

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局(43) 国際公開日
2010年5月20日(20.05.2010)

PCT



(10) 国際公開番号

WO 2010/055647 A1

(51) 国際特許分類:

C13K 1/02 (2006.01) B09B 3/00 (2006.01)

(21) 国際出願番号:

PCT/JP2009/006011

(22) 国際出願日:

2009年11月11日(11.11.2009)

(25) 国際出願の言語:

日本語

(26) 国際公開の言語:

日本語

(30) 優先権データ:

特願 2008-291400 2008年11月13日(13.11.2008) JP

(71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 本田技研工業株式会社(HONDA MOTOR CO.,LTD.) [JP/JP]; 〒1078556 東京都港区南青山二丁目1番1号 Tokyo (JP).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 馬場 剛志 (BABA, Tsuyoshi) [JP/JP]; 〒3510193 埼玉県和光市中央1丁目4番1号 株式会社本田技術研究所内 Saitama (JP). 光澤 茂信 (MITSUZAWA, Shigenobu) [JP/JP]; 〒3510193 埼玉県和光市中央1丁目4番1号 株式会社本田技術研究所内 Saitama (JP).

(74) 代理人: 特許業務法人創成国際特許事務所

(SATO & ASSOCIATES); 〒1600023 東京都新宿区西新宿6-24-1 西新宿三井ビルディング18階 Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, 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, IS, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

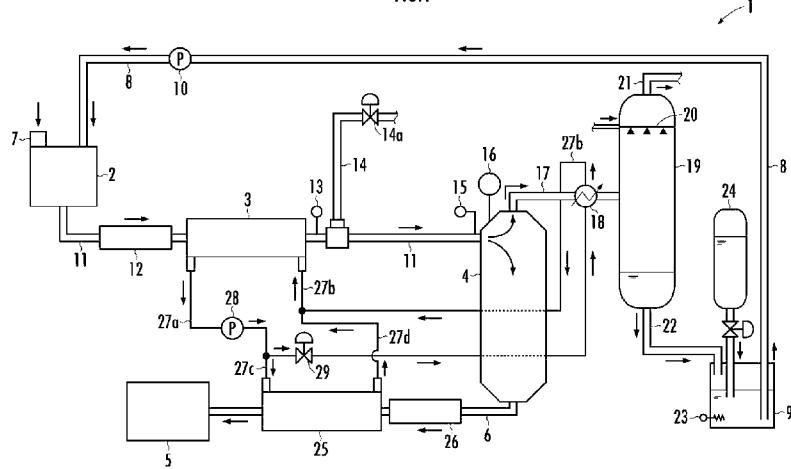
(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF,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

[続葉有]

(54) Title: APPARATUS FOR PRETREATMENT FOR SACCHARIFICATION OF LIGNOCELLULOSE BIOMASS

(54) 発明の名称: リグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置

FIG.1



(57) **Abstract:** Disclosed is an apparatus for a pretreatment for saccharification, which can achieve a continuous treatment readily and enables the reuse of ammonia at low cost. The apparatus comprises a mixing means (2), a first heating means (3), a separation means (4), a transfer means (6), an aqueous ammonia supply means (8), and an ammonia collection means (19). The apparatus may additionally comprise a first heat exchanger (18), a second heat exchanger (25), and a heat supply means (27), and may also additionally comprise a second heating means (14). The apparatus may additionally comprise a wet grinding means (32) between the two heating means (3, 14).

(57) **要約:** 容易に連続処理し、安価にアンモニアを再利用できる糖化前処理装置を提供する。混合手段2と、第1の加熱手段3と、分離手段4と、移送手段6と、アンモニア水供給手段8と、アンモニア回収手段19とを備える。第1の熱交換器18と、第2の熱交換器25と、熱供給手段27を備えてもよく、第2の加熱手段14をさらに備えてよい。加熱手段3, 25の間に、湿式摩碎手段32を備えてもよい。



CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, — 補正された請求の範囲及び説明書（条約第 19 条(1))

添付公開書類:

— 國際調査報告（条約第 21 条(3)）

明細書

発明の名称：リグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置

技術分野

[0001] 本発明は、バイオエタノール製造に用いられるリグノセルロースの糖化前処理装置に関する。

背景技術

[0002] 近年、地球温暖化防止の観点から、その原因の一つと考えられている二酸化炭素排出量を削減することが求められている。そこで、ガソリン等の液体炭化水素とエタノールとの混合燃料を自動車燃料に用いることが検討されている。

[0003] 前記混合燃料によれば、前記エタノールとして、植物性物質、例えばサトウキビ、トウモロコシ等の農作物の発酵、蒸留により得たバイオエタノールを用いることにより、所謂カーボンニュートラル効果を得ることができると考えられている。前記カーボンニュートラル効果とは、前記バイオエタノールとして植物性物質起源のものを用いるときには、該エタノールの燃焼により大気中に排出される二酸化炭素の量は総計として理論的にはゼロになるというものである。これは、前記バイオエタノールの燃焼により大気中に排出される二酸化炭素の量は、原料となる植物自体が大気中から吸収した二酸化炭素の量に等しいからである。

[0004] 従って、前記ガソリン等の液体炭化水素に代えて前記バイオエタノールを用いた分だけ、二酸化炭素排出量を削減することができる。

[0005] ところが、前記サトウキビ、トウモロコシ等は、エタノールの原料として大量に消費されると、食料として供給される量が減少するという問題がある。

[0006] そこで、前記植物性物質として、サトウキビ、トウモロコシ等に代えて、食用ではないリグノセルロース系バイオマスを用いてエタノールを製造する技術が検討されている。前記リグノセルロース系バイオマスは、セルロース

を含んでおり、該セルロースを酵素糖化によりグルコースに分解し、得られたグルコースを発酵させてバイオエタノールを得ることができる。前記リグノセルロース系バイオマスとしては、例えば、木材、イナワラ、ムギワラ、バガス、竹、パルプ及びこれらから生じる廃棄物例えば古紙等を挙げることができる。

- [0007] ところが、前記リグノセルロースは、セルロースの他にヘミセルロース及びリグニンを主な構成成分としている。通常前記セルロース及び前記ヘミセルロースは、前記リグニンにより強固に結合されている。その結果、前記セルロースに対する酵素糖化反応が前記リグニンにより阻害される。従って、前記セルロースを酵素糖化反応させるに際しては、予め、前記リグニンを取り除いておくことが望ましい。
- [0008] そこで、リグノセルロース系バイオマスを液体アンモニアと混合した後、急激に圧力を低下させることにより、液体アンモニアのガス膨張によって、前記バイオマスを膨張させ、該バイオマスからリグニンを除去するリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置が知られている（例えば、特許文献1参照）。
- [0009] このような前記従来のリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置は、混合手段と、加熱手段と、排出手段と、回収手段とを備えている。
- [0010] 前記従来のリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置では、前記リグノセルロース系バイオマスと液体アンモニアとは、前記混合手段により混合され、バイオマスーアンモニア混合物とされる。次いで、前記バイオマスーアンモニア混合物は、前記加熱手段により加熱され、前記排出手段により前記アンモニアが気化しないよう加圧圧縮されながら排出される。このようにすると、前記バイオマスーアンモニア混合物は、排出後に急激に減圧され、液体アンモニアが爆発的に膨張する。この結果、前記バイオマスは急激に膨張させられ、該バイオマスに結合しているリグニンが除去される。また、前記アンモニアガス回収手段は、前記排出手段により排出されたバイオマスーアンモニア混合物からアンモニアガスを分離し、該アンモニアガスを回収す

