

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公表特許公報(A)

(11) 特許出願公表番号

特表2017-527267

(P2017-527267A)

(43) 公表日 平成29年9月21日(2017.9.21)

(51) Int.Cl.	F 1	テーマコード (参考)
C 12 P 19/14 (2006.01)	C 12 P 19/14	Z A B A 4 B 0 6 4
B 01 D 63/02 (2006.01)	B 01 D 63/02	4 D 0 0 4
B 01 D 63/06 (2006.01)	B 01 D 63/06	4 D 0 0 6
B 01 D 63/10 (2006.01)	B 01 D 63/10	4 D 0 1 7
B 01 D 61/58 (2006.01)	B 01 D 61/58	4 D 0 7 6

審査請求 未請求 予備審査請求 未請求 (全 53 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号	特願2017-501700 (P2017-501700)	(71) 出願人	512175199 ザイレコ, インコーポレイテッド アメリカ合衆国, マサチューセッツ州 O 1880, ウェイク フィールド, 360 オーデュボン ロード
(86) (22) 出願日	平成27年7月21日 (2015.7.21)	(74) 代理人	100114775 弁理士 高岡 亮一
(85) 翻訳文提出日	平成29年1月12日 (2017.1.12)	(74) 代理人	100121511 弁理士 小田 直
(86) 國際出願番号	PCT/US2015/041306	(74) 代理人	100202751 弁理士 岩堀 明代
(87) 國際公開番号	W02016/014511	(74) 代理人	100191086 弁理士 高橋 香元
(87) 國際公開日	平成28年1月28日 (2016.1.28)		
(31) 優先権主張番号	62/027, 489		
(32) 優先日	平成26年7月22日 (2014.7.22)		
(33) 優先権主張国	米国 (US)		
(31) 優先権主張番号	62/026, 742		
(32) 優先日	平成26年7月21日 (2014.7.21)		
(33) 優先権主張国	米国 (US)		

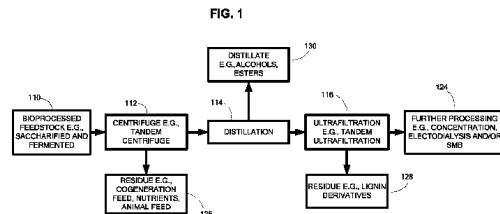
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】バイオマスの処理

(57) 【要約】

バイオマス供給原料(例えば、植物バイオマス、動物バイオマスおよび都市廃棄物バイオマス)を処理して、燃料などの有用な生成物を生成する。例えば、バイオ処理済みバイオマス原料スラリーの液体から固形物および高分子量種を分離するのに有用であり得るシステムが記載される。

【選択図】図1



【特許請求の範囲】**【請求項 1】**

第一の膜フィルターを用いて、バイオ処理済み供給原料から前記バイオ処理済み供給原料由来の第一の分子量前後を上回る分子量を有する原料を保持することによって、前記バイオ処理済み供給原料から第一の通過物を生成することと、

第二の膜フィルターを用いて、前記第一の通過物から前記第一の通過物由来の第二の分子量前後を上回る分子量を有する原料を保持することによって、前記第一の通過物から第二の通過物を生成することと、

を含む、精製方法。

【請求項 2】

前記バイオ処理済み供給原料が、バイオマス原料の糖化によって生成される、請求項 1 に記載の方法。

【請求項 3】

糖化が、前記バイオマス原料と酵素または生物とを接触させることによって実施される、請求項 2 に記載の方法。

【請求項 4】

前記バイオマス原料が、セルロース系原料またはリグノセルロース系原料である、請求項 2 または 3 に記載の方法。

【請求項 5】

前記バイオ処理済み供給原料が、約 1 % 未満、約 0 . 5 % 未満、約 0 . 2 % 未満または約 0 . 1 % 未満の固形物を含むスラリーの形態である、請求項 1 ~ 4 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 6】

前記固形物が、約 10 μm 未満、約 5 μm 未満または約 1 μm 未満の粒子径中央値を有する、請求項 5 に記載の方法。

【請求項 7】

前記第一の膜フィルターを用いる前に、前記バイオ処理済み供給原料をろ過して固形物を除去する、請求項 5 または 6 に記載の方法。

【請求項 8】

前記バイオ処理済み供給原料が、ろ過される前に少なくとも約 1 % の固形物、少なくとも約 3 % の固形物または少なくとも約 9 % の固形物を含む、請求項 7 に記載の方法。

【請求項 9】

前記バイオ処理済み供給原料が、デカンタ遠心分離、ディスク遠心分離、積層ろ過、プレートろ過、精密ろ過、カラムろ過、振動型膜分離装置およびその組合せ（例えば、連続して用いる 2 種類の遠心分離）から選択される方法によってろ過される、請求項 7 または 8 に記載の方法。

【請求項 10】

前記バイオ処理済み供給原料が発酵生成物である、請求項 1 ~ 9 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 11】

前記バイオ処理済み供給原料が、少なくとも 1 つの糖を含む蒸留残渣である、請求項 1 ~ 10 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 12】

前記バイオ処理済み供給原料が、キシロース、約 0 . 1 % ~ 約 50 % のキシロース、約 0 . 5 % ~ 約 30 % のキシロース、約 1 % ~ 約 20 % のキシロースまたは約 1 % ~ 約 10 % のキシロースを含む、請求項 1 ~ 11 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 13】

前記バイオ処理済み供給原料が、前記第一の膜フィルターによってろ過される前に、真空中で少なくとも 1 つの揮発性化合物が除去されている、請求項 1 ~ 12 のいずれか 1 項に記載の方法。

10

20

30

40

50

【請求項 1 4】

前記揮発性化合物が、エステル、酪酸エステルまたは乳酸エステルである、請求項 1 3 に記載の方法。

【請求項 1 5】

前記揮発性化合物がアルコール（例えば、エタノール、ブタノール）である、請求項 1 3 に記載の方法。

【請求項 1 6】

前記バイオ処理済み供給原料中のアルコールの濃度が、約 5 % 未満、約 1 % 未満、約 0 . 5 % 未満または約 0 . 1 % 未満である、請求項 1 4 に記載の方法。

【請求項 1 7】

前記第一の分子量が前記第二の分子量よりも大きい、請求項 1 ~ 1 6 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 1 8】

前記第一の分子量が、少なくとも約 1 0 0 k D a 、少なくとも約 1 5 0 k D a または少なくとも約 2 0 0 k D a である、請求項 1 ~ 1 7 のいずれかに記載の方法。

【請求項 1 9】

前記第一の膜フィルターが、前記バイオ処理済み供給原料から約 0 . 0 5 μ m 超、約 0 . 0 6 μ m 超、約 0 . 0 7 μ m 超、約 0 . 0 8 μ m 超、約 0 . 0 9 μ m 超または約 0 . 1 μ m 超の粒子を保持する、請求項 1 ~ 1 8 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 2 0】

前記第二の分子量が、少なくとも約 2 k D a 、約 2 k D a ~ 約 1 0 0 k D a 、約 2 k D a ~ 約 5 0 k D a または約 4 k D a ~ 約 2 0 k D a である、請求項 1 ~ 1 9 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 2 1】

前記第一の通過物が、液化バイオマスよりも濁度が低い、または前記第一の通過物が、約 5 ネフェロ分析濁度単位未満もしくは約 1 ネフェロ分析濁度単位未満の濁度を有する、または前記第二の通過物が、少なくとも約 5 N T U 、少なくとも約 1 0 N T U もしくは少なくとも約 5 0 N T U の濁度を有する、請求項 1 ~ 2 0 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 2 2】

前記第二の通過物が、前記第一の通過物よりも色が薄い、または前記第二の通過物が、白金 - コバルト A S T M 試験法 D 1 2 0 9 による約 2 0 0 単位未満、約 1 0 0 単位未満、約 5 0 単位未満、約 4 0 単位未満、約 3 0 単位未満、約 2 0 単位未満、約 1 0 単位未満、約 5 単位未満もしくは約 1 単位未満の色を有する、請求項 1 ~ 2 1 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 2 3】

前記第一の膜フィルターと前記第二の膜フィルターが、クロスフローフィルターとして構成されている、請求項 1 ~ 2 2 のいずれか 1 項に記載の方法。

【請求項 2 4】

前記第一の膜フィルターおよび / または前記第二の膜フィルターが、らせん巻きフィルター、チューブフィルターまたは中空糸フィルターである、請求項 2 3 に記載の方法。

【請求項 2 5】

前記第一の膜フィルターおよび / または前記第二の膜フィルターが、直径約 1 / 4 ~ 約 1 インチ（約 0 . 6 4 ~ 約 2 . 5 c m ）または約 1 / 2 インチ（約 1 . 3 c m ）のチューブフィルターとして構成されている、請求項 2 3 に記載の方法。

【請求項 2 6】

前記第一の膜フィルターおよび / または前記第二の膜フィルターの入口圧が約 9 0 ~ 約 5 0 0 P S I G (約 6 2 0 ~ 約 3 4 0 0 k P a) または約 1 0 0 ~ 約 2 5 0 P S I G (約 6 9 0 ~ 1 7 0 0 k P a) であり、前記第一の膜フィルターおよび / または前記第二の膜フィルターの出口圧が約 2 0 ~ 約 4 3 0 P S I G (約 1 4 0 ~ 約 3 0 0 0 k P a) または約 2 0 ~ 約 1 5 0 P S I G (約 1 4 0 ~ 約 1 0 3 0 k P a) である、請求項 2 3 に記載の

10

20

30

40

50

方法。

【請求項 27】

前記バイオ処理済み供給原料が、チューブの中を流速約1～約20GPM(約3.8～約761/分)、約2～約10GPM(約7.6～381/分)または約4～約6GPM(約15～約231/分)で流れる、請求項25または26に記載の方法。

【請求項 28】

前記第一の膜フィルターおよび／または前記第二の膜フィルターが、1モジュール当たり2束以上、7束以上、19束以上または37束以上のチューブフィルターを含むモジュールとして構成されている、請求項25～27のいずれか1項に記載の方法。

【請求項 29】

2つ以上、3つ以上、4つ以上、5つ以上、6つ以上または7つ以上のモジュールを用いて前記液化バイオマス原料および／または前記第一の通過物を処理する、請求項28に記載の方法。

【請求項 30】

前記バイオ処理済み供給原料および前記第一の通過物が、前記第一の膜フィルターおよび前記第二の膜フィルターでろ過されたとき、その温度が約30～約70、約40～約65、約40～約50である、請求項1～29のいずれか1項に記載の方法。

【請求項 31】

(例えは、三重効用蒸発器などの蒸発器を用いて、ナノろ過を用いて、逆浸透を用いて)前記第一の通過物を濃縮することをさらに含む、請求項1～30のいずれか1項に記載の方法。

【請求項 32】

(例えは、三重効用蒸発器などの蒸発器を用いて、ナノろ過を用いて、逆浸透を用いて)前記第二の通過物を濃縮することをさらに含む、請求項1～31のいずれか1項に記載の方法。

【請求項 33】

蒸発器、電気透析、逆電気透析、擬似移動ビーズクロマトグラフィー(simulated moving bead chromatography)およびその組合せからなる群より選択されるシステムを用いて前記第二の通過物を処理する、請求項1～32のいずれか1項に記載の方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

(関連出願の相互参照)

本願は、2014年7月21日に出願された米国仮特許出願第62/026,742号および2014年7月22日に出願された米国仮特許出願第62/027,489号の利益を主張するものであり、上記出願の内容は参照により本明細書に組み込まれる。

【背景技術】

【0002】

現在、農業残渣、木材バイオマス、都市廃棄物、油糧種子／油粕および海藻のようないくつかの例を含め、多数の有望なリグノセルロース系供給原料が入手可能である。現時点では、このような原料は活用されないことが多く、例えは動物飼料やバイオコンポスト原料として使用されるか、熱電併給施設で燃やされるか、埋め立てられる。

【0003】

リグノセルロース系バイオマスにはヘミセルロース基質に埋め込まれた結晶セルロース線維が含まれており、リグニンがこれを取り囲んでいる。これにより、酵素をはじめとする化学的、生化学的および／または生物学的プロセスの作用を受けにくく密集した基質が生じる。セルロース系バイオマス原料(例えは、リグニンが除去されたバイオマス原料)の方が酵素をはじめとする変換プロセスを受けやすいが、それでも、天然に存在するセルロース系原料を加水分解と接触させたときの収率は(理論的収率に比べて)低いことが多

10

20

30

40

50

い。リグノセルロース系バイオマスはこれよりもさらに酵素の攻撃を受けにくい。さらに、各種のリグノセルロース系バイオマスにはそれ独自のセルロース、ヘミセルロースおよびリグニンの組成がある。

【発明の概要】

【0004】

本明細書には全般的には、原料、例えばバイオマス原料をろ過する工程が開示される。本明細書には、バイオマス原料、例えばセルロース系、リグノセルロース系および/またはデンプン系供給原料を低分子量糖に変換することによって糖化または液化する工程が開示される。例えば、例えば酵素、例えば1つまたは複数のセルラーゼおよび/またはアミラーゼを用いて、供給原料を糖化する工程が開示される。本発明はほかにも、例えば発酵およびその他の処理（蒸留など）などのバイオ処理によって、供給原料を生成物に変換することに関する。これらの工程は、ろ過を用いてバイオマス由来液から懸濁固体物、着色物、細胞（例えば、酵母、細菌）および/またはウイルスを除去することを含む。

【0005】

本明細書には、第一の膜フィルターを用いて、バイオ処理済み供給原料からバイオ処理済み供給原料由来の第一の分子量前後を上回る分子量を有する原料を保持することによって、バイオ処理済み供給原料から第一の通過物を生成することを含む、精製方法が提供される。この方法はほかにも、第二の膜フィルターを用いて、第一の通過物原料から第一の通過物由来の第二の分子量前後を上回る分子量を有する原料を保持することによって、第一の通過物から第二の通過物を生成することを含む。バイオ処理済み供給原料は、バイオマス原料の糖化によって生成され、糖化は、バイオマス原料と酵素または生物とを接触させることによって実施され得る。任意選択で、バイオマス原料はセルロース系またはリグノセルロース系原料である。任意選択で、バイオ処理済み供給原料は、約1%未満（例えば、約0.5%未満、約0.2%未満、約0.1%未満）の固体物を含むスラリーの形態である。固体物は、約10μm未満（例えば、約5μm未満、約1μm未満）の粒子径中央値を有し得る。第一の膜フィルターを用いる前に、バイオ処理済み供給原料をろ過して固体物を除去し得る。任意選択で、バイオ処理済み供給原料は、ろ過される前に少なくとも約1%の固体物（例えば、少なくとも約3%の固体物、少なくとも約9%の固体物）を含む。バイオ処理済み供給原料は、デカンタ遠心分離、ディスク遠心分離、積層ろ過、プレートろ過、精密ろ過、カラムろ過、振動型膜分離装置およびその組合せ（例えば、連続して用いる2種類の遠心分離）から選択される方法によってろ過され得る。任意選択で、バイオ処理済み供給原料は発酵生成物である。任意選択で、バイオ処理済み供給原料は、少なくとも1つの糖を含む蒸留残渣である。いくつかの選択肢は、キシロース（例えば、約0.1%～約50%のキシロース、例えば、約0.5%～約30%のキシロース、約1%～約20%のキシロース、約1%～約10%）を含むバイオ処理済み供給原料を含む。いくつかの選択肢では、バイオ処理済み供給原料は、第一の膜フィルターによってろ過される前に、真空下で少なくとも1つの揮発性化合物が除去されている。例えば、揮発性化合物は、エステル（例えば、酪酸エステル、乳酸エステル）またはアルコール（例えば、エタノール、ブタノール）であり得る。バイオ処理済み供給原料中のアルコールの濃度は約5%未満（例えば、約1%未満、約0.5%未満、約0.1%未満）であり得る。任意選択で、第一の分子量は第二の分子量よりも大きい。任意選択で、第一の分子量は、少なくとも約100kDa（例えば、少なくとも約150kDa、少なくとも約200kDa）であり得る。いくつかの選択肢では、第一の膜フィルターは、バイオ処理済み供給原料から約0.05μm超（例えば、約0.06μm超、約0.07μm超、約0.08μm超、約0.09μm超、約0.1μm超）の粒子を保持する。任意選択で、第二の分子量は少なくとも約2kDa（例えば、約2kDa～約100kDa、約2kDa～約50kDa、約4kDa～約20kDa）である。任意選択で、第一の通過物は、（例えば、少なくとも約5NTU、少なくとも約10NTU、少なくとも約50NTUの）液化バイオマスよりも濁度が低い（例えば、約5ネフェロ分析濁度単位未満、約1ネフェロ分析濁度単位未満である）。任意選択で、第二の通過物は、第一の通過物よりも色が薄い（例えば

10

20

30

40

50

、白金 - コバルト A S T M 試験法 D 1 2 0 9 による約 2 0 0 単位未満、約 1 0 0 単位未満、約 5 0 単位未満、約 4 0 単位未満、約 3 0 単位未満、約 2 0 単位未満、約 1 0 単位未満、約 5 単位未満、さらには約 1 単位未満である）。本明細書にはこのほか、第一の膜フィルターと第二の膜フィルターがクロスフローフィルターとして構成されている方法が提供される。例えば、この方法では、第一の膜フィルターおよび / または第二の膜フィルターはらせん巻きフィルター、チューブフィルターまたは中空糸フィルターである。例えば、この方法では、第一の膜フィルターおよび / または第二の膜フィルターは、直径約 1 / 4 ~ 約 1 インチ（約 0 . 6 4 ~ 約 2 . 5 c m ）（例えば、約 1 / 2 インチ（約 1 . 3 c m ））のチューブフィルターとして構成されている。任意選択で、第一の膜フィルターおよび / または第二の膜フィルターの入口圧は約 9 0 ~ 約 5 0 0 P S I G (約 6 2 0 ~ 約 3 4 0 0 k P a) (例えば、約 1 0 0 ~ 約 2 5 0 P S I G (約 6 9 0 ~ 1 7 0 0 k P a)) であり、第一の膜フィルターおよび / または第二の膜フィルターの出口圧は約 2 0 ~ 約 4 3 0 P S I G (約 1 4 0 ~ 約 3 0 0 0 k P a) (例えば、約 2 0 ~ 約 1 5 0 P S I G (約 1 4 0 ~ 約 1 0 3 0 k P a)) である。任意選択で、バイオ処理済み供給原料は、チューブの中を流速約 1 ~ 約 2 0 G P M (約 3 . 8 ~ 約 7 6 1 / 分) (例えば、約 2 ~ 約 1 0 G P M (約 7 . 6 ~ 3 8 1 / 分) 、約 4 ~ 約 6 G P M (約 1 5 ~ 約 2 3 1 / 分)) で流れる。任意選択で、第一の膜フィルターおよび / または第二の膜フィルターは、2 束以上のチューブフィルター（例えば、1 モジュール当たり 7 束以上、1 9 束以上、3 7 束以上のチューブ）を含むモジュールとして構成されている。例えば、ここでは、2 つ以上（例えば、2 つ、3 つ、4 つ、5 つ、6 つまたはそれ以上）のモジュールを用いて液化バイオマス原料および / または第一の通過物を処理する。本明細書にはこのほか、バイオ処理済み供給原料および第一の通過物が第一の膜フィルターおよび第二の膜フィルターでろ過されたとき、その温度が約 3 0 ~ 約 7 0 (例えば、約 4 0 ~ 約 6 5 、約 4 0 ~ 約 5 0) である方法が提供される。任意選択で、本明細書には、（例えば、三重効用蒸発器などの蒸発器を用いて、ナノろ過を用いて、逆浸透を用いて）第一の通過物を濃縮することをさらに含む方法が提供される。任意選択で、本明細書には、（例えば、三重効用蒸発器などの蒸発器を用いて、ナノろ過を用いて、逆浸透を用いて）第二の通過物を濃縮することをさらに含む方法が提供される。任意選択で、蒸発器、電気透析、逆電気透析、擬似移動ビーズクロマトグラフィー (s i m u l a t e d m o v i n g b e a d c h r o m a t o g r a p h y) およびその組合せからなる群より選択されるシステムを用いて第二の通過物を処理する。

【 0 0 0 6 】

膜分離技術は、選択性の高い分離、補助原料を一切使用しない分離、周囲温度または低温での稼働、相変化がない、連続的かつ自動的な稼働および経済的な稼働といった利点が得られる可能性があることから、蒸留、遠心分離および抽出などの工業的分離法の有用な代替法（または補完法）となる。さらに、膜分離ユニットはモジュラー構造を有する小型でコンパクトなものにすることが可能であり、既存の生産工程に組み込むことが容易で費用があまりかからない。主要なランニングコストも比較的低い。このため、膜分離工程は、バイオマスに由来する分離が困難な溶液、例えば、コロイド微粒子、密度が液相のものに近い粒子、細胞、タンパク質、多糖類、発酵生成物、糖類および / またはリグニンを含有する溶液に有用であり得る。

【 0 0 0 7 】

本発明のその他の特徴および利点は、以下の「詳細な説明」および「特許請求の範囲」から明らかになるであろう。

【 0 0 0 8 】

上記の内容は、本発明の実施形態の例を添付図面に図示し、さらに具体的に説明することにより明らかになるであろう。図面は拡大を必要とするものではなく、本発明の実施形態を図示することに重点を置いたものである。

【 図面の簡単な説明 】

【 0 0 0 9 】

10

20

30

40

50

【図1】バイオ処理済み供給原料の精製に可能な配列を示す図である。

【図2】本発明の方法の1つの実施形態および原料の流れを模式的に示す図である。

【図3】直列または多段ろ過システムの1つの実施形態を模式的に示す図である。

【図4】発酵させた原料の粒径分布のプロットである。

【図5】発酵させ遠心分離した原料の粒径分布のプロットである。

【図6】発酵させ、遠心分離し、加熱し、次いで遠心分離した原料の粒径分布のプロットである。

【発明を実施するための形態】

【0010】

(詳細な説明)

10

本明細書に記載される設備、方法およびシステムを用いれば、例えばバイオマス（例えば、植物バイオマス、動物バイオマス、紙および都市廃棄物バイオマス）から供給され得るセルロース系およびリグノセルロース系供給原料物質を有用な生成物および中間体、糖類をはじめとする生成物（例えば、発酵生成物）に変化させることができる。膜ろ過を用いてスラリーをろ過する設備、方法およびシステムが本明細書に開示される。例えば、バイオマス工程ストリームの質を高める精密ろ過および限外ろ過などのクロスフロー膜ろ過技術が記載される。

【0011】

糖溶液およびそれに由来する生成物を製造する工程は、例えば、任意選択でセルロース系および／またはリグノセルロース系供給原料を機械的に処理することを含む。この処理の前および／または後、別の物理的処理、例えば照射により供給原料を処理して、その抵抗性を減少またはさらに減少させ得る。供給原料の糖化、例えば1つまたは複数の酵素の添加によって糖溶液が形成される。糖溶液から、例えば、1つまたは複数の糖を選択的にアルコールに発酵させることにより、生成物を得ることができる。さらなる処理は、例えば遠心分離、回転ドラムろ過、振動型膜分離装置、蒸留、限外ろ過、電気透析および／または擬似移動床式クロマトグラフィーによって、溶液を精製することを含み得る。例えば、このようなさらなる工程技術は、本願と同時に出願された代理人整理番号00179-P1US、2014年3月7日に出願された国際出願PCT/US2014/21638号、2014年3月7日に出願された国際出願PCT/US2014/21815号および2014年3月7日に出願された国際出願/US2014/21584号に記載されており、上記の開示全体が参照により本明細書に組み込まれる。必要に応じて、工程の様々な段階で、リグニン含有量を測定し、この測定に基づいて工程パラメータを設定または調整する（例えば、膜によるろ過段階で加える圧力または膜細孔径／分子量カットオフの選択を調整する）段階を実施し得る。2013年4月9日に発行された米国特許第8,415,122号には、工程パラメータの調整に関する開示がいくつか記載されており、上記の開示全体が参照により本明細書に組み込まれる。

20

【0012】

図1は、バイオ処理済み供給原料の精製に可能な配列の1つを示している。1つまたは複数の遠心分離機および／または振動型膜分離装置（例えば、微小膜フィルター）112を用いることによって、バイオ処理済み供給原料110、例えば糖化し発酵したリグノセルロース系またはセルロース系原料をろ過する。残渣126をさらに処理して、例えば、エネルギーのコジェネレーション用の供給原料、（例えば、発酵段階の）栄養素、動物の飼料、肥料および／または吸収材料として使用することも可能である。残渣は例えば、2014年3月7日に出願された国際出願PCT/US2014/21634号（開示全体が参照により本明細書に組み込まれる）に記載されているように、エネルギーのコジェネレーションに使用することができる。ろ液材料を蒸留（114）して、精製アルコールまたはエステルなどの留出物130を生成することができる。留出物の残渣は、1つの限外ろ過段階または複数（例えば、2つ、3つ、4つ、5つまたは場合によっては6つ超）の限外ろ過段階を用いる限外ろ過116によってろ過することができる。限外ろ過の残渣は、リグニン誘導体などの分子種を多量に含むものであり得、化学的供給原料として使用す

