

(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2006-508148  
(P2006-508148A)

(43) 公表日 平成18年3月9日(2006.3.9)

(51) Int. Cl.	F I	テーマコード (参考)
<b>C07C 67/03 (2006.01)</b>	C07C 67/03	4H006
<b>C07C 67/08 (2006.01)</b>	C07C 67/08	4H039
<b>C07C 69/24 (2006.01)</b>	C07C 69/24	4H059
<b>C07B 61/00 (2006.01)</b>	C07B 61/00 300	
<b>C11B 13/00 (2006.01)</b>	C11B 13/00	

審査請求 有 予備審査請求 有 (全 12 頁)

(21) 出願番号	特願2004-554042 (P2004-554042)	(71) 出願人	505199278
(86) (22) 出願日	平成14年11月27日 (2002.11.27)		バイオディーゼル オーストラリア リミテッド
(85) 翻訳文提出日	平成17年7月12日 (2005.7.12)		オーストラリア国 ダブリューエイ 6106 ウェルシュプール ケウデイル ロード 8/21
(86) 国際出願番号	PCT/AU2002/001594	(74) 代理人	100072051
(87) 国際公開番号	W02004/048311		弁理士 杉村 興作
(87) 国際公開日	平成16年6月10日 (2004.6.10)	(74) 代理人	100100125
(81) 指定国	AP (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), EA (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), EP (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE, SK, TR), OA (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, OM, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW	(74) 代理人	100101096
			弁理士 高見 和明
		(74) 代理人	100086645
			弁理士 徳永 博
		(74) 代理人	100086645
			弁理士 岩佐 義幸

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 アルキルエステルの生産方法

(57) 【要約】

グリーンス止め廃棄物から主に由来する、グリセリド及び遊離脂肪酸の混合物からアルキルエステルを生産するための方法を提供する。混合物を、まず、低沸点アルコール中で溶媒和させ、及び次いで、溶液のpHを、酸の添加によって、約1から2までに調整し、酸触媒化アルキルエステル化をもたらす。次いで、酸性溶液を、高濃度のアルコキシド溶液で処理し、溶液のpHをpH12に上昇させ、混合物中に含まれるグリセリドの塩基触媒化エステル交換をもたらす。次いで、得られる溶液を酸で処理し、溶液のpHを約2までに減少させ、残余のけん化副産物の酸触媒化エステル化をもたらす。アルコール溶媒を蒸留又は他の適切な技術によって除去し、及び得られるアルキルエステルを任意の残留する残余から分離し、及び残余の酸を中和する。

## 【特許請求の範囲】

## 【請求項 1】

グリセリド及び遊離脂肪酸の混合物からアルキルエステルを生産する方法であって：

- a) 混合物のアルコール性溶液に酸を添加し、溶液の pH を約 1 から 2 までに減少させて、酸触媒化アルキルエステル化をもたらす工程；
- b) 工程 a) からの溶液を高濃度のアルコキシド溶液で処理し、溶液の pH を約 1.2 にまで上昇させて、混合物中に含まれるグリセリドの塩基触媒化エステル交換をもたらす工程；
- c) 工程 b) からの溶液を酸で処理し、溶液の pH を約 2 にまで減少させて、工程 b) からの残余のけん化副産物の酸触媒化エステル化をもたらす工程；
- d) 工程 c) からの溶液からのアルコールを除去する工程；及び
- e) 得られるアルキルエステルを分離する工程

10

を含む、方法。

## 【請求項 2】

アルコールを工程 c) からの溶液から蒸留によって除去することを特徴とする、請求項 1 記載の方法。

## 【請求項 3】

アルコールを工程 c) からの溶液から精密ろ過によって除去することを特徴とする、請求項 1 記載の方法。

## 【請求項 4】

混合物のアルコール性溶液を、グリセリド及び遊離脂肪酸の混合物を同様の容量のアルコール中で溶解させるか、又はかき混ぜることによって形成し、混合物の約 50% w/w のアルコールの溶液を与えることを特徴とする、請求項 1 ~ 3 のいずれか一項記載の方法。