る。

先行技術文献

特許文献

[0011] 特許文献1：特開2005-232453号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0012] しかしながら、前記従来のリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置では、前記バイオマスーアンモニア混合物が、高温かつ高圧で処理されるため、連続処理が難しいという不都合がある。また、前記分離手段により分離されたアンモニアガスを、液体アンモアとして再利用するためには、約2M Paに加圧しなければならず、コストが増大するという不都合がある。

[0013] 本発明は、かかる不都合を解消して、容易に連続処理することができると共に、低コストでアンモニアを再利用することができるリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0014] かかる目的を達成するために、本発明のリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置は、リグノセルロース系バイオマスとアンモニアとを混合する混合手段と、該混合手段で得られたバイオマスーアンモニア混合物を加熱する第1の加熱手段と、該第1の加熱手段で加熱されたバイオマスーアンモニア混合物からアンモニアガスを分離してバイオマスー水混合物を得る分離手段と、該分離手段で分離されたバイオマスー水混合物を後工程に移送する移送手段とを備えるリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置において、該混合手段にアンモニア水を供給するアンモニア水供給手段と、該分離手段により分離されたアンモニアガスを水に溶解させて、アンモニア水として回収するアンモニア回収手段とを備えることを特徴とする。

[0015] 本発明のリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置によれば、前記リグノセルロース系バイオマスは、前記アンモニア水供給手段により供給され

るアンモニア水と、前記混合手段において混合されて、バイオマスーアンモニア混合物となる。次に、前記バイオマスーアンモニア混合物は、前記第1の加熱手段により加熱され、煮沸される。このようにすることにより、前記バイオマスは、煮沸による前記アンモニア水の膨潤効果により膨張されると共に、該アンモニア水によりアルカリ処理されてリグニンが除去される。従って、前記バイオマスは、リグニンによる酵素糖化反応の阻害が防止される。また、前記前処理装置は、アンモニア水を用いるので、加圧圧縮することなく煮沸処理することができる。従って、本発明のリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置では、加圧圧縮が不要となり、前記バイオマスを容易に連続処理することができる。

[0016] また、本発明のリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置では、前記バイオマスーアンモニア混合物が前記加熱手段により加熱され、煮沸される。その結果、前記バイオマスーアンモニア混合物からは、アンモニアが気化し、アンモニアガスが発生する。前記発生したアンモニアガスは、前記分離手段により水に溶解され、アンモニア水として回収される。このようにすることにより、前記回収されたアンモニア水は、そのままの形で前記アンモニア水供給手段に用いることが可能になる。従って、本発明のリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置では、アンモニアガスを高圧圧縮して液化する装置などが不要となり、低コストで前記アンモニア水を再利用可能にすることができる。

[0017] また、本発明のリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置では、前記分離手段により分離されたアンモニアガスから熱を回収する第1の熱交換器と、該分離手段により分離されたバイオマスー水混合物から熱を回収する第2の熱交換器と、該第1、第2の熱交換器から回収した熱を、該第1の加熱手段に供給する熱供給手段とを備えることが好ましい。このようにすることにより、前記アンモニアガスが有する余剰の熱と、前記バイオマスー水混合物が有する余剰の熱とを回収し、該回収した熱を前記バイオマスーアンモニア混合物の加熱に用いることができる。従って、本発明のリグノセルロース

系バイオマス糖化前処理装置によれば、エネルギー効率を高くすることができます。

[0018] 前記熱供給手段は、前記第1の加熱手段との間で熱交換する第3の熱交換器であってもよい。

[0019] また、本発明のリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置では、前記第1の加熱手段と、前記アンモニア回収手段との間に、前記バイオマスーアンモニア混合物を加熱する第2の加熱手段を備えることが好ましい。このようにすることにより、前記バイオマスーアンモニア混合物をさらに加熱することができ、該バイオマスーアンモニア混合物に含まれるアンモニアを確実に気化させることができる。

[0020] また、本発明のリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置では、前記第1の加熱手段と前記第2の加熱手段との間に、湿式摩碎手段を備えることが好ましい。このようにすることにより、前記バイオマスーアンモニア混合物は前記湿式摩碎手段により摩碎されると同時に、摩碎により発生する熱で加熱される。この結果、前記バイオマスーアンモニア混合物中のバイオマスは、前記摩碎による熱で軟化され、さらに摩碎されることにより該バイオマスを構成しているリグニンがセルロースから解離され、除去される。また、前記摩碎の熱により、前記バイオマスーアンモニア混合物中のアンモニアが気化するため、前記分離手段により確実にアンモニアを回収することができる。

[0021] また、本発明のリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置において、前記混合手段に供給されるアンモニア水のアンモニア濃度は、5～35重量%であることが好ましい。前記アンモニア水のアンモニア濃度が5%未満であると、十分なリグニン除去効果が得られないことがある。一方、前記アンモニア水のアンモニア濃度が大気圧下では35重量%を越えることがない。

[0022] また、本発明のリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置では、前記アンモニア回収手段により回収されたアンモニア水を前記アンモニア水供給手段に還流するアンモニア水還流手段と、前記アンモニア供給手段に還流す

るアンモニア水の濃度を調整するアンモニア濃度調整手段とを備えることが好ましい。このようにすることにより、前記分離手段により回収したアンモニア水を、該アンモニア濃度調整手段により適切なアンモニア濃度に調整し、前記アンモニア水還流手段により前記混合手段に還流させて再利用することができる。

[0023] また、本発明のリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置において、前記アンモニア水供給手段は、前記リグノセルロース系バイオマスと前記アンモニア水との質量比が1：3～1：5の範囲となるように、前記アンモニア水を前記混合手段に供給することが好ましい。前記バイオマスの質量と前記アンモニア水との質量比が1：3未満であると、十分なリグニン除去効果が得られないことがある。一方、前記バイオマスの質量と前記アンモニア水との質量比が1：5を越えると、アンモニア水過多の状態となり、このような余剰アンモニア水の加熱に余計なエネルギーを消費する。