30

40

50

るか、燃焼させてエネルギーを得る（例えば、コジェネレーション）ことができる。限外ろ過後、溶液（例えば、通過物）をさらなる工程124に供することができる。例えば、さらなる処理は、濃縮、イオン種を除去する電気透析もしくは逆電気透析および／または糖（例えば、キシロース）または酸（例えば、乳酸）などの生成物を精製する擬似移動床式クロマトグラフィーなどのクロマトグラフィー法を含み得る。この種の精製は有益なものであり、バイオマス由来のバイオ処理済み供給原料が複雑であることを理由に必要になり得る。縦列限外ろ過はさらに効率的で迅速であり、膜の汚れが軽減され得る。

【0013】

バイオマスは複雑な供給原料であるため、それに由来する固形物および流体の組成および特性は、複雑であり得、極めて多様なものであり得る。例えば、リグノセルロース系原料には、セルロース、ヘミセルロースおよびリグニンが様々に組み合わさって含まれている。セルロースはグルコースの直鎖状ポリマーである。ヘミセルロースは、キシラン、グルクロノキシラン、アラビノキシランおよびキシログルカンなどのいくつかのヘテロポリマーのいずれかである。ヘミセルロース中に存在する主要な糖モノマー（例えば、最も高濃度で存在するもの）はキシロースであるが、ほかにもマンノース、ガラクトース、ラムノース、アラビノースおよびグルコースなどのモノマーが存在する。リグニンはいずれも様々な組成を示すが、フェニルプロペン単位からなる無定形の樹状ネットワークポリマーであると記載されている。特定のバイオマス原料中のセルロース、ヘミセルロースおよびリグニンの量は、そのバイオマス原料の入手源に左右される。例えば、木材由来のバイオマスは、その種類に応じて、セルロースが約38～49%、ヘミセルロースが約7～26%、リグニンが約23～34%となり得る。草木は通常、セルロースが33～38%、ヘミセルロースが24～32%、リグニンが17～22%である。リグノセルロース系バイオマスが大きな基質のクラスを構成しているのは明らかである。

10

20

30

40

【0014】

バイオプロセス供給原料110は、スラリーなどの懸濁物、例えば流体中にバイオマス粒子が懸濁したもの（例えば、水溶液）であり得る。粒子は、少なくとも一部は、機械的処理、例えば本明細書に記載される機械的処理、例えばセルロース系および／またはリグノセルロース系原料などのバイオマス原料を細切、粉碎、剪断および／または破碎する処理によって生じるものである。スラリーのこのような粒子は様々な特性を有し得る。例えば、粒子は様々な形態、例えば、球形、橢円形、纖維、フレーク、平坦で滑らかな粒子、粗面粒子、かどのある粒子、円錐状粒子、微小纖維、細胞（例えば、任意の形態および大きさの細胞）、集塊（例えば、大きさおよび／または形状などの異なる粒子の塊）、凝集物（例えば、大きさおよび／または形状などがほぼ同じ粒子の塊）を有し得る。粒子はほかにも、様々な密度、例えば約0.01g/cc～5g/cc超（例えば、約0.1～約2g/cc、約0.2～約1g/cc）の密度を有し得る。粒子は、例えば約5%～約90%（例えば、約5%～約50%、約10%～約40%）の範囲の異なるまたはほぼ同じ多孔度を有し得る。機械的処理に加えて、供給原料スラリー中の粒子および溶液の特性は、照射、糖化および発酵などの他の処理段階によって決まる。供給物中に存在する粒子および巨大分子の大きさ、形状および種類が多岐にわたれば、ろ過は困難なものになり得る。

【0015】

記載されるように、バイオ処理110は、抵抗性が減少した原料の糖化を含み得る。例えば、抵抗性を減少させる方法、例えば水蒸気爆碎、熱分解、酸化、照射、超音波処理およびその組合せなどを用いることができる。このほか、2014年6月20日に出願された米国仮特許出願第62/014,718号（開示全体が参照により本明細書に組み込まれる）に記載されているジェットクッカーをはじめとする方法などによって加える熱を用いて抵抗性を減少させることができる。照射などの処理は、処理レベルに応じて両鎖切断および／または架橋によってポリマー成分の分子量を変化させ得る。一般に、約10Mradを超える処理によってセルロース系原料の分子量を減少させるほか、抵抗性を減少する、例えば原料を糖化しやすくすることができる。ほかにも、照射がバイオマス中のリグ

50

ニン成分の分子量を減少または増大させる可能性がある。糖化を容易にすることに加えて、これらの処理は、例えば分子量の変化によって、バイオ処理済み原料を改変し得る。

【0016】

糖化は、バイオマス（例えば、抵抗性を減少させたバイオマス原料）を水に懸濁させることと、懸濁させたバイオマスを加熱（例えば、約80～約200、約100～約190、約120～約160）および／または酸（例えば、硫酸などの鉱酸）により処理することとを含み得る。ほかにも、酸または塩基のいずれかによるpHの調整をさらに用いて、液体のイオン強度を増大させることができる。任意選択で、または上記のものに加えて、糖化を酵素処理によって実施することができる。例えば、バイオマス、例えば上記のバイオマスのセルロース、ヘミセルロースおよび／またはリグニン部分などを分解する酵素およびバイオマス破壊微生物は、様々なセルロース分解酵素（セルラーゼ）、リグニナーゼ、キシラナーゼ、ヘミセルラーゼまたは様々な小分子バイオマス破壊代謝産物を含んでいるか、これを產生する。セルロース系基質は最初、ランダムな位置でエンドグルカナーゼによって加水分解されてオリゴマー中間体を生じる。次いで、この中間体がセロビオヒドロラーゼなどのエキソ-スプリッティング（exo-splitting）グルカナーゼの基質となって、セルロースポリマーの末端からセロビオースが生じる。セロビオースは、グルコースが1,4結合した水溶性の二量体である。最後に、セロビアーゼがセロビオースを切断してグルコースが生じる。ヘミセルロースの場合、キシラナーゼ（例えば、ヘミセルラーゼ）がこの生体高分子に作用し、考え得る生成物の1つとしてキシロースを放出する。したがって、糖化後、溶液はグルコースおよびキシロースの濃度が高くなると同時にセルロースおよびヘミセルロースが減少する。例えば、糖化バイオマスのスラリーが、液体に溶けた単糖類（例えば、グルコースおよびキシロース）を少なくとも2つ含む場合、その単糖類の濃縮物は、抵抗性が減少したセルロース系またはリグノセルロース系原料中に利用可能な総炭水化物を少なくとも50重量%、例えば、60重量%、70重量%、80重量%、90重量%または場合によっては実質的に100重量%含み得る。任意選択で、グルコース濃縮物は、糖化原料中に存在する単糖類を少なくとも10重量%、例えば、少なくとも20重量%、30重量%、40重量%、50重量%、60重量%、70重量%、80重量%、90重量%または実質的に100重量%含み得る。スラリー中の残りの原料は、溶解しているかどうかを問わずリグニンおよびリグニン誘導体のほか、溶解しているかどうかを問わず多糖類を含み得る。例えば、糖化原料中の利用可能な炭水化物の総量が糖化バイオマスのスラリー中40重量%である場合、この原料の少なくとも50%は単糖類であり得（例えば、これは糖化バイオマスのスラリー中、20重量%の単糖類に相当する）、この単糖類のうち少なくとも10重量%（例えば、少なくとも2重量%）がグルコースであり得る。

【0017】

バイオ処理110はこのほか、発酵、糖化後の発酵を含み得る。例えば、バイオ処理は、微生物、例えばアルコールおよび酸（例えば、エタノール、ブタノール、酢酸、乳酸および／または酪酸）を產生する酵母または細菌などの添加による糖の発酵を含み得る。発酵によりほかにも、エステルが直接產生されるか、生成物が化学的にエステルに変換され得る。発酵は、選択的発酵、例えばグルコースのみもしくはキシロースのみの発酵または2つ以上の糖を同時もしくは逐次的に発酵する非選択的発酵であり得る。発酵によってさらに、例えば発酵微生物の細胞残屑および発酵副生成物が加わることにより、スラリーの組成が変化し得る。

【0018】

したがって、バイオマスの糖化および発酵によって得られるバイオ処理済み供給原料は、様々な原料、例えば懸濁または溶解した化合物および／または原料を含み得る。例えば、溶液は、糖、酵素（例えば、酵素の一部、活性酵素、変性酵素）、アミノ酸、栄養素、生細胞、死細胞、細胞残屑（例えば、溶解した細胞、酵母抽出物）、酸、塩基、塩（例えば、ハロゲン化物、硫酸塩およびリン酸塩、アルカリ塩、アルカリ土類金属塩、遷移金属塩）、部分加水分解産物（例えば、セルロースおよびヘミセルロースの断片）、リグニン

10

20

30

40

50

、リグニン残渣、無機固体物（例えば、ケイ酸含有物質、粘土、カーボンブラック、金属）、糖化および／または発酵済みバイオマスの残遺物ならびにその組合せを含み得る。さらに、糖／発酵済み溶液は、芳香族発色団などの着色不純物（例えば、着色物）によって着色し得る。例えば、一部の金属イオン、ポリフェノールおよびリグノセルロース系バイオマスを処理したときに生成または放出されるリグニン由来産物は、着色が濃いものであり得る。着色は、白金 - コバルト ASTM 試験法 D 1 2 0 9 などの様々な方法によって測定され得る。本明細書に記載される方法では、例えば、溶液の着色を白金 - コバルト試験法の単位で約 2 0 0 単位未満（例えば、約 1 0 0 単位未満、約 5 0 単位未満、約 4 0 単位未満、約 3 0 単位未満、約 2 0 単位未満、約 1 0 単位未満、約 5 単位未満、さらには約 1 単位未満）まで減少させることができる。

10

【0019】

バイオ処理済み供給原料（例えば、スラリー）は、約 1 % ~ 2 0 % の総懸濁固体物（TSS）（例えば、約 2 % ~ 約 1 0 % の固体物、約 3 % ~ 9 % の固体物）を含有し得る。必要に応じて、遠心分離によって TSS を減少させ得る。例えば上述の 1 つまたは複数の遠心分離機または振動型膜分離装置（VSEP）1 1 2 を用いた後、TSS は約 0 ~ 約 3 % の固体物（例えば、約 0 ~ 2 %、約 0 . 1 ~ 約 1 %）に減少している。好ましくは、固体物は約 1 % 未満である。固体物の量を減少させることに加え、ろ過段階（例えば、遠心分離機および／または VSEP）によって粒子を除去し、スラリーの粒径分布を修正することができる。例えば、第一ろ過段階によって、粗い粒子、例えば 1 0 0 μm 超（例えば、約 5 0 μm 超、約 4 0 μm 超、約 3 0 μm 超、約 2 0 μm ）の粒子の大部分を除去することができる。したがって、第一の遠心分離段階後の粒子径中央値は、約 1 0 0 μm 未満（約 5 0 μm 未満、約 1 0 μm 未満または場合によっては約 5 μm 未満）であり得る。第二の遠心分離機によって、さらに小さい粒子、例えば 1 0 0 μm ~ 1 μm の粒子を除去することができる。したがって、第二の遠心分離機を用いた後の粒子径中央値は、約 5 0 μm ~ 1 μm （例えば、1 0 ~ 1 μm 、約 5 μm ~ 1 μm ）であり得る。1 つまたは複数のろ過段階の間または限外ろ過段階 1 1 6 の前に、粒子径を増大させ、粒径分布を修正し、かつ／または固体物を増大させるいくつかの工程が含まれ得ることが理解される。このような工程は、例えばタンパク質の変性および／または沈降剤もしくは凝集剤の添加を含み得る。例えば、蒸留時の加熱は、ろ過段階の間または後に実施する場合、タンパク質を変性させるほか、固体物を濃縮して、凝固、凝集および／または凝塊形成を引き起こし得る。

20

【0020】

図 2 は、用い得る方法の 1 つの実施形態および原料の流れを模式的に示している。この実施形態では、ろ過（例えば、遠心分離機および／または VSEP 段階）1 1 2 で得られる供給物 2 1 0 は、少量の総懸濁固体物（TSS）、例えば、（例えば、1 つの遠心分離機段階により）約 3 % 未満の固体物または場合によっては（例えば、1 つまたは複数の遠心分離機段階により）さらに少ない固体物、例えば約 1 % 未満（例えば、約 0 . 5 % 未満、約 0 . 2 % 未満、約 0 . 1 % 未満）などの固体物を含み得る。固体物のパーセントは、乾燥固体物の重量 %（例えば、実施例に記載される乾燥固体物重量 / スラリー重量 × 1 0 0 %）を指す。

30

【0021】

第一の膜ろ過 2 2 0 は、分子量が約 1 0 0 kDa 超（例えば、約 1 5 0 kDa 超、約 2 0 0 kDa）の原料を濃縮物中に保持する（または通過物から原料を排除する）ことを目的とし得る。別の記述では、第一の膜ろ過 2 2 0 は、粒子径が約 0 . 0 5 μm 超（例えば、約 0 . 0 6 μm 超、約 0 . 0 7 μm 超、約 0 . 0 8 μm 超、約 0 . 0 9 μm 超、約 0 . 1 μm 超）の粒子を濃縮物中に保持する（または通過物から粒子を排除する）ことを目的とし得る。精密ろ過は、境界が厳密に定められていない供給物ストリームから約 0 . 0 8 ~ 約 4 μm の原料を除去するものとして分類され得るため、いくつかの実施形態では、精密ろ過形態を用いて濁度を実施し得る。しかし、限外ろ過が全般的に、粒子径が約 0 . 3 μm 未満（分子量約 3 0 0 kDa）、約 0 . 0 0 5 μm 超および約 5 0 kDa のものを供給物蒸気から除去することに関連する場合、限外ろ過形態を用いるのが好ましい。

40

50

【0022】

第一の膜ろ過220によって通過物240および第一の濃縮物230が得られる。第一の濃縮物は供給物よりもTSSが多く、例えば、最大約20%のTSS(例えば、最大約10重量%の固体物、最大約5重量%の固体物)になる。第一の濃縮物にはほかにも、分子量が上記の第一の膜分子量カットオフを上回る分子種の大部分(例えば、約95重量%超、約99重量%超、約99.9重量%超)が含まれる。第一の通過物240はTSSが極めて少なく(例えば、約0.05重量%未満、約0.01重量%未満、約0重量%)、第一の膜の分子量のカットオフを上回る分子種を実質的に全く含まない(例えば、5重量%未満、約1重量%未満、約0.1重量%未満)。したがって、第一の通過物は供給物に比して濁度が大幅に減少している。例えば、供給物は濁度が少なくとも約50ネフェロ分析濁度単位(NTU)(例えば、少なくとも約10NTU、少なくとも5NTU)であり得、第一の通過物は濁度が約5NTU未満(例えば、約1NTU未満)であり得る。ろ過終了時、第一の濃縮物ストリームは通常、体積が供給物体積の約20%未満(例えば、約10%未満、約5%未満または場合によっては約1%未満)になる。ろ過終了時、通過物240は通常、体積が供給物体積の約80%超(例えば、約90%超、約95%超)になる。(例えば、溢流、システムまたは成分の洗い流し、呼び水によって)総体積の一部減少が起こり得るが、それは一般に5%未満(例えば、約1%未満)である。第一のろ過によって、供給物中に存在し得るあらゆる酵母または細菌細胞が除去されることが予想されるため、通過物(例えば、ろ過済み原料)は無菌状態であり得、濃縮物(例えば、ろ過されていない原料)は、供給物ストリームから存在する酵母または細菌細胞を含有し得る。

10

20

30

40

50

【0023】

第一の通過物は第二のフィルター250によってろ過することができ、このろ過段階によって、第二の濃縮物260および第二の通過物または生成物270が生じる。ろ過終了時、第二の濃縮物ストリームは通常、体積が供給物体積の約20%未満(例えば、約10%未満、約5%未満または場合によっては約1%未満)になる。ろ過終了時、第二の通過物または生成物の体積は通常、供給物体積の約80%超(例えば、約90%超、約95%超)になる。第一のろ過の場合と同じく、総体積の一部減少が起こり得るが、それは一般に5%未満(例えば、約1%未満)である。第二のろ過は、約5kDa超(例えば、少なくとも10kDa、少なくとも20kDa、例えば10~100kDaなど)の原料を濃縮物中に保持する(または通過物から排除する)ことを目的とする。第一の通過物中には固体物がほとんど存在しない(例えば、約0.1μm超の粒子は第一の膜を一切通過しない)のが好ましいが、選択する膜のサイズによっては、第二のフィルターにより、大きさが50nm超(例えば、約10nm超、約5nm超)のあらゆる残留固体物または粒子が濃縮物中に保持(または通過物から排除)され得る。したがって、第二のろ過により、ウイルスのほか、オリゴマーならびにポリマーおよび大分子または無機クラスターの多くまたは場合によってはすべてが除去され得る。上記のように、着色物は、例えばリグニンに由来する芳香族発色団などの大分子によるものであり得るため、第二のろ過によってほかにも、第一の通過物が脱色され得る。第二のろ過によって、大部分のイオン種ならびに单量体および二量体糖などの小分子は除去されることはない。

【0024】

例えば生成物270をろ過するため、追加のろ過段階が含まれ得る。例えば、ナノろ過および逆浸透を用い得る。例えば、ナノろ過を用いて、イオン種から糖を分離し、その糖を濃縮することができる。したがって、ナノろ過段階では、高濃度(例えば、糖濃度が約10重量%超、約15重量%超、約20重量%超、約25重量%超、約30重量%超、約35重量%超、約40重量%超、約45重量%超、約50重量%超)の高純度(例えば、水を除いた純度が少なくとも約90mol%、少なくとも約95mol%、少なくとも約99mol%、少なくとも約99.9mol%)の糖溶液のほか、金属イオンを含む通過物が得られる。逆浸透では、純水通過物(例えば、水が少なくとも90mol%、少なくとも95mol%、少なくとも99mol%、少なくとも99.9mol%)のほか、糖(例えば、水およびイオンを除いた糖が少なくとも約90mol%、少なくとも約95m

○ 1 %、少なくとも約 9 9 m o 1 %、少なくとも約 9 9 . 9 m o 1 %) とイオンとを含有する濃縮物が得られる。

【 0 0 2 5 】

既に述べたように、膜分離技術は、供給物 2 1 0 などのバイオマス由来原料の分離（例えば、質の向上）に有用であり得る。好ましくは、ろ過は、クロスフローろ過、例えば上記の精密ろ過、限外ろ過、ナノろ過または逆浸透法などである。従来のろ過（例えば、全量ろ過）では、供給物ストリームが膜表面に対して垂直になるため残屑が堆積し、最終的には妨害的な圧力の蓄積によって流体通過量が減少し、膜の破裂を引き起こし得る。クロスフローろ過では、膜表面に対して接線方向に流れるため、継続的な洗浄作用が起こり、供給物ストリームの残屑および巨大分子による膜汚損層の形成がほとんど抑えられる。

10

【 0 0 2 6 】

クロスフローろ過には複数の異なる形態を用いることができる。例えば、中空糸膜は、密閉されたチューブの中に多数の纖維（例えば、1 0 0 本の纖維）の束を含み得る。中空糸は I D が 0 . 0 1 9 ~ 0 . 1 1 8 インチ（0 . 5 ~ 3 mm）の範囲内にあり、少ない体積に大きい表面積を保有させることができると可能になる。中空糸の大きさから、このようなフィルターは一般に、T S S が極めて少なく、小さい粒子径のみを含む原料に適しており、例えば、飲料水用途の精製に適している。このほか、らせん巻き膜は、高圧で稼働せせることが可能なコンパクトな膜フォーマットであり、懸濁固体物の量が少ない溶液に使用されることが多い。この形態では、ろ過膜は、溶液を通過させるスペーサーを備えた内側の中空のチューブの周りに巻かれている。このらせん状に巻かれた形態により、通過物はこの膜を通過して内部のコアに達する。「管状」として知られる形態は、チューブ外被（例えば、ステンレス鋼）の内部に 1 つまたは複数の管状膜を含むものである。管状膜は、約 1 / 4 ~ 約 1 インチ（約 0 . 6 4 ~ 約 2 . 5 cm）の範囲の内径を有し得る。これらはポリマー材料またはセラミック材料からできたものであり得る。多くの場合、処理量を向上させるため、チューブ外被の内部に複数の管状膜が束ねられており、例えば、長軸または流向に沿って 7 本、1 9 本、3 7 本またはそれ以上の管状膜がハニカム構造になるよう配置されている。膜は、ポリマー材料、例えば、酢酸セルロース（C A）、ポリフッ化ビニリデン（P V D F）、ポリアクリロニトリル（P A N）、ポリプロピレン（P P）、ポリスルホン（P S）、ポリエーテルスルホン（P E S）をはじめとするポリマーからできたものであり得る。膜はほかにも、セラミック材料、例えばチタン、ジルコニウム、アルミニウムおよびシリカの金属酸化物などからできたものであり得る。いくつかの形態では、ポリマーチューブが接着して束になっている。セラミック膜は多くの場合、単一のモノリス構造であり、その中を複数の流路またはチューブが通っている。

20

【 0 0 2 7 】

いくつかの実施形態では、第一のろ過段階および第二のろ過段階に管状膜限外ろ過を用いる。他の実施形態では、少なくとも第一のろ過段階には管状膜ろ過装置を用い、それに続くろ過段階にはらせん巻き膜またはマイクロファイバー膜ろ過形態を用い得る。

30

【 0 0 2 8 】

限外ろ過を用いて稼働するとき、入口圧は約 9 0 ~ 約 5 0 0 P S I G（約 6 2 0 ~ 約 3 4 0 0 k P a）（例えば、約 1 0 0 ~ 約 2 5 0 P S I G（約 6 9 0 ~ 約 1 7 0 0 k P a））であり得、出口圧は約 2 0 ~ 約 4 3 0 P S I G（約 1 4 0 ~ 約 3 0 0 0 k P a）（例えば、約 2 0 ~ 約 1 5 0 P S I G（約 1 4 0 ~ 約 1 0 0 0 k P a））に低下すると予想される。稼働時、注入口と出口圧との差は、例えば約 7 0 ~ 約 1 2 0 P S I G であり得る。例えば、上記の圧力は、1 0 ~ 1 2 個の連続した膜モジュールであって、各モジュールが、長さが少なくとも 1 2 フィート（約 3 7 0 cm）の 1 9 本のチューブの束になった直径 1 / 2 インチ（約 1 . 3 cm）のチューブの管状形態を有するモジュールを連続して通過することと関係がある。

40

【 0 0 2 9 】

稼働温度は約 3 0 ~ 約 7 0 （例えば、約 4 0 ~ 約 6 5 、約 4 0 ~ 約 5 0 ）であり得る。稼働温度は、例えば加熱機または冷却機（例えば、熱交換機）を用いて制御するこ

50

とができる。温度を高くすると通過流速が増大し得る。膜が汚れ、通過物処理量が減少（例えば、ろ過ユニットへの流入量が約1%未満、例えば約0.5%未満、約0.1%未満）した場合、洗浄液（例えば、苛性アルカリ溶液）を流して膜を洗い流すことにより洗浄することができる。洗浄液を加熱して、加工流体と同じになるよう制御することもできる。

【0030】

図3は、直列または多段ろ過システム300の実施形態およびその使用方法を模式的に示している。例えば、第一の供給物タンク310を（例えば、1%未満のTSSを含有する）供給物210で満たす。供給物タンクは、例えば、流量制御バルブ314を備え注入口316を介してタンクと流体接続されたチューブまたはパイプ312を通して満たし得る。第一のタンクが所望のレベル（例えば、少なくとも内容積の90%、少なくとも内容積の50%）まで満たされたとき、制御バルブによってスラリー210の流入を遮断するか減少させ得る。次いで、第一のポンプ318がまだ起動していなければ起動させ得る。ポンプは、第一の供給物タンクから流体を送り出して第一の膜ろ過ユニット320を通して、注入口317を通して供給物タンクに戻す。ポンプ318がもたらす圧力（例えば、入口圧）によって処理液体が膜チューブの中を進み、一部の液体は第一の膜フィルターユニットの膜を通って第一の通過物240を形成し、これがチューブ362の中を流れる。ポンプは出口319を介して供給物タンクと流体接続されており、チューブ364を介して第一の膜フィルターユニット320の注入口322と流体接続されている。図3には第一の膜フィルターユニットが単に模式的に示されており、図中、対角線328は、濃縮物側と通過物側とを隔てるカットオフ200kDaの膜フィルターを表す。実際には、第一の膜フィルターユニットの形態は、例えば、各モジュールを接続するリベンド（例えば、Uベンドによってよりコンパクトな三次元配置が可能になる）を有する膜モジュールに束ねられた1/2インチ（約1.3cm）のチューブの一連の通路を含み得る。溶液が通過する膜モジュール（例えば、一連のモジュール）の長さは、約120～約144フィート（約37～約44m）である。例えば、第一の膜フィルターユニットは、約10～約12個のモジュールを含み、各モジュールは、それぞれ約12フィート（約370cm）の長さのチューブ37本からなる束チューブを含み得る。膜フィルターユニット形態は一般に、全管状膜の注入口となる注入口322と、全管状膜の濃縮物／保持物の出口となる出口324と、全管状膜の通過物の出口となる出口326とを含むべきである。出口324は、保持物返還チューブ230および注入口317と接続されている。

