

(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
2023年2月2日(02.02.2023)



(10) 国際公開番号

WO 2023/008298 A1

(51) 国際特許分類:

C09J 167/04 (2006.01)

(21) 国際出願番号:

PCT/JP2022/028306

(22) 国際出願日:

2022年7月21日(21.07.2022)

(25) 国際出願の言語:

日本語

(26) 国際公開の言語:

日本語

(30) 優先権データ:

特願 2021-121217 2021年7月26日(26.07.2021) JP

(71) 出願人:株式会社 フューエンス(**FUENCE CO., LTD.**) [JP/JP]; 〒1500012 東京都渋谷区広尾 1-11-5-1403 Tokyo (JP).

(72) 発明者:井上 浩三(**INOUE, Kozo**); 〒1500012 東京都渋谷区広尾 1-11-5-1403 株式会社フューエンス内 Tokyo (JP). クマール ケースデッシュ(**KUMAR, K. Sudesh**); 11700 ペナン ゲルゴル レンコク ミンデン ハラマン センター 18-G-4 Penang (MY).

(74) 代理人: 廣 田 雅 紀 (**HIROTA, Masanori**); 〒1070052 東京都港区赤坂二丁目2番19号アドレスビル6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, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE,

PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

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

添付公開書類:

一 国際調査報告 (条約第21条(3))

(54) **Title:** ADHESIVE COMPOSITION CONTAINING BIODEGRADABLE BIO-POLYMER, ADHESIVE AGENT, AND METHOD FOR CHANGING ADHESIVE STRENGTH OF ADHESIVE AGENT

(54) 発明の名称: 生分解性バイオポリマーを含む接着性組成物、接着剤及び接着剤の接着強度を変化させる方法

(57) **Abstract:** Provided are: an adhesive composition containing a polyhydroxyalkanoate having repeating units substantially consisting of 3-hydroxybutanoate and 3-hydroxyhexanoate; an adhesive agent; and a method for adjusting the adhesive strength of the adhesive agent. As a result, the present invention provides an adhesive agent containing an adhesive composition that has biodegradability and biocompatibility, and that can be suitably applied to a wide range of use applications such as medicinal use applications.

(57) 要約: ポリヒドロキシアルカン酸の繰り返し単位が実質的に3-ヒドロキシブタン酸と3-ヒドロキシヘキサン酸とのみからなるポリヒドロキシアルカン酸を含む接着性組成物、接着剤、及び接着剤の接着強度を調整する方法を提供することにより、生分解性、生物適合性に加えて、医薬用途等の幅広い用途への適用に好適な接着性組成物を含む接着剤を提供する。



WO 2023/008298 A1

明 細 書

発明の名称：

生分解性バイオポリマーを含む接着性組成物、接着剤及び接着剤の接着強度を変化させる方法

技術分野

[0001] 本発明は、生分解性バイオポリマーであるポリヒドロキシアルカン酸（PHA）を含む組成物であって、ポリヒドロキシアルカン酸（PHA）の繰り返し単位が、実質的に3-ヒドロキシブタン酸（3-HB）及び3-ヒドロキシヘキサン酸（3-HH）のみからなる接着性組成物、かかる接着性組成物を含む接着剤、及びかかる接着剤に含まれる接着性組成物中の3-ヒドロキシブタン酸と3-ヒドロキシヘキサン酸との含有割合を変化させることにより、接着剤の接着強度を変化させる方法に関する。

背景技術

[0002] さまざまな新たな材料が開発され、多様な材料が組み合わせられ、複合材料やそれらをアSEMBルした多種多様な製品が次々と開発されており、これらによって我々の生活は便利で、かつ豊かになってきた。新たな材料の開発は新たな応用分野を生み出すことから、さらに新たな材料の開発を刺激する。このようなサイクルは今後も繰り返されていくと思われ、こうしたサイクルの中で接着剤・封止材あるいは接着技術の果たす役割は、新たな材料の開発に伴い、ますます大きくなっていくものと考えられている。

一方、これからの新たな材料の開発を含めた製品技術の開発は、製品開発を取り巻く状況を見れば、環境に対する負荷が最小になる形で発展していくものと考えられている。合成樹脂からなる接着剤についても、原料となる石油価格が変動し、原料供給が一定しないといった従来からの問題に加え、環境へのマイナスの影響として、製造過程において温室効果ガスを排出するだけでなく、製造過程においてあるいは製品として使用された後、排水処理場を通り抜け、あるいは最終製品が崩壊、投棄あるいは廃棄され河川・海洋な

