物の結晶を懸濁状態で保持できる熟成槽であることを特徴とする化合物の製造方法。

[請求項3] 前記化合物は、（メタ）アクリル酸であることを特徴とする請求項2に記載の化合物の製造方法。

[請求項4] 前記（メタ）アクリル酸は、プロパン、プロピレン、アクロレイン、イソブテン、メタクロレイン、酢酸、乳酸、イソプロパノール、1，3－プロパンジオール、グリセロール及び3－ヒドロキシプロピオ

ン酸からなる群より選択される少なくとも1種を原料とすることを特徴とする請求項3に記載の化合物の製造方法。

[請求項5]

化合物の精製方法であって、

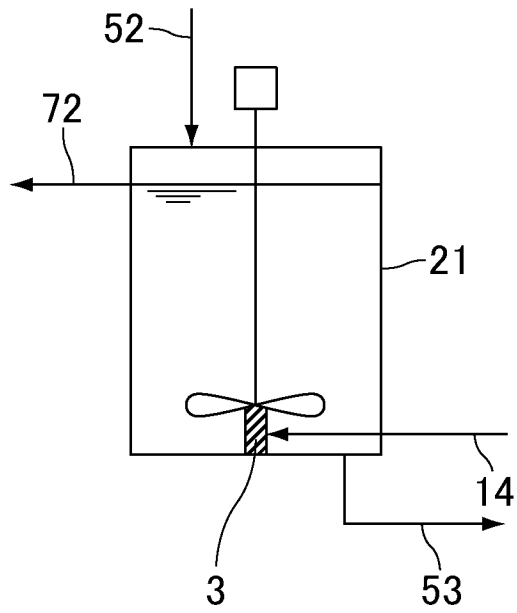
該精製方法は、化合物の結晶を含むスラリーを、攪拌軸及び軸受け部を有する攪拌機を備える槽に供給する工程、

該化合物の結晶を含むスラリーを、該槽から抜き出し、液圧式洗浄カラムに供給する工程、及び、

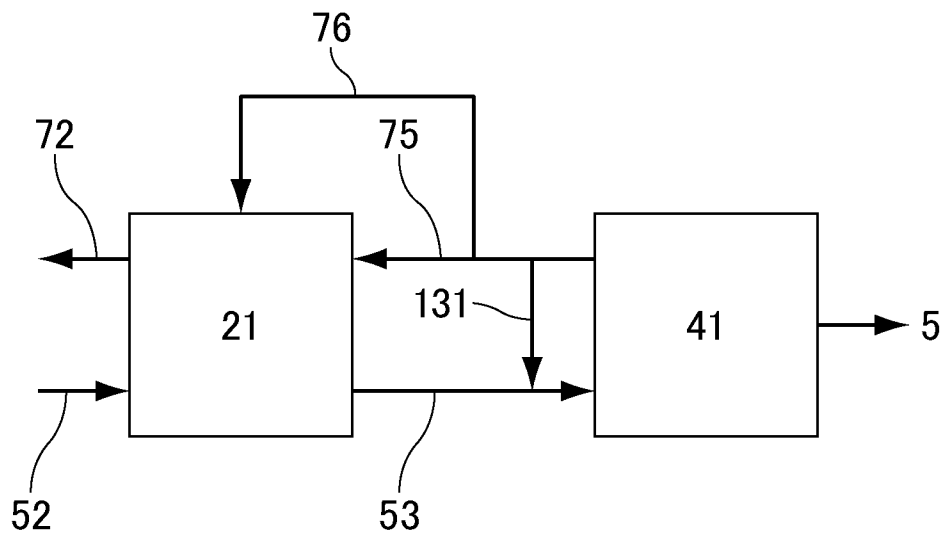
該液圧式洗浄カラムに供給される化合物の結晶を含むスラリー由来の母液及び／又は該結晶を融解した融解液を、該槽における該攪拌軸と該軸受け部との間に流す工程を含み、

