

(様式 5)

| | |
|-------------|--|
| 指導教員 承認印 | |
|-------------|--|

平成 25 年 6 月 18 日

学位（博士）論文の和文要旨

| | |
|---|--|
| 論文提出者 | 工学府博士後期課程 応用化学 専攻 平成 22 年度入学 学籍番号 10832706 氏名 日野智道 印 |
| 主指導教員 氏名 | 滝山博志 |
| 論文題目 | The Quality of Organic Acid Crystals in the Presence of Impurities (不純物存在下における有機酸結晶の品質) |
| 論文要旨 (2000 字程度) | |
| <p>近年注目されている有機物高純度化製品の材料のひとつとして、有機酸が挙げられる。有機酸の有力な精製方法として、懸濁型融液晶析が知られている。本論文は、この懸濁型融液晶析における原料中微量不純物の影響について行った一連の研究をまとめたものである。懸濁型融液晶析は、製品の高純度化には有利であるが、研究事例が極めて少なく、現象を支配する製造工程パラメータ間の相互関係が未だ明確にされていない。また、原料組成に関する検討としては、操作上添加される溶媒の影響に着目したものが大半で、結晶成長や取得結晶群の純度に対する原料中微量不純物の影響に関してはほとんど研究がなされていない。一方、既往の研究や文献によると一定条件下での操作を行っているにもかかわらず生産性が大きく変動することがある等、懸濁型融液晶析では高純度化と生産性の両立に課題があることが報告されている。これらの状況を踏まえ、本論文では、懸濁型融液晶析においてほぼ未開拓の領域である結晶成長や形状、取得結晶群純度に対する原料中微量不純物の影響を明らかにし、これが製造工程における生産性低下要因となり得るかどうかを検討した。更に、検討によって得られた知見を基に、不明点の多かった製造工程パラメータ間の相互関係を整理し、懸濁型融液晶析において生じる現象を明快に説明できる相関図の構築、提供を行った。なお、この相関図は製造工程の戦略的な改善策の立案やトラブルシューティングへの活用が期待できるものである。</p> <p>第 1 章「緒言」では、研究の背景として、有機酸の精製分離手法としての懸濁型融液晶析の概要、既往の研究や文献の内容を紹介した。また、その内容から製造工程パラメータ間の相互関係の整理を試み、上述の研究や工程上の課題点を明らかにした。加えて、懸濁型融液晶析プロセスには生産性に対する負のスパイラルが存在することを明らかにし、原</p> | |

料中の微量不純物がそのトリガーとなるかを検討する必要性を示した。更に、晶析槽内原料の固液平衡に基づいた従来の単純な過飽和発生モデルでは、この生産性に対する負のスパイラルの進行が十分に説明できないことを指摘した。

第2章「高有機酸濃度領域における有機酸と溶媒の二成分系固液平衡データ」では、懸濁型融液晶析の具体例として取り上げた有機酸と溶媒の二成分系固液平衡データを取得した。更に、各種手法によって決定された液相線の精度や健全性を議論し、推奨される計算モデルの提案を行った。本章にて得られたデータは晶析での基本現象である核発生、結晶成長等を支配する過飽和度の把握に不可欠であり、本論文における全ての検討の礎となるものである。本章の内容は、Fluid Phase Equilibria, Vol. 312, pp. 14-19 (2011)に掲載された。

第3章「融液晶析における微量不純物存在下での有機酸の結晶成長現象」では、懸濁型融液晶析によって得られた結晶群の、結晶成長や形状に対する晶析原料中微量不純物の影響を、現象論、速度論の二つの視点から検討した。その結果から、原料中の微量不純物は、飽和結晶析出量や結晶析出速度を低下させるだけでなく、結晶の形状変化にも大きな影響を持つことを明らかにした。この事実は、トータルの結晶析出量だけでなく粒子径分布や結晶形状によって変化する結晶群の比表面積や固液分離性に対しても原料中微量不純物が影響を持ち、結果的に生産性を変動させ得ることを示している。本章の内容は、Journal of Chemical Engineering of Japan, Vol. 45, No. 10, pp. 868-872 (2012)、及び Journal of Crystal Growth Vol. 373, pp. 142-145 (2013)に掲載された。

第4章「融液晶析における微量不純物と溶媒存在下での有機酸結晶群の純度」では、懸濁型融液晶析によって得られた、固液分離後の取得結晶層純度に対する原料中微量不純物の影響を検討した。その結果、原料中微量不純物は、取得結晶層純度を低下させることを明確にした。また、固液分離後の取得結晶層純度は、結晶層高さの影響を受けること、更にその純度の結晶層高さに対する依存性は、微量不純物存在下の方が高くなることを示した。本章の内容は、Journal of Chemical Engineering of Japan (Submitted, June. 05. 2013)に投稿済みである。

第5章「結言」では、まず、これまでの章における議論から、従来知られていなかった懸濁型融液晶析における原料中微量不純物の影響を総括し、原料中の微量不純物は結晶成長や形状、取得結晶群の純度に影響を及ぼし得ることを初めて明らかにした。また、議論によって得られた知見、及び晶析槽内原料だけでなく冷却伝面における固液平衡も考慮した過飽和発生モデルを取り込むことによって、相互関係をより明確に表現した製造工程パラメータ相関図を再構築した。これにより、懸濁型融液晶析における生産性に対する負のスパイラルの進行がより明瞭に説明できるようになっただけでなく、原料中微量不純物が負のスパイラルのトリガーとなり、工程における生産性の低下や変動を招き得ること、更に生産性の低下に対する意図的な対応策が、負のスパイラルの進行を逆に加速する可能性があることを指摘し、この相関図が懸濁型融液晶析を用いた製造工程の戦略的な改善策の立案やトラブルシューティングに十分活用できることを示した。