どに流入することにより、様々な環境問題を生じるなど、接着剤の原料としての合成樹脂について世界的規模での解決が迫られている。

[0003] 特に、最近では、海洋でのマイクロプラスチックの汚染が問題となっている。例えば、プラスチックごみが波や紫外線で粉砕されると長さ5ミリメートル以下のマイクロプラスチックとなり、マイクロプラスチックは魚の体内に蓄積される。50年後には海のプラスチックごみは魚の総重量を超えるとされ、プラスチックごみを削減させることは人類にとって喫緊の課題となってきた。したがって、合成樹脂からなる接着剤の使用が必須の産業分野においても、接着剤に基づく汚染を低減するという観点から、原料として従来から使用している合成樹脂の転換が迫られている。

[0004] また、接着剤・封止材あるいは接着技術は、医療分野においても薬物送達の手段・止血手段等における必須の製品技術要素として既に大きな需要がある。これら医療分野では、安全性の観点から動植物由来の原料を用いた接着剤も使用されているが、さらなる安全性・性能向上が求められている。したがって、医療分野における接着剤・封止材あるいは接着技術として、生体内での安全な使用を可能とするために生体適合性・生体内分解性などの条件を満たしながら、より有用な物性・性能を持つことが必須となっている。

さらに、接着剤・封止材あるいは接着技術を適用する分野は広範にわたることから、接着強度についても、必ずしも高いことだけが求められているわけではなく、適当な接着強度とともに易開封性が求められるなど、適用する用途に応じて接着強度が可変であることも、また、接着剤・封止材あるいは接着技術において、検討すべき重要な技術的要素となってきた。

[0005] これらの課題の解決方法の一つとして、様々な形態及び態様において、生分解性バイオポリマーを原料とした接着性組成物や接着剤を使用することが提案されている。

[0006] 特許文献1には、ポリヒドロキシアルカノエートとしてヒドロキシ酪酸とヒドロキシ吉草酸とのコポリマーを含んだ接着剤組成物を使用して物品を接合する方法において、ポリヒドロキシアルカノエート粒子を水中ラテックス

として施し、物品に圧力を加えて接着剤を硬化させる接合方法が記載されている。特許文献2には、生分解性ポリヒドロキシアルカノエートコポリマーを含むプラスチック製品として、3-ヒドロキシブチレート、3-ヒドロキシバレレート、及び3-ヒドロキシ-4-メチルバレレートによるコポリマーを用いたホットメルト接着剤が記載されている。特許文献3には、ポリヒドロキシアルカン酸を含有してなる、生体適合性に優れ、皮膚への刺激性が低い医療用粘着剤樹脂組成物が記載されている。特許文献4には、ポリヒドロキシアルカン酸として、特定のガラス転移温度を有する3-ヒドロキシブチレートと4-ヒドロキシブチレートとを用いた接着組成物であって、表面タックタイムで規定された接着組成物が記載されている。特許文献5には、乳酸オリゴマー／ポリマー、ポリ乳酸、脂肪族アミド、粘着付与樹脂としてのテルペン樹脂及び酢酸ポリビニルを含む、ホットメルト接着性組成物が記載されている。そして、特許文献6には、ポリブチレンサクシネート及びポリブチレンサクシネートアジペートからなる群から選ばれる少なくとも1種の樹脂とポリ乳酸とを含む生分解性接着剤であって、ラミネート法での成膜性に優れ、かつ、優れた接着強度と易開封性を示す生分解性接着剤が記載されている。

さらに、一般文献である非特許文献1には、バイオポリマーに基づく接着剤の今後の開発の必要性・方向などが広く記載されている。

しかしながら、これらの先行技術文献に記載された技術的事項からは、生分解性材料の特徴を十分に生かし、かつ接着剤及び接着技術として広範な用途への適用が可能となる、所望の物性を有する接着性組成物の実用化・提供には至っていない。

先行技術文献

特許文献

[0007] 特許文献1：特表平9-500157号公報

特許文献2：特表2002-532618号公報

特許文献3：特開2010-17361号公報

特許文献4：特許第5079321号

特許文献5：WO2014/074115

特許文献6：特開2020-176230号公報

非特許文献

- [0008] 非特許文献1：Brief Overview on Bio-Based Adhesives and Sealants Polymers 2019, 11(10), 1685

発明の概要

発明が解決しようとする課題

- [0009] そこで、接着剤を構成する接着性組成物の原料として生分解性バイオポリマーであるポリヒドロキシアルカン酸を使用することで、接着剤の製造工程及び製品としての使用後における処理工程での環境問題に対応すると共に、医療用途を含めた広範囲な用途において求められる多様な接着機能に適応する接着性組成物を提供することが求められていた。