【0031】

第一の通過物240は、チューブ362を通って貯蔵タンク330（例えば、オーバーフロータンクまたはバッファータンク）に供給される。貯蔵タンクは、チューブ362を介して第一のろ過ユニットと接続され、チューブ332を介して第二の供給物タンク340と接続されている。任意選択で、ポンプ（図示されていない）を用いて貯蔵タンク内の第一の通過物240をチューブ332に送り出す。上記のものに代えてまたは加えて、第一の通過物を重力によって貯蔵タンクから第二の供給物タンクに流すことができる。第二の供給物タンク340は、例えば注入口316および317と、出口319と、第二のポンプ348と、流体接続チューブ332および364とを有する、第一の供給物タンクと同様に設計され得る。第二の膜ろ過ユニット350は、第一の膜ろ過ユニットと同様に設計され得る。好ましくは、第二の膜ろ過ユニット350の第二の膜358は、第一のろ過ユニット324の第一の膜328よりも分子量カットオフおよび/または粒子径カットオフが小さく、例えば、膜358は、分子量カットオフが約2～100kDa（例えば、10～100kDa）になるよう選択され得る。第二のろ過の通過物（例えば、第二の通過物または生成物）270は、チューブを通って貯蔵タンク（図示されていない）および/またはその他の処理に送られ得る。

【0032】

各ユニットの稼働時、例えば、原料が管状膜の各チューブの中を少なくとも1GPMの速度、例えば約1～約20GPM（約3.8～約761/分）（例えば、約2～約10G

10

20

30

40

50

PM（約7.6～約381／分）、約4～約6GPM（約15～約231／分）の流速で流れるように、供給原料を速い速度で循環させる。このストリームのうち一部のみが膜を通過し、例えば、スラリーの組成（例えば、存在するTSSおよび分子種などの組成特性）および選択する膜（例えば、分子量カットオフおよび／または粒子径カットオフ）に応じてストリームの約1～10%が通過物となる（またはこれを形成する）。膜に対する入口圧を慎重にモニターし、90～約500PSIG（約620～約3400kPa）にすることを目標とする。出口圧も同様にモニターし、目標範囲を約20～約143PSIG（約140～約990kPa）とする。圧力は、出口バルブを絞るか、（例えば、可変周波数駆動、VFDを用いて）ポンプスピードを調節することによって調節することができる。

10

【0033】

膜フィルターの分離工程およびストリームの再循環によって、供給物タンク内の流体は選択した膜を通過することができない粒子または分子の濃度が上昇し、供給物タンク内の濃縮物は膜によって排除された粒子および／または分子種のレベルがさらに増大する。供給物タンクが元の体積の約10%まで減少したとき、ろ過が終了したものと見なし、第一の供給物タンク310または第二の供給物タンク340から濃縮物を取り出し、各タンクにそれぞれスラリー210または通過物240を補充し得る。

【0034】

システム300はバッチ方式で稼働させ得る。例えば、バッチ法では、所望の量の通過物が貯蔵タンク330に収集され、かつ／またはタンク310の供給物タンク体積が所望の目標まで減少したとき、第一の供給物タンク310を満たし、第一の膜フィルターユニットで処理する。バッチが処理されたら、第一の供給物タンクに補充することができる。第二の膜ろ過も通過物貯蔵タンク内の原料を用いて同様に稼働させて、第二の供給物タンク340を満たすことができる。膜フィルターユニットの処理速度は、中断時間が最小限に抑えられるよう最適にバランスを取る。例えば、バッチ稼働のいくつかの好ましい実施形態では、供給物タンクを同時に満たし、両方の膜フィルターユニットを同時に稼働させる。この工程を稼働させるには、2つの膜フィルターユニットを異なる形で（例えば、異なる圧力で）稼働させ、かつ／または異なる形態のフィルター膜チューブ（例えば、チューブの長さが異なるものおよび／または並行するチューブの数が異なるもの）を用いることが必要となり得る。このほか、この工程を（例えば、1つのフィルターユニット320などを用いて）1つの第一のろ過段階またはシステムで稼働させ、次いで、このストリームを（例えば、2つ、3つ、4つまたはそれ以上の第二のフィルターユニット350などを用いて）並行して稼働させている2つ、3つ、4つまたはそれ以上の第二のろ過段階またはシステムに分岐させる。任意選択で、2つ、3つ、4つまたはそれ以上の第一のろ過段階を並行して使用し、次いで、その複数のストリームを単一のストリームにまとめ、第二のろ過段階を用いることによって、この工程を実施することもできる。

20

【0035】

システム300はほかにも、半連続的方法で稼働させ得る。例えば、供給物タンクの体積が減少したとき、それぞれスラリー210または通過物240を補充し得る。濃縮物230および／または260に含まれる分子種の濃度が目標値になったとき、それぞれの供給物タンクから濃縮物を取り出し、それぞれ新鮮なスラリーまたは通過物と入れ換える。目標値は、例えば、供給物タンクの溶液の分析（例えば、濁度、粒子濃度および／または化学組成の分析）および／またはフィルター膜における圧力変化のモニタリングによって決定され得る（例えば、入口圧が設定値、例えば約100psi（約690kPa）超、約120psi（約830kPa）超または約150psi（約1030kPa）超に達したとき、その濃縮物はそれ以上膜で処理できないと判断され得る）。

30

【0036】

供給物タンクおよび貯蔵タンクは、様々な体積を処理するのに合わせて大きさを調整し得る。例えば、いくつかの実施形態では、システム300を約330kgal（約1200kL）/日（例えば、約230gall（約870L）/分）で処理できるよう設計する

40

50

。したがって、バッチ式で稼働させる場合、供給物タンクは 330 kgal (約 1200 k1) 収容できるよう設計され得る。いくつかの実施形態では、供給物タンクを複数のタンク、例えば 3 つの 100 kgal (約 380 k1) タンクまたは 6 つの 50 kgal (約 190 k1) タンクに分割し得る。これ以外にも、例えば 1 日当たり約 100 gal ~ 100 kgal (約 380 l ~ 約 380 k1) (例えば、50 ~ 500 gal (約 190 ~ 約 1900 l)、500 gal ~ 1000 gal (約 1900 l ~ 約 3800 l)、1000 gal ~ 10000 gal (約 3800 l ~ 約 38000 l)) などの少ない体積を処理できる形態を設計し得る。これ以外にも、500 kgal (約 1900 k1) / 日超、例えば 1000 kgal (約 3800 k1) / 日超を処理できる形態を設計し得る。

【0037】

10

実験

糖化

糖化には、ASME 鉢形ヘッド (頂部および底部) を備えた直径 32 インチ (約 81 cm) 、高さ 64 インチ (約 160 cm) の円柱型タンクを用いた。タンクはほかにも、幅 16 インチ (約 41 cm) の水中翼攪拌ブレードを備えていた。タンクを取り囲むハーフパイプジャケットの中に熱水を流すことによって加熱した。

【0038】

20

タンクに水 200 kg、バイオマス 80 kg および DUE T (商標) セルラーゼ酵素 18 kg を入れた。バイオマスは、ハンマーミルで粉碎し 40 ~ 10 メッシュの大きさの篩にかけたトウモロコシ穂軸とした。バイオマスはほかにも、総線量 35 Mrad になるまで電子ビームを照射しておいた。Ca(OH)₂ を用いて混合物の pH を 4.8 に調整し、糖化全体を通じてこれを維持した。この混合物を 53 ℃ に加熱し、180 rpm (460 V で 1.8 A) で約 24 時間攪拌した後、糖化が終了したものと見なした。

【0039】

この原料の一部を 20 メッシュの篩にかけ、溶液を 8 gal (約 30 l) のカルボイに入れて 4 ℃ で保管した。

【0040】

30

バイオマスによるエタノールおよびキシロースストリームの生成

糖化し篩にかけた原料約 400 mL を 1 L の New Brunswick Biowflow 115 バイオリアクターの中に傾瀉した。原料に通気し 30 ℃ に加熱した後、接種した。攪拌を 50 rpm に設定した。pH の測定値は 5.2 であり、この値は発酵に許容されるため、調整しなかった。通気を止め、バイオリアクターの内容物に THERMOS ACC (登録商標) 乾燥酵母 (Lallemand 社) を 5 mg 接種した。約 24 時間発酵させた。

【0041】

40

発酵後、グルコース濃度は検出下限値未満、エタノール濃度は約 25 g / L 、キシロース濃度は 30 g / L であった。

【0042】

遠心分離実験

規模を拡大したこと (300 gal (約 1100 l)) 以外は上記のものと同様にトウモロコシ穂軸を糖化し発酵させた。さらに、(酵素による加水分解の前に) 100 ~ 160 ℃ で加熱することによりトウモロコシ穂軸を前処理した。下の表 1 の固形物のパーセントおよび粒子径のデータは 3 つの工程ストリーム試料、すなわち、A. 発酵後、B. デカンタ遠心分離機を用いた後および C. デカンタ遠心分離した原料を取り出して約 90 ℃ に加熱し、ディスク遠心分離機を用いて原料をさらに処理した後の試料から得られたものである。第二の高速デカンタ遠心分離機によって、ディスク遠心分離機とほぼ同じ粒径分布が得られ、総懸濁固形物 (TSS) が減少すると予想される。

【0043】

50

デカンタ遠心分離機 (US centrifuge 社) を 2000 g の遠心力で稼働させ、25 ~ 100 gal / 分で原料を処理した。

【0044】

ディスク遠心分離機は、567723 - 06 / - 08 ボウルを備えた Clara 80 Low Flow 遠心分離機 (Alfa Laval 社)とした。遠心分離機は約 700 0 ~ 8000 rpm で稼働させ、約 0.5 ~ 1 gal (約 1.9 ~ 3.8 l) / 分で処理した。

【0045】

以下の通りに各試料を調製した。試料 50.0 mL の風袋を測定した後、Cornинг フィルター (パート 431117) を用いてろ過し、ろ塊を得た。ろ塊を脱イオン水で 3 回乾燥させ、次いで、真空オーブン (Fisher Isotemp Model 281A) 中、70、29 インチ Hg (約 740 mmHg) で一晩 (約 18 時間) 乾燥させた。乾燥後、乾燥ろ塊の重量を測定した。総懸濁固体物 (TSS) を重量および体積によって計算し、表 1 に記載した。

10

【0046】

TSS に加え、Mettler Toledo Focused Beam Reflectance measurement Model Particle Trace E 25 を用いた粒子径分析に試料を供した。粒子径中央値を表 1 に記載する。粒径分布を試料 A については図 4、試料 B については図 5、試料 C については図 6 にプロットする。

20

【0047】

表 1 からわかるように、デカンタ遠心分離機を用いて遠心分離を 1 回実施することにより固体物レベルが約 50 % 減少した。第二の遠心分離段階により、固体物レベルを例えれば約 3 % から約 0.2 % まで、さらに減少させることができる。

【0048】

【表 1】

試料	固体物%(wt/wt)	%固体物(wt/vol)	粒子径中央値(μm)
A	6.1	6.4	6.12
B	3.0	3.2	4.8
C	0.21	0.22	6.53

【0049】

30

限外ろ過実験

限外ろ過を用いて、上記のようにデカンタ遠心分離機で得られた工程ストリームを精製し得る。デカンタ遠心分離機で得られた固体物を約 0.21 % 含有する工程ストリーム 50 ガロン (約 190 l) をバイロットランのタンジェンシャル限外ろ過システムで処理し得る。限外ろ過膜では、A 37 管状膜モジュール (PCI membranes 社、ハミルトン、オハイオ州) を用いて 1 回通過させる。第一の膜フィルターは、カットオフが 200 kDa (約 0.1 μm) の管状膜であり得る。原料をこの膜に約 5 ~ 6 GPM (約 19 ~ 約 23 l / 分) の供給速度で通して処理する。約 24 時間後、この第一のモジュールによるろ過が終了し、約 90 gal (約 340 l) の通過物と 10 gal (約 38 l) の濃縮物が得られる。カットオフが 20 kDa の A 37 管状膜モジュールを用いて、90 gal (約 340 l) の通過物を 5 ~ 6 GPM (約 19 ~ 約 23 l / 分) の速度で 1 回通過させて処理する。この処理によって約 80 gal (約 300 l) の通過生成物と 10 gal (約 38 l) の濃縮物が得られる。

40

【0050】

照射処理

リグノセルロース系またはセルロース系原料などの供給原料を照射により処理してその構造を変化させ、その抵抗性を減少させ得る。このような処理によって、例えば、供給原料の平均分子量が小さくなり、供給原料の結晶構造が変化し、かつ / または供給原料の表面積および / または多孔度が増大し得る。照射は、例えば、電子ビーム、イオンビーム、100 nm ~ 28 nm の紫外 (UV) 光、ガンマ線または X 線の照射によるものであり得

50

る。照射処理および処理システムについては、米国特許第8,142,620号および米国特許仮出願第12/417,731号（その開示全体が参照により本明細書に組み込まれる）で論じられている。

【0051】

各形態の照射は、照射のエネルギーによって決まる特定の相互作用を介してバイオマスをイオン化するものである。重荷電粒子はクーロン散乱を介して物質をイオン化し、さらにこの相互作用によって、物質をさらにイオン化し得るエネルギー電子が生じる。アルファ粒子はヘリウム原子の核と同じものであり、ビスマス、ポロニウム、アスタチン、ラドン、フランシウム、ラジウム、数種類のアクチニド、例えばアクチニウム、トリウム、ウラン、ネプツニウム、キュリウム、カリホルニウム、アメリシウムおよびプルトニウムなどの同位体のような様々な放射性核種のアルファ崩壊によって生じる。電子は、クーロン散乱および電子の速度の変化によって制動放射を介して相互作用する。

10

【0052】

粒子を用いる場合、それは中性（非荷電）、正荷電、負荷電のいずれであってもよい。荷電粒子である場合、その粒子は単一の正電荷もしくは負電荷を帯びていても、複数の電荷、例えば1つ、2つ、3つまたは4つ以上の電荷を帯びていてもよい。炭水化物を含有する原料の分子構造を変化させるために鎖の切断が望まれる場合、一部には酸性の性質であるという理由から、正荷電粒子が望ましい場合がある。粒子を用いる場合、粒子は静止電子以上の質量、例えば、静止電子の500倍、1000倍、1500倍または2000倍以上の質量を有し得る。例えば、粒子は約1原子単位～約150原子単位、例えば、約1原子単位～約50原子単位または約1～約25、例えば1、2、3、4、5、10、12または15原子単位の質量を有し得る。

20

【0053】

ガンマ線には、試料中の様々な物質への透過深度がきわめて大きいという利点がある。

【0054】

電磁放射線を用いて照射を実施する実施形態では、電磁放射線は、例えば、1光子当たりのエネルギー（電子ボルトで表される）が 10^2 eV超、例えば、 10^3 eV超、 10^4 eV超、 10^5 eV超、 10^6 eV超または場合によっては 10^7 eV超であり得る。いくつかの実施形態では、電磁放射線は、1光子当たりのエネルギーが 10^4 ～ 10^7 eV、例えば 10^5 ～ 10^6 eVである。電磁放射線は、周波数が例えば、 10^{16} Hz超、 10^{17} Hz超、 10^{18} Hz超、 10^{19} Hz超、 10^{20} Hz超または場合によっては 10^{21} Hz超であり得る。いくつかの実施形態では、電磁放射線は、周波数が 10^{18} ～ 10^{22} Hz、例えば 10^{19} ～ 10^{21} Hzである。

30

【0055】

公称エネルギーが 10 MeV 未満、例えば、 7 MeV 未満、 5 MeV 未満または 2 MeV 未満、例えば、約 0.5 ～ 1.5 MeV 、約 0.8 ～ 1.8 MeV または約 0.7 ～ 1 MeV の電子ビーム装置を用いて、電子衝撃を実施し得る。いくつかの実施形態では、公称エネルギーは約 500 ～ 800 keV である。

【0056】

電子ビームは総ビーム出力（全加速ヘッドのビーム出力の合計、あるいは複数の加速器を用いる場合は全加速器と全ヘッドの合計）が比較的高いもの、例えば、少なくとも 25 kW 、例えば、少なくとも 30 、 40 、 50 、 60 、 65 、 70 、 80 、 100 、 125 または 150 kW のものであり得る。いくつかの場合には、出力が 500 kW 、 750 kW または場合によっては 1000 kW かそれ以上の高さであり得る。いくつかの場合には、電子ビームのビーム出力は 1200 kW またはそれ以上、例えば、 1400 kW 、 1600 kW 、 1800 kW または場合によっては 300 kW である。

40

【0057】

この高い総ビーム出力は通常、複数の加速ヘッドを用いることにより達成される。例えば、電子ビームは加速ヘッドを2つ、4つまたはそれ以上備えたものであり得る。各ヘッドのビーム出力が比較的低い複数のヘッドを使用することにより、原料の過剰な温度上昇

50

が抑えられ原料の燃焼が防止されるほか、原料の層の厚さ全体にわたる照射量の均一性も増大する。

【0058】

一般に、バイオマス原料の層は厚さが比較的均一であるのが好ましい。いくつかの実施形態では、厚さは約1インチ(約2.5cm)未満(例えば、約0.75インチ(約1.9cm)未満、約0.5インチ(約1.3cm)未満、約0.25インチ(約0.64cm)未満、約0.1インチ(約0.25cm)未満、約0.1~1インチ(約0.25~約2.5cm)、約0.2~0.3インチ(約0.51~約0.76cm))である。

【0059】

原料はできる限り迅速に処理するのが望ましい。一般に、毎秒約0.25Mrad超、例えば、毎秒約0.5、0.75、1、1.5、2、5、7、10、12、15Mradまたは毎秒約20Mrad超、例えば、毎秒約0.25~2Mradの線量率で処理を実施するのが好ましい。一般に線量率を高くすると、原料の熱分解を避けるため、線速度を速くする必要がある。一実施形態では、厚さ約20mmの試料(例えば、かさ密度0.5g/cm³の破碎トウモロコシ穂軸原料)に対して、加速器を3MeV、ビーム電流50mA、線速度を24フィート(約7.3m)/分に設定する。

【0060】

いくつかの実施形態では、原料に少なくとも0.1Mrad、0.25Mrad、1Mrad、5Mrad、例えば、少なくとも10、20、30または少なくとも40Mradの総線量が照射されるまで電子衝撃を実施する。いくつかの実施形態では、原料に約10Mrad~約50Mrad、例えば、約20Mrad~約40Mradまたは約25Mrad~約30Mradの線量が照射されるまで処理を実施する。いくつかの実施形態では、理想的には、例えば通過毎に5Mrad/通過で約1秒間照射する形で数回通過させて総線量25~35Mradを照射するのが好ましい。照射前、照射時、照射後および照射と照射の間に、例えば冷却スクリューコンベアおよび/または冷却振動コンベアを用いる冷却法、冷却システムおよび冷却設備を使用し得る。

【0061】

上述のように複数のヘッドを用いて、原料を複数回通過させて、例えば、10~20Mrad/通過、例えば12~18Mrad/通過で数秒間の冷却時間を置いて2回通過させて、または7~12Mrad/通過、例えば5~20Mrad/通過、10~40Mrad/通過9~11Mrad/通過で3回通過させて処理し得る。本明細書に記載されるように、原料を高線量で1回処理するのではなく、比較的低線量で数回処理すると、原料の過熱を防止しやすいことに加えて、原料の厚さ全体にわたる線量の均一性が増大する。いくつかの実施形態では、次の通過を実施する前に、各回の間または後に原料を攪拌するか別の方法でかき混ぜてから、均一な層にならし、処理の均一性をさらに増大させる。

【0062】

いくつかの実施形態では、例えば、光速の75パーセント超、例えば光速の85パーセント超、90パーセント超、95パーセント超または99パーセント超の速度まで電子を加速する。

【0063】

いくつかの実施形態では、入手時から乾燥しているか、例えば加熱および/または減圧を用いて乾燥させたりグノセルロース系原料に本明細書に記載される任意の処理を実施する。例えば、いくつかの実施形態では、セルロース系および/またはリグノセルロース系原料は、25%、相対湿度50パーセントで測定した残存水分量が約25重量パーセント未満(例えば、約20重量%未満、約15重量%未満、約14重量%未満、約13重量%未満、約12重量%未満、約10重量%未満、約9重量%未満、約8重量%未満、約7重量%未満、約6重量%未満、約5重量%未満、約4重量%未満、約3重量%未満、約2重量%未満、約1重量%未満または約0.5重量%未満)である。

【0064】

いくつかの実施形態では、2種類以上のイオン源、例えば2種類以上の電子源などを使

10

20

30

40

50

用し得る。例えば、試料を任意の順序で、電子ビーム、次いでガンマ線および波長が約100nm～約280nmのUV光で処理し得る。いくつかの実施形態では、3種類の電離放射線源、例えば電子ビーム、ガンマ線およびエネルギーUV光などで試料を処理する。バイオマスを運搬して処理ゾーンを通過させ、そこで電子による衝撃を加え得る。

【0065】

処理を繰り返し、バイオマスの抵抗性をさらに徹底的に減少させ、かつ／またはバイオマスをさらに変化させるのが有利な場合がある。具体的には、原料の抵抗性に応じて、最初の通過の後（例えば、2回目、3回目、4回目またはそれ以降の通過）に処理パラメータを調整し得る。いくつかの実施形態では、バイオマスが上記の各種工程の中を複数回運搬される循環システムを備えたコンベアを用い得る。他のいくつかの実施形態では、複数の処理装置（例えば、電子ビーム発生装置）を用いてバイオマスを複数回（例えば、2回、3回、4回またはそれ以上）処理する。また別の実施形態では、単一の電子ビーム発生装置をバイオマスの処理に使用することができる複数（例えば、2つ、3つ、4つまたはそれ以上）のビームの発生源にしてもよい。

10

【0066】

炭水化物含有バイオマスの分子／超分子構造を変化させる効果および／または抵抗性を減少させる効果は使用する電子エネルギーおよび照射する線量によって左右されるのに対して、曝露時間は出力および線量によって決まる。いくつかの実施形態では、バイオマス原料が破壊される（例えば、焦げる、または燃焼する）ことがないように線量率および総線量を調節する。例えば、炭水化物は、バイオマスから無傷の状態で、例えば単量体糖として放出され得るよう処理中に損傷を受けないようにするべきである。

20

【0067】

いくつかの実施形態では、原料に少なくとも約0.05Mrad、例えば、少なくとも約0.1Mrad、0.25Mrad、0.5Mrad、0.75Mrad、1.0Mrad、2.5Mrad、5.0Mrad、7.5Mrad、10.0Mrad、15Mrad、20Mrad、25Mrad、30Mrad、40Mrad、50Mrad、60Mrad、70Mrad、80Mrad、90Mrad、100Mrad、125Mrad、150Mrad、175Mradまたは200Mradの線量が照射されるまで（任意の電子源または電子源の組合せを用いて）処理を実施する。いくつかの実施形態では、0.1～100Mrad、1～200Mrad、5～200Mrad、10～200Mrad、5～150Mrad、50～150Mrad、5～100Mrad、5～50Mrad、5～40Mrad、10～50Mrad、10～75Mrad、15～50Mrad、20～35Mradの線量が照射されるまで処理を実施する。

30

【0068】

いくつかの実施形態では、（本明細書に記載される任意の線源または線源の組合せによる）比較的低線量の照射を用いて、例えば、セルロース系またはリグノセルロース系原料の分子量を増大させる。例えば、少なくとも約0.05Mrad、例えば、少なくとも約0.1Mradまたは少なくとも約0.25Mrad、0.5Mrad、0.75Mrad、1.0Mrad、1.5Mrad、2.0Mrad、2.5Mrad、3.0Mrad、3.5Mrad、4.0Mradまたは少なくとも約5.0Mradの線量。いくつかの実施形態では、原料に0.1Mrad～2.0Mrad、例えば、0.5Mrad～4.0Mradまたは1.0Mrad～3.0Mradの線量が照射されるまで照射を実施する。原料内に照射が所望の程度透過するように、複数の方向から同時にまたは順次照射するのが望ましい場合もある。例えば、木材などの原料の密度および水分含有量ならびに使用する線源（例えば、ガンマビームまたは電子ビーム）に応じて、原料内への照射の透過の最大値はわずか約0.75インチ（約1.9cm）であり得る。このような場合、最初に片側から原料に照射し、次いで、原料を裏返してもう一方の側から照射することによって、さらに厚い部分（最大1.5インチ）を照射することができる。複数の方向からの照射は、照射速度はガンマ線よりも速いが透過深度は通常ガンマ線に及ばない電子ビームの照射特に有用であり得る。