図面の簡単な説明

[0024] [図1]第1の実施形態のリグノセルロース系バイオマス前処理装置のシステム構成図。

[図2]図1に示す装置において蒸気導管によりリグノセルロース系バイオマスを加熱する加熱手段を示すブロック図。

[図3]図2の加熱手段におけるリグノセルロース系バイオマスの温度と蒸気導管のバルブ開度との関係を示すグラフ。

[図4]第2の実施形態のリグノセルロース系バイオマス前処理装置のシステム構成図。

発明を実施するための形態

[0025] 次に、本発明の第1の実施形態について説明する。

[0026] 図1に示すように、本発明の第1の実施形態のリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置1は、ミキサー2と、第1多管式熱交換器3と、分離塔4と、分離塔4で分離される分離物を後工程5に移送する移送導管6とを備えている。

- [0027] ミキサー2は、上部に、前記バイオマスが投入される投入口7を備えると共に、該バイオマスに混合されるアンモニア水を供給するアンモニア水供給導管8が接続されている。アンモニア水供給導管8は、上流側端部がアンモニアタンク9に接続されており、途中にポンプ10を備えている。
- [0028] ミキサー2の下部には、前記スラリーを導出するスラリー導管11が取り付けられており、スラリー導管11は第1多管式熱交換器3を介して分離塔4に接続されている。スラリー導管11は、第1多管式熱交換器3の上流側に、該スラリーを第1多管式熱交換器3に送入するスラリーポンプ12を備えている。また、スラリー導管11には、第1多管式熱交換器3の出口で前記スラリーの温度を検出する第1温度センサ13と、第1温度センサ13の下流側に接続されている蒸気導管14と、分離塔4の入口で該スラリーの温度を検出する第2温度センサ15とが設けられている。蒸気導管14は、流量調整バルブ14aを備えている。
- [0029] 分離塔4は、上部にスラリー導管11が接続されていると共に、底部に移送導管6が取り付けられている。また、頂部には、分離塔4内の圧力を検出する圧力センサ16と、分離されたアンモニアガスを導出するアンモニアガス導管17とが取り付けられている。アンモニアガス導管17は、第1熱交換器18を介して吸収塔19に接続されている。
- [0030] 吸収塔19は、アンモニアガス導管17の接続部の上方にシャワリング装置20を備え、アンモニアガス導管17により導入されたアンモニアガスを、シャワリング装置20によりシャワリングされた水に吸収させてアンモニア水とし、該アンモニア水を底部に貯留するようになっている。吸収塔19は、頂部に空気抜き導管21を備えると共に、底部に前記アンモニア水を導出するアンモニア水導出導管22が取り付けられている。アンモニア水導出導管22は、その下流側端部がアンモニアタンク9に接続されている。
- [0031] アンモニアタンク9は、貯留されるアンモニア水の濃度を検出するアンモニア濃度センサ23と、アンモニア濃度センサ23により検知されるアンモニア水の濃度に応じて、アンモニアタンク9に濃アンモニア水を供給する濃

アンモニア水供給装置24とを備えている。

- [0032] 移送導管6は、第2多管式熱交換器25を介して後工程5に接続されている。移送導管6は、第2多管式熱交換器25の上流側に、前記バイオマス－水混合物を第2多管式熱交換器25に送入するスラリーポンプ26を備えている。
- [0033] アンモニアガス導管17の途中に設けられた第1熱交換器18は、第1熱媒体導管27a、第2熱媒体導管27bにより第1多管式熱交換器3と接続されている。第1熱媒体導管27aは、第1多管式熱交換器3の二次側と第1熱交換器18の一次側とを接続し、第2熱媒体導管27bは、第1熱交換器18の二次側と第1多管式熱交換器3の一次側とを接続している。
- [0034] また、第1熱媒体導管27aは、熱媒体ポンプ28を備えると共に、熱媒体ポンプ28の下流側から、第2多管式熱交換器25の一次側に接続される第3熱媒体導管27cを分岐している。第1熱媒体導管27aは、第3熱媒体導管27cの分岐点の下流側に、流量調整弁29を備えている。第2多管式熱交換器25の二次側には、第4熱媒体導管27dが取り付けられており、第4熱媒体導管27dは第2熱媒体導管27bの途中に合流している。
- [0035] 次に、本実施形態のリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置1の作動について説明する。
- [0036] 本実施形態のリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置1では、まず、投入口7からミキサー2に前記バイオマスが投入される。前記バイオマスは、例えば、含水率約10重量%の自然乾燥イナワラである。前記バイオマスは、図示しないカッターミルにより約3mmの長さに粉碎された後、さらに図示しない乾式のブレードミルにより累積50%粒子径140μmの粉末とされている。前記バイオマスは、例えば、図示しないスクリュー型フィーダーにより、バイオマス投入口7に供給される。
- [0037] 次に、アンモニアタンク9内のアンモニア水が、ポンプ10により、アンモニア水供給導管8を介してミキサー2内に供給される。このとき、ミキサー2内に供給されるアンモニア水の濃度は、例えば、26.8重量%に調整

されている。前記バイオマスと前記アンモニア水は、例えば、重量比が1：4になるように、該バイオマス12kg／時、該アンモニア水48kg／時の流量でミキサー2に供給される。

[0038] 次に、前記バイオマスはミキサー2により前記アンモニア水と混合され、該バイオマスが該アンモニア水に分散しているスラリーが形成される。ミキサー2内で形成された前記スラリーは、例えば、60kg／時の流量となるように、スラリーポンプ12によりスラリー導管11を介して第1多管式熱交換器3に送入される。第1多管式熱交換器3は、第1熱媒体導管27bから供給される熱媒体により、前記スラリーを加熱する。このとき、例えば、前記熱媒体の温度は約85°Cであり、第1多管式熱交換器3の出口において、第1温度センサ13により検出される前記スラリーの温度が約65°Cとなるようにされる。

[0039] 次に、第1多管式熱交換器3により加熱されたスラリーは、蒸気導管14から供給される水蒸気によりさらに加熱され、煮沸される。このようにすることにより、前記バイオマスは、煮沸による前記アンモニア水の膨潤効果により膨張されると共に、該アンモニア水によりアルカリ処理されてリグニンが除去される。前記バイオマスに対するリグニンの除去は、前記スラリーがスラリー導管11を介して分離塔4に供給されるまで行われる。蒸気導管14から供給される水蒸気は、例えば、約135°Cの温度に設定され、分離塔4の手前において、第2温度センサ15により検出される前記スラリーの温度が約100°Cとなるようにされる。

[0040] 前記スラリーは、第1多管式熱交換器3及び前記水蒸気により前述のように加熱されることにより、分離塔4内に供給されると該スラリー中のアンモニアが気化し、アンモニアガスとバイオマス-水混合物とに分離される。

[0041] 蒸気導管14から供給される水蒸気の量は、図2に示す加熱制御手段30により制御される。制御手段30では、まず、第1演算部Aで、第1温度センサ13により検知される第1多管式熱交換器3の出口における前記スラリ