20

## 【請求項 5】

アルコールが低沸点を持つことを特徴とする、請求項 4 記載の方法。

## 【請求項 6】

アルコールが、メタノール、エタノール、プロパノール、及びブタノールを含み、n-プロピルアルコール、n-ブチルアルコール、イソプロピルアルコール、イソブチルアルコール、sec-ブチルアルコール、t-ブチルアルコールを包含する群から選ばれることを特徴とする、請求項 4 又は 5 記載の方法。

30

## 【請求項 7】

工程 a) を還流条件下に行うことを特徴とする、請求項 1 ~ 6 のいずれか一項記載の方法。

## 【請求項 8】

工程 b) を還流条件下に行うことを特徴とする、請求項 1 ~ 7 のいずれか一項記載の方法。

## 【請求項 9】

酸が、制限されないが、硫酸、塩酸、リン酸、過塩素酸及びそれらの混合物を包含する強無機酸である、請求項 1 ~ 8 のいずれか一項記載の方法。

40

## 【請求項 10】

高濃度のアルコキシド溶液が、工程 a) において用いられるアルコール中に溶解される水酸化ナトリウム及び/又はカリウムが、又は工程 a) において用いられるアルコール中に溶解されるナトリウム又はカリウムを含むことを特徴とする、請求項 1 ~ 9 のいずれか一項記載の方法。

## 【請求項 11】

高濃度のアルコキシド溶液が、約 10% w/w のアルカリ金属アルコキシドの溶液を含むことを特徴とする、請求項 10 記載の方法。

## 【請求項 12】

工程 d) から得られる溶液中に残留する残余の酸、又は工程 e) から得られるアルキル

50

エステルを、溶液又はアルキルエステルを弱塩基で処理することによってか、又は、制限されないが、精密ろ過又はイオン交換を包含する他の酸除去手段によって、約pH6~7にまで中和することを特徴とする、請求項1~11のいずれか一項記載の方法。

【請求項13】

グリセリド及び遊離脂肪酸の混合物から生産されるアルキルエステルであって、請求項1~12のいずれか一項記載の方法によって得られる、アルキルエステル。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

10

(発明の分野)

本発明は、グリセリド及び遊離脂肪酸の混合物、特に、グリース止め(防油弁、grease trap)廃棄物、獣脂、動物性油脂、植物性脂質及び他の高脂肪酸含有脂質からのグリセリド及び遊離脂肪酸の混合物から、アルキルエステルを生産する方法に関する。これらの脂質に加えて、それは、低級脂肪酸、より一層高いグリセリド含有脂質からのアルキルエステルの効率的生産において、極めて有効であることが見出された。

【背景技術】

【0002】

(発明の背景)

一般にバイオディーゼルとして知られる、天然脂質において見出される脂肪酸のアルキルエステルは、ディーゼル機関のための有望な燃料代替物としてますます認識されてきている。それらは、微粒子、炭化水素汚染物質の排出量を減少させ、及びディーゼル機関の潤滑性を改善することが知られている。バイオディーゼルはまた、潤滑剤、圧媒液として、及び多目的溶媒として好首尾に用いることができる。

20

【0003】

さらに、バイオディーゼルは商業上の及び環境の観点から魅力的であり、その理由は、本発明に適用できる原料が、再生可能な脂肪種子の供給原料、使用済みの植物油、パーム油、ココナツ(ヤシ)油、植物性精油の脂質豊富な副産物としてのソーダ油さい物質(soa pstock material)、獣脂、動物性油脂からか、又はグリース止め廃棄物から供給することができ、これらは、普通、埋め立て及び他の廃棄物処理施設において捨てられる。