40

50

【0069】

放射線不透過性材料

本発明は、放射線不透過性材料を用いて建造されたボルトおよび／またはバンカー内の原料（例えば、リグノセルロース系またはセルロース系供給原料）を処理することを含み得る。一実施形態では、多くの材料を通過することが可能な高エネルギー（短波長）のX線から成分を遮蔽するため、放射線不透過性材料を選択する。放射線を遮蔽する囲いを設計するうえで重要な因子の1つは使用する材料の減衰長であり、これによって特定の材料、材料の混合物または層構造に必要な厚さが決まる。減衰長とは、放射線が入射放射線の約 $1/e$ （ $e = \text{オイラー数}$ ）倍まで減少する透過距離のことである。十分な厚さがあれば、実質的にあらゆる材料が放射線不透過性になるが、Z値（原子番号）の大きい元素の組成割合（例えば、密度）が高い材料の方が放射線の減衰長が短く、したがって、このような材料を使用すれば、より薄くて軽い遮蔽をもたらすことができる。放射線遮蔽に使用される高Z値材料の例として、タンタルおよび鉛がある。放射線遮蔽に重要なまた別のパラメータには半減距離があり、これはガンマ線強度が50%減少する特定の材料の厚さのことである。一例を挙げれば、エネルギーが0.1 MeVのX線照射では、半減厚さはコンクリートが約15.1 mm、鉛が約2.7 mmとなり、X線エネルギーが1 MeVであれば、コンクリートの半減厚さは約44.45 mm、鉛の半減厚さは約7.9 mmとなる。放射線不透過性材料は、反対側まで通過する放射線を減少させることができる限り、厚い材料であっても薄い材料であってもよい。したがって、例えば重量を軽くするため、または大きさに制約があるため、特定の囲いの壁厚を薄くすることが望まれるのであれば、選択する材料は、半減長が囲いの所望の壁厚以下になるのに十分なZ値および／または減衰長を有するべきである。

10

20

30

40

【0070】

いくつかの場合には、放射線不透過性材料は、例えば、優れた遮蔽をもたらすZ値の高い材料の層と、その他の特性（例えば、構造統合性、衝撃耐性など）をもたらすZ値の低い材料とを有する層状の材料であり得る。いくつかの場合には、層状の材料は、例えば、いくつかの層によって高Z元素から低Z元素までの連続的な勾配が生じる積層物を含めた、「段階的Z」積層構造であり得る。いくつかの場合には、放射線不透過性材料はインターロッキングブロックであり得、例えば、鉛および／またはコンクリートのブロックがNELCO Worldwide社（バーリントン、マサチューセッツ州）によって供給可能であり、再構成可能なボルトを用いることができる。

30

【0071】

放射線不透過性材料によって、その材料から形成される構造物（例えば、壁、ドア、天井、囲い、その一連のものまたはその組合せ）を通過する放射線が、入射放射線よりも少なくとも約10%、（例えば、少なくとも約20%、少なくとも約30%、少なくとも約40%、少なくとも約50%、少なくとも約60%、少なくとも約70%、少なくとも約80%、少なくとも約90%、少なくとも約95%、少なくとも約96%、少なくとも約97%、少なくとも約98%、少なくとも約99%、少なくとも約99.9%、少なくとも約99.99%、少なくとも約99.999%）減少し得る。したがって、放射線不透過性材料でできた囲いによって、設備／システム／構成要素の曝露量が上と同じ量だけ減少し得る。放射線不透過性材料は、ステンレス鋼、Z値が25超の金属（例えば、鉛、鉄）、コンクリート、土、砂およびその組合せを含み得る。放射線不透過性材料は、入射放射線の方向に少なくとも約1 mm（例えば、5 mm、10 mm、5 cm、10 cm、100 cm、1 m、場合によっては少なくとも約10 m）の遮断壁を含み得る。

40

【0072】

線源

供給原料（例えば、リグノセルロース系またはセルロース系原料）の処理に用いる照射線の種類によって、使用する線源の種類ならびに照射装置およびその関連設備が決まる。本明細書に記載される照射線で原料を処理する方法、システムおよび設備は、本明細書に記載される入手源のほかにも、他の任意の有用な入手源用いるものであり得る。

50

【0073】

ガンマ線源としては、放射性核種、例えばコバルト、カルシウム、テクネチウム、クロム、ガリウム、インジウム、ヨウ素、鉄、クリプトン、サマリウム、セレン、ナトリウム、タリウムおよびキセノンの同位体などが挙げられる。

【0074】

X線源としては、電子ビームとタンゲステン、モリブデンもしくは合金などの金属標的との衝突または小型光源、例えばLyncean社が商用に製造しているものなどが挙げられる。

【0075】

アルファ粒子はヘリウム原子の核と同じものであり、ビスマス、ポロニウム、アスタチン、ラドン、フランシウム、ラジウム、数種類のアクチニド、例えばアクチニウム、トリウム、ウラン、ネプツニウム、キュリウム、カリホルニウム、アメリシウムおよびプルトニウムなどの同位体のような様々な放射性核種のアルファ崩壊によって生じる。

10

【0076】

紫外線源としては、ジュウテリウムまたはカドミウムランプが挙げられる。

【0077】

赤外線源としては、サファイア、亜鉛またはセレン化物ウィンドウのセラミックランプが挙げられる。

【0078】

マイクロ波源としては、クライストロン、Slevin型RF源または水素、酸素もしくは窒素ガスを用いる原子ビーム源が挙げられる。

20

【0079】

粒子を加速するのに使用する加速器は静電DC型、動電DC型、RFリニア型、磁気誘導リニア型または連続波型のもので得る。例えば、サイクロトロン型の加速器は、RHODOTRON(商標)システムなどがベルギーのIBA社から入手可能であり、DC型の加速器は、DYNAMITRON(登録商標)などがRDI社(現IBA Industrial社)から入手可能である。イオンおよびイオン加速器については、Introductory Nuclear Physics, Kenneth S. Krane, John Wiley & Sons社(1988)、Krsto Prelec, FIZIKA B 6(1997)4, 177-206、Chu, William T., "Overview of Light-Ion Beam Therapy", Columbus-Ohio, ICRU-IAEA Meeting, 18-20 March 2006、Iwata, Y.ら, "Alternating-Phase-Focused IH-DTL for Heavy-Ion Medical Accelerators", Proceedings of EPAC 2006, Edinburgh, ScotlandおよびLeitner, C.M.ら, "Status of the Superconducting ECR Ion Source Venus", Proceedings of EPAC 2000, Vienna, Austriaで論じられている。

30

【0080】

電子はヨウ素、セシウム、テクネチウムおよびイリジウムなどの同位体のようなベータ崩壊する放射性核種によって生じ得る。あるいは、熱電子放出を介する電子源として電子銃を使用し、加速電位により加速することができる。電子銃が電子を発生させ、次いで電子が高い電位により加速され(例えば、約50万ボルト超、約100万ボルト超、約200万ボルト超、約500万ボルト超、約600万ボルト超、約700万ボルト超、約800万ボルト超、約900万または1000万ボルト超)、次いで電子をx-y平面で磁的に走査するものであり、電子は最初に加速器管を通ってz方向に加速され、箔窓から取り出される。電子ビームの走査は、走査ビームの中を通って運搬される原料、例えばバイオマスを照射する際に照射表面を増大させるのに有用である。このほか電子ビームの走査により、熱負荷が窓に均一に分布し、電子ビームによる局部加熱に起因する箔窓破裂が減

40

50

少する。窓箔が破裂すると、それに続いて必要となる修理と電子銃の再始動による長い中断時間の原因となる。

【0081】

本明細書に開示される方法には、電界イオン化源、静電イオン分離器、電界イオン化発生装置、熱電子放出源、マイクロ波放電イオン源、再循環型または静止型加速器、動的リニア型加速器、バンデグラーフ加速器および折り返し型タンデム加速器を含めた他の様々な照射装置を用いることができる。このような装置は、例えば、Medoffに対する米国特許第7,931,784号（開示全体が参照により本明細書に組み込まれる）に開示されている。

【0082】

電子ビームを線源として用いることができる。電子ビームには線量率が高く（例えば、毎秒1、5または10Mrad）、ハイスループットで、封じ込め設備および閉じ込め設備が比較的小さいという利点がある。電子ビームはほかにも、電気効率が高く（例えば、80%）、他の照射方法よりも使用エネルギーを少なくすることが可能であることから、使用エネルギー量が少ない分だけ稼働コストおよび温室効果ガス放出量の削減につながる可能性がある。電子ビームは、例えば、静電起電機、カスケード起電機、変圧起電機、スキャニングシステムを備えた低エネルギー加速器、リニアカソードを備えた低エネルギー加速器、線形加速器、パルス加速器によって発生させることができる。

【0083】

電子はほかにも、例えば鎖切断機序によって、炭水化物含有原料の分子構造の変化を比較的効率的に変化させることができる。さらに、エネルギーが0.5~10MeVの電子は、本明細書に記載のバイオマス原料のような低密度の原料、例えば、かさ密度が0.5g/cm³未満、深さが0.3~10cmの原料を透過することができる。電離放射線源としての電子は、山積みにした、積み重ねたまたは敷き詰めた厚さが比較的薄い、例えば、約0.5インチ（約1.3cm）未満、例えば約0.4インチ（約1.0cm）、0.3インチ（約0.76cm）、0.25インチ（約0.64cm）未満または約0.1インチ（約0.25cm）未満の原料に有用であり得る。いくつかの実施形態では、電子ビームの電子1個のエネルギーは約0.3MeV~約2.0MeV（100万電子ボルト）、例えば、約0.5MeV~約1.5MeVまたは約0.7MeV~約1.25MeVである。原料を照射する方法については、2011年10月18日に出願された米国特許出願公開第2012/0100577（A1）号（開示全体が参照により本明細書に組み込まれる）で論じられている。

【0084】

電子ビーム照射装置はIon Beam Applications社（ルーヴァン=ラ=ヌーヴ、ベルギー）、NHV社（日本）またはTitant社（サンディエゴ、カリフォルニア州）から購入することができる。典型的な電子エネルギーは0.5MeV、1MeV、2MeV、4.5MeV、7.5MeVまたは10MeVであり得る。典型的な電子ビーム照射装置の出力は1KW、5KW、10KW、20KW、50KW、60KW、70KW、80KW、90KW、100KW、125KW、150KW、175KW、200KW、250KW、300KW、350KW、400KW、450KW、500KW、600KW、700KW、800KW、900KWまたは1000KWであり得る。

【0085】

電子ビーム照射装置の出力仕様を考慮する際のトレードオフとしては、稼働コスト、資本コスト、減価償却および装置の設置面積が挙げられる。電子ビーム照射の曝露量レベルを考慮する際のトレードオフは、エネルギーコストならびに環境、安全および衛生面（ESH）の問題であろう。通常、特に工程で発生するX線からの生成には、発生装置を、例えば鉛またはコンクリート製のボルトに格納する。電子エネルギーを考慮する際のトレードオフとしてはエネルギーコストが挙げられる。

【0086】

電子ビーム照射装置は固定ビームまたは走査ビームのいずれかを生成させることができ

10

20

30

40

50

る。走査ビームは走査スワイープの長さが長く走査速度が速いと、事実上、広い固定されたビーム幅の代わりとなるため有利であり得る。さらに、使用できるスワイープ幅が0.5m、1m、2mまたはそれ以上のものが入手可能である。走査ビームは走査幅が比較的広く、局部加熱および窓の破損が起こる可能性が低いため、本明細書に記載のほとんどの実施形態に好適である。

【0087】

電子銃 - 窓

電子加速器の抽出システムは2つの窓箔を含み得る。2つの箔窓抽出システム内の冷却ガスは、パージガスまたは混合物、例えば空気または純ガスであり得る。一実施形態では、ガスは、窒素、アルゴン、ヘリウムおよび/または二酸化炭素などの不活性ガスである。電子ビームに対するエネルギー損失が最小限に抑えられることから、液体よりも気体を使用する方が好ましい。このほか、窓または窓と窓の間隙に衝突させる前に純ガスを事前に混合するか、配管内で混合した混合物を使用し得る。冷却ガスは、例えば、熱交換システム（例えば、冷却機）および/または凝縮ガス（例えば、液体窒素、液体ヘリウム）からのボイルオフを用いることによって冷却され得る。窓箔については、2013年10月10日に出願された国際出願PCT/US2013/64332号（開示全体が参照により本明細書に組み込まれる）に記載されている。

10

【0088】

放射線処理時の加熱および処理量

電子ビームの電子が物質と非弾性衝突で相互作用すると、バイオマス内でいくつかの過程が起こり得る。例えば、原料のイオン化、原料中のポリマーの鎖切断、原料中のポリマーの架橋、原料の酸化、X線の発生（「制動放射」）および分子の振動励起（例えば、フオノン発生）がある。特定の機序に束縛されるものではないが、抵抗性の減少は、これらの非弾性衝突効果のうちのいくつか、例えばイオン化、ポリマーの鎖切断、酸化およびフオノン発生に起因し得る。これらの効果のいくつか（例えば、特にX線発生）は、遮蔽および遮断壁の設計、例えば照射工程をコンクリート（またはその他の放射線不透過性材料）製のボールトで囲うことが必要である。照射のまた別の効果である振動励起は、試料の加熱と同じものである。照射による試料の加熱は抵抗性の減少を促進し得るが、過剰な加熱は、以下で説明するように原料を破壊し得る。

20

【0089】

電離放射線の吸着による断熱温度上昇（T）は方程式： $T = D / C_p$ で表され、式中、DはkGyで表される平均線量であり、CpはJ/gで表される熱容量であり、Tはで表される温度変化である。典型的な乾燥バイオマス原料では熱容量がほぼ2となる。湿潤バイオマスでは、水の熱容量が極めて高い（4.19J/g）ため、水分量に応じて熱容量がこれよりも高くなる。金属は熱容量がはるかに低く、例えば304ステンレス鋼は、熱容量が0.5J/gである。バイオマスおよびステンレス鋼の放射線の即時吸着による温度変化を様々な線量の放射線について表2に示す。表に示されるように、いくつかの場合には、温度が極めて高いため、原料が変質する（例えば、揮発し、炭化し、かつ/または焦げる）。

30

【0090】

40

【表2】

バイオマスおよびステンレス鋼の温度上昇の計算値。

線量(Mrad)	バイオマスの ΔT (°C)推定値	鋼の ΔT (°C)
10	50	200
50	250(変質)	1000
100	500(変質)	2000
150	750(変質)	3000
200	1000(変質)	4000

10

【0091】

温度が高いと、バイオマス中の生体高分子が破壊され、かつ／または変化し得るため、ポリマー（例えば、セルロース）をさらに処理するのに適さなくなる。高温に曝露されたバイオマスは黒ずんで粘着性となり臭気を放つことから、変質したことがわかる。粘着性によって原料の運搬が困難になることすらある。臭気は不快であるほか、安全性の問題となり得る。実際には、バイオマスを約200 未満（例えば、約190 未満、約180 未満、約170 未満、約160 未満、約150 未満、約140 未満、約130 未満、約120 未満、約110 未満、約60 ~ 180 未満、約60 ~ 160 未満、約60 ~ 150 未満、約60 ~ 140 未満、約60 ~ 130 未満、約60 ~ 120 未満、約80 ~ 150 未満、約80 ~ 140 未満、約80 ~ 130 未満、約80 ~ 120 未満、約80 ~ 110 未満、約80 ~ 100 未満、約100 ~ 180 未満、約120 ~ 180 未満、約140 ~ 180 未満、約160 ~ 180 未満、約100 ~ 140 未満、約80 ~ 120 未満）に維持すれば、本明細書に記載される工程に有益であることがわかっている。

20

【0092】

本明細書に記載される工程（例えば、抵抗性の減少）には約10 Mradを上回る照射が望ましいことがわかっている。このほか、バイオマス処理の際に照射がボトルネックとならないようハイスループットであるのが望ましい。処理は線量率の方程式： $M = F P / D$ ・時間によって左右され、式中、Mは照射される原料の質量（kg）であり、Fは吸収電力の割合（無単位）であり、Pは放射電力（kW = 電圧（MeV）×電流（A））であり、時間は処理時間（秒）であり、Dは吸収された線量（kGy）である。吸収電力の割合を固定し、放射電力を一定とし、規定の線量が望まれる工程の例では、照射時間を長くすることによって処理量（例えば、M、処理されるバイオマス）を増大させることができる。しかし、原料を冷却させずに照射時間を長くすると、上記の計算によって例示されるように、原料が過熱され得る。バイオマスは熱伝導率が低い（約0.1 Wm⁻¹K⁻¹ 未満）ため、例えば短時間でエネルギーを放散させることができる金属（約10 Wm⁻¹K⁻¹ 超）とは異なり、エネルギーを転移させるヒートシックが存在しない限り熱放散に時間がかかる。

30

【0093】

電子銃 - ビームストップ

いくつかの実施形態では、（例えば、リグノセルロース系またはセルロース系供給原料の照射に電子ビーム照射を用いる）システムおよび方法は、ビームストップ（例えば、シャッター）を含む。例えば、ビームストップを用いて、電子ビーム装置の出力を下げずに原料の照射を迅速に遮断または減少させることができる。あるいは、電子ビームの出力を上げながらビームストップを用いることができ、例えば、ビームストップによって、所望のレベルのビーム電流に達するまで電子ビームを遮断することができる。ビームストップは、第一の箔窓と第二の箔窓との間に設置し得る。例えば、ビームストップを移動可能のように、すなわちビーム経路の内外に移動できるように取り付け得る。例えば照射の線量を制御するのに、ビームの部分的覆いを用いることもできる。ビームストップは、床、バイオマスのコンベア、壁、照射装置（例えば、スキャンホールの位置）または任意の構造支持体に取り付け得る。好ましくは、ビームがビームストップによって効率的に制御され

40

50

得るよう、ビームストップをスキャンホーンと関連付けて固定する。ビームストップは、それがビームの内外に移動して稼働できるようにするヒンジ、レール、ホイール、スロットをはじめとする手段を組み込み得る。ビームストップは、電子の少なくとも5%、例えば、電子の少なくとも10%、20%、30%、40%、50%、60%、70%、少なくとも80%、85%、90%、91%、92%、93%、94%、95%、96%、97%、98%、99%または場合によっては約100%を遮断する任意の材料でできたものであり得る。

【0094】

ビームストップは、特に限定されないが、ステンレス鋼、鉛、鉄、モリブデン、銀、金、チタン、アルミニウム、スズもしくはこれらの合金またはこのような金属でできた積層物（層状の材料）（例えば、金属コートセラミック、金属コートポリマー、金属コート複合材料、多層金属材料）を含めた金属からできたものであり得る。

10

【0095】

ビームストップは、例えば水溶液などの冷却液またはガスで冷却され得る。ビームストップは一部または全部が中空であり得、例えば空洞を有する。ビームストップの内部空間は冷却液およびガスに利用し得る。ビームストップは、平面形、曲面形、円形、卵形、正方形、長方形、面取り形および楔形を含めた任意の形状であり得る。

【0096】

ビームストップは、一部の電子を通過させ、それにより窓の全領域または窓の特定の領域にわたって照射レベルを制御する（例えば、減少させる）ように孔を有し得る。ビームストップは、例えば纖維またはワイヤで形成されたメッシュであり得る。複数のビームストップを一緒にまたは別個に用いて照射を制御し得る。ビームを所定の位置またはその外に移動させるのに、ビームストップを例えば無線信号によって遠隔制御するか、配線でモーターに接続し得る。

20

【0097】

ビームダンプ

このほか、本明細書に開示される（例えば、リグノセルロースまたはセルロース系供給原料の照射に電離放射線を用いる）実施形態は、照射処理を用いる場合、ビームダンプを含み得る。ビームダンプの目的は、荷電粒子ビームを安全に吸収することである。ビームストップと同じく、ビームダンプを用いて荷電粒子ビームを遮断することができる。しかし、ビームダンプはビームストップよりもはるかに堅牢なものであり、全出力の電子ビームを長時間にわたって遮断することを目的とするものである。ビームダンプは、加速器の出力を上げながらビームを遮断するのに使用されることが多い。

30

【0098】

ビームダンプはこのほか、このようなビームによって発生する熱を調節するよう設計されており、通常、銅、アルミニウム、炭素、ベリリウム、タンゲステンまたは水銀などの材料でできている。ビームダンプは、例えばビームダンプと熱的に接触しうる冷却液を用いて冷却され得る。

30

【0099】

バイオマス原料

リグノセルロース系原料（例えば、糖化する供給原料）としては、特に限定されないが、木材、削片板、林業廃棄物（例えば、おがくず、アスペン材、木片）、草木（例えば、スイッチグラス、ススキ、コードグラス、クサヨシ）、穀物残渣（例えば、米穀、オートムギ殻、コムギもみ殻、オオムギ殻）、農業廃棄物（例えば、貯蔵牧草、カノーラわら、コムギわら、オオムギわら、オートムギわら、米わら、黄麻、大麻、亜麻、竹、サイザル麻、マニラ麻、トウモロコシ穂軸、トウモロコシ茎葉、ダイズ茎葉、トウモロコシ纖維、アルファルファ、乾草、ヤシ毛）、糖加工残渣（例えば、バガス、テンサイパルプ、リュウゼツランバガス）、藻、海藻、堆厩肥、下水およびそのいずれかの組合せが挙げられる。

40

【0100】

50

いくつかの場合には、リグノセルロース系原料はトウモロコシ穂軸を含む。粉碎または衝撃粉碎したトウモロコシ穂軸を比較的均一な厚さの層になるように広げて照射してもよく、照射後、さらに処理を進めるために培地中に分散させるのが容易になる。回収および収集を容易にするため、いくつかの場合には、トウモロコシ稈、トウモロコシ穀粒を含め、さらにいくつかの場合には植物体の根系も含めたトウモロコシ植物体全体を用いる。

【0101】

トウモロコシ穂軸またはトウモロコシ穂軸含有量の多いセルロース系もしくはリグノセルロース系原料の発酵では、追加の栄養素（窒素源、例えば尿素またはアンモニア以外のもの）が不要であるという点で有利である。

【0102】

トウモロコシ穂軸はほかにも、粉碎前後でも運搬および分散が容易であり、乾草および草木などの他のセルロース系またはリグノセルロース系原料よりも空気中に爆発性の混合物を生成しにくい。

【0103】

セルロース系原料としては、例えば、紙、紙製品、紙くず、製紙パルプ、着色紙、塗工紙、コーテッド紙、充填紙、雑誌、印刷物（例えば、本、カタログ、マニュアル、ラベル、カレンダー、グリーティングカード、パンフレット、案内書、新聞紙）、プリンタ用紙、ポリコート紙、カード用紙、厚紙、板紙、セルロース含有量の高いワタなどの原料およびそのいずれかの組合せが挙げられる。例えば、米国特許出願第13/396,365号（Medoffらにより2012年2月14日に出願された「Magazine Feedstocks」；開示全体が参照により本明細書に組み込まれる）に記載されている紙製品がある。

【0104】

セルロース系原料としてはこのほか、一部分または全体が脱リグニンされたリグノセルロース系原料を挙げることができる。

【0105】

いくつかの場合には、その他のバイオマス原料、例えばデンプン系原料を用い得る。デンプン原料としては、デンプン自体、例えばコーンスターク、コムギデンプン、バレイショデンプンまたは米デンプン、デンプンの誘導体または食品もしくは作物などのデンプンを含む原料が挙げられる。例えば、デンプン原料はアラカチャ、ソバ、バナナ、オオムギ、キャッサバ、クズ、アンデスカタバミ、サゴ、モロコシ、通常の家庭用バレイショ、サツマイモ、タロイモ、ヤマノイモまたはソラマメ、レンズマメもしくはエンドウマメなどの1種類以上のマメであり得る。任意の2種類以上のデンプン原料を配合したものもデンプン原料となる。このほかデンプン系原料、セルロース系原料および/またはリグノセルロース系原料の混合物を使用してもよい。例えば、バイオマスは例えば、コムギ植物体、ワタ植物体、トウモロコシ植物体、米植物体または木の全植物体、植物体の一部分または植物体の様々な部分であり得る。デンプン原料を本明細書に記載の方法のいずれかによって処理してもよい。

【0106】

供給原料として使用し得る微生物原料としては、特に限定されないが、炭水化物源（例えば、セルロース）を含むかこれを供給する能力のある任意の天然または遺伝子改変微生物または生物、例えば、原生生物、例えば動物性原生生物（例えば、鞭毛虫、アメーバ様原生動物、纖毛虫および胞子虫などの原生動物）および植物性原生生物（例えば、アルベオラータ、クロララクニオン藻、クリプト藻、ユーグレナ藻、灰色藻、ハプト藻、紅藻、黄色植物および緑色植物などの藻類）が挙げられる。その他の例としては、海藻、プランクトン（例えば、マクロプランクトン、メソプランクトン、ミクロプランクトン、ナノプランクトン、ピコプランクトンおよびフェムトプランクトン）、植物プランクトン、細菌（例えば、グラム陽性細菌、グラム陰性細菌および好極限性細菌）、酵母および/またはその混合物が挙げられる。いくつかの場合には、微生物バイオマスを天然源、例えば、海、湖、水域、例えば海水もしくは淡水または陸上から入手してもよい。上記のものに代え