該槽は、化合物の結晶を含むスラリーを生成する晶析槽及び／又は槽内で化合物の結晶を懸濁状態で保持できる熟成槽であることを特徴とする化合物の精製方法。

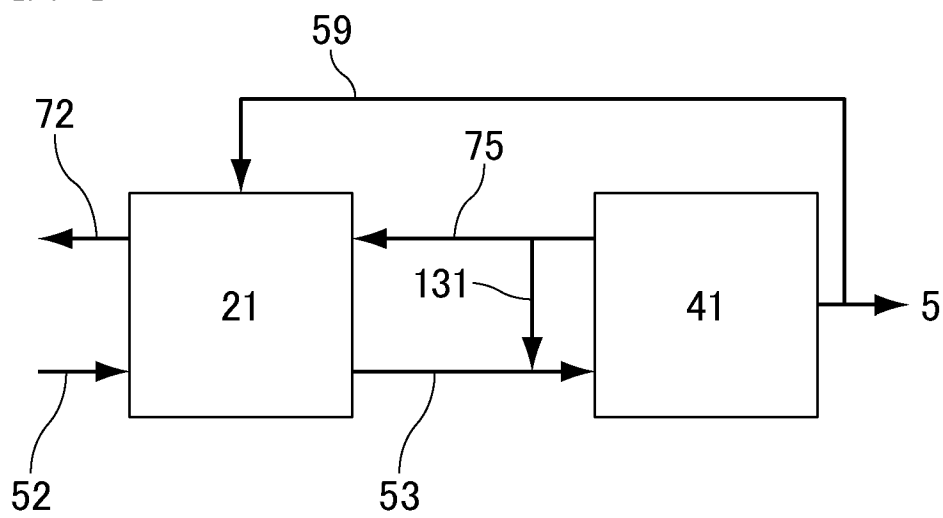
[図1]



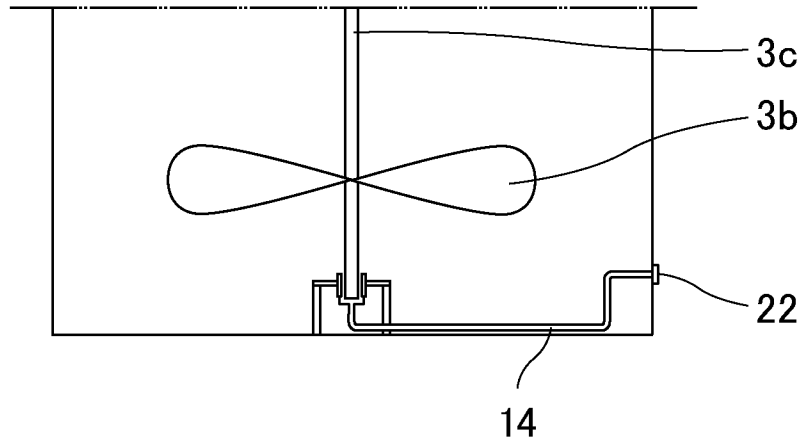
[図2a]



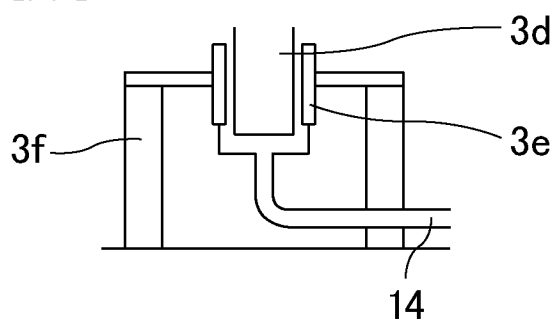
[図2b]