30

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0004】

石油系ディーゼル燃料への代わりとしてのバイオディーゼルの広まった採用は、バイオディーゼルの生産のための非能率的な方法によって妨げられる。バイオディーゼルの生産のための既知の方法は、出発物質におけるすべての脂肪酸の不完全なエステル化、水洗のような長期にわたる精製方法、比較的長い反応時間、グリセロールの同時生産(co-production)と関連する汚染及び分離の困難性、及び一定の反応条件の下での出発物質のけん化によって制限される。

【0005】

40

植物油からのメチルエステルを形成のためのBoocock(ブーコック)法は、テトラヒドロフラン(THF)又はメチルテトラブチルエーテル(MTBE)のような補助溶剤を用いて単一相反応混合物を形成することによって、植物油の2種の工程の酸及び次いで塩基の触媒化メチルアルコール分解(-catalysed methanolysis)のための反応時間を早めるように努めた。Boocockはメチルエステルの99%の回収がこの方法を用いて達成されることを報告する。グリセロールは副産物であり、及び得られるアルキルエステルは、普通、アルキルエステルの水洗を含む広範囲に及ぶ精製を必要とする。

【0006】

石鹼供給原料からの脂肪酸メチルエステルを合成するためのHaas(ハース)等の方法には、別の2種の工程のプロセスが包含され、そこでは、石鹼供給原料を、まず、けん化し、

50

及び次いで、酸性アルコール溶液中でエステル化する。Haas等は、脂肪酸メチルエステルの60%の回収がこの方法を用いて達成されことを報告する。しかし、この方法は、試薬の大量消費によって特徴付けられる。

【0007】

本発明は、少なくとも部分的に前述の欠点のいくつかを克服し、及び低いか、又は皆無のグリセロール生産を包含する新しい利点を提供することを試み、及びこの方法は、低資本の設備費用及び設備流動性(plant mobility)に従う。

【課題を解決するための手段】

【0008】

(発明の概要)

本発明の第1の局面によれば、グリセリド及び遊離脂肪酸の混合物からアルキルエステルを生産するための方法を提供し、これは：

- a)混合物のアルコール性溶液に酸を添加し、溶液のpHを約1から2までに減少させて、酸触媒化アルキルエステル化をもたらす工程；
  - b)工程a)からの溶液を高濃度のアルコキシド溶液で処理し、溶液のpHを約12にまで上昇させて、混合物中に含まれるグリセリドの塩基触媒化エステル交換をもたらす工程；
  - c)工程b)からの溶液を酸で処理し、溶液のpHを約2にまで減少させて、工程b)からの残余のけん化副産物の酸触媒化エステル化をもたらす工程；
  - d)工程c)からの溶液からアルコールを除去する工程；及び
  - e)得られるアルキルエステルを分離する工程
- を含む。

10

20

【発明を実施するための最良の形態】

【0009】

(発明の説明)

本発明は、一般に、グリース止め廃棄物、獣脂、動物性油脂、パーム油、ココナッツ油、及び廃棄物又は新鮮な未使用の植物油及び獣脂を含む、他の自然に発生する脂質において見出される、遊離脂肪酸及びグリセリドの混合物を、メタノール、エタノール、プロパノール、又はブタノールのような短鎖アルコールと反応させ、対応するアルキルエステルを生産するための方法を記載する。

【0010】

グリース止め廃棄物が、有機性油脂、グリース及び植物油の高度に可変的な混合物を包含し、高い遊離脂肪酸、及びモノ-、ジ-、及びトリグリセリド含量から構成され、洗浄剤、水、石鹼、無機の及び粒状の物質によって汚染されることは理解される。本明細書を通して、用語の遊離脂肪酸(FFA)及びグリセリドは、グリース止め廃棄物、獣脂、動物性油脂、及び他の自然に発生する脂質において含まれ、及びアルキルエステル化のために利用できる、全体の含量の遊離脂肪酸及びモノ-、ジ-、及びトリグリセリドを意味するために採用する。典型的には、グリース止め廃棄物には80から100%までの間の遊離脂肪酸及びグリセリドが存在する。