10

20

30

40

50

てまたは加えて、微生物バイオマスを培養系、例えば、大規模な乾式および湿式の培養系および発酵系から入手してもよい。

【0107】

他の実施形態では、セルロース系、デンプン系およびリグノセルロース系供給原料などのバイオマス原料を、野生型種に対して改変したトランスジェニック微生物および植物から入手してもよい。このような改変は、例えば、植物で所望の形質が得られるまで選択と交配の段階を繰り返すことによるものであってよい。さらに、植物は、野生型種に対して遺伝物質を除去、改変、発現停止および/または付加したものであってよい。例えば、組換えDNA法（この場合、遺伝子改変には、親種由来の特定の遺伝子を導入または改変することが含まれる）によって、あるいは例えば、異なる種の植物および/または細菌から特定の1つまたは複数の遺伝子を植物に導入するトランスジェニック育種を用いることによって、遺伝子改変植物を作製してもよい。遺伝的変異を作出する別の方法には、内因性遺伝子から新たな対立遺伝子を人工的に作出する突然変異育種によるものがある。人工遺伝子は、植物体または種子を例えば、化学的突然変異誘発物質（例えば、アルキル化剤、エポキシド、アルカロイド、過酸化物、ホルムアルデヒドを用いる）、照射（例えば、X線、ガンマ線、中性子、ベータ粒子、アルファ粒子、プロトン、重陽子、UV照射）および温度ショックをはじめとする外部ストレスで処理することならびにそれに続く選択技術を含めた様々な方法によって作出することができる。改変遺伝子を得る他の方法には、エラープローンPCRおよびDNAシャフリングを実施し、次いで所望の植物体または種子に所望の改変DNAを挿入するものがある。種子または植物体に所望の遺伝的変異を導入する方法としては、例えば、細菌担体、遺伝子銃、リン酸カルシウム沈殿法、エレクトロポレーション、遺伝子スプライシング、遺伝子サイレンシング、リポフェクション法、マイクロインジェクション法およびウイルス担体の使用が挙げられる。また別の遺伝子改変材料については、2012年2月14日に出願された米国特許出願第13/396,369号（開示全体が参考により本明細書に組み込まれる）に記載されている。

10

20

30

40

50

【0108】

本明細書に記載される方法はいずれも、本明細書に記載される任意のバイオマス原料の混合物を用いて実施することができる。

【0109】

その他の原料

本明細書に記載される方法、設備およびシステムを用いて、その他の原料（例えば、天然原料または合成原料）、例えばポリマーを処理および/または作製することができる。例えば、ポリエチレン（例えば、直鎖状低密度エチレンおよび高密度ポリエチレン）、ポリスチレン、スルホン化ポリスチレン、ポリ（塩化ビニル）、ポリエステル（例えば、ナイロン、D A C R O N（商標）、K O D E L（商標））、ポリアルキレンエステル、ポリビニルエステル、ポリアミド（例えば、K E V L A R（商標））、ポリエチレンテレフタラート、酢酸セルロース、アセタール、ポリアクリロニトリル、ポリカルボナート（例えば、L E X A N（商標））、アクリル樹脂[例えば、ポリ（メチルメタクリラート）、ポリ（メチルメタクリラート）、ポリアクリロニトリル]、ポリウレタン、ポリプロピレン、ポリブタジエン、ポリイソブチレン、ポリアクリロニトリル、ポリクロロブレン（例えば、ネオブレン）、ポリ（シス-1,4-イソブレン）[例えば、天然ゴム]、ポリ（トランス-1,4-イソブレン）[例えば、グッタペルカ]、フェノールホルムアルデヒド、メラミンホルムアルデヒド、エポキシド、ポリエステル、ポリアミン、ポリカルボン酸、ポリ乳酸、ポリビニルアルコール、ポリ酸無水物、ポリフルオロカーボン（例えば、T E F L O N（商標））、シリコン（例えば、シリコーンゴム）、ポリシラン、ポリエーテル（例えば、ポリエチレンオキシド、ポリプロピレンオキシド）、ろう、油およびその混合物がある。このほか、プラスチック、ゴム、エラストマー、繊維、ろう、ゲル、油、接着剤、熱可塑性プラスチック、熱硬化プラスチック、生分解性ポリマー、このようなポリマーで作製した樹脂、その他のポリマー、その他の原料およびその組合せが挙げられる。ポリマーは、カチオン重合、アニオン重合、ラジカル重合、メタセシス重合、開環重合、

グラフト重合、付加重合を含めた任意の有用な方法によって作製され得る。いくつかの場合には、本明細書に開示される処理を例えばラジカルグラフト重合および架橋に用い得る。このほか、ポリマーと例えばガラス、金属、バイオマス（例えば、纖維、粒子）、セラミックとの複合材料を処理および／または作製することができる。

【0110】

本明細書に開示される方法、システムおよび設備を用いて処理することができるその他の原料には、セラミック材料、鉱物、金属、無機化合物がある。例えば、ケイ素およびゲルマニウムの結晶、窒化ケイ素、金属酸化物、半導体、インスレーター、セメントおよび／または導線がある。

【0111】

さらに、製造された複数部品原料または成形原料（例えば、鋳造、押し出し、溶接、鋸接、重層または何らかの方法による組合せによるもの）、例えば、ケーブル、パイプ、板、囲い、組み込まれた半導体チップ、回路板、ワイヤ、タイヤ、窓、積層原料、ギア、ベルト、機械、その組合せを処理し得る。例えば、本明細書に記載される方法によって原料を処理することにより、表面を変化させて、例えばさらなる官能基化、組合せ（例えば、溶接）を受けやすくすることができ、かつ／または処理により原料を架橋することができる。

【0112】

バイオマス原料の調製 - 機械的処理

バイオマスは、例えば含水率が約35%未満（例えば、約20%未満、約15%未満、約10%未満、約5%未満、約4%未満、約3%未満、約2%未満または約1%未満）の乾燥形態であり得る。またバイオマスは湿潤状態で、例えば、固体が少なくとも約10重量%（例えば、少なくとも約20重量%、少なくとも約30重量%、少なくとも約40重量%、少なくとも約50重量%、少なくとも約60重量%、少なくとも約70重量%）の湿潤固体物、スラリーまたは懸濁液として供給され得る。

【0113】

本明細書に開示される工程では、かさ密度の低い原料、例えば、物理的に前処理してかさ密度を約0.75 g / cm³未満、例えば、約0.7 cm³未満、0.65 cm³未満、0.60 cm³未満、0.50 cm³未満、0.35 cm³未満、0.25 cm³未満、0.20 cm³未満、0.15 cm³未満、0.10 cm³未満、0.05 cm³未満またはそれ以下、例えば約0.025 g / cm³未満にしたセルロース系またはリグノセルロース系供給原料を使用し得る。かさ密度はASTM D1895Bを用いて決定される。簡潔に述べると、この方法では既知の体積のメスシリンダーに試料を充填し、試料の重量を量る。グラムで表した試料の重量を立方センチメートルで表した既知のシリンダーの体積で除することにより、かさ密度を計算する。必要に応じて、例えば、Medoffに対する米国特許第7,971,809号（開示全体が参照により本明細書に組み込まれる）に記載されている方法により、かさ密度の低い原料の密度を高めてよい。

【0114】

いくつかの場合には、前処理工程はバイオマス原料の篩分けを含む。篩分けは所望の開口径、例えば、約6.35 mm（1/4インチ、0.25インチ）未満（例えば、約3.18 mm（1/8インチ、0.125インチ）未満、約1.59 mm（1/16インチ、0.0625インチ）、約0.79 mm（1/32インチ、0.03125インチ）、例えば、約0.51 mm（1/50インチ、0.02000インチ）未満、約0.40 mm（1/64インチ、0.015625インチ）未満、約0.23 mm（0.009インチ）未満、約0.20 mm（1/128インチ、0.0078125インチ）未満、約0.18 mm（0.007インチ）未満、約0.13 mm（0.005インチ）未満または約0.10 mm（1/256インチ、0.00390625インチ）未満）の開口径のメッシュまたは有孔板に通すものであり得る。ある形態では、所望のバイオマスが孔または篩を通って下に落ち、孔または篩より大きいバイオマスは照射を受けない。この大きい原料は、例えば粉碎によって再処理しても、単に工程から取り除いてもよい。別の形態では、

10

20

30

40

50

孔より大きい原料が照射を受け、小さい原料は篩工程によって取り除かれるか再利用される。この種の形態では、コンベア自体（例えば、コンベアの一部分）に孔が開いていても、コンベア自体がメッシュ製であってもよい。例えば、特定の一実施形態では、バイオマス原料が湿潤状態であり得、照射前に孔またはメッシュによってバイオマスから水分が抜ける。

【0115】

原料の篩分けはほかにも、例えば、不要な原料を取り除く技師またはメカノイド（例えば、色、反射率などのセンサーを備えたロボット）による手動的方法によるものであり得る。このほか篩分けは、磁気による篩分けによるものであり得、この方法では、原料が輸送されてくる付近に磁石を配置し、磁性をもつ原料を磁石によって取り除く。

10

【0116】

任意選択の前処理は原料の過熱を含み得る。例えば、バイオマスをはじめとする原料を運搬しているコンベアの一部分が加熱ゾーンを通るようにし得る。加熱ゾーンは、例えば、IR放射、マイクロ波、燃焼（例えば、ガス、石炭、油、バイオマス）、抵抗加熱および／または誘導コイルによって作り出すことができる。熱は少なくとも1つの側面から加えても2つ以上の側面から加えてもよく、連続的に加えても断続的に加えてもよく、原料の一部分に加えても原料全体に加えてもよい。例えば、輸送トラフの一部分を加熱ジャケットの使用によって加熱し得る。加熱は例えば、原料の乾燥を目的とするものであり得る。原料を乾燥させる場合、加熱の有無とは関係なく、輸送されるバイオマスの上方および／または中にガス（例えば、空気、酸素、窒素、He、CO₂、アルゴン）を流すことによって乾燥を促進させてもよい。

20

【0117】

任意選択で、前処理は原料の冷却を含み得る。原料の冷却については、Medoffに対する米国特許第7,900,857号（開示全体が参照により本明細書に組み込まれる）に記載されている。例えば、冷却は、輸送トラフの底部に冷却液、例えば水（例えば、グリセロールを含んだもの）または窒素（例えば、液体窒素）を送ることによるものであってよい。あるいは、バイオマス原料の上方または輸送システムの下方に冷却ガス、例えば冷却窒素を吹きかけてもよい。

30

【0118】

別の任意選択の前処理方法は、バイオマスをはじめとする供給原料に原料を添加することを含み得る。例えば、バイオマスを輸送する際に原料をバイオマスに降り注ぐこと、撒くことおよび／または注ぐことによって、追加の原料を添加し得る。添加することができる原料としては、例えば、米国特許出願公開第2010/0105119（A1）号（2009年10月26日出願）および米国特許出願公開第2010/0159569（A1）号（2009年12月16日出願）（いずれも開示全体が参照により本明細書に組み込まれる）に記載されている金属、セラミックおよび／またはイオンが挙げられる。添加することができる任意選択の原料としては、酸および塩基が挙げられる。添加することができるその他の原料にはオキシダント（例えば、過酸化物、塩素酸）、ポリマー、重合性単量体（例えば、不飽和結合を含むもの）、水、触媒、酵素および／または生物体がある。原料は例えば、純粋な形態で、溶媒（例えば、水または有機溶媒）に溶かした溶液として、および／または溶液として添加することができる。いくつかの場合には、溶媒は揮発性物質であり、例えば、既に述べたように加熱および／またはガス吹付けによって蒸発させることが可能である。添加した原料がバイオマス上に均一な被膜を形成することもあれば、異なる成分（例えば、バイオマスと追加の原料）の均一な混合物になることもある。添加した原料は、照射の効率を増大させることによって、照射を減衰させることによって、または照射の作用を変える（例えば、電子ビームからX線または熱に変える）ことによって、のちの照射段階を調節し得る。この方法は照射に一切影響を及ぼさないが、さらに下流の処理に有用であり得る。添加した原料は、例えば、塵埃量を減らすことによって、原料の輸送に役立ち得る。

40

【0119】

50

バイオマスはベルトコンベア、空気コンベア、スクリューコンベア、ホッパー、パイプ、手動またはその組合せによってコンベア（例えば、本明細書に記載されるボルト内を使用する振動コンベア）まで運ばれ得る。例えば、上に挙げたいずれかの方法によって、バイオマスをコンベア上に落下させ、注ぎ、かつ／または置くことができる。いくつかの実施形態では、低酸素雰囲気を維持し、かつ／または粉塵および微粉を抑えるために封入した原料を分配するシステムを用いて、原料をコンベアまで運ぶ。バイオマスの微粉および粉塵が舞い上がったり、空気中に浮遊すると、爆発の危険性が生じたり、電子銃の窓箔が破損する可能性があるため（原料の処理にこのような装置を用いる場合）望ましくない。

【0120】

原料を約0.0312～5インチ（約0.792mm～約127mm）（例えば、約0.0625～2.000インチ（約1.59mm～約50.8mm）、約0.125～1インチ（約3.18mm～約25.4mm）、約0.125～0.5インチ（約3.18mm～約12.7mm）、約0.3～0.9インチ（約7.62mm～約22.9mm）、約0.2～0.5インチ（約5.08mm～約12.7mm）約0.25～1.0インチ（約6.35mm～約25.4mm）、約0.25～0.5インチ（約6.35mm～約12.7mm）、0.100±0.025インチ（約2.54mm±約0.635mm）、0.150±0.025インチ（約3.81mm±約0.635mm）、0.200±0.025インチ（約5.08mm±約0.635mm）、0.250±0.025インチ（約6.35mm±約0.635mm）、0.300±0.025インチ（約7.62mm±約0.635mm）、0.350±0.025インチ（約8.89mm±約0.635mm）、0.400±0.025インチ（約10.16mm±約0.635mm）、0.450±0.025インチ（約11.4mm±約0.635mm）、0.500±0.025インチ（約12.7mm±約0.635mm）、0.550±0.025インチ（約14.0mm±約0.635mm）、0.600±0.025インチ（約15.2mm±約0.635mm）、0.700±0.025インチ（約17.8mm±約0.635mm）、0.750±0.025インチ（約19.1mm±約0.635mm）、0.800±0.025インチ（約20.32mm±約0.635mm）、0.850±0.025インチ（約21.59mm±約0.635mm）、0.900±0.025インチ（約22.9mm±約0.635mm）、0.900±0.025インチ（約22.9mm±約0.635mm））の均一な厚さになるようにそろえることができる。

【0121】

一般に、原料をできるだけ速く電子ビームの中を輸送して処理量を最大限にするのが好ましい。例えば、原料を少なくとも1フィート（約0.3m）/分、例えば、少なくとも2フィート（約0.6m）/分、少なくとも3フィート（約0.9m）/分、少なくとも4フィート（約1.2m）/分、少なくとも5フィート（約1.5m）/分、少なくとも10フィート（約3.0m）/分、少なくとも15フィート（約4.6m）/分、20フィート（約6.1m）/分、25フィート（約7.6m）/分、30フィート（約9.1m）/分、35フィート（約11m）/分、40フィート（約12m）/分、45フィート（約14m）/分、50フィート（約15m）/分の速度で輸送し得る。輸送速度はビーム電流と関係があり、例えば、バイオマスの厚さ1/4インチ、100mAでは、コンベアが約20フィート（約6.1m）/分で動いて有効な照射線量になり、50mAではコンベアが約10フィート（約3.0m）/分で動いてほぼ同じ照射線量になる。

【0122】

バイオマス原料が照射ゾーンの中を輸送された後、任意選択で後処理を実施し得る。任意選択の後処理は、例えば、照射前処理に関して記載されている工程であり得る。例えば、バイオマスを篩分けする、加熱する、冷却するおよび／または添加剤と組み合わせ得る。照射後に特有なものとして、ラジカルの消滅、例えば、液体または気体（例えば、酸素、亜酸化窒素、アンモニア、液体）の添加、圧力の利用、熱および／またはラジカルスルベンジヤーの添加によってラジカルの消滅が生じ得る。例えば、バイオマスを封入された

10

20

30

40

50

コンベアから搬出して気体（例えば、酸素）に曝露し、そこで反応を停止させてカボキシル化基を形成させることができる。一実施形態では、照射時にバイオマスを反応性の気体または液体に曝露する。照射したバイオマスの反応停止については、Medoffに対する米国特許第8,083,906号（開示全体が参考により本明細書に組み込まれる）に記載されている。

【0123】

必要に応じて、照射に加え機械的処理を1種類以上用いて炭水化物含有原料の抵抗性をさらに減少させ得る。このような工程は照射前、照射時および/または照射後に適用され得る。

【0124】

いくつかの場合には、機械的処理は受け取った供給原料の初期調製、例えば、サイズリダクション、例えば切断、破碎、剪断、微粉碎または細切などによる原料の粉碎を含み得る。例えば、いくつかの場合には、ばらばらの供給原料（例えば、再生紙、デンプン原料またはスイッチグラス）を剪断または細断によって調製する。機械的処理により、炭水化物含有原料のかさ密度が減少し、炭水化物含有原料の表面積が増大し、かつ/または炭水化物含有原料の1つ以上の寸法が減少し得る。

【0125】

上記のものに代えてまたは加えて、供給原料を別の処理、例えば、酸（HCl、H₂SO₄、H₃PO₄）、塩基（例えば、KOHおよびNaOH）、化学的酸化体（例えば、過酸化物、塩素酸、オゾン）などによる化学的処理、照射、水蒸気爆碎、熱分解、超音波処理、酸化、化学的処理によって処理してもよい。処理は、任意の順序ならびに任意のシーケンスおよび組合せであってよい。例えば、供給原料を最初に1種類以上の他の物理的処理方法、例えば、（例えば、HCl、H₂SO₄、H₃PO₄を用いる）酸加水分解を含みこれと組み合わせた化学処理、照射、超音波処理、酸化、熱分解または水蒸気爆碎によって物理的に処理した後、機械的に処理し得る。1種類以上の他の処理、例えば照射または熱分解によって処理した原料には脆くなる傾向があり、したがって、機械的処理によって原料の構造を変化させるのが容易になり得るため、このシーケンスは有利なものとなり得る。また別の例として、本明細書に記載されるように、コンベアを用いて供給原料を電離放射線の中を輸送した後、機械的に処理し得る。化学処理により、リグニンの一部または全部が除去（例えば、化学パルプ化）され、また原料が部分的にまたは完全に加水分解され得る。このほか、この方法を予め加水分解した原料に用いてもよい。ほかにも、この方法を予め加水分解していない原料に用いてもよい。加水分解した原料と加水分解していない原料との混合物、例えば、加水分解していない原料を約50%以上、加水分解していない原料を約60%以上、加水分解していない原料を約70%以上、加水分解していない原料を約80%以上または場合によっては加水分解していない原料を90%以上含む混合物にこの方法を用いてもよい。

【0126】

工程の最初および/または後の段階にサイズリダクションを実施し得るが、これに加えて、機械的処理も炭水化物含有原料を「分断し」、「圧力を加え」、壊しまたは碎いて、物理的処理の際に原料のセルロースが鎖の切断および/または結晶構造の崩壊を受けやすくするのに有利であり得る。

【0127】

炭水化物含有原料を機械的に処理する方法としては、例えば、ミリングまたは破碎が挙げられる。ミリングは、例えばハンマーミル、ボールミル、コロイドミル、コニカルまたはコーンミル、ディスクミル、エッジミル、Wileyミル、グリストミルまたはその他のミルを用いて実施することができる。破碎は、例えば、切断/衝撃タイプのグラインダを用いて実施することができる。グラインダの一部の例としては、石材グラインダ、ピンググラインダ、コーヒーグラインダおよびバーググラインダが挙げられる。破碎またはミリングは、例えば、ピンミルの場合と同様に、往復運動するピンをはじめとする要素によって行われ得る。その他の機械的処理方法としては、機械的に引き裂くまたは引きちぎること

10

20

30

40

50

、纖維に圧力を加える他の方法および空気摩擦によるミリングが挙げられる。適切な機械的処理としてはさらに、前の処理段階によって始まった原料の内部構造の崩壊を継続させる他の任意の技術が挙げられる。

【0128】

特定の特徴、例えば、特定の最大サイズ、特定の長さと幅または特定の表面積比などを有するストリームができるように、機械的な原料調製システムを構成し得る。物理的調製により、反応速度が増大し、コンベアでの原料の移動が向上し、原料の照射プロファイルが向上し、原料の照射均一性が向上し、あるいは原料を分断して処理および／または溶液中の試薬などの試薬の作用を受けやすくするのに必要な処理時間が削減され得る。

【0129】

供給原料のかさ密度を調節（例えば、増大）させ得る。いくつかの状況では、かさ密度の低い原料を例えば、原料の密度を高めることによって調製し（例えば、密度を高めることにより、別の場所への輸送を容易にし、そのコストを削減することができる）、のちにその原料をかさ密度の低い状態に戻す（例えば、輸送後）のが望ましい場合がある。原料を例えば、約0.2g/cc未満から約0.9g/cc超（例えば、約0.3g/cc未満から約0.5g/cc未満から約0.5g/cc超、約0.3g/cc未満から約0.9g/cc超、約0.5g/cc未満から約0.9g/cc超、約0.3g/cc未満から約0.8g/cc超、約0.2g/cc未満から約0.5g/cc超）に密度を高め得る。例えば、Medoffに対する米国特許第7,932,065号および国際公開第2008/073186号（2007年10月26日に出願され、英語で公開され、米国を指定；開示全体が参照により本明細書に組み込まれる）に開示されている方法および設備によって、原料の密度を高め得る。密度を高めた原料を本明細書に記載のいずれかの方法によって処理しても、本明細書に記載のいずれかの方法によって処理した任意の原料の密度を後で高めてもよい。

【0130】

いくつかの実施形態では、処理する原料は、纖維源を剪断することによって得られた纖維を含む纖維性原料の形態である。例えば、回転ナイフ式切断機で剪断を実施し得る。

【0131】

例えば、纖維源、例えば抵抗性のある、あるいは抵抗性のレベルを低下させた纖維源を、例えば回転刃式裁断機で剪断し、第一の纖維性原料を得ることができる。この纖維性原料を第一の篩、例えば平均開口径が1.59mm（1/16インチ、0.0625インチ）以下の篩にかけて第二の纖維性原料を得る。必要に応じて、剪断前に細断機で纖維源を切斷してもよい。例えば、纖維源として紙を用いる場合、最初に紙をシュレッダ、例えば、Munson社（Utica, N.Y.）製のシュレッダのような異方向回転スクリュ式のシュレッダで、例えば幅1/4～1/2インチ（約6.44mm～約12.7mm）の細片に切斷し得る。細断の別の方法として、ギロチン断裁機を用いて所望の大きさに切斷することによって紙の大きさを小さくしてもよい。例えば、ギロチン断裁機を用いて、紙を例えば、幅10インチ（約25cm）、長さ12インチ（約30cm）の紙片に切斷することができる。

【0132】

いくつかの実施形態では、纖維源を剪断することと、得られた第一の纖維性原料を第一の篩にかけることを同時に実施する。このほか、剪断と篩にかけることをバッチ型の工程で実施してもよい。

【0133】

例えば、回転刃式裁断機を用いて、纖維源を剪断すると同時に第一の纖維性原料を篩にかけ得る。回転刃式裁断機には、纖維源を剪断することにより調製された剪断済みの纖維源を投入することができるホッパーが備わっている。

【0134】

いくつかの実施形態では、糖化および／または発酵の前に供給原料を物理的に処理する。物理的処理は、機械的処理、化学処理、照射、超音波処理、酸化、熱分解または水蒸気爆碎などの本明細書に記載の処理のいずれか1種類以上を含み得る。これらの技術を2種

類、3種類、4種類または全種類（任意の順序で）組み合わせて、処理方法を用い得る。2種類以上の処理方法を用いる場合、その方法を同時に適用しても異なる時間に適用してもよい。このほか、バイオマス供給原料の分子構造を変化させる他の方法を単独で、または本明細書に開示される工程と組み合わせて用いてもよい。

【0135】

用い得る機械的処理および機械的に処理した炭水化物含有原料の特徴については、2011年10月18日に出願された米国特許出願公開第2012/0100577（A1）（開示全体が参照により本明細書に組み込まれる）にさらに詳細に記載されている。

【0136】

超音波処理、熱分解、酸化、水蒸気爆碎

必要に応じて、照射に代えて、またはこれに加えて、1つまたは複数の超音波処理、熱分解、酸化または水蒸気爆碎工程を用いて炭水化物含有原料の抵抗性を減少またはさらに減少させ得る。例えば、これらの工程を照射前、照射時および照射後に適用し得る。これらの工程については、Medoffに対する米国特許第7,932,065号（開示全体が参照により本明細書に組み込まれる）に詳細に記載されている。

【0137】

中間体および生成物

本明細書に記載される工程を用いて、バイオマス原料をエネルギー、燃料、食料および材料などの1つまたは複数の生成物に変換し得る。例えば、有機酸、有機酸の塩、無水物、有機酸のエステルおよび燃料など、例えば内燃機関の燃料または燃料電池の供給原料などの中間体および生成物がある。本明細書には、入手は容易であるが処理が困難な場合が多いセルロース系および/またはリグノセルロース系原料、例えば、都市廃棄物ストリームおよび古紙ストリーム、例えば新聞紙、クラフト紙、段ボール紙またはその混合物を含むストリームなどを供給原料として使用することができるシステムおよび工程が記載される。