一の温度（以下、熱交換器出口温度と略記することがある） T_1 と、圧力センサ16により検出される分離塔4内の圧力 P とを、温度設定部Bにおいて設定される温度設定値 T_{set} と比較する。これにより、第1演算部Aで、流量調整バルブ14aの開度に関するフィードフォワード量が決定される。

[0042] ここで、前記フィードフォワード量は、例えば図3（a）に示す関係を用いて、前記スラリーの含水量に応じて、熱交換器出口温度 T_1 から算出される。あるいは、前記フィードフォワード量は、図3（b）に示す関係を用いて、前記スラリーのアンモニア濃度に応じて、熱交換器出口温度 T_1 から算出されてもよい。

[0043] 図3（a）または図3（b）から明らかなように、前記フィードフォワード量は、具体的には、熱交換器出口温度 T_1 が高ければ流量調整バルブ14aの開度を小さくし、熱交換器出口温度 T_1 が低ければ流量調整バルブ14aの開度を大きくするように決定される。

[0044] 一方、第2演算部Cでは、第2温度センサ15により検知される前記スラリーの分離塔4の入口温度 T_2 を、温度設定部Bにおいて設定される温度設定値 T_{set} と比較する。そして、両者の差分 k として、流量調整バルブ14aの開度に関するフィードバック量が決定される。

[0045] 前述のようにして決定されたフィードフォワード量及びフィードバック量は、比較部Dで比較調整され、流量調整バルブ14aの開度に関する補正值がバルブ操作部Eに出力される。この結果、バルブ操作部Eにおいて流量調整バルブ14aの開度が決定され、前記スラリーが加熱される。前記操作による前記スラリーの加熱の結果は、第2温度センサ15により前記スラリーの分離塔4の入口温度 T_2 として検知され、さらに第2演算部Cにおけるフィードバック量の決定に用いられる。

[0046] 次に、分離塔4で分離されたアンモニアガスは、アンモニアガス導管17を介し、第1熱交換器18を経由して吸収塔19に供給される。このとき、アンモニアガスは、熱交換器18により余剰な熱が前記熱媒体に回収される。吸収塔19に供給されたアンモニアガスは、シャワリング装置20により

シャワリングされた水に吸収され、アンモニア水として吸收塔 19 の底部に貯留される。シャワリング装置 20 による水のシャワリングは、例えば、35. 2 kg／時の水量で行われる。

- [0047] 吸收塔 19 の底部に貯留されているアンモニア水は、アンモニア水導出導管 22 を介してアンモニアタンク 9 に還流される。アンモニアタンク 9 では、アンモニア濃度センサ 23 により貯留されているアンモニア水の濃度が検知され、該検知されたアンモニア水の濃度に応じて、濃アンモニア水供給装置 24 により濃アンモニア水が供給され、例えば、26. 8 重量%に調整される。
- [0048] また、分離塔 4 により分離されたバイオマス－水混合物は、スラリーポンプ 26 により、移送導管 6 を介して、後工程 5 に移送される。後工程 5 は、例えば、前記バイオマス－水混合物に、所定量の水と発酵酵素とを投入することにより、該バイオマスに含まれるセルロースを酵素発酵処理する工程である。なお、前記バイオマス－水混合物は、移送導管 6 に設けられた第 2 多管式熱交換器 25 により余剰の熱が前記熱媒体に回収される。
- [0049] 前記熱媒体は、第 1 多管式熱交換器 3 において、前記スラリーを加熱した後、二次側から導出され、熱媒体ポンプ 28 により、第 1 热媒体導管 27a を介して第 1 热交換器 18 の一次側に導入される。次に、第 1 热交換器 18 に導入された前記熱媒体は、分離塔 4 で分離された前記アンモニアガスの熱を回収する。その後、前記熱媒体は、第 1 热交換器 18 の二次側から導出され、第 2 热媒体導管 27b を介して第 1 多管式熱交換器 3 の一次側に導入される。また、前記熱媒体の一部は、第 1 热媒体導管 27a から第 3 热媒体導管 27c に分流されて、第 2 多管式熱交換器 25 の一次側に導入される。次に、第 2 多管式熱交換器 25 に導入された前記熱媒体は、分離塔 4 により分離された前記バイオマス－水混交物の熱を回収する。その後、前記熱媒体は、第 2 多管式熱交換器 25 の二次側から導出され、第 4 热媒体導管 27d を介して第 2 热媒体導管 27b に合流する。ここで、第 1 热媒体導管 27a と第 3 热媒体導管 27c とに分流される前記熱媒体の分配率は、流量調整弁 29

により調整される。

[0050] 次に、本発明の第2の実施形態について説明する。

[0051] 図4に示すように、本発明の第2の実施形態のリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置31は、第1多管式熱交換器3と第1温度センサ13との間に介装された湿式摩碎機32を備えることを除いて、図1に示すリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置1と全く同一の構成を備えている。

[0052] 次に、本実施形態のリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置31の作動について説明する。

[0053] 本実施形態のリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置31は、前記スラリーが第1多管式熱交換器3により加熱された後に、湿式摩碎器32により、摩碎されることを除いて、第1実施形態のリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置1と全く同一に作動する。

[0054] 湿式摩碎機32は、図示しない相対向する1対の砥石を備えている。前記1対の砥石は、例えば、互いに $100\text{ }\mu\text{m}$ の間隔を存して相対向しており、該砥石の間に前記第1多管式熱交換器3により加熱された前記スラリーが連続供給される。次に、一方の砥石を固定した状態で、他方の砥石を、例えば、 1500 rpm の回転数で回転させる。すると、前記スラリーは、前記砥石により摩碎されると共に、該摩碎による摩擦熱で加熱される。次に、摩碎された前記スラリーは、遠心力により周方向へ移動し、該砥石間から排出される。このとき、前記スラリーは、前記砥石間で発生する摩擦熱により、約 80°C にまで加熱されている。次に、前記摩碎されたスラリーは、図示しないスラリーポンプにより、スラリー導管11を介してスラリーポンプ12と同一の流量となるように分離塔4に供給される。

[0055] 本実施形態のリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置31によれば、前記砥石間の摩擦熱により、前記スラリーを約 80°C に加熱することができるため、蒸気導管14から供給する水蒸気の量を低減することができる。また、前記スラリー中のバイオマスを湿式摩碎機32により機械粉碎することにより、後工程5における酵素発酵の発酵効率を上昇させることができる

。

[0056] また、各実施形態のリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置 1, 3 1によれば、アンモニア水により煮沸処理されることにより、前記バイオマスに対して膨潤効果を得ることができる。前記バイオマスは、膨潤効果により纖維が解纖されているため、後工程 5における酵素糖化処理を受けやすくなる。

[0057] また、前記アンモニア水は、沸点が低く、低温度で煮沸処理することができるため発酵阻害物質が発生しにくい。また、アンモニア水は気化させることができるので、該アンモニア水自体の中和を容易に行うことができる。また、阻害物質である酸性有機物質が発生したとしても、アンモニア水はアルカリ性であるため、中和処理が容易である。