30

【0011】

アルコールには、低沸点アルコール、好ましくは、メタノール、エタノール、プロパノール、及びブタノールで、それらの単鎖の及び異性化させた形態でのものが包含される。しかし、より一層長鎖のアルコールを本発明に従って同じやり方で利用することができることが予想される。

40

【0012】

グリース止め廃棄物、獣脂、動物性油脂、及び他の自然に発生する動物のか、又は野菜の脂質から抽出されるグリースの形態において、遊離脂肪酸及びグリセリドの混合物を、アルコール中で混合するか、又はかき混ぜて、混合物の混和性の単相アルコール性溶液を形成する。

【0013】

混合物の組成によって、脂質の不混和性懸濁液がアルコール中で形成されるかもしれな

50

い。この場合において、懸濁液を継続的にかき混ぜ、脂質及びアルコールが2種の区別できる相に分離するのを防ぐ。本発明の目的のために、かき混ぜられる懸濁液は、脂質及びグリセリドの混合物のアルコール性溶液とみなされ、及び扱われるべきである。

【0014】

どちらの種類混合物も、プロセスにおいて、補助溶剤に依存しないか、又はそれを必要としない。しかしながら、かかる補助溶剤の使用は、反応又はその最終的なアルキルエステル生産物を損なわない。補助溶剤の使用は、反応速度をわずかに増加させるが、反応は極めて急速であり、及び補助溶剤の不存在下に完了に向かう。

【0015】

好ましくは、遊離脂肪酸及びグリセリドの混合物を、同様の容量のアルコール中で溶解し、混合物の約50%v/vのアルコール性溶液を与える。この方向では、アルコールは、全体の遊離脂肪酸含量のモル過剰において、好ましくは、1:10から1:25までの範囲において存在する。

10

反応は、脂質に対するより一層少ないか、又はより一層多い割合のアルコールを用いて満足に進行するが、反応は約50%v/vで最適に進む。

【0016】

獣脂及び植物油のような、遊離脂肪酸及びグリセリドの一定の混合物は、単相アルコール性溶液を形成しないかもしれない。しかし、反応の手法中2相の均質な溶液の活発な攪拌がアルキルエステルの生産に関して同様な結果をもたらす。

【0017】

混合物のアルコール性溶液を、まず、酸触媒で処理し、酸触媒化アルキルエステル化をもたらす、次いで、塩基触媒で処理して混合物中に含まれるグリセリドの塩基触媒化エステル交換をもたらす。得られる反応混合物を、最終的に、酸触媒で処理し、前の処理工程から得られる残余のけん化副産物の酸触媒化アルキルエステル化をもたらす。

20

【0018】

好ましくは、酸触媒化エステル化及び塩基触媒化エステル交換の工程は、還流条件下で行うが、前記工程はまた、高圧が用いられなければより一層長い反応時間を伴うが、周囲温度で行うこともできる。

【0019】

本発明の方法は、好ましくは、環境大気圧で行う。しかし、前記方法を圧力容器の使用を伴うより一層高い圧力の下でか、又はオートクレーブの条件の下で好首尾に行うことができる。

30

【0020】

酸触媒には、制限されないが、硫酸、塩酸、リン酸、及び過塩素酸のような高濃度の強い無機酸が包含される。好ましくは、添加する酸触媒対総脂肪酸含量の比率は、第1の酸触媒化アルキルエステル化の反応工程において約1:20であり、及び第2の酸触媒化エステル化の反応工程において約1:5である。

【0021】

塩基触媒には、制限されないが、水酸化ナトリウム及び/又は水酸化カリウムのアルコール性溶液、又は選択の短鎖アルコール中で溶解するナトリウム又はカリウムが包含される。好ましくは、10%w/wのアルカリ金属アルコキシド溶液を、塩基触媒として、添加される塩基触媒対総脂肪酸含量の比率が約1:5であるように用いる。