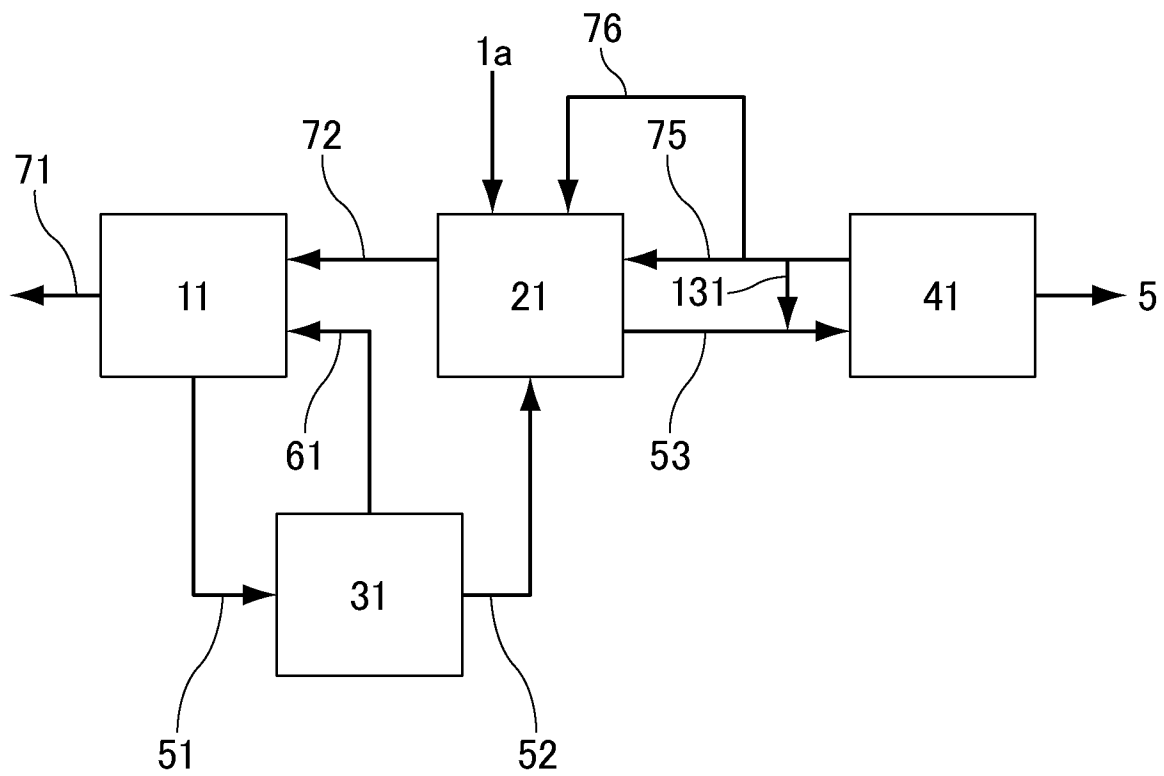
[図3]



[図4]



[図5]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2022/022160

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**B01D 9/02**(2006.01)i; **C07C 51/43**(2006.01)i; **C07C 57/055**(2006.01)i

FI: B01D9/02 602B; C07C57/055 Z; C07C51/43; B01D9/02 601G; B01D9/02 603B; B01D9/02 603D; B01D9/02 622; B01D9/02 609A; B01D9/02 611A; B01D9/02 602Z; B01D9/02 615A; B01D9/02 604; B01D9/02 605; B01D9/02 616; B01D9/02 617

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)

B01D9/02; C07C51/43; C07C57/055

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

Published examined utility model applications of Japan 1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2022
Registered utility model specifications of Japan 1996-2022
Published registered utility model applications of Japan 1994-2022

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2004-315456 A (MITSUBISHI CHEMICALS CORP) 11 November 2004 (2004-11-11) paragraphs [0001]-[0038], fig. 1	1-5
Y	WO 98/037938 A1 (AJINOMOTO CO., INC.) 03 September 1998 (1998-09-03) pp. 4, 10-14	1-5
Y	JP 2007-182437 A (NIPPON SHOKUBAI CO LTD) 19 July 2007 (2007-07-19) example 1	3, 4