[0058] また、各実施形態のリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置 1, 3 1は、第 1 多管式熱交換器 3に対応する位置のスラリー導管 1 1 内、及び蒸気導管 1 4 より下流側のスラリー導管 1 1 内に、スタティックミキサーを設けてもよい。このようにすることにより、前記スラリーの加熱を均等にすることができる。

[0059] また、各実施形態のリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置 1, 3 1は、濃アンモニア水供給装置 2 4によるアンモニアタンク 9内のアンモニア濃度の調整は、所定時間毎、例えば、24時間毎に行なうようにしてもよい。

。

[0060] また、各実施形態のリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置 1, 3 1は、前記バイオマスの糖化前処理にアンモニアを用いており、後工程 5において生じるバイオマス残渣中に窒素が残留することがあるため、該バイオマス残渣を肥料等に用いてもよい。

符号の説明

[0061] 1, 3 1…リグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置、2…ミキサー（混合手段）、3…第 1 多管式熱交換器（第 1 の加熱手段）、4…分離塔（分離手段）、5…後工程、6…移送導管（移送手段）、8…アンモニア水供給

導管、14…蒸気導管（第2の加熱手段）、18…第1熱交換器、19…吸収塔（アンモニア回収手段）、22…アンモニア水導出導管、24…濃アンモニア水供給装置、25…第2多管式熱交換器（第2の熱交換器）、27…熱媒体導管（熱供給手段）、32…湿式磨碎機。

請求の範囲

- [請求項1] リグノセルロース系バイオマスとアンモニアとを混合する混合手段と、該混合手段で得られたバイオマスーアンモニア混合物を加熱する第1の加熱手段と、該第1の加熱手段で加熱されたバイオマスーアンモニア混合物からアンモニアガスを分離してバイオマスー水混合物を得る分離手段と、該分離手段で分離されたバイオマスー水混合物を後工程に移送する移送手段とを備えるリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置において、
該混合手段にアンモニア水を供給するアンモニア水供給手段と、
該分離手段により分離されたアンモニアガスを水に溶解させて、アンモニア水として回収するアンモニア回収手段とを備えることを特徴とするリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置。
- [請求項2] 前記分離手段により分離されたアンモニアガスから熱を回収する第1の熱交換器と、
該分離手段により分離されたバイオマスー水混合物から熱を回収する第2の熱交換器と、
該第1、第2の熱交換器から回収した熱を、該第1の加熱手段に供給する熱供給手段とを備えることを特徴とする請求項1記載のリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置。
- [請求項3] 前記分離手段により分離されたアンモニアガスから熱を回収する第1の熱交換器と、
該分離手段により分離されたバイオマスー水混合物から熱を回収する第2の熱交換器と、
該第1、第2の熱交換器から回収した熱を、該第1の加熱手段に供給する熱供給手段とを備え、
前記熱供給手段は、前記第1の加熱手段との間で熱交換する第3の熱交換器であることを特徴とする請求項1記載のリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置。

- [請求項4] 前記第1の加熱手段と、前記分離手段との間に、前記バイオマス－アンモニア混合物を加熱する第2の加熱手段を備えることを特徴とする請求項1記載のリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置。
- [請求項5] 前記第1の加熱手段と、前記分離手段との間に、前記バイオマス－アンモニア混合物を加熱する第2の加熱手段を備え
前記第1の加熱手段と前記第2の加熱手段との間に、湿式摩碎手段を備えることを特徴とする請求項1記載のリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置。
- [請求項6] 前記混合手段に供給されるアンモニア水のアンモニア濃度が、5～35重量%であることを特徴とする請求項1記載のリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置。
- [請求項7] 前記混合手段に供給されるアンモニア水のアンモニア濃度が、5～35重量%であり、
前記アンモニア回収手段により回収されたアンモニア水を、前記アンモニア水供給手段に還流するアンモニア水還流手段と、
前記アンモニア水供給手段に還流するアンモニア水の濃度を調整するアンモニア濃度調整手段とを備えることを特徴とする請求項1記載のリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置。
- [請求項8] 前記混合手段に供給されるアンモニア水のアンモニア濃度が、5～35重量%であり、
前記アンモニア水供給手段は、前記リグノセルロース系バイオマスと前記アンモニア水との質量比が1：3～1：5の範囲となるように、前記アンモニア水を前記混合手段に供給することを特徴とする請求項1記載のリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置。

補正された請求の範囲
[2010年3月9日(09.03.2010)国際事務局受理]

[請求項 1] (補正後) リグノセルロース系バイオマスとアンモニアとを混合する混合手段と、該混合手段で得られたバイオマスーアンモニア混合物を加熱する第1の加熱手段と、該第1の加熱手段で加熱されたバイオマスーアンモニア混合物からアンモニアガスを分離してバイオマスー水混合物を得る分離手段と、該分離手段で分離されたバイオマスー水混合物を後工程に移送する移送手段とを備えるリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置において、

該混合手段に、アンモニア濃度が5～35重量%であるアンモニア水を供給するアンモニア水供給手段と、

該分離手段により分離されたアンモニアガスを水に溶解させて、アンモニア水として回収するアンモニア回収手段とを備えることを特徴とするリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置。

[請求項 2] 前記分離手段により分離されたアンモニアガスから熱を回収する第1の熱交換器と、該分離手段により分離されたバイオマスー水混合物から熱を回収する第2の熱交換器と、

該第1、第2の熱交換器から回収した熱を、該第1の加熱手段に供給する熱供給手段とを備えることを特徴とする請求項1記載のリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置。

[請求項 3] 前記分離手段により分離されたアンモニアガスから熱を回収する第1の熱交換器と、該分離手段により分離されたバイオマスー水混合物から熱を回収する第2の熱交換器と、

該第1、第2の熱交換器から回収した熱を、該第1の加熱手段に供給する熱供給手段とを備え、

前記熱供給手段は、前記第1の加熱手段との間で熱交換する第3の熱交換器であることを特徴とする請求項1記載のリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置。

[請求項 4] 前記第1の加熱手段と、前記分離手段との間に、前記バイオマスーアンモニア混合物を加熱する第2の加熱手段を備えることを特徴とする請求項1記載のリグノセル

ロース系バイオマス糖化前処理装置。

[請求項 5] 前記第1の加熱手段と、前記分離手段との間に、前記バイオマスーアンモニア混合物を加熱する第2の加熱手段を備え

前記第1の加熱手段と前記第2の加熱手段との間に、湿式摩碎手段を備えることを特徴とする請求項1記載のリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置。

[請求項 6] (削除)