40

【0022】

アルコールを、得られる反応混合物から、蒸留によってか、又は精密ろ過(微細ろ過)の膜を用いる分離によって、減圧の補助を用いるか、又は用いないで、アルキルエステル及び固相の2相の不均質な混合物を残して除去する。アルキルエステルを、固相から、デカンテーションによって分離し、及び更にろ過によって精製するか、又はろ過単独によって分離する。

【0023】

アルコールが反応混合物から、蒸留か、又は精密ろ過によって除去され、及びアルキル

50

エステルが固相から、デカンテーションか、又はろ過によって分離されれば、アルキルエステルを、弱塩基で処理するか、又は代わりにイオン交換か、又は精密ろ過によって、アルキルエステル相中に残留する残余の酸を有効に中和することができる。アルキルエステル相のpHは約pH6~7にまで中和されることが予想される。

【0024】

中和工程は、アルキルエステル相への少量の炭酸水素ナトリウム又は炭酸カルシウム又は炭酸マグネシウムの添加によって達成される。アルキルエステル相内の残余の酸の中和をもたらすために、イオン交換樹脂又は膜による分離を介する液相の溶出のような、pHを中和するための他のよく知られる手段を、好首尾に用いられることが予想される。

【0025】

次いで、残余の水を、吸湿性の乾燥剤(dessicant, desiccant)上のアルキルエステル相の通過のような通常的手段によってか、又はアルキルエステルを、大気圧でか、又は減圧下で、蒸気を除去するのに十分に加熱することによってか、又は精密ろ過によって除去することができる。アルキルエステルの最終的な意図する使用に依存するが、少量の同伴する水は許容可能であり、また、その除去は必要でないかもしれない。

【0026】

意外にも、本発明者は、本発明の方法によって生産されるアルキルエステルが、本発明にかかる酸触媒化エステル化及び塩基触媒化エステル交換の反応からのグリセロール副産物によって汚染されないままであることを見出した。新鮮な未使用の植物油の処置から例外が見出され、それによって少量の良質のグリセロールが容易に分離された。グリセロール副産物の量は、出発油の8%未満であり、及び他のエステル化方法によって生じる量より著しく少なかった。顕著なグリセロールの生産は、パーム油、ココナッツ油、動物の獣脂又はグリース止め廃棄物のような他の脂質を処理するとき起こらなかった。アルキルエステルの分離後の残余の生産物は、ガスクロマトグラフィの試験によってグリセロールの徴候を示さなかった。

【実施例】

【0027】

次に、本発明を次の例に従って例示する。

(例)

メタノール(800mL)中のグリース止め廃棄物(800mL)の1つの単一相1:1v/vのメタノール性溶液を調製した。グリース止め廃棄物のGC/MS分析は、グリース止め廃棄物の主要な成分がオクタデカン酸及びn-ヘキサデカン酸であることを示した。グリース止め廃棄物のメタノール性溶液のpHは4であり、高い脂肪酸含量を反映した。

【0028】

高濃度の硫酸(98%)(8.5g)を、攪拌しながら、メタノール性溶液に添加し、1及び2の間の溶液pHを生じさせた。メタノール性溶液を30分間還流させた。

【0029】

次いで、メタノール(160mL)中において10%w/wのNaOHのナトリウムメトキシド溶液を、攪拌し還流するメタノール性溶液に滴状に(dropwise)添加し、最終的な12のpHをもたらした。

【0030】

高濃度の硫酸(98%)(21mL)を、攪拌し還流するメタノール性溶液に滴下によって添加し、最終的な2のpHをもたらした。

【0031】

過剰のメタノールを蒸留によって除去した。得られるメチルエステル(825mL)を、半固形の基部の残余(basal residue)(64.5g)から、デカンテーションによって分離し、及び微細な沈降物を除去するために、最終的にろ過した。廃棄物のトラップグリースの91%よりも良好なメチルエステルへの転換があると評価された。