【0138】

生成物の具体例としては、特に限定されないが、水素、糖（例えば、グルコース、キシロース、アラビノース、マンノース、ガラクトース、フルクトース、二糖、オリゴ糖および多糖）、アルコール（例えば、エタノール、n-ブロパノール、イソブタノール、sec-ブタノール、tert-ブタノールまたはn-ブタノールなどの一価アルコールまたは二価アルコール）、水和または含水アルコール（例えば、10%、20%、30%超または40%超の水を含有するもの）、バイオディーゼル、有機酸、炭化水素（例えば、メタン、エタン、プロパン、イソブテン、ペンタン、n-ヘキサン、バイオディーゼル、バイオガソリンおよびその混合物）、副産物（例えば、セルロース分解タンパク質（酵素）または単細胞タンパクなどのタンパク質）および任意の組合せまたは相対濃度で、また任意選択で任意の添加剤（例えば、燃料添加剤）と組み合わせて、これらのうちのいずれかを組み合わせたものが挙げられる。その他の例としては、カルボン酸、カルボン酸塩、カルボン酸とカルボン酸塩の組合せおよびカルボン酸エステル（例えば、メチル、エチルおよびn-プロピルエステル）、ケトン（例えば、アセトン）、アルデヒド（例えば、アセトアルデヒド）、アルファおよびベータ不飽和酸（例えば、アクリル酸）ならびにオレフィン（例えば、エチレン）が挙げられる。その他のアルコールおよびアルコール誘導体としては、プロパノール、プロピレングリコール、1,4-ブタンジオール、1,3-プロパンジオール、糖アルコール（例えば、エリスリトール、グリコール、グリセロール、ソルビトール、トレイトール、アラビトール、リビトール、マンニトール、ズルシトール、フシトール、イジトール、イソマルト、マルチトール、ラクチトール、キシリトールおよびその他のポリオール）ならびに上記アルコールのいずれかのメチルまたはエチルエステルが挙げられる。その他の生成物としては、アクリル酸メチル、メチルメタクリル酸、乳酸、クエン酸、ギ酸、酢酸、プロピオン酸、酪酸、コハク酸、吉草酸、カプロン酸、3-ヒドロキシプロピオン酸、パルミチン酸、ステアリン酸、シウ酸、マロン酸、グルタル酸、オレイン酸、リノール酸、グリコール酸、ガンマ-ヒドロキシ酪酸ならびにその混合

10

20

30

40

50

物、上記酸のいずれかの塩、いずれかの酸とそれぞれの塩の混合物が挙げられる。

【0139】

上記生成物同士の組合せおよび／または上記生成物と本明細書に記載の工程もしくは他の方法で製造され得る他の生成物との組合せと一緒に包装し製品として販売し得る。製品は組み合わせたもの、例えば、混合、配合もしくは一緒に溶解させたものであっても、単に一緒に包装または販売されるものであってもよい。

【0140】

本明細書に記載の生成物または生成物の組合せはいずれも、製品として販売する前、例えば、精製もしくは単離後または包装後、衛生化または滅菌し、生成物（1つまたは複数）中に存在し得る潜在的に望ましくない夾雑物を失活させ得る。このような衛生管理は、電子衝撃を用いて、約20Mrad未満、例えば、約0.1～15Mrad、約0.5～7Mradまたは約1～3Mradの線量で実施し得る。10

【0141】

本明細書に記載工程によって、プラントの他の部分で使用する（熱電併給）、または自由市場で販売する蒸気および電気を発生させるのに有用な様々な副生成物ストリームが生成され得る。例えば、副生成物ストリームを燃焼させて発生した蒸気を蒸留工程に用いることができる。また別の例として、副生成物を燃焼させて発生した電気を用いて、前処理に使用する電子ビーム発生装置に動力を供給することができる。

【0142】

工程全体を通して、多数の入手源から蒸気または電気を発生させるために使用する副生成物が得られる。例えば、廃水の嫌気性消化により、メタンが多く廃棄物バイオマス（スラッジ）の量が少ないバイオガスが生成し得る。また別の例として、糖化後および／または蒸留後の固体物（例えば、前処理および主要工程で残った未変換のリグニン、セルロースおよびヘミセルロース）を使用する、例えば、燃料として燃焼させるができる。20

【0143】

食品および医薬品を含めたその他の中間体および生成物については、2010年5月20日に公開されたMedoffに対する米国特許出願公開第2010/0124583号（A1）（開示全体が参照により本明細書に組み込まれる）に記載されている。

【0144】

リグニン由来生成物

記載される方法によってリグノセルロース処理から得られる使用済みバイオマス（例えば、使用済みリグノセルロース系原料）はリグニン含有量が多く、コジェネレーションプラントで燃焼させてエネルギーを生産するのに有用であることに加えて、それ以外にも価値ある生成物としての用途を有し得ると予想される。例えば、リグニンをプラスチックとして捕捉し使用する、または合成的に他のプラスチックに質を高めることができる。いくつかの場合には、リグノスルホン酸に変換してもよく、これを結合剤、分散剤、乳化剤または捕捉剤として使用し得る。30

【0145】

結合剤として使用する場合、リグニンまたはリグノスルホン酸を例えば、成型炭に入れて、セラミックに入れて、カーボンブラックの結合に、肥料と除草剤の結合に、粉塵抑制剤として、合板および削片板の作製に、動物飼料の結合に、ガラス纖維の結合剤として、リノリウムペーストの結合剤として、および土壤安定剤として使用し得る。40

【0146】

分散剤として使用する場合、リグニンまたはリグノスルホン酸を例えば、コンクリート混合物、粘土およびセラミック、染料および顔料、革なめしならびにセッコウ板に使用し得る。

【0147】

乳化剤として使用する場合、リグニンまたはリグノスルホン酸を例えば、アスファルト、顔料および染料、農薬ならびにワックス乳剤に使用し得る。

【0148】

10

20

30

40

50

捕捉剤としては、リグニンまたはリグノスルホン酸を例えれば、微量栄養素システム、洗浄化合物および水処理システム、例えればボイラーおよび冷却システムに使用し得る。

【0149】

エネルギー生産に関しては、リグニンはホモセルロース (homocellulose) よりも炭素を多く含むため、一般にホロセルロース (セルロースおよびヘミセルロース) よりもエネルギー含有量が多い。例えれば、乾燥リグニンのエネルギー含有量は、ホロセルロースが1ポンド (約0.45kg) 当たり7,000~8,000BTU (約7,400~約8,400kJ) であるのに対し、1ポンド (約0.45kg) 当たり約11,000~12,500BTU (約11,600~約13,100kJ) となり得る。このため、リグニンの密度を高め、燃焼用の練炭およびペレットに変換することができる。例えれば、本明細書に記載される方法によってリグニンをペレットに変換することができる。ペレットまたは練炭の燃焼を遅くするには、線量約0.5Mrad~5Mradの放射線を照射するなどしてリグニンを架橋することができる。架橋は、より遅い燃焼の形状因子となり得る。ペレットまたは練炭などの形状因子は、空気の不在下、例えば400~950で熱分解させることによって、「合成石炭」または木炭に変換することができる。熱分解の前にリグニンを架橋して構造統合性を維持するのが望ましいこともある。

10

【0150】

糖化

供給原料を容易に処理が可能な形態に変換するために、糖化剤、例えれば酵素または酸、糖化と呼ばれる過程によって、供給原料中のグルカン含有またはキシラン含有セルロースを糖などの低分子量炭水化物に加水分解し得る。次いで、低分子量炭水化物を例えれば、単細胞タンパク質工場、酵素製造プラントまたは燃料プラント、例えばエタノール製造施設などの既存の製造プラントで使用し得る。

20

【0151】

酵素を用いて、例えれば、溶液、例えれば水溶液中で原料と酵素を一緒にすることによって供給原料を加水分解し得る。

【0152】

あるいは、バイオマスのセルロースおよび/またはリグニン部分などのバイオマスを分解するか、様々なセルロース分解酵素 (セルラーゼ)、リグニナーゼまたは様々な小分子のバイオマス分解代謝産物を含有もしくは生成する生物体によって、酵素を供給してもよい。このような酵素は、相乗的に作用してバイオマスの結晶セルロースまたはリグニン部分を分解する酵素の複合体であり得る。セルロース分解酵素の例としては、エンドグルカナーゼ、セロビオヒドロラーゼおよびセロビアーゼ (ベータ-グルコシダーゼ) が挙げられる。

30

【0153】

糖化の過程では、最初にセルロース基質がランダムな位置でエンドグルカナーゼによって加水分解され、オリゴマー中間体が生成する。次いで、この中間体がセロビオヒドロラーゼなどのエキソ分解性のグルカナーゼの基質となり、セルロースポリマーの末端からセロビオースが生成する。セロビオースは水溶性の1,4結合したグルコース二量体である。最後にセロビアーゼがセロビオースを分解しグルコースが生じる。この過程の効率 (例えれば、加水分解に要する時間および/または加水分解の完全度) は、セルロース系原料の抵抗性によって左右される。

40

【0154】

したがって、一般には原料とセルラーゼ酵素を液体媒体、例えれば水溶液中で一緒にすることによって、処理済みバイオマス原料を糖化し得る。いくつかの場合には、2012年4月26日に公開されたMedoffおよびMastermanによる米国特許出願公開第2012/0100577号 (A1) (内容全体が本明細書に組み込まれる) に記載されているように、糖化の前に原料を熱湯でゆでるか、熱湯に浸けるか、熱湯で加熱する。

【0155】

糖化工程は、一部もしく全部を製造プラント内のタンク (例えば、容積が少なくとも4

50

000、40,000または500,000Lのタンク)で実施してよく、かつ/または一部もしくは全部を、例えば鉄道車両、タンカートラックまたは超大型タンカーもしくは船倉中で、輸送中に実施してよい。完全な糖化に必要な時間は、工程条件ならびに使用する炭水化物含有原料および酵素によって左右される。糖化を製造プラントで制御された条件下で実施する場合、セルロースは約12~96時間で実質的に完全に糖、例えばグルコースに変換され得る。糖化の一部または全部を輸送中に実施する場合、糖化に要する時間はこれより長くなり得る。

【0156】

糖化する際には一般に、2010年5月18日に出願、国際公開第2010/135380号として英語で公開され、米国特許第を指定した国際出願PCT/US2010/035331号(開示全体が参照により本明細書に組み込まれる)に記載されているように、噴流混合を用いてタンクの内容物を混合するのが好ましい。

10

【0157】

界面活性剤の添加によって糖化の速度が増大し得る。界面活性剤の例としては、Tween(登録商標)20またはTween(登録商標)80ポリエチレンゴリコール界面活性剤などの非イオン性界面活性剤、イオン性界面活性剤または両性界面活性剤が挙げられる。

【0158】

糖化により得られる糖溶液の濃度は一般に、比較的高濃度である、例えば、40重量%超または50重量%超、60重量%超、70重量%超、80重量%超、90重量%超もしくはまたは場合によっては95重量%超であるのが好ましい。水分を、例えば蒸発によって除去し、糖溶液の濃度を増大させ得る。これにより輸送量が少なくなり、溶液中の微生物増殖も抑えられる。

20

【0159】

あるいは、比較的低濃度の糖溶液を使用してもよく、この場合、抗菌添加剤、例えば広域抗生物質を低濃度、例えば50~150ppmで加えるのが望ましいことがある。その他の適切な抗生物質としては、アンホテリシンB、アンピシリン、クロラムフェニコール、シプロフロキサシン、ゲンタマイシン、ヒグロマイシンB、カナマイシン、ネオマイシン、ペニシリン、ピューロマイシン、ストレプトマイシンが挙げられる。抗生物質は輸送および保管時の微生物増殖を抑制し、しかるべき濃度、例えば15~1000重量ppm、例えば25~500ppmまたは50~150ppmで使用され得る。糖濃度が比較的高い場合でも、必要に応じて抗生物質を加えることができる。あるいは、保存特性のある他の抗菌添加剤を使用してもよい。抗菌添加剤(1つまたは複数)は食品用であるのが好ましい。

30

【0160】

酵素とともに炭水化物含有原料に添加される水分量を抑えることによって、比較的高濃度の溶液を得ることができる。濃度は、例えば、糖化が生じる程度を制御することによって制御され得る。例えば、溶液に加える炭水化物含有原料を增量することによって、濃度を増大させ得る。溶液中に生成する糖を保持するために、界面活性剤、例えば上記界面活性剤のうちの1つを加え得る。ほかにも、溶液の温度を高くすることによって溶解度を増大させ得る。例えば、溶液を40~50、60~80またはそれ以上の温度に維持し得る。

40

【0161】

糖化剤

適切なセルロース分解酵素としては、バチルス(Bacillus)属、コプリナス(Coprinus)属、ミセリオフトラ(Myceliophthora)属、セファロスコリウム(Cephalosporium)属、シタリジウム(Scytalidium)属、ペニシリウム(Penicillium)属、アスペルギルス(Aspergillus)属、シュードモナス(Pseudomonas)属、ヒューミコラ(Humicola)属、フサリウム(Fusarium)属、チエラビア(Thielavia)50

属、アクレモニウム (*Acremonium*) 属、クリソスボリウム (*Chrysosporium*) 属およびトリコデルマ (*Trichoderma*) 属の種由来のセルラーゼ、特にアスペルギルス (*Aspergillus*) 種(例えば、欧洲特許第0458162号を参照されたい)、ヒューミコラ・インソレンス (*Humicola insolens*) (シタリジウム・サーモフィラム (*Scytalidium thermophilum*) として再分類された; 例えば、米国特許第4,435,307号を参照されたい)、ネナガヒトヨタケ (*Coprinus cinereus*)、フサリウム・オキシスポラム (*Fusarium oxysporum*)、ミセリオフトラ・サーモフィラ (*Myceliophthora thermophila*)、トンビマイタケ (*Meripilus giganteus*)、チエラビア・テレストリス (*Thielavia terrestris*)、アクレモニウム (*Acremonium*) 種(特に限定されないが、*A.ペルシシナム* (*A. persicinum*)、*A.アクレモニウム* (*A. acremonium*)、*A.ブラキペニウム* (*A. brachypenium*)、*A.ジクロモスボラム* (*A. dichromosporum*)、*A.オブクラバタム* (*A. obclavatum*)、*A.ピンケルトニエ* (*A. pinkertoniae*)、*A.ロセオグリセウム* (*A. roseogriseum*)、*A.インコロラタム* (*A. incoloratum*) および*A.フラタム* (*A. furatum*) を含む) の種から選択される菌株によって産生されるセルロース分解酵素が挙げられる。好ましい菌株としては、ヒューミコラ・インソレンス (*Humicola insolens*) DSM1800、フサリウム・オキシスポラム (*Fusarium oxysporum*) DSM2672、ミセリオフトラ・サーモフィラ (*Myceliophthora thermophila*) CBS117.65、セファロスボリウム (*Cephalosporium*) 種 RYM-202、アクレモニウム (*Acremonium*) 種 CBS 478.94、アクレモニウム (*Acremonium*) 種 CBS 265.95、アクレモニウムペルシシナム (*Acremonium persicinum*) CBS169.65、アクレモニウム・アクレモニウム (*Acremonium acremonium*) AHU9519、セファロスボリウム (*Cephalosporium*) 種 CBS535.71、アクレモニウム・ブラキペニウム (*Acremonium brachypenium*) CBS866.73、アクレモニウム・ジクロモスボラム (*Acremonium dichromosporum*) CBS683.73、アクレモニウム・オブクラバタム (*Acremonium obclavatum*) CBS311.74、アクレモニウム・ピンケルトニエ (*Acremonium pinkertoniae*) CBS157.70、アクレモニウム・ロセオグリセウム (*Acremonium roseogriseum*) CBS134.56、アクレモニウム・インコロラタム (*Acremonium incoloratum*) CBS146.62 およびアクレモニウム・フラタム (*Acremonium furatum*) CBS299.70 H が挙げられる。このほか、クリソスボリウム (*Chrysosporium*)、好ましくはクリソスボリウム・ラックノウェンス (*Chrysosporium lucknowense*) の菌株からセルロース分解酵素を得てもよい。使用できるほかの菌株としては、特に限定されないが、トリコデルマ (*Trichoderma*) (特に *T. viride*、*T.リーセイ* (*T. reesei*) および *T.コニンギイ* (*T. koningii*)、好アルカリ性バチルス (*Bacillus*) (例えば、米国特許第3,844,890号および欧洲特許第0458162号を参照されたい) およびストレプトミセス (*Streptomyces*) (例えば、欧洲特許第0458162号を参照されたい) が挙げられる。

【0162】

酵素に加えて、またはこれと組み合わせて、酸、塩基をはじめとする化学物質(例えば、オキシダント)を用いてリグノセルロース系およびセルロース系原料を糖化し得る。これらは任意の組合せまたは配列で(例えば、酵素の添加前、添加後および/または添加時に使用することができる。例えば、強鉱酸(例えば、 HCl 、 H_2SO_4 、 H_3PO_4)および強塩基(例えば、 $NaOH$ 、 KOH)を用いることができる。

10

20

30

40

50

【0163】

糖

本明細書に記載の工程で、例えば糖化後、糖（例えば、グルコースおよびキシロース）を単離し得る。例えば、沈殿、結晶化、クロマトグラフィー（例えば、擬似移動層式クロマトグラフィー、高圧クロマトグラフィー）、遠心分離、抽出、当該技術分野で公知の他の任意の単離方法およびその組合せによって糖を単離し得る。

【0164】

水素化およびその他の化学変換

本明細書に記載の工程には水素化が含まれ得る。例えば、グルコースおよびキシロースをそれぞれソルビトールおよびキシリトールに水素化し得る。水素化は、高圧下（例えば、10～12000 psi（約69 kPa～約8.3×104 kPa）、約100～10,000 psi（約690～69,000 kPa）、触媒（例えば、Pt／ガンマ-Al₂O₃、Ru/C、ラネーニッケルをはじめとする当業者に公知の触媒）をH₂と組み合わせて用いることによって実施し得る。本明細書に記載の工程で得られた生成物の他の種類の化学変換、例えば、有機糖由来の生成物（例えば、フルフラールおよびフルフラール由来の生成物）の生成を用いてもよい。糖由来生成物の化学変換については、2013年7月3日に出願された米国特許出願第13/934,704（開示全体が参照により本明細書に組み込まれる）に記載されている。

10

【0165】

発酵

20

酵母およびザイモモナス（*Zymomonas*）菌を例えば、糖（1つまたは複数）からアルコール（1つまたは複数）への発酵または変換に用い得る。その他の微生物については以下で論じる。発酵の最適は約pH 4～7である。例えば、酵母の最適pHはpH約4～5であり、ザイモモナス（*Zymomonas*）の最適pHはpH約5～6である。典型的な発酵時間は、20～40（例えば、26～40）の範囲の温度で約24～168時間（例えば、24～96時間）であるが、好熱性微生物はこれよりも高い温度を好む。

【0166】

30

いくつかの実施形態では、例えば、嫌気性生物を使用する場合、発酵の少なくとも一部は無酸素下で、例えば、N₂、Ar、He、CO₂またはその混合物などの不活性ガスで覆って発酵を実施するのが好ましい。さらに、発酵の一部の時間または発酵時間全体を通して、タンクに不活性ガスを流し混合物にバージし続けてもよい。いくつかの場合には、発酵時の二酸化炭素発生によって嫌気性条件が得られ、追加の不活性ガスを必要としない。

【0167】

40

いくつかの実施形態では、低分子量の糖が完全に生成物（例えば、エタノール）に変換される前に発酵工程の全部または一部を中断し得る。中間発酵生成物には糖および炭水化物が高濃度で含まれる。糖および炭水化物は、当該技術分野で公知の任意の手段によって単離され得る。この中間発酵生成物をヒトまたは動物が摂取する食物の調製食糧の調製に用い得る。上記のものに代えてまたは加えて、中間発酵生成物をステンレス製の実験室用ミルで微細な粒子径になるまで粉碎し、粉末状の物質を作製してもよい。発酵中に噴流混合を用いてもよく、いくつかの場合には、糖化と発酵を同じタンク内で実施する。

【0168】

糖化および/または発酵中に微生物のための栄養素、例えば、2011年7月15日に出願された米国特許出願公開第2012/0052536号（開示全体が参照により本明細書に組み込まれる）に記載されている飼料ベースの栄養素パッケージを添加してもよい。

【0169】

「発酵」には、2013年6月27日に公開された国際出願PCT/US2012/71093号、2012年6月27日に公開された国際出願PCT/US2012/719

50

07号および2012年6月27日に公開された国際出願PCT/US2012/71083号（内容全体が参照により本明細書に組み込まれる）に開示されている方法および生成物が含まれる。

【0170】

国際出願PCT/US2007/074028号（2007年7月20日に出願され、国際公開第2008/011598号として英語で公開され、米国が指定されている）に記載されている移動式の発酵槽を用いてもよく、これは米国発行済み特許第8,318,453号を有するものであり、その内容全体が本明細書に組み込まれる。同様に、糖化設備が移動式のものであってもよい。さらに、輸送中に糖化および/または発酵の一部または全部を実施してもよい。

10

【0171】

発酵剤

発酵に用いる微生物（1つまたは複数）は、天然の微生物および/または組換え微生物であり得る。例えば、微生物は細菌（特に限定されないが、例えばセルロース分解細菌が挙げられる）、真菌（特に限定されないが、例えば酵母が挙げられる）、植物、原生生物、例えば、原生動物もしくは真菌様原生生物（特に限定されないが、例えば粘菌が挙げられる）または藻であり得る。生物体に適合性がある場合、生物体の混合物を用いてもよい。

【0172】

適切な発酵微生物は、グルコース、フルクトース、キシロース、アラビノース、マンノース、ガラクトース、オリゴ糖または多糖などの炭水化物を発酵生成物に変換する能力を有するものである。発酵微生物としては、サッカロミセス属（*Saccharomyces*）の種（特に限定されないが、*S. cerevisiae*（パン酵母）、*S. distaticus*、*S. uvarum*）が挙げられる）、クリベロミセス（*Kluyveromyces*）属（特に限定されないが、*K. marxianus*、*K. fragilis*）が挙げられる）、カンジダ（*Candida*）属（特に限定されないが、*C. pseudotropicalis*および*C. brassicaceae*）が挙げられる）、ピキア・スティピティス（*Pichiastipitis*）（カンジダ・シェハタエ（*Candida shehatae*）の近縁種）、クラビスポラ（*Clavisporea*）属（特に限定されないが、*C. lusitaniae*）および*C. opuntiae*）が挙げられる）、パキソレン（*Pachysolen*）属（特に限定されないが、*P. tannophilus*）が挙げられる）、ブレタノミセス（*Brettanomyces*）属（特に限定されないが、例えば、*B. clausenii*（*Philippidis, G. P., 1996, Cellulose bioconversion technology, in Handbook on Bioethanol: Production and Utilization, Wyman, C. E. (編), Taylor & Francis, Washington, DC, 179-212*））の菌株が挙げられる。その他の適切な微生物としては、例えば

、ザイモモナス・モビリス（*Zymomonas mobilis*）、クロストリジウム（*Clostridium*）種（特に限定されないが、*C. thermocellum*（*Philippidis, 1996, 上記*）、*C. saccharobutylicum*）、*C. tyrobutyricum*）、*C. saccharobutylicum*）、*C. puniceum*）、*C. beijerinckii*）および*C. acetobutylicum*）、モニリエラ（*Moniliaella*）種（特に限定されないが、*M. pollinosis*）、*M. tomentosa*）、*M. madiida*）、*M. nigrescens*）

20

30

40

50

、M.オエドセファリ(*M. oedocephalii*)、M.メガチリエンシス(*M. megachiliensis*)を含む)、ヤロウイア・リポリティカ(*Yarrowia lipolytica*)、アウレオバシジウム(*Aureobasidium*)種、トリコスポロノイデス(*Trichosporonoides*)種、トリゴノブシス・バリアビリス(*Trigonopsis variabilis*)、トリコスボロン(*Trichosporon*)種、モニリエラアセトアブタンス(*Moniliella acetabutans*)種、チフラ・バリアビリス(*Typhula variabilis*)、カンジダ・マグノリエ(*Candida magnoliae*)、クロボキン(*Ustilaginomycetes*)種、シュードザイマ・ツクバエンシス(*Pseudozyma tsukubaensis*)、ザイゴサッカロミセス(*Zygosaccharomyces*)属、デバリオミセス(*Debaryomyces*)属、ハンセヌラ(*Hansenula*)属およびピキア(*Pichia*)属の酵母種ならびにデマチオイド(*dematioid*)のトルラ(*Torula*)属の真菌(例えば、T.コラリナ(*T. corallina*))が挙げられる。

【0173】

このような微生物菌株の多くが、購入するか寄託機関、数例挙げるとATCC(American Type Culture Collection, Manassas, Virginia, USA)、NRRL(Agricultural Research Service Culture Collection, Peoria, Illinois, USA)またはDSMZ(Deutsche Sammlung von Mikroorganismen und Zellkulturen GmbH, Braunschweig, Germany)などを通して公的に入手可能なものである。