[請求項 7] (補正後) 前記アンモニア回収手段により回収されたアンモニア水を、前記アンモニア水供給手段に還流するアンモニア水還流手段と、

前記アンモニア水供給手段に還流するアンモニア水の濃度を調整するアンモニア濃度調整手段とを備えることを特徴とする請求項1記載のリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置。

[請求項 8] (補正後) 前記アンモニア水供給手段は、前記リグノセルロース系バイオマスと前記アンモニア水との質量比が1：3～1：5の範囲となるように、前記アンモニア水を前記混合手段に供給することを特徴とする請求項1記載のリグノセルロース系バイオマス糖化前処理装置。

条約第19条（1）に基づく説明書

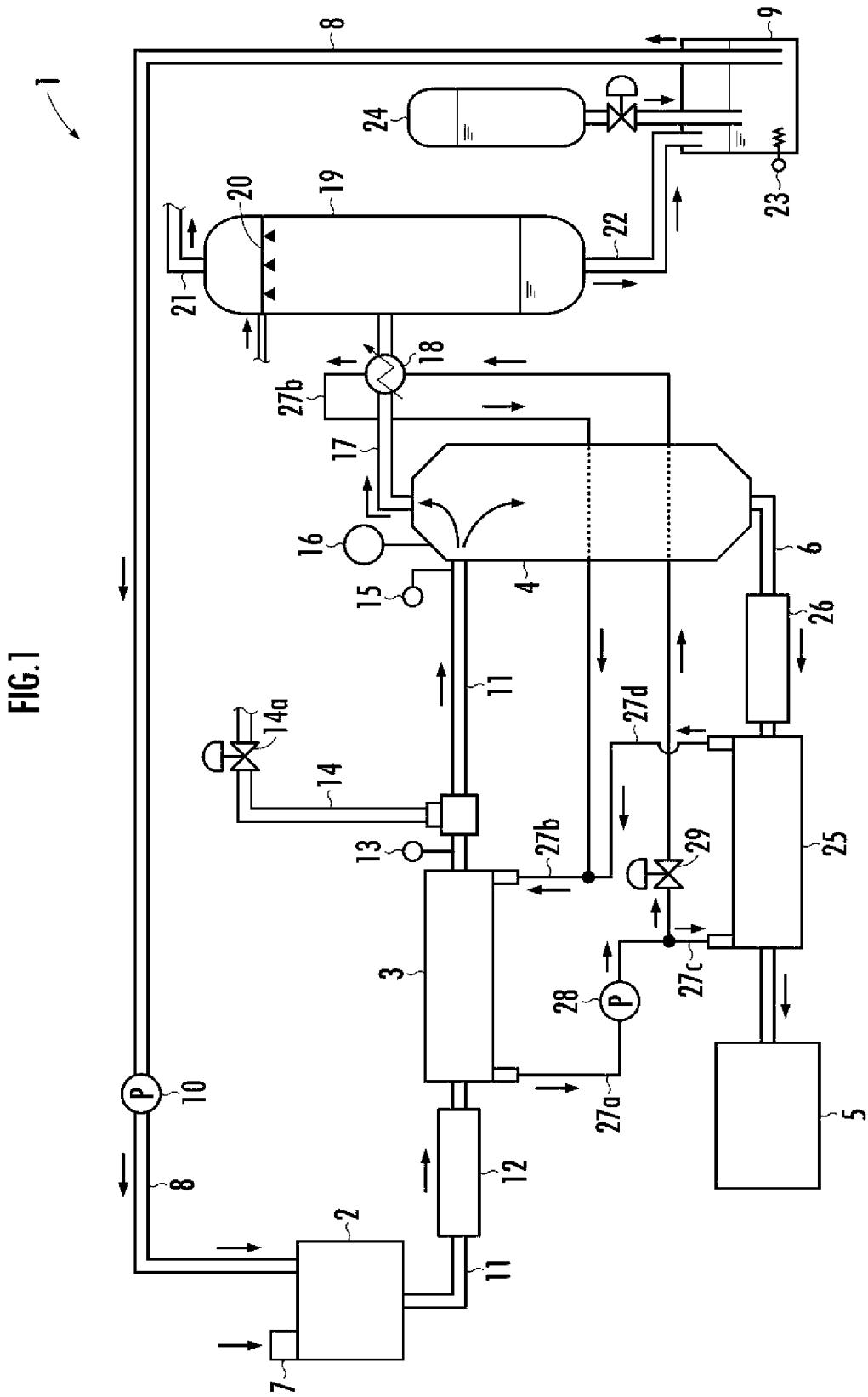
請求の範囲第1項は、旧請求の範囲第6項及び出願時の明細書の段落〔0021〕の記載に基づいて、「…混合手段にアンモニア水を供給するアンモニア水供給手段…」を、「…混合手段に、アンモニア濃度が5～35重量%であるアンモニア水を供給するアンモニア水供給手段…」と補正した。

KIM Tae Hyun. et al., Pretreatment and fractionation of corn stover by ammonia recycle percolation process, Bioresource Technology, 2005, Vol. 96, p.2007-2013 は、「分離手段において、加熱されたバイオマス-アンモニア混合物からアンモニアガス（気体）を分離すること」が記載されていない点で、本発明の請求の範囲第1項と相違する。

また、SENDICH Elizabeth Newton. et al., Recent process improvements for the ammonia fiber expansion(AFEX) process and resulting reductions in minimum ethanol selling price, Bioresource Technology, 2008.04.28, Vol. 99, p.8429-8435 は、「前記混合手段に供給されるアンモニア水のアンモニア濃度が、5～35重量%であること」が記載されていない点で、本発明の請求の範囲第1項と相違する。