【0032】

グリース止め廃棄物の同様の量を、上述の例で記載するように本発明に従って処理し、

10

20

30

40

50

そこでは、メタノールよりもむしろ、エタノールを溶媒として用いた。同様の程度のグリース止め廃棄物の対応するエチルエステルへの転換が達成されることが見出された。

【0033】

さらに、水酸化ナトリウム溶液よりもむしろカリウムアルコキシドの溶液を用いる同様の実験は、上述の例において例証されたものと同様の結果を生じさせた。

【0034】

反応混合物から、エタノール及び水酸化カリウムを用いて形成される残余の沈降物は、例において記載される沈降物よりも汚くない形態 (less crustiform) であったが、それは、エチルエステルからる過によって容易に分離された。

【0035】

試験上、汚い形態の残余は、出発グリース止め廃棄物の重量によって合計される9%の硫酸ナトリウムと組み合わせられる軽微な (minor) 同伴するメチルエステルを伴う硫酸ナトリウムから主として構成されることが見出された。したがって、グリース止め廃棄物のメチルエステルへの転換は91%を超過した。最終生産物のアルキルエステルまでの全体の処理時間は1時間未満である。さらに、第1工程における酸の量を増加することによって、反応時間が早められ、それにより、全体的な反応処理時間が減少することが見出された。

【0036】

プロセスは出発脂質を汚染する残余の水に対し感応性でなく、又はそれによって損なわれない。

【0037】

それは、迅速で、及び効率的なプロセス及び方法であり、それは、触媒の投与量 (調剤量) を増加させること及び/又は高められる加熱、圧力及び攪拌を含む、多くのよく知られる方法により、反応の動力学を高めることによって、より一層速くすることができる。

【0038】

最終生産物のアルキルエステルは、水洗を必要とせず、それによって、時間がかかると共に、及び汚される、他の方法に共通な主要な処理工程が排除される。グリセロールの副産物生産 (byproduct) は試験されるほとんどの脂質の供給原料で排除される。方法及びプロセスは、商業上の設備の設計を可能にし、それは、資本費用において低く、寸法において小さく、高い生産率を伴うべきであり、及び装着されるトラック、トレーラ連結単位としてか、又は静的な設備として移動できるべきである。

【0039】

熟練の受取人に明らかなように、修飾及び変形は本発明の範囲内であると考えられる。プロセス及び方法は種々に述べられる脂質のアルキルエステル化を可能にする。

【手続補正書】

【提出日】平成17年11月9日(2005.11.9)

【手続補正1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】

グリセリド及び遊離脂肪酸の混合物からアルキルエステルを生産する方法であって：

- a) グリセリド及び遊離脂肪酸の混合物のアルコール性溶液を提供する工程；
- b) 溶液を酸触媒で処理する工程、及び酸触媒化アルキルエステル化をもたらす工程；
- c) 工程b)からの溶液を塩基触媒で処理する工程、及び塩基触媒化エステル交換をもたらす工程；
- d) 工程c)からの溶液を酸触媒で処理する工程、及び酸触媒化エステル化をもたらす工程；
- e) 工程d)からの溶液を蒸留する工程、及びアルコールを除去する工程；及び

10

20

30

f) 得られるアルキルエステルを分離する工程

を含む、方法。

【請求項 2】

グリセリド及び遊離脂肪酸の混合物が、グリース止め廃棄物、獣脂、動物性油脂、パーム油、ココナツ油、及び廃棄物のか、又は新鮮な未使用の植物油及び獣脂、再生可能な脂肪種子の供給原料、及び植物性精油の脂質豊富な副産物としてのソーダ油さい物質を含む、他の自然に発生する脂質の形態である、請求項 1 記載の方法。

【請求項 3】

アルコールが、混合物の全体の遊離脂肪酸含量のモル過剰状態である、請求項 1 又は 2 記載の方法。

【請求項 4】

混合物のアルコール性溶液を、グリセリド及び遊離脂肪酸の混合物を同様の容量のアルコール中で溶解させることによって形成し、混合物の約 50% v/v のアルコール性溶液を与える、請求項 1 ~ 3 のいずれか一項記載の方法。