【0174】

市販の酵母としては、例えば、RED STAR(登録商標)/Lesaffre Ethanol Red(Red Star/Lesaffre社(米国)から入手可能)、FALI(登録商標)(Burns Philip Food社(米国)の一部門、Fleischmann's Yeastから入手可能)、SUPERSTART(登録商標)(Alltech社(現Lallemand社)から入手可能)、GERT STRAND(登録商標)(Gert STRAND AB社(スウェーデン)から入手可能)およびFERMOL(登録商標)(DSM Specialties社から入手可能)が挙げられる。

【0175】

蒸留

発酵後、得られた液体を、例えば「ビアカラム」を用いて蒸留し、エタノールをはじめとするアルコールと水および固体残留物の大部分とを分離し得る。蒸留は(例えば、溶液中の糖などの生成物の分解を抑えるため)真空下で実施され得る。ビアカラムから出る蒸気は、例えば、少なくとも35重量%(例えば、少なくとも40重量%、少なくとも50重量%または少なくとも90重量%)のエタノールであり得、精留カラムへ送られ得る。気相分子篩を用いて、ほぼ共沸性の(例えば、少なくとも約92.5%)のエタノールと精留カラムの水の混合物が純粋な(少なくとも約99.5%または場合によっては約100%)エタノールに精製され得る。ビアカラムの残液は三重効用蒸発缶の第一効用缶へ送られ得る。精留カラムの還流冷却器により、この効用缶に熱が加えられ得る。第一効用缶の後、遠心分離を用いて固体を分離し、回転乾燥機で乾燥させ得る。遠心分離の排出液の一部(25%)は発酵に再利用し、残りは蒸発缶の第二および第三効用缶へ送られ得る。蒸発缶の濃縮物のほとんどは、きわめて清浄な濃縮物として工程に戻すことができ、ごく一部のものは、低沸点化合物の蓄積の防ぐため分離して廃水処理に回す。

【0176】

炭化水素含有原料

本明細書に記載される方法およびシステムを用いる他の実施形態では、炭化水素含有原料を処理し得る。本明細書に記載される任意の工程を用いて、本明細書に記載される任意

の炭化水素含有原料を処理することができる。本明細書で使用される「炭化水素含有原料」は、オイルサンド、オイルシェール、タールサンド、炭粉、石炭スラリー、ビチューメン、様々な種類の石炭をはじめとする炭化水素成分と固体分の両方を含む天然原料および合成原料を包含するものとする。固体分には、岩、砂、粘土、石、沈泥、掘削スラリーをはじめとする有機および／または無機固体分が含まれ得る。この用語はほかにも、掘削の廃棄物および副生成物、精製の廃棄物および副生成物をはじめとする炭化水素成分含有廃棄物などの廃棄物、例えばアスファルトシングルおよびアスファルトカバー、アスファルト舗装などを包含し得る。

【0177】

本明細書に記載される方法およびシステムを用いるまた別の実施形態では、木材および木材含有製品を処理し得る。例えば、材木製品、例えば、板、シート、積層物、梁、削片板、複合材料、荒切り木材、軟材および硬材を処理し得る。さらに、間材、低木、木片、おがくず、根、樹皮、断端、分解された木材をはじめとする木材含有バイオマス原料を処理し得る。

10

【0178】

運搬システム

様々な運搬システムを用いてバイオマス原料を例えば、ボルトおよびボルト内の電子ビーム下に運搬し得る。例示的な運搬装置には、ベルトコンベア、空気コンベア、スクリューコンベア、カート、列車、レール上の列車またはカート、エレベータ、フロントローダ、バックホー、クレーン、様々なスクラーパおよびショベル、トラックがあり、投入装置を用い得る。例えば、本明細書に記載される様々な工程に振動コンベアを用い得る。振動コンベアについては、2013年10月10日に出願された国際出願PCT/US2013/64289号（開示全体が参考により本明細書に組み込まれる）に記載されている。

20

【0179】

任意選択で、1つまたは複数の運搬システムを取り囲んでもよい。囲いを用いる場合ほかにも、空気の酸素レベルを低く維持するため、囲まれたコンベアに不活性ガスをバージしてもよい。酸素レベルを低く維持することにより、反応性および毒性を理由に望ましくないこともあるオゾンの形成が回避される。例えば、酸素は約20%未満（例えば、酸素が約10%未満、約1%未満、約0.1%未満、約0.01%または場合によっては約0.001%未満）であり得る。バージングは、特に限定されないが、窒素、アルゴン、ヘリウムまたは二酸化炭素を含めた不活性ガスを用いて実施し得る。不活性ガスは、液体源（例えば、液体窒素またはヘリウム）のボイルオフから供給するか、空気からその場で発生もしくは分離させるか、タンクから供給し得る。不活性ガスは再循環させてもよく、銅触媒床などの触媒を用いて残存酸素を除去してもよい。あるいは、バージング、再循環および酸素除去を組み合わせて実施して、酸素レベルを低く維持してもよい。

30

【0180】

囲まれたコンベアにはほかにも、バイオマスと反応し得る反応性ガスをバージしてもよい。このバージは照射工程の実施前、実施時または実施後に実施し得る。反応性ガスは、特に限定されないが、亜酸化窒素、アンモニア、酸素、オゾン、炭化水素、芳香族化合物、アミド、過酸化物、アジド、ハロゲン化物、オキシハライド、リン化物、ホスフィン、アルシン、スルフィド、チオール、ボランおよび／または水素化物であり得る。反応性ガスは、それがバイオマスと反応するように、囲いの中で例えば、照射（例えば、電子ビーム、UV照射、マイクロ波照射、加熱、IR照射）によって活性化させ得る。バイオマスそのものを例えば照射によって活性化させてもよい。バイオマスを電子ビームにより活性化させてラジカルを発生させ、次いでこれが、例えばラジカルカップリングまたはラジカルクエンチングによって、活性化または不活性化状態の反応性ガスと反応するのが好ましい。

40

【0181】

このほか、囲まれたコンベアに供給されるバージングガスを例えば、約25%未満、約

50

0 未満、約 - 40 未満、約 - 80 未満、約 - 120 未満に冷却してもよい。例えば、ガスを液体窒素などの圧縮ガスからボイルオフさせるか、固体二酸化炭素から昇華させ得る。また別の例では、冷却機によってガスを冷却するか、コンベアの一部または全体を冷却し得る。

【0182】

その他の実施形態

本明細書に記載される任意の原料、工程または処理済み原料を用いて、生成物および/または中間体、例えば複合材料、充填剤、結合剤、プラスチック添加剤、吸着剤および放出制御剤などを作製し得る。この方法は、例えば原料への加圧および加熱による高密度化処理を含み得る。例えば、繊維性原料と樹脂またはポリマーとを組み合わせることによって複合材料を作製し得る。例えば、照射架橋樹脂、例えば熱可塑性樹脂と繊維性原料とを組み合わせて、繊維性原料/架橋性樹脂の組合せが得られる。このような材料は、例えば、建築材料、保護シート、容器をはじめとする構造材料（例えば、成形物および/または押出物）として有用であり得る。吸収剤は例えば、ペレット、チップ、繊維および/またはシートの形態であり得る。吸着剤は例えば、ペット床敷、包装材料として、または公害防止システムに使用され得る。放出制御マトリックスは例えば、ペレット、チップ、繊維またはシートの形態であり得る。放出制御マトリックスは例えば、薬物、殺生物剤、香料を放出させるのに使用され得る。例えば、複合材料、吸収剤および放出制御剤およびその使用については、2006年3月23日に出願された米国特許出願PCT/US2006/010648号および2011年11月22日に出願された米国特許第8,074,910号（開示全体が参考により本明細書に組み込まれる）に記載されている。

10

20

30

40

【0183】

いくつかの場合には、バイオマス原料を、例えば加速電子を用いて、第一のレベルで処理して抵抗性を減少させ、1つまたは複数の糖（例えば、キシロース）を選択的に放出させる。次いで、バイオマスを第二のレベルで処理して1つまたは複数の他の糖（例えば、グルコース）を放出させ得る。任意選択で、処理と処理の間にバイオマスを乾燥させてもよい。処理は、化学的処理および生化学的処理を加えて糖を放出させること含み得る。例えば、バイオマス原料を約20Mrad未満（例えば、約15Mrad未満、約10Mrad未満、約5Mrad未満、約2Mrad未満）のレベルで処理し、次いで、硫酸を10%未満（例えば、約9%未満、約8%未満、約7%未満、約6%未満、約5%未満、約4%未満、約3%未満、約2%未満、約1%未満、約0.75%未満、約0.50%未満、約0.25%未満）含有する硫酸用液で処理して、キシロースを放出させる。例えば溶液中に放出されたキシロースを固体物から分離し、任意選択で、溶媒/溶液（例えば、水および/または酸性化した水）で固体物を洗浄し得る。任意選択で、例えば空气中および/または真空中で、任意選択で加熱（例えば、約150未満、約120未満）しながら、水分含有量が約25重量%未満（約20重量%未満、約15重量%未満、約10重量%未満、約5重量%）になるまで固体物を乾燥させてもよい。次いで、固体物を約30Mrad未満（例えば、約25Mrad未満、約20Mrad未満、約15Mrad未満、約10Mrad未満、約5Mrad未満、約1Mrad未満または場合によっては全くなし）のレベルで処理し、次いで、酵素（例えば、セルラーゼ）で処理してグルコースを放出させ得る。グルコース（例えば、溶液中のグルコース）を残りの固体物から分離し得る。次いで、固体物をさらに処理し、例えば、エネルギーをはじめとする他の生成物（例えば、リグニン由来生成物）の作製に用い得る。

【0184】

香味料、香料および着色料

例えば本明細書に記載される工程システムおよび/または設備によって作製される、本明細書に記載されるいのちの生成物および/または中間体を香味料、香料、着色料および/またはその混合物と組み合わせ得る。例えば、（任意選択で、香味料、香料および/または着色料とともに）糖、有機酸、燃料、ポリオール、例えば糖アルコールなど、バイオマス、繊維および複合材料のいのちの1つまたは複数のものを組み合せて（例えば、製

50

剤化して、混合して、または反応させて)または用いて、他の生成物を作製し得る。例えば、1つまたは複数のこのような生成物を用いて、石鹼、界面活性剤、キャンディ、飲料(例えば、コーラ、ワイン、ビール、ジンまたはウォッカなどの酒類、スポーツ飲料、コーヒー、茶)、医薬品、接着剤、シート(例えば、織布、不織布、繊維、ティッシュ)および/または複合材料(例えば、板)を作製し得る。例えば、1つまたは複数のこのような生成物をハーブ、花、花弁、スパイス、ビタミン、ポプリまたはキャンドルと組み合わせ得る。例えば、製剤化、混合または反応済みの組合せは、グレープフルーツ、オレンジ、リンゴ、ラズベリー、バナナ、レタス、セロリ、シナモン、チョコレート、バニラ、ペパーミント、ミント、オニオン、ガーリック、コショウ、サフラン、ショウキョウ、ミルク、ワイン、ビール、茶、牛赤身肉、魚、ハマグリ、オリーブ油、ココナッツ脂、豚脂、バター脂、ビーフブイヨン、莢果、ジャガイモ、マーマレード、ハム、コーヒーおよびチーズの香味/香を有し得る。

10

【0185】

任意の量、例えば約0.001重量%~約30重量%など、例えば約0.01~約20重量%、約0.05~約10重量%または約0.1重量%~5重量%の香味料、香料および着色料を添加し得る。これらは、任意の手段によって任意の順序または配列で(例えば、攪拌、混合、乳化、ゲル化、注入、加熱、超音波処理および/または懸濁して)、(例えば、本明細書に記載される生成物または中間体のうちのいずれか1つまたは複数と)製剤化し、混合し、かつ/または反応させ得る。このほか、充填剤、結合剤、乳化剤、抗酸化剤、例えばタンパク質ゲル、デンプンおよびシリカを用い得る。

20

【0186】

一実施形態では、照射によって生じた反応部位が香味料、香料および着色料の適合する反応部位と反応し得るように、バイオマスに照射した直後に香味料、香料および着色料をバイオマスに添加し得る。

20

【0187】

香味料、香料および着色料は、天然物質および/または合成物質であり得る。これらの物質は、化合物、組成物またはその混合物のうちの1つまたは複数のもの(例えば、複数の化合物の製剤化した組成物または天然の組成物)であり得る。任意選択で、香味料、香料、抗酸化剤および着色料は、例えば発酵工程(例えば、本明細書に記載される糖化原料の発酵)から生物学的に得られるものであり得る。上記のものに代えて、またはこれに加えて、これらの香味料、香料および着色料は、生物体(例えば、植物、真菌、動物、細菌または酵母)全体または生物体の一部分から採取されるものであり得る。本明細書に記載される方法、システムおよび設備、熱水抽出、超臨界流体抽出、化学抽出(例えば、溶媒抽出または酸と塩基を含む反応抽出)、機械的抽出(例えば、圧搾、破碎、ろ過)の利用、酵素の利用、細菌を用いた出発物質の分解などおよび上記の方法の組合せを含めた任意の手段によって、生物体を収集および/抽出して着色料、香味料、香料および/または抗酸化剤を得ることができる。化合物は、化学反応、例えば糖(例えば、本明細書に記載される通りに得られるもの)とアミノ酸との組合せ(メイラード反応)によって得られるものであり得る。香味料、香料、抗酸化剤および/または着色料は、本明細書に記載される方法、設備またはシステムのほか、例えばエステルおよびリグニン由来生成物によって作製される中間体および/または生成物であり得る。

30

【0188】

香味料、香料または着色料の一部の例としてポリフェノールがある。ポリフェノールは、多くの果物、野菜、穀物粒および花の赤色、紫色および青色の着色に関与する色素である。ポリフェノールには抗酸化特性もあり、苦味があることも多い。抗酸化特性があることから、ポリフェノールは重要な保存剤となる。ポリフェノールの種類には、アントシアニジンなどのフラボノイド、フラバノノール、フラバン-3-オール、フラバノンおよびフラバノノールがある。使用し得るその他のフェノール化合物としては、フェノール酸およびそのエステル、例えばクロロゲン酸および重合タンニンが挙げられる。

40

【0189】

50

着色料のうち、無機化合物、鉱物または有機化合物、例えば、二酸化チタン、酸化亜鉛、酸化アルミニウム、カドミウムイエロー（例えば、CdS）、カドミウムオレンジ（例えば、Seをいくらか含むCdS）、アリザリンクリムソン（例えば、合成または非合成ローズマダー）、ウルトラマリン（例えば、合成ウルトラマリン、天然ウルトラマリン、合成ウルトラマリンバイオレット）、コバルトブルー、コバルトイエロー、コバルトグリーン、ビリジアン（例えば、水和酸化クロム（III））、黄銅鉱、コニカル石、コルヌビア石、コーンウォール石およびリロコン石を使用し得る。カーボンブラックおよび自己分散ブラックなどの黒色顔料を使用してもよい。

【0190】

用い得る一部の香味料および香料としては、アカレア（ACALEA）TBHQ、アセト（ACET）C-6、アリルアミルグリコラート、アルファテルピネオール、アンブレットリド、アンブリノール95、アンドラン（ANDRANE）、アフェルマート（APHERMATE）、アップルライド（APPLELIDE）、BACDANOL（登録商標）、ベルガマール（BERGAMAL）、ベータイオノンエポキシド、ベータナフチルイソ-ブチルエーテル、ビシクロノナラクトン、BORNAFIX（登録商標）、カントキサー、CASHMERAN（登録商標）、CASHMERAN（登録商標）ベルベット（VELVET）、CASSIFFIX（登録商標）、セドラフィックス（CEDRAFIX）、CEDRAMBER（登録商標）、酢酸セドリル、セlestriド、シンナマルバ（CINNAMALVA）、シトラールジメチルアセタート、CITROLATE（商標）、シトロネロール700、シトロネロール950、シトロネロールCOEUR、酢酸シトロネリル、酢酸シトロネリルピュア、ギ酸シトロネリル、クラリセット、クロナール（CLONAL）、コニフェラン（CONIFERAN）、コニフェラン（CONIFERAN）ピュア、コルテックスアルデヒド50%ペオモーサ（CORTEX ALDEHYDE 50% PEOMOSA）、シクラブート（CYCLABUTE）、CYCLACET（登録商標）、CYCLAPROP（登録商標）、CYCLEMAX（商標）、シクロヘキシリ酢酸エチル、ダマスコル（DAMASCOL）、デルタダマスコーン（DELTA DAMASCONE）、ジヒドロシクラセット（DIHYDRO CYCLACET）、ジヒドロミルセノール（DIHYDRO MILSENOOL）、ジヒドロテルピネオール、ジヒドロテルピニルアセタート、ジメチルシクロルモール（DIMETHYLCYCLOLORMOL）、ジメチルオクタノールPQ、ジミルセトール（DIMYRCETOOL）、ディオラ（DIOLA）、ジベンテン、DULCINYL（登録商標）（再結晶化）、エチル-3-フェニルグリシダート、フルーラモン（FLEURAMONE）、フルーラニル（FLEURANIL）、フローラルスーパー（FLORAL SUPER）、フローラルゾーン（FLORALOZONE）、フロリFFOL（FLORIFFOL）、フレイストン（FRAISTONE）、フルクトン（FRUCTONE）、GALAXOLIDE（登録商標）50、GALAXOLIDE（登録商標）50BB、GALAXOLIDE（登録商標）50IPM、未希釈GALAXOLIDE（登録商標）、ガルバスコーン（GALBASSTONE）、ゲラルデヒド（GERALDEHYDE）、ゲラニオール5020、ゲラニオール600型、ゲラニオール950、ゲラニオール980（ピュア）、ゲラニオールCFTクール（COEUR）、ゲラニオールクール（COEUR）、酢酸ゲラニルクール（COEUR）、酢酸ゲラニルピュア、ギ酸ゲラニル、グリサルバ（GRISALVA）、酢酸グアイル、HELIONAL（商標）、ハーバク（HERBAC）、HERBALIME（商標）、ヘキサデカノリド、ヘキサロン（HEXALON）、ヘキセニルサリチラートシス3-、ヒヤシンスボディ（HYACINTH BODY）、ヒヤシンスボディ（HYACINTH BODY）NO.3、ヒドロアトロパアルデヒド.DMA、ヒドロキシオール（HYDROXYOL）、インドラローム（INDOLAROME）、イントレレベン（INTRELEVEN）アルデヒド、イントレレベン（INTRELEVEN）アルデヒド（SPECIAL）、イオノンアルファ、イオノンベータ、イソシクロシトラール、イソシクロゲラニオール、ISO E SUPER（登録商標）、イソブチルキノリン、ジャスマール（JASMAL）、JESSEMAL（登録商標）

10

20

30

40

50

標)、K H A R I S M A L (登録商標)、K H A R I S M A L (登録商標) S U P E R 、クシニール (K H U S I N I L) 、K O A V O N E (登録商標) 、K O H I N O O L (登録商標) 、L I F F A R O M E (商標) 、リモキサー (L I M O X A L) 、L I N D E N O L (商標) 、L Y R A L (登録商標) 、リラーム (L Y R A M E) S U P E R 、マンダリン A L D 1 0 % T R I E T H 、C I T R 、マリチマ (M A R I T I M A) 、M C K チャイニーズ (C H I N E S E) 、M E I J I F F (商標) 、メラフルール (M E L A F L E U R) 、メロゾン (M E L O Z O N E) 、アントラニル酸メチル、メチルイオノンアルファエキストラ、メチルイオノンガンマA、メチルイオノンガンマクール (C O E U R) 、メチルイオノンガンマピュア、メチルラベンダーケトン、M O N T A V E R D I (登録商標) 、ムグエシア (M U G U E S I A) 、ムゲット (M U G U E T) アルデヒド 5 10 0 、ムスク (M U S K) Z 4 、ミラックアルデヒド、酢酸ミルセニル、N E C T A R A T E (商標) 、ネロール 9 0 0 、酢酸ネリル、オシメン、オクタセタール (O C T A C E T A L) 、オレンジフラワー (O R A N G E F L O W E R) エーテル、オリボン、オリニフ (O R R I N I F F) 2 5 % 、オキサスピラン (O X A S P I R A N E) 、オゾフルール (O Z O F L E U R) 、P A M P L E F L E U R (登録商標) 、ペオモサ (P E O M O S A) 、P H E N O X A N O L (登録商標) 、ピカニア (P I C O N I A) 、プレシクレモン (P R E C Y C L E M O N E) B 、酢酸ブレニル、プリスマントール (P R I S M A N T O L) 、レセダボディ (R E S E D A B O D Y) 、ロサルバ (R O S A L V A) 、ロサムスク (R O S A M U S K) 、サンジノール (S A N J I N O L) 、S A N T A L I F F (商標) 、シベルタール (S Y V E R T A L) 、テルピネオール、テルピノレン 2 0 、テルピノレン 9 0 P Q 、テルピノレン R E C T . 、酢酸テルピニル、酢酸テルピニル J A X 、テトラヒドロ、M U G U O L (登録商標) 、テトラヒドロミルセノール、テトラメラン (T E T R A M E R A N) 、T I M B E R S I L K (商標) 、トバカロール (T O B A C A R O L) 、T R I M O F I X (登録商標) O T T 、T R I P L A L (登録商標) 、T R I S A M B E R (登録商標) 、バノリス (V A N O R I S) 、V E R D O X (商標) 、V E R D O X (商標) H C 、V E R T E N E X (登録商標) 、V E R T E N E X (登録商標) H C 、V E R T O F I X (登録商標) クール (C O E U R) 、バートリフ (V E R T O L I F F) 、バートリフ (V E R T O L I F F) イソ、ビオリフ、ビバルディ (V I V A L D I E) 、ゼノリド (Z E N O L I D E) 、A B S インド 7 5 P C T ミグリオール、A B S モロッコ 5 0 P C T D P G 、A B S モロッコ 5 0 P C T T E C 、アブソリュートフレンチ、アブソリュートインド、アブソリュートM D 5 0 P C T B B 、アブソリュートモロッコ、コンセントレイト P G 、チンキ 2 0 P C T 、アンバーグリス (A M B E R G R I S) 、アンブレットアブソリュート、アンブレットシードオイル、アルモワーズオイル 7 0 P C T ツヨン、バジルアブソリュートグランベール、バジルグランベール A B S M D 、バジルオイルグランベール、バジルオイルバーベナ、バジルオイルベトナム、ベイオイルテルペナレス、ビーズワックス A B S N G 、ビーズワックスアブソリュート、ベンゾインレジノイドシャム、ベンゾインレジノイドシャム 5 0 P C T D P G 、ベンゾインレジノイドシャム 5 0 P C T P G 、ベンゾインレジノイドシャム 7 0 . 5 P C T T E C 、ブラックカラントバッド A B S 6 5 P C T P G 、ブラックカラントバッド A B S M D 3 7 P C T T E C 、ブラックカラントバッド A B S M I G R I O O L 、ブラックカラントバッドアブソリュートブルゴーニュ、ボアドローズオイル、プラン (B R A N) アブソリュート、プラン (B R A N) レジノイド、ブルーム (B R O O M) アブソリュートイタリア、カルダモンガアテマラ C O 2 エクストラクト、カルダモンオイルガアテマラ、カルダモンオイルインド、キャロットハート、キャシー (C A S S I E) アブソリュートエジプト、キャシー (C A S S I E) アブソリュート M D 5 0 P C T I P M 、カストリウム A B S 9 0 P C T T E C 、カストリウム A B S C 5 0 P C T M I G R I O O L 、カストリウムアブソリュート、カストリウムレジノイド、カストリウムレジノイド 5 0 P C T D P G 、セドロールセドレン、アトラスシダーオイル R E D I S T 、カモミールオイルローマン、カモミールオイルワイルド、カモミールオイルワイルドローリモネン、シナモンバークオイルセイロン、シストアブ