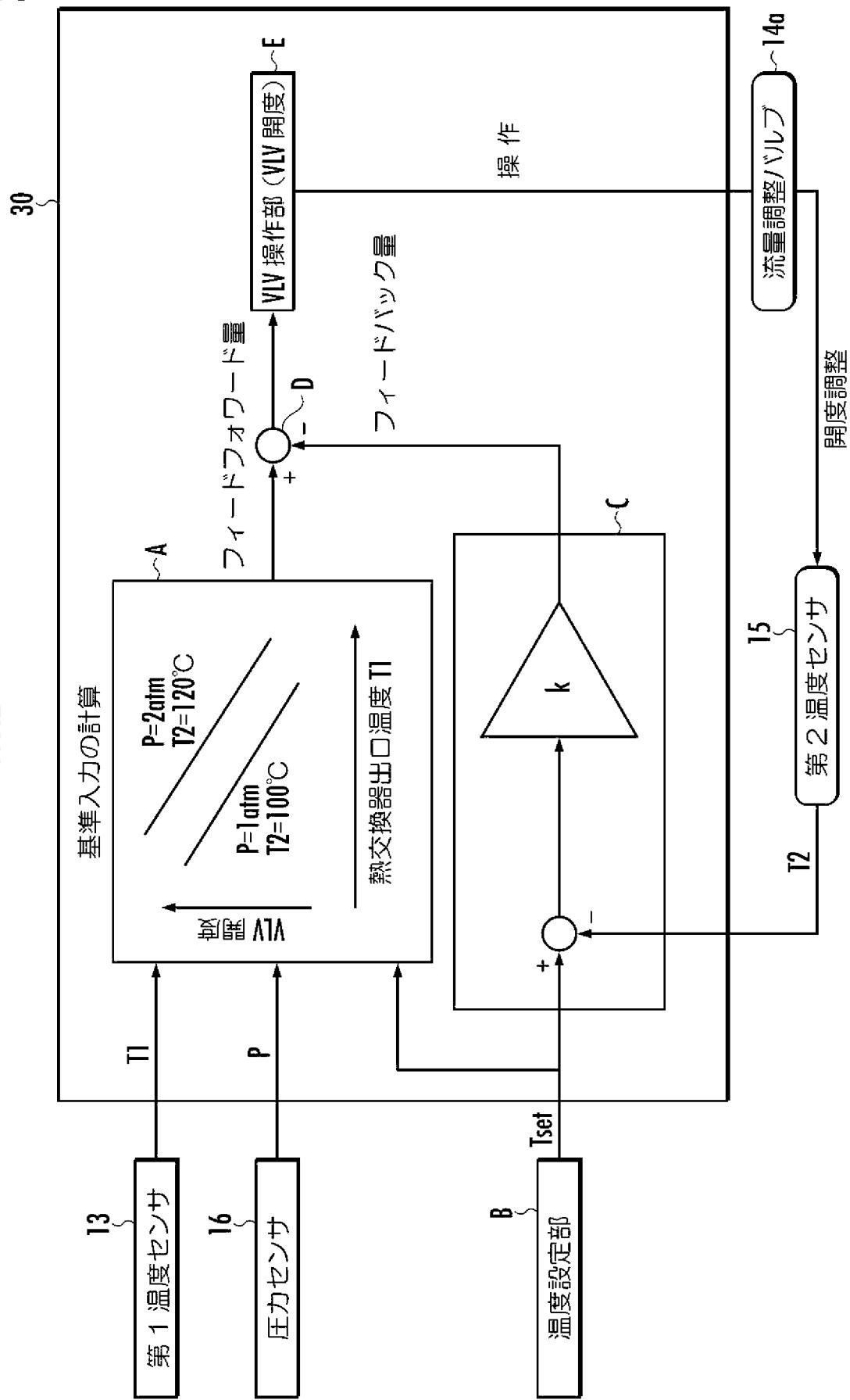
請求の範囲第1項の本発明は、前記相違点により、加圧圧縮することなくアンモニア水によりバイオマスを煮沸処理することができると共に、アンモニアをアンモニアガス（気体）として効率よく分離・回収し、再利用することができるとの効果を奏することができる。

[図1]



[図2]

FIG.2



[図3]

FIG.3 (a)

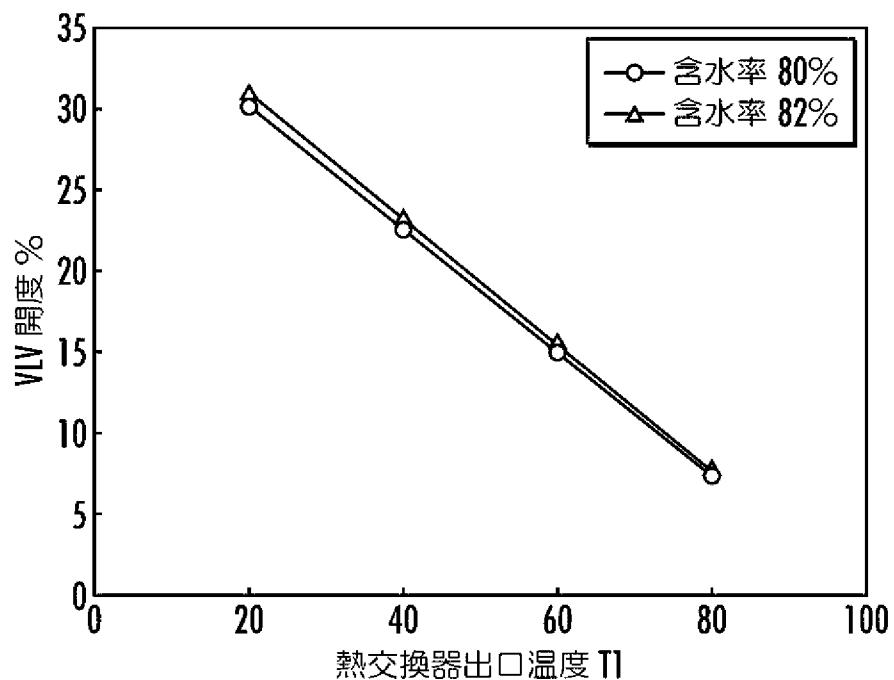
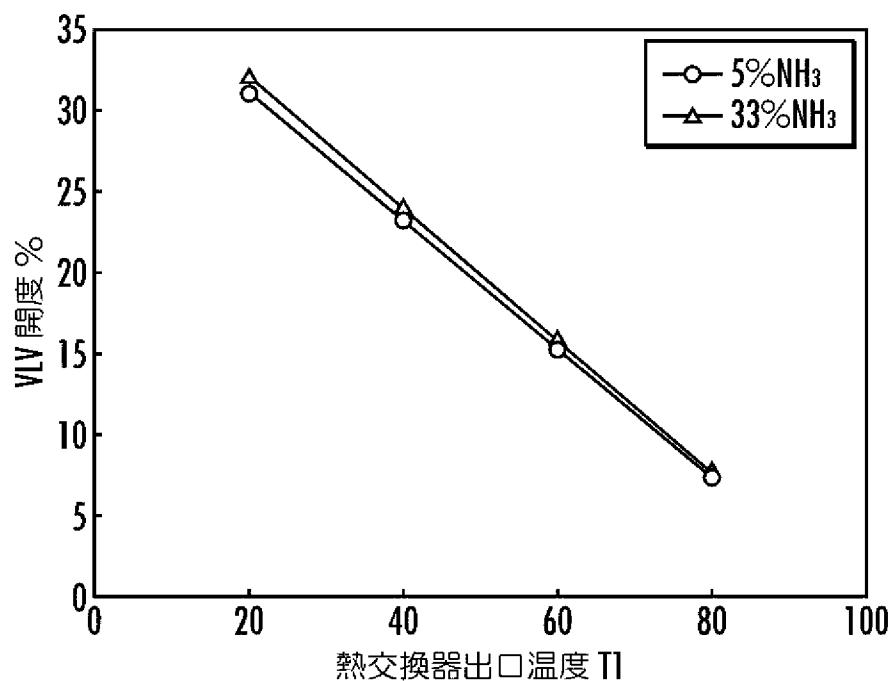
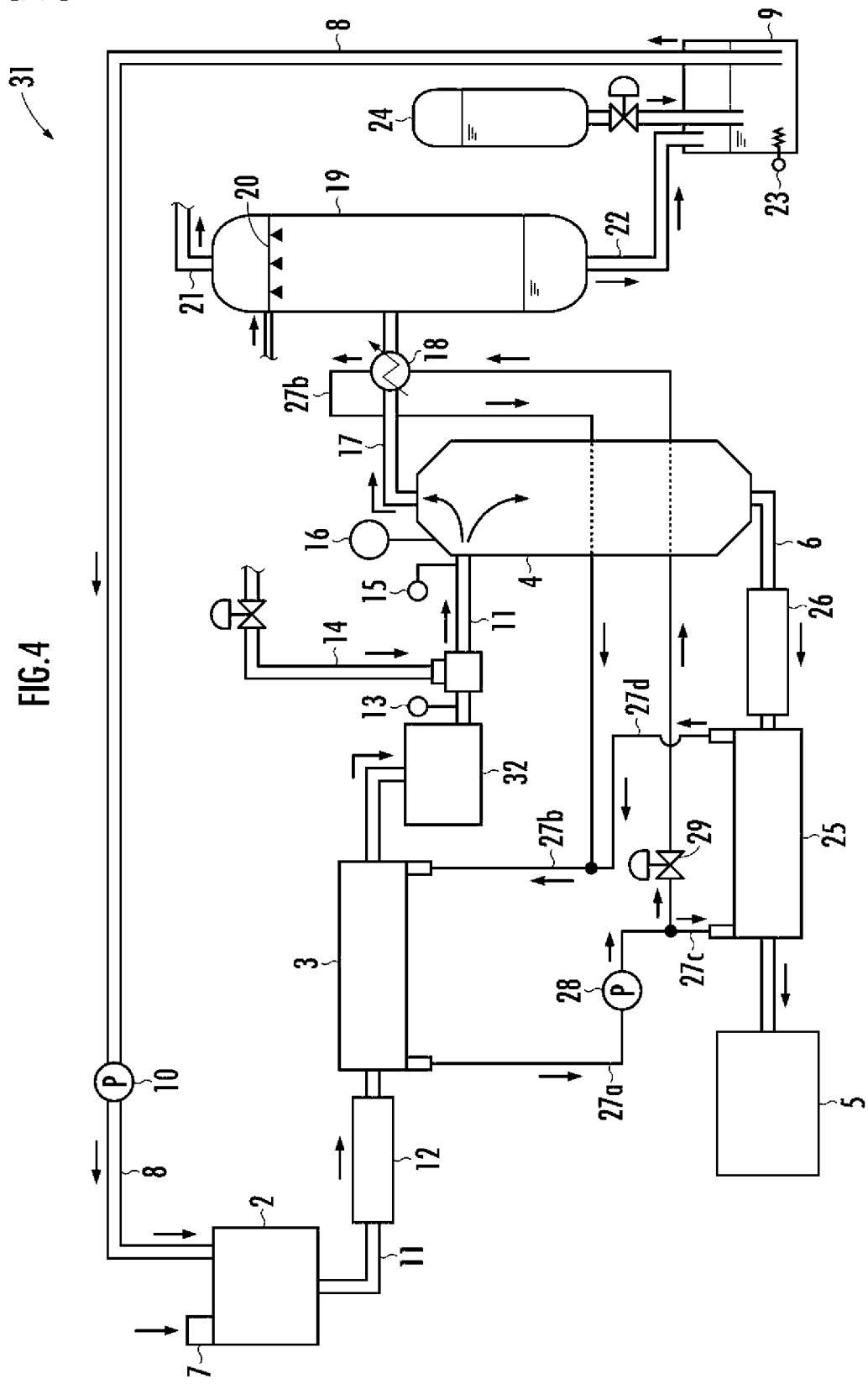