【請求項 5】

アルコールが低沸点を持つ、請求項 2 ~ 4 のいずれか一項記載の方法。

【請求項 6】

アルコールが、メタノール、エタノール、プロパノール、及びブタノールを含み、n-プロピルアルコール、n-ブチルアルコール、イソプロピルアルコール、イソブチルアルコール、sec-ブチルアルコール、t-ブチルアルコールを包含する群から選ばれる、請求項 2 ~ 5 のいずれか一項記載の方法。

【請求項 7】

アルコール性溶液が単相の均質な溶液である、請求項 1 ~ 6 のいずれか一項記載の方法

。

【請求項 8】

アルコール性溶液が、混合物における脂質の不混和性懸濁液を含む、請求項 1 ~ 6 のいずれか一項記載の方法。

【請求項 9】

アルコール性溶液を工程 b)、c) 及び d) の間にかき混ぜ、アルコール性溶液が 2 種の不混和性相に分離するのを抑える、請求項 8 記載の方法。

【請求項 10】

工程 b)、c)、又は d) のいずれか 1 種の工程を還流条件下に行う、請求項 1 ~ 9 のいずれか一項記載の方法。

【請求項 11】

酸触媒が、制限されないが、硫酸、塩酸、リン酸、過塩素酸及びその混合物を包含する強無機酸である、請求項 1 ~ 10 のいずれか一項記載の方法。

【請求項 12】

塩基触媒が高濃度のアルコキシド溶液を含む、請求項 1 ~ 11 のいずれか一項記載の方法。

【請求項 13】

高濃度のアルコキシド溶液が、工程 a) において用いられるアルコール中に溶解される水酸化ナトリウム及び / 又はカリウムが、又は工程 a) において用いられるアルコール中に溶解されるナトリウム又はカリウムを含む、請求項 12 記載の方法。

【請求項 14】

高濃度のアルコキシド溶液が 10% w/w のアルカリ金属アルコキシドの溶液である、請求項 12 又は 13 記載の方法。

【請求項 15】

溶液の pH を工程 b) において低い pH にまで減少させる、請求項 1 ~ 14 のいずれか一項記載の方法。

【請求項 16】

溶液の pH を約 1 から 2 までに減少させる、請求項 15 記載の方法。

【請求項 17】

溶液の pH を工程 c ) において高められる pH にまで上昇させる、請求項 1 ~ 16 のいずれか一項記載の方法。

【請求項 18】

pH を約 1.2 にまで上昇させる、請求項 17 記載の方法。

【請求項 19】

溶液の pH を工程 d ) において約 2 にまで減少させる、請求項 1 ~ 18 のいずれか一項記載の方法。

【請求項 20】

工程 e ) から得られる溶液中に残留する任意の残余の酸、又は工程 f ) から得られるアルキルエステルを、約 pH 6 ~ 7 にまで中和する、請求項 1 ~ 19 のいずれか一項記載の方法。