課題を解決するための手段

- [0010] 本発明者らは、上記課題を解決するために検討した結果、ポリヒドロキシアルカン酸（PHA）を産生する微生物を準備するステップ、前記微生物を培地内で増殖するステップ、増殖した前記微生物を動物に摂取させるステップ、及び前記動物の排泄物からポリヒドロキシアルカン酸（PHA）を回収するステップを含むポリヒドロキシアルカン酸（PHA）を産生する方法により、熔融流動性に優れるポリヒドロキシアルカン酸（PHA）が産生されたとの知見に基づいて、かかるポリヒドロキシアルカン酸（PHA）の繰り返し単位として実質的に3-ヒドロキシブタン酸（3-HB）及び3-ヒドロキシヘキサン酸（3-HH）のみからなるポリヒドロキシアルカン酸を含む組成物が、接着性組成物として所望の物性を有することを見だし、さらに、かかる接着性組成物中における3-ヒドロキシブタン酸と3-ヒドロキシヘキサン酸（3-HH）との含有割合を変化させることにより、ポリヒド

ロキシアルカン酸の融点を所望の範囲とし、コポリマーを含む接着性組成物の接着強度が変化することを見だし、本発明を完成するに至った（上記知見については、特願2019-086889：提出日平成31年4月26日参照）。

すなわち、ポリヒドロキシアルカン酸（PHA）を含む接着性組成物であって、ポリヒドロキシアルカン酸（PHA）がその繰り返し単位として実質的に3-ヒドロキシブタン酸（3-HB）及び3-ヒドロキシヘキサン酸（3-HH）のみからなる接着性組成物が所望の物性を有すると共に、かかる接着性組成物における3-ヒドロキシブタン酸と3-ヒドロキシヘキサン酸（3-HH）との含有割合を変化させることにより、接着性組成物を含む接着剤の接着強度が変化することを確認し、本発明を完成するに至った。

本発明は、以下の特定事項により特定されたとおりのものである。

[0011] （1）ポリヒドロキシアルカン酸を含む接着性組成物であって、ポリヒドロキシアルカン酸の繰り返し単位が、実質的に3-ヒドロキシブタン酸及び3-ヒドロキシヘキサン酸のみからなる接着性組成物。

（2）ポリヒドロキシアルカン酸が、3-ヒドロキシブタン酸と3-ヒドロキシヘキサン酸とのコポリマー（P（3-HB-co-3-HH））として含まれる（1）に記載の接着性組成物。

（3）（1）または（2）に記載の接着性組成物を含む接着剤。

（4）（3）に記載の接着剤が、ホットメルト接着剤であることを特徴とする接着剤。

（5）（3）または（4）に記載の接着剤において、前記接着剤に含まれる接着性組成物中の3-ヒドロキシブタン酸と3-ヒドロキシヘキサン酸との含有割合を変化させることにより、接着剤の接着強度を変化させる方法。

発明の効果

[0012] 本発明によれば、ポリヒドロキシアルカン酸（PHA）を含む接着性組成物は、ポリヒドロキシアルカン酸（PHA）の繰り返し単位として実質的に3-ヒドロキシブタン酸（3-HB）と3-ヒドロキシヘキサン酸（3-H

H)のみを含むことにより、自然環境での生分解性及び生体適合性を有するものである。また、本発明によれば、加工性に優れたホットメルト接着剤として利用できる接着性組成物を提供するものである。さらに、本発明によれば、ポリヒドロキシアリカン酸（PHA）の繰り返し単位として実質的に3-ヒドロキシブタン酸（3-HB）と3-ヒドロキシヘキサン酸（3-HH）のみからなるポリヒドロキシアリカン酸を含む接着性組成物中の、3-ヒドロキシブタン酸と3-ヒドロキシヘキサン酸（3-HH）との含有割合を変化させることにより、接着剤の接着強度を変化させることができることから、より広範囲な用途に使用可能な接着剤を提供するものである。

したがって、本発明によれば、生分解性であり、生体適合性を備え、加工性に優れ、広い用途で使用可能な物性を有するポリヒドロキシアリカン酸（PHA）を含む接着性組成物、接着剤及び接着剤の接着強度を変化させる方法を提供することができる。

そして、本発明に係る接着組成物は、自然環境下での生分解性に優れた接着性組成物として提供することができることから、海洋汚染やマイクロプラスチック問題の解消等に寄与することができる。また、廃棄処分として、焼却処理に変えて、生分解処理が可能となるため、環境への負荷を低減するという効果も期待できる。さらに、本発明に係る接着組成物及び接着剤は、ポリヒドロキシアリカン酸（PHA）の有する生体適合性や生体内分解性に加えて、接着強度を変化させることにより広範囲な用途に使用可能となることから、これまでの接着剤としての用途に加えて、医療用途において幅広く使用できる可能性を有するものである。