FIG.3 (b)



[図4]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2009/006011

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C13K1/02(2006.01)i, B09B3/00(2006.01)i

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)

C13K1/02, B09B3/00

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2009
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2009	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2009

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

CA/BIOSIS/MEDLINE (STN), JSTPlus (JDreamII)
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X/Y	KIM Tae Hyun. et al., Pretreatment and fractionation of corn stover by ammonia recycle percolation process, Bioresource Technology, 2005, Vol.96, p.2007-2013	1/2-8
X/Y	SENDICH Elizabeth Newton. et al., Recent process improvements for the ammonia fiber expansion (AFEX) process and resulting reductions in minimum ethanol selling price, Bioresource Technology, 2008.04.28, Vol.99, p.8429-8435	1/2-8
Y	JP 2001-179063 A (Fujitsu Ltd., Fujitsu VLSI Ltd.), 03 July 2001 (03.07.2001), paragraph [0095] & US 7144552 B1	2-8

 Further documents are listed in the continuation of Box C.

 See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

 Date of the actual completion of the international search
 01 December, 2009 (01.12.09)

 Date of mailing of the international search report
 08 December, 2009 (08.12.09)

 Name and mailing address of the ISA/
 Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORTInternational application No.
PCT/JP2009/006011

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 2007-275889 A (Masahiro IZUTSU), 25 October 2007 (25.10.2007), paragraph [0042] (Family: none)	2-8
Y	JP 2005-288320 A (Kajima Corp.), 20 October 2005 (20.10.2005), fig. 1 (Family: none)	2-8

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. C13K1/02(2006.01)i, B09B3/00(2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. C13K1/02, B09B3/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2009年
日本国実用新案登録公報	1996-2009年
日本国登録実用新案公報	1994-2009年

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

CA/BIOSIS/MEDLINE(STN)
JSTPlus(JDreamII)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X/Y	KIM Tae Hyun. et al., Pretreatment and fractionation of corn stover by ammonia recycle percolation process, Bioresource Technology, 2005, Vol. 96, p. 2007-2013	1/2-8
X/Y	SENDICH Elizabeth Newton. et al., Recent process improvements for the ammonia fiber expansion (AFEX) process and resulting reductions in minimum ethanol selling price, Bioresource Technology, 2008.04.28, Vol. 99, p. 8429-8435	1/2-8

 C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

- 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
- 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
- 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
- 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
- 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

- 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
- 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
- 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
- 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日 01.12.2009	国際調査報告の発送日 08.12.2009
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/JP) 郵便番号 100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許庁審査官（権限のある職員） 松原 寛子 電話番号 03-3581-1101 内線 3448 4B 4154

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y	JP 2001-179063 A (富士通株式会社、富士通ヴィエルエスアイ株式会社) 2001.07.03, 段落[0095] & US 7144552 B1	2-8
Y	JP 2007-275889 A (井筒 政弘) 2007.10.25, 段落[0042] (ファミリーなし)	2-8
Y	JP 2005-288320 A (鹿島建設株式会社) 2005.10.20, 図1 (ファミリーなし)	2-8