【請求項 21】

工程 e ) から得られる溶液、又はアルキルエステルを、弱塩基で処理することによって、約 pH 6 ~ 7 にまでの中和をもたらす、請求項 20 記載の方法。

【請求項 22】

工程 e ) から得られる溶液、又はアルキルエステルを、炭酸水素ナトリウムで処理する、請求項 20 記載の方法。

【請求項 23】

混合物中に含有されるグルセリドの塩基触媒化エステル交換を、工程 c ) においてもたらず、請求項 1 ~ 22 のいずれか一項記載の方法。

【請求項 24】

工程 c ) からの残余のけん化副産物の酸触媒化エステル化を工程 d ) においてもたらず、請求項 1 ~ 23 のいずれか一項記載の方法。

【請求項 25】

アルキルエステルであって、請求項 1 ~ 20 のいずれか一項記載の方法から生産されている、アルキルエステル。

## 【 国際調査報告 】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No. <b>PCT/AU02/01594</b>		
<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b>				
Int. Cl. <sup>7</sup> : C07C 67/08 69/34				
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC				
<b>B. FIELDS SEARCHED</b>				
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)				
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched				
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used) STN: (CA & WPIDS): KEYWORDS: glyceride, fatty acid, catalyst, ester, alcohol, biodiesel, tallow, grease, palm oil, coconut oil.				
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>				
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.		
P, X	AU 44481/02 A (MUSKETT et al) 05 December 2002 See entire document	1-13		
X	EP 249,463 A2 (BIO-ENERGY TECHNOLOGY LTD.) 16 December 1987 See column 3, lines 21-29 and 49-56, and column 4, line 36.	1-13		
A	AU 80742/91 A (VOGEL & NOOT INDUSTRIEANLAGENBAU GESELLSCHAFT M.B.H) 27 February 1992	1-13		
<input type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C <input checked="" type="checkbox"/> See patent family annex				
<p>* Special categories of cited documents:</p> <table border="0"> <tr> <td style="vertical-align: top;"> <p>"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</p> <p>"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date</p> <p>"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)</p> <p>"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</p> <p>"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</p> </td> <td style="vertical-align: top;"> <p>"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</p> <p>"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</p> <p>"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</p> <p>"&amp;" document member of the same patent family</p> </td> </tr> </table>			<p>"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</p> <p>"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date</p> <p>"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)</p> <p>"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</p> <p>"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</p>	<p>"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</p> <p>"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</p> <p>"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</p> <p>"&amp;" document member of the same patent family</p>
<p>"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance</p> <p>"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date</p> <p>"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)</p> <p>"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means</p> <p>"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed</p>	<p>"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</p> <p>"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</p> <p>"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</p> <p>"&amp;" document member of the same patent family</p>			
Date of the actual completion of the international search 9 January 2003		Date of mailing of the international search report <b>16 JAN 2003</b>		
Name and mailing address of the ISA/AU AUSTRALIAN PATENT OFFICE PO BOX 200, WODEN ACT 2606, AUSTRALIA E-mail address: pct@ipaaustralia.gov.au Facsimile No. (02) 6285 3929		Authorized officer  <b>R.L. POOLEY</b> Telephone No : (02) 6283 2242		

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

Information on patent family members

International application No.

**PCT/AU02/01594**

This Annex lists the known "A" publication level patent family members relating to the patent documents cited in the above-mentioned international search report. The Australian Patent Office is in no way liable for these particulars which are merely given for the purpose of information.

Patent Document Cited in Search Report		Patent Family Member						
EP	249,463	AU	75144/87	CN	87104580	WO	87/07632	
AU	80742/91	AT	1386/90	AU	80742/91	BG	60163	
		BR	9105796	CA	2065306	CS	9200587	
		EP	489883	HU	59369	PL	294039	
		US	5399731	WO	92/00268	ZA	9104972	
AU	44481/02	NONE					END OF ANNEX	

## フロントページの続き

(74)代理人 100107227

弁理士 藤谷 史朗

(74)代理人 100114292

弁理士 来間 清志

(74)代理人 100119530

弁理士 富田 和幸

(72)発明者 レイモンド マスケット

オーストラリア国 ダブリューエイ 6 0 1 5 シティビーチ ダンピエ アヴェニュー 3 1

(72)発明者 コリン アーサー アンダーソン

オーストラリア国 ダブリューエイ 6 1 5 3 アップルクロス アンドロス ストリート 5 6

Fターム(参考) 4H006 AA02 AC48 AD11 AD17 BA02 BA32 BA66 BA69 BC16 BC36

BD20

4H039 CA66 CD30 CD40 CD90

4H059 BA12 BA30 BB02 BB03 BB06 BC03 BC13 CA94