10

20

30

40

50

ソリュート、シストアブソリュートカラーレス、シトロネラオイルアジアアイアンフリー、シベットA B S 7 5 P C T P G、シベットアブソリュート、シベットチンキ1 0 P C T、クラリセージA B S フレンチD E C O L、クラリセージアブソリュートフレンチ、クラリセージC' L E S S 5 0 P C T P G、クラリセージオイルフレンチ、コパイババルサム、コパイババルサムオイル、コリアンダーシードオイル、イトスギオイル、イトスギオイルオーガニック、ダバナオイル、ガルバノール(G A L B A N O L)、ガルバナムアブソリュートカラーレス、ガルバナムオイル、ガルバナムレジノイド、ガルバナムレジノイド5 0 P C T D P G、ガルバナムレジノイドヘルコリン(H E R C O L Y N) B H T、ガルバナムレジノイドT E C B H T、ジャンシアーヌ(G E N T I A N E)アブソリュートM D 2 0 P C T B B、ジャンシアーヌ(G E N T I A N E)コンセントレイト、ゼラニウムA B S エジプトM D、ゼラニウムアブソリュートエジプト、ゼラニウムオイルチャイナ、ゼラニウムオイルエジプト、ジンジャー油6 2 4、ジンジャー油精留アブソリュート、グアヤクウッドハート、ヘイA B S M D 5 0 P C T B B、ヘイアブソリュート、ヘイアブソリュートM D 5 0 P C T T E C、ヒーリングウッド、ヒソップオイルオーガニック、イモーテルA B S ユーゴM D 5 0 P C T T E C、イモーテルアブソリュートスペイン、イモーテルアブソリュートユーゴ、ジャスミンA B S インドM D、ジャスミンアブソリュートエジプト、ジャスミンアブソリュートインド、ジャスミンアブソリュートモロッコ、ジャスミンアブソリュートサンバッケ、ジョンキルA B S M D 2 0 P C T B B、ジョンキルアブソリュートフランス、ジュニペーベリー油F L G、ジュニペーベリー油精留ソリュブル、ラブダナムレジノイド5 0 P C T T E C、ラブダナムレジノイドB B、ラブダナムレジノイドM D、ラブダナムレジノイドM D 5 0 P C T B B、ラバンジンアブソリュートH、ラバンジンアブソリュートM D、ラバンジン油アブリアルオーガニック、ラバンジン油グロッソオーガニック、ラバンジン油スパー、ラベンダーアブソリュートH、ラベンダーアブソリュートM D、ラベンダーオイルクマリンフリー、ラベンダーオイルクマリンフリー油オーガニック、ラベンダーオイルマイラットオーガニック、ラベンダーオイルM T、メースアブソリュートB B、マグノリアフラワー油ローメチルオイゲノール、マグノリアフラワー油、マグノリアフラワー油M D、マグノリアリーフ油、マンダリン油M D、マンダリン油M D B H T、マテアブソリュートB B、ツリーモスアブソリュートM D T E X I F R A 4 3、オークモスA B S M D T E C I F R A 4 3、オークモスアブソリュートI F R A 4 3、ツリーモスアブソリュートM D I P M I F R A 4 3、ミルラレジノイドB B、ミルラレジノイドM D、ミルラレジノイドT E C、マートル油アイアンフリー、マートル油チュニジア精留、ナルシスA B S M D 2 0 P C T B B、ナルシスアブソリュートフレンチ、ネロリ油チュニジア、ナツメグ油アブソリュートベンレス、ウイエアブソリュート、オリバナムレジノイド、オリバナムレジノイドB B、オリバナムレジノイドD P G、オリバナムレジノイドエクストラ5 0 P C T D P G、オリバナムレジノイドM D、オリバナムレジノイド

ドM D 5 0 P C T D P G、オリバナムレジノイドT E C、オボボナックスレジノイドT E C、オレンジビガラード油M D B H T、オレンジビガラード油M D S C F C、オレンジフラワー油アブソリュートチュニジア、オレンジフラワー油オーターアブソリュートチュニジア、オレンジリーフ油アブソリュート、オレンジリーフ油オーターアブソリュートチュニジア、オリスアブソリュートイタリア、オリスコンセントレイト1 5 P C T イロン、オリスコンセントレイト8 P C T イロン、オリスナチュラル1 5 P C T イロン4 0 9 5 C、オリスナチュラル8 P C T イロン2 9 4 2 C、オリスレジノイド、オスマンサスアブソリュート、オスマンサスアブソリュートM D 5 0 P C T B B、パチョリハートN。3、パチョリ油アブソリュートチュニジア、パチョリ油アブソリュートチュニジアアイアンフリー、パチョリ油アブソリュートチュニジアM D、パチョリ油R E D I S T、ペニロイタルハート、ペパーミントアブソリュートM D、プチグレンビガラード油アブソリュートチュニジア、プチグレンシトロニエオイル、プチグレンオイルパラグアイテルベンレス、プチグ

レンオイルテルペンレス S T A B 、ピメントベリーオイル、ピメントリーフオイル、ロジノール E X ゼラニウムチャイナ、ローズ A B S ブルガリアンローメチルオイゲノール、ローズ A B S モロッコローメチルオイゲノール、ローズ A B S ターキッシュローメチルオイゲノール、ローズアブソリュート、ローズアブソリュートブルガリアン、ローズアブソリュートダマスケナ、ローズアブソリュート M D 、ローズアブソリュートモロッコ、ローズアブソリュートターキッシュ、ローズオイルブルガリアン、ローズオイルダマスケナローメチルオイゲノール、ローズオイルターキッシュ、ロ - ズマリ - オイルカンファーオーガニック、ロ - ズマリ - オイルチュニジア、サンダルウッドオイルインド、サンダルウッドオイルインド精留、サンタロール、コショウボク (S c h i n u s m o l l e) オイル、セントジョンブレッドチンキ 10 P C T 、スチラックスレジノイド、スチラックスレジノイド、マリーゴールド (T A G E T E) オイル、ティーツリーハート、トンカビーン A B S 50 P C T ソルベント、トンカビーンアブソリュート、チューベローズアブソリュートインド、ベチバーハートエクストラ、ベチバーオイルハイチ、ベチバーオイルハイチ M D 、ベチバーオイルジャワ、ベチバーオイルジャワ M D 、バイオレットリーフアブソリュートエジプト、バイオレットリーフアブソリュートエジプト D E C O L 、バイオレットリーフアブソリュートフレンチ、バイオレットリーフアブソリュート M D 50 P C T B B 、ワームウッドオイルテルペンレス、イランエクストラオイル、イラン I I I オイルおよびその組合せが挙げられる。

【 0191 】

着色料は、英国染料染色学会 (T h e S o c i e t y o f D y e r s a n d C o l o u r i s t s) によるカラーインデックス (C o l o r I n d e x I n t e r n a t i o n a l) に記載されているものであります。着色料としては染料および顔料が挙げられ、織物、塗料、インクおよびインクジェットインクの着色によく用いられるものがこれに含まれます。用いられる一部の着色料としては、カロテノイド、アリライドイエロー、ジアリライドイエロー、 - ナフトール、ナフトール、ベンゾイミダゾロン、ジスアゾ縮合顔料、ピラゾロン、ニッケルアゾイエロー、フタロシアニン、キナクリドン、ペリレンおよびペリノン、イソインドリノンおよびイソインドリン顔料、トリアリールカルボニウム顔料、ジケトピロロ - ピロール顔料、チオインジゴイドが挙げられます。カルテノイドとしては、例えば、アルファ - カロテン、ベータ - カロテン、ガンマ - カロテン、リコピン、ルテインおよびアスタキサンチン、アナト - 抽出物、脱水テンサイ (テンサイ粉末) 、カンタキサンチン、カラメル、 - アポ - 8 ' - カロテナール、コチニール抽出物、カルミン、銅クロロフィリンナトリウム、焼いて一部脱脂した調理済み綿実粉、グルコン酸第一鉄、乳酸第一鉄、ブドウ色抽出物、ブドウ果皮抽出物 (エノシアニナ) 、ニンジン油、パプリカ、パプリカオレオレジン、雲母系パール顔料、リボフラビン、サフラン、二酸化チタン、トマトリコピン抽出物；トマトリコピン濃縮物、ウコン、ウコンオレオレジン、 F D & C ブル - N o . 1 、 F D & C ブル - N o . 2 、 F D & C グリーン N o . 3 、オレンジ B 、シトラスレッド N o . 2 、 F D & C レッド N o . 3 、 F D & C レッド N o . 4 0 、 F D & C イエロー N o . 5 、 F D & C イエロー N o . 6 、アルミナ (乾燥水酸化アルミニウム) 、炭酸カルシウム、カリウム銅クロロフィリンナトリウム (クロロフィリン - 銅複合体) 、ジヒドロキシアセトン、ビスマスオキシクロリド、フェロシアン化第二鉄アンモニウム、フェロシアン化鉄、水酸化クロムグリーン、酸化クロムグリーン、グアニン、葉蠍石、タルク、アルミニウム粉末、青銅粉末、銅粉末、酸化亜鉛、 D & C ブル - N o . 4 、 D & C グリーン N o . 5 、 D & C グリーン N o . 6 、 D & C グリーン N o . 8 、 D & C オレンジ N o . 4 、 D & C オレンジ N o . 5 、 D & C オレンジ N o . 1 0 、 D & C オレンジ N o . 1 1 、 F D & C レッド N o . 4 、 D & C レッド N o . 6 、 D & C レッド N o . 7 、 D & C レッド N o . 1 7 、 D & C レッド N o . 2 1 、 D & C レッド N o . 2 2 、 D & C レッド N o . 2 7 、 D & C レッド N o . 2 8 、 D & C レッド N o . 3 0 、 D & C レッド N o . 3 1 、 D & C レッド N o . 3 3 、 D & C レッド N o . 3 4 、 D & C レッド N o . 3 6 、 D & C レッド N o . 3 9 、 D & C バイオレット N o . 2 、 D & C イエロー N o . 7 、 E x t . D & C イエロー N o . 7 、 D & C イエロー N o . 8 、 D & C イエロー N o . 1

10

20

30

40

50

0、D & C イエロー N o . 1 1、D & C ブラック N o . 2、D & C ブラック N o . 3 (3)、D & C ブラウン N o . 1、E x t . D & C、酸化クロム - コバルト - アルミニウム、クエン酸鉄アンモニウム、ピロガロール、ログウッド抽出物、1 , 4 - ビス [(2 - ヒドロキシ - エチル) アミノ] - 9 , 1 0 - アントラセンジオンビス (2 - プロペン酸) エステルコポリマー、1 , 4 - ビス [(2 - メチルフェニル) アミノ] - 9 , 1 0 - アントラセンジオン、1 , 4 - ビス [4 - (2 - メタクリロキシエチル) フェニルアミノ] アントラキノンコポリマー、カルバゾールバイオレット、クロロフィリン - 銅複合体、酸化クロム - コバルト - アルミニウム、C . I . バットオレンジ 1、2 - [[2 , 5 - ジエトキシ - 4 - [(4 - メチルフェニル) チオール] フェニル] アゾ] - 1 , 3 , 5 - ベンゼントリオール、1 6 , 2 3 - ジヒドロジナフト [2 , 3 - a : 2 ' , 3 ' - i] ナフタ [2 ' , 3 ' : 6 , 7] インドロ [2 , 3 - c] カルバゾール - 5 , 1 0 , 1 5 , 1 7 , 2 2 , 2 4 - ヘキサオン、N , N ' - (9 , 1 0 - ジヒドロ - 9 , 1 0 - ジオキソ - 1 , 5 - アントラセンジイル) ビスベンズアミド、7 , 1 6 - ジクロロ - 6 , 1 5 - ジヒドロ - 5 , 9 , 1 4 , 1 8 - アントラジンテトラオン、1 6 , 1 7 - ジメトキシジナフト (1 , 2 , 3 - c d : 3 ' , 2 ' , 1 ' - 1 m) ペリレン - 5 , 1 0 - ジオン、ポリ (ヒドロキシエチルメタクリラート) - 染料コポリマー (3)、リアクティブブラック 5、リアクティブブルー 2 1、リアクティブオレンジ 7 8、リアクティブイエロー 1 5、リアクティブブル - N o . 1 9、リアクティブブル - N o . 4、C . I . リアクティブレッド 1 1、C . I . リアクティブイエロー - 8 6、C . I . リアクティブブル - 1 6 3、C . I . リアクティブレッド 1 8 0、4 - [(2 , 4 - ジメチルフェニル) アゾ] - 2 , 4 - ジヒドロ - 5 - メチル - 2 - フェニル - 3 H - ピラゾール - 3 - オン (ソルベントイエロー - 1 8)、6 - エトキシ - 2 - (6 - エトキシ - 3 - オキソベンゾ [b] チエン - 2 (3 H) - イリデン) ベンゾ [b] チオフェン - 3 (2 H) - オン、フタロシアニングリーン、ビニルアルコール / メタクリル酸メチル - 染料反応生成物、C . I . リアクティブレッド 1 8 0、C . I . リアクティブブラック 5、C . I . リアクティブオレンジ 7 8、C . I . リアクティブイエロー - 1 5、C . I . リアクティブブル - 2 1、1 - アミノ - 4 - [[4 - [(2 - プロモ - 1 - オキソアリル) アミノ] - 2 - スルホナトフェニル] アミノ] - 9 , 1 0 - ジヒドロ - 9 , 1 0 - ジオキソアントラセン - 2 - スルホン酸ニナトリウム (リアクティブブル - 6 9)、D & C ブル - N o . 9、[フタロシアニナト (2 -)] 銅およびその混合物が挙げられる。

【 0 1 9 2 】

本明細書の実施例以外でも、また別途明記されていなくても、本明細書の以下の部分および添付の特許請求の範囲に記載されている原料の量、元素含有量、反応の時間および温度、量の比その他の数値範囲、量、値および百分率はすべて、値、量または範囲に「約」という用語が明記されていなくても、「約」という語が記載されているものと解釈される。したがって、別途明示されない限り、以下の明細書および添付の「特許請求の範囲」に記載されている数値パラメータは、本発明によって得ようとする所望の特性に応じて異なり得る近似値である。少なくとも、特許請求の範囲への均等論の適用を制限することを試みるわけではないが、各数値パラメータは少なくとも、報告される有効数字の数を考慮し、通常の丸め法を適用することにより解釈されるべきである。

【 0 1 9 3 】

本発明の広い範囲を表す数値範囲およびパラメータは近似値であるが、具体例に記載されている数値は、可能な限り正確に報告されている。しかし、いずれの数値にも本来的に、その基となる個々の試験測定値にみられる標準偏差から必然的に生じる誤差が含まれている。さらに、本明細書に数値範囲が記載されている場合、その範囲に記載される範囲の両端値が含まれる（例えば、両端値が用いられる場合がある）。本明細書で重量百分率を用いる場合、報告される数値は総重量に相対的な値である。

【 0 1 9 4 】

このほか、本明細書に記載される数値範囲はそれに包含されるすべての部分範囲を含むことが意図されることを理解するべきである。例えば、範囲「 1 ~ 1 0 」は、記載されて

10

20

30

40

50

いる最小値 1 と記載されている最大値 10 を含めたその間にあって、最小値が 1 以上かつ最小値が 10 以下であるすべての部分範囲を含むことが意図される。本明細書で使用される「1つの」（「one」、「a」または「an」）という用語は、特に明示されない限り、「少なくとも1つ」または「1つまたは複数」を包含することが意図される。

〔 0 1 9 5 〕

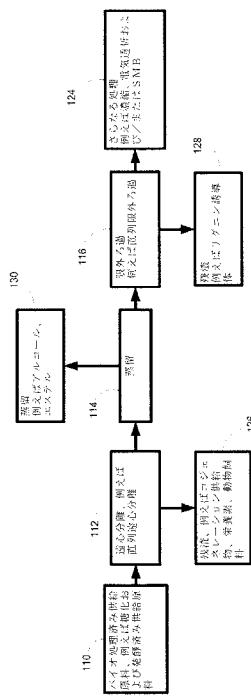
全体または一部分が参照により本明細書組み込まれることが記されている特許、刊行物をはじめとする開示資料はいずれも、組み込まれる資料が本開示に記載されている既存の定義、記述をはじめとする開示内容と矛盾しない範囲でのみ組み込まれる。したがって、必要な範囲内で、本明細書に明記されている開示は、参照により本明細書に組み込まれた矛盾するあらゆる資料に優先する。参照により本明細書組み込まれることが記されているが、本明細書に記載されている既存の定義、記述をはじめとする開示内容と矛盾する資料またはその一部分はいずれも、その組み込まれる資料と既存の開示内容との間に矛盾が生じない範囲でのみ組み込まれる。

〔 0 1 9 6 〕

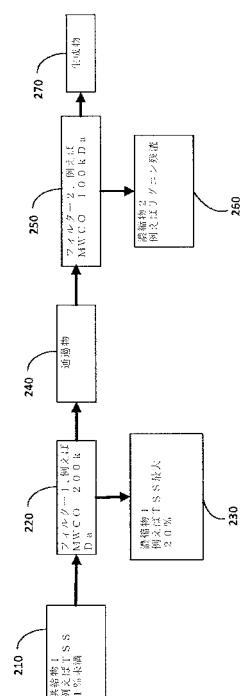
ここまで、本発明を特にその好ましい実施形態について示し説明してきたが、添付の「特許請求の範囲」に包含される本発明の範囲から逸脱することなく、その形態および詳細に様々な変更を加え得ることが当業者には理解されよう。

10

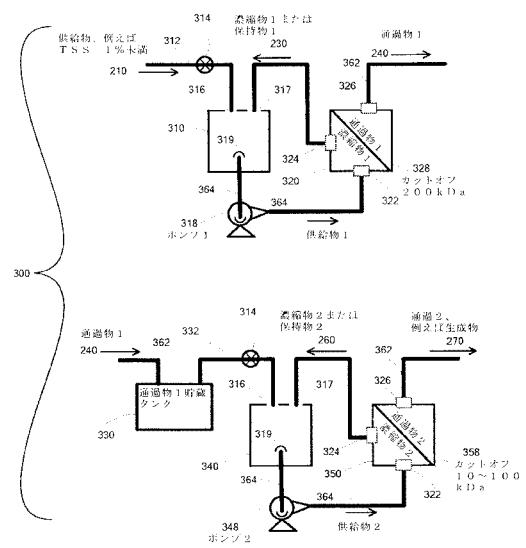
〔 図 1 〕



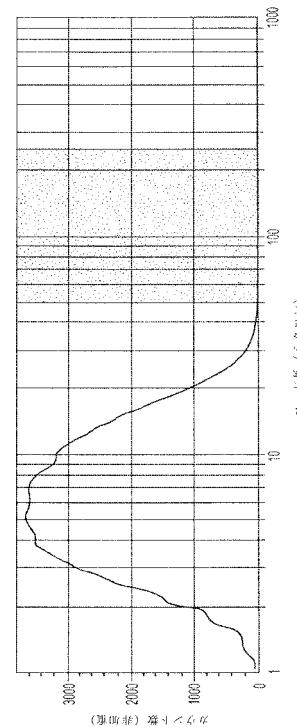
【図2】



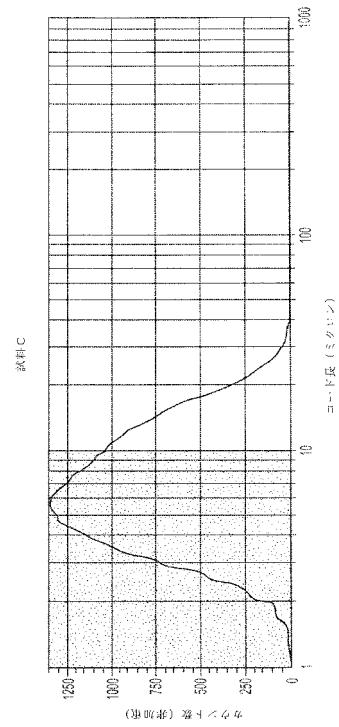
【図3】



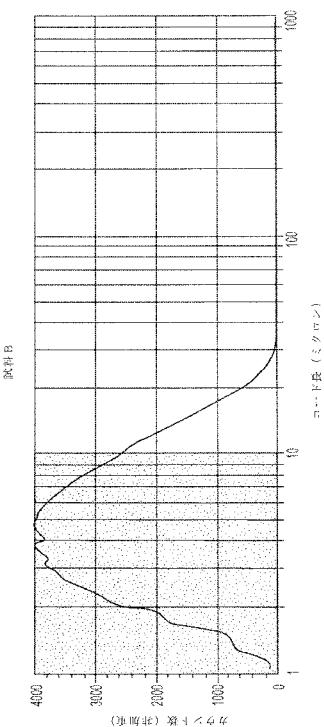
【図4】



【図6】



【図5】



【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No. PCT/US 15/41306
A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER IPC(8) - B01D 61/58, C13B 20/16; C13K 1/04, 1/08 (2015.01) CPC - B01D 61/142, 61/58 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) IPC(8) - B01D 61/58, C13B 20/16; C13K 1/04, 1/08 (2015.01) CPC - B01D 61/142, 61/58		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched CPC - B01D 61/00, 63/00, 69/00, 2311/04, 2311/06, 2317/02, 2317/025, 2319/025; C13B 20/16, 20/165; C13K 1/04, 1/08		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) Patbase; Google Patents; Google Scholar; Google Web; Espacenet; Search Terms: biomass*, cellulose*, differ*, enzym*, feed*, filt*, filtrate*, membrane*, microorganism*, molecular*, organism*, permeate*, retain*, saccharin*, second*, series*, weight*		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 2013/0266991 A1 (Kanamori et al.) 10 October 2013 (10.10.2013), para [0072], [0101], [0139]-[0141]	1-4
X	US 6,096,136 A (Saska) 01 August 2000 (01.08.2000), Claim 10	1
A	US 5,028,436 A (Gauri) 02 July 1991 (02.07.1991), col: 6, ln. 14-64	1-4
A	US 2014/0178937 A1 (Minamino et al.) 26 June 2014 (26.06.2014), para [0005]-[0015], [0036]	1-4
A	US 6,406,548 B1 (Donovan et al.) 18 June 2002 (18.06.2002), Fig. 1, col. 7, ln. 1-64	1-4
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/>		
* 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 doubt 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 14 September 2015 (14.09.2015)	Date of mailing of the international search report 15 OCT 2015	
Name and mailing address of the ISA/US Mail Stop PCT, Attn: ISA/US, Commissioner for Patents P.O. Box 1450, Alexandria, Virginia 22313-1450 Facsimile No. 571-273-8300	Authorized officer: Lee W. Young PCT Helpdesk: 571-272-4300 PCT OSP: 571-272-7774	

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/US 15/41306

Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

1. Claims Nos.: because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:

2. Claims Nos.: because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:

3. Claims Nos.: 5-6. because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

1. As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
2. As all searchable claims could be searched without effort justifying additional fees, this Authority did not invite payment of additional fees.
3. As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:

4. No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

Remark on Protest

- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest and, where applicable, the payment of a protest fee.
- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest but the applicable protest fee was not paid within the time limit specified in the invitation.
- No protest accompanied the payment of additional search fees.

フロントページの続き

(51) Int.Cl.	F I	テーマコード(参考)
<i>B 0 1 D 61/14 (2006.01)</i>	<i>B 0 1 D 61/14</i>	<i>5 0 0</i>
<i>B 0 1 D 61/02 (2006.01)</i>	<i>B 0 1 D 61/02</i>	<i>5 0 0</i>
<i>B 0 1 D 1/26 (2006.01)</i>	<i>B 0 1 D 1/26</i>	<i>Z</i>
<i>B 0 1 D 15/00 (2006.01)</i>	<i>B 0 1 D 15/00</i>	<i>1 0 1 A</i>
<i>B 0 1 D 61/42 (2006.01)</i>	<i>B 0 1 D 61/42</i>	
<i>B 0 1 D 69/04 (2006.01)</i>	<i>B 0 1 D 69/04</i>	
<i>B 0 1 D 69/08 (2006.01)</i>	<i>B 0 1 D 69/08</i>	
<i>B 0 1 D 69/06 (2006.01)</i>	<i>B 0 1 D 69/06</i>	
<i>B 0 1 D 69/00 (2006.01)</i>	<i>B 0 1 D 69/00</i>	
<i>B 0 9 B 3/00 (2006.01)</i>	<i>B 0 9 B 3/00</i>	<i>A</i>
<i>B 0 9 B 5/00 (2006.01)</i>	<i>B 0 9 B 5/00</i>	<i>Z</i>
<i>B 0 1 D 69/02 (2006.01)</i>	<i>B 0 9 B 3/00</i>	<i>3 0 4 Z</i>
	<i>B 0 1 D 69/02</i>	

(81)指定国 AP(BW,GH,GM,KE,LR,LS,MW,MZ,NA,RW,SD,SL,ST,SZ,TZ,UG,ZM,ZW),EA(AM,AZ,BY,KG,KZ,RU,TJ,TM),EP(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,R0,RS,SE,SI,SK,SM,TR),OA(BF,BJ,CF,CG,CI,CM,GA,GN,GQ,GW,KM,ML,MR,NE,SN,TD,TG),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,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

(72)発明者 メドップ, マーシャル

アメリカ合衆国, マサチューセッツ州 02445, ブルックライン, 90 アディントン ロード

(72)発明者 マスターマン, トーマス, クレイグ

アメリカ合衆国, マサチューセッツ州 01966, ロックポート, 6 マーシャル ストリート

(72)発明者 カヒル, ジョン, エム.

アメリカ合衆国, マサチューセッツ州 01803, バーリントン, 24 オーバールック アベニュー

F ターム(参考) 4B064 AF01 CA21 CE06 DA16

4D004	AA01	AA46	AC05	CA04	CA12	CA13	CA18	CA20	CA24	CA36
CA43	DA03	DA06	DA07	DA12	DA20					
4D006	GA03	GA06	GA07	HA01	HA21	HA61	HA81	JA02B	JA53Z	JA57Z
JA63Z	JA67Z	KA01	KA52	KA53	KA55	KA56	KA57	KA72	KB03	
KB04	KB12	KB18	KB20	KB21	KE02R	KE07R	KE08R	KE11R	KE16R	
KE30R	MA01	MA02	MA03	MA33	MB05	MC03	MC18	MC23	MC29	
MC39	MC62	MC63	PB20							
4D017	AA07	BA04	CB01	DA02						
4D076	AA02	AA12	AA22	BA35	BB13	CD22	FA02	FA03	FA11	FA15
FA18	FA19	FA20	FA31	HA20						