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

28 July 2022

Date of mailing of the international search report

09 August 2022

Name and mailing address of the ISA/JP

Japan Patent Office (ISA/JP)
3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915
Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2022/022160

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP	2004-315456	A	11 November 2004	(Family: none)	
WO	98/037938	A1	03 September 1998	US 6334878	B1
				column 3, lines 36-46	
				EP 968746	A1
				CN 1252734	A
				JP 4081820	B2
JP	2007-182437	A	19 July 2007	US 2007/0129572	A1
				column "examples"	
				EP 1795521	A1
				KR 10-2007-0059972	A
				CN 101195566	A

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） B01D 9/02(2006.01)i; C07C 51/43(2006.01)i; C07C 57/055(2006.01)i FI: B01D9/02 602B; C07C57/055 Z; C07C51/43; B01D9/02 601G; B01D9/02 603B; B01D9/02 603D; B01D9/02 622; B01D9/02 609A; B01D9/02 611A; B01D9/02 602Z; B01D9/02 615A; B01D9/02 604; B01D9/02 605; B01D9/02 616; B01D9/02 617														
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）） B01D9/02; C07C51/43; C07C57/055 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 <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922-1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971-2022年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996-2022年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994-2022年</td> </tr> </table> 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）			日本国実用新案公報	1922-1996年	日本国公開実用新案公報	1971-2022年	日本国実用新案登録公報	1996-2022年	日本国登録実用新案公報	1994-2022年				
日本国実用新案公報	1922-1996年													
日本国公開実用新案公報	1971-2022年													
日本国実用新案登録公報	1996-2022年													
日本国登録実用新案公報	1994-2022年													
C. 関連すると認められる文献 <table border="1"> <thead> <tr> <th>引用文献の カテゴリー*</th> <th>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</th> <th>関連する 請求項の番号</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>Y</td> <td>JP 2004-315456 A（三菱化学株式会社）11.11.2004（2004-11-11） 段落0001-0038, 図1</td> <td>1-5</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>WO 98/037938 A1（味の素株式会社）03.09.1998（1998-09-03） 第4頁第10頁-第14頁</td> <td>1-5</td> </tr> <tr> <td>Y</td> <td>JP 2007-182437 A（株式会社日本触媒）19.07.2007（2007-07-19） 実施例1</td> <td>3, 4</td> </tr> </tbody> </table>			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 2004-315456 A（三菱化学株式会社）11.11.2004（2004-11-11） 段落0001-0038, 図1	1-5	Y	WO 98/037938 A1（味の素株式会社）03.09.1998（1998-09-03） 第4頁第10頁-第14頁	1-5	Y	JP 2007-182437 A（株式会社日本触媒）19.07.2007（2007-07-19） 実施例1	3, 4
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 2004-315456 A（三菱化学株式会社）11.11.2004（2004-11-11） 段落0001-0038, 図1	1-5												
Y	WO 98/037938 A1（味の素株式会社）03.09.1998（1998-09-03） 第4頁第10頁-第14頁	1-5												
Y	JP 2007-182437 A（株式会社日本触媒）19.07.2007（2007-07-19） 実施例1	3, 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、一般的技术水準を示すもの “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抵触するものではなく、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 28.07.2022		国際調査報告の発送日 09.08.2022												
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		権限のある職員（特許庁審査官） 塩谷 領大 4Q 4665 電話番号 03-3581-1101 内線 3468												

国際調査報告
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2022/022160

引用文献			公表日	パテントファミリー文献			公表日
JP	2004-315456	A	11.11.2004	(ファミリーなし)			
WO	98/037938	A1	03.09.1998	US	6334878	B1	
				第3欄第36行-第46行			
				EP	968746	A1	
				CN	1252734	A	
				JP	4081820	B2	
JP	2007-182437	A	19.07.2007	US	2007/0129572	A1	
				EXAMPLES欄			
				EP	1795521	A1	
				KR	10-2007-0059972	A	
				CN	101195566	A	