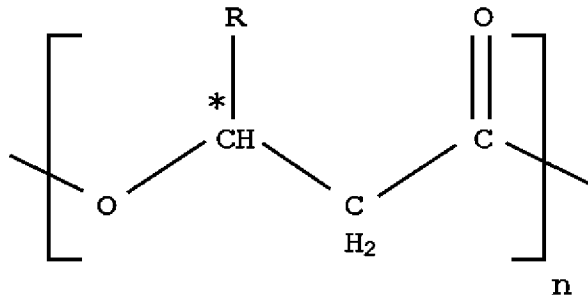
発明を実施するための形態

[0013] 次に、本発明を実施するための最良の形態を含め、具体的な形態について説明する。

[0014] [ポリヒドロキシアリカン酸（PHA）]

ポリヒドロキシアリカン酸（PHA）は、下記化学式（1）で例示されるヒドロキシアリカン酸のポリエステルであり、生分解性の重合体である。

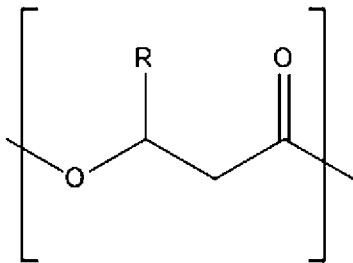
[0015] [化1]



(化学式 (1)、Rはアルキル基を表す。)

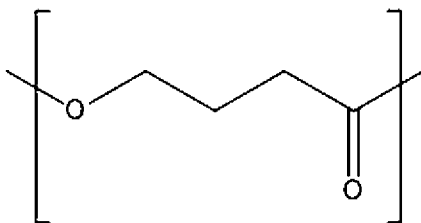
[0016] ポリヒドロキシアルカン酸 (PHA) の繰り返し単位としては、下記化学式 (2) で示される 3-ヒドロキシアルカン酸、及び下記化学式 (3) で示される 4-ヒドロキシアルカン酸が知られている。

[0017] [化2]



(化学式 (2)、Rはアルキル基を表す。)

[0018] [化3]



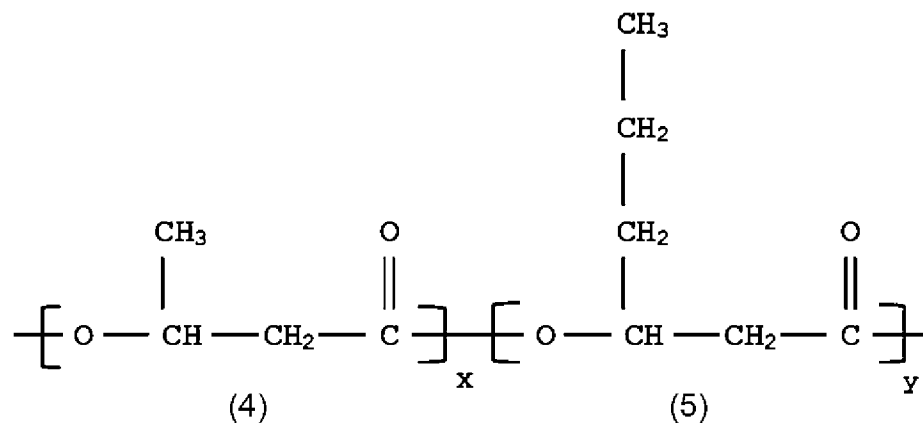
(化学式 (3))

[0019] 3-ヒドロキシアルカン酸単位 (3-HA) は、アルキル基 (R) として、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ペンチル基、ヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ウンデシル基、ドデシル基、トリデシル基などを取ることができる。

本発明に係るポリヒドロキシアルカン酸 (PHA) はその繰り返し単位と

して、実質的に下記化学式（４）で示される３－ヒドロキシアルカン酸単位におけるアルキル基がメチル基である３－ヒドロキシブタン酸（３－ＨＢ）、及び下記化学式（５）で示される３－ヒドロキシアルカン酸単位におけるアルキル基がプロピル基である３－ヒドロキシヘキサン酸（３－ＨＨ）のみを含有することを特徴とするものである。本発明に係るポリヒドロキシアルカン酸（ＰＨＡ）がその繰返し単位として、３－ヒドロキシブタン酸単位（３－ＨＢ）と３－ヒドロキシヘプタン酸単位（３－ＨＨ）とを含む場合、以下に例示する３－ヒドロキシブタン酸（３－ＨＢ）と３－ヒドロキシヘキサン酸（３－ＨＨ）とのコポリマー（ $P(3-HB-co-3-HH)$ ）として含まれることが好ましい。

[0020] [化4]



[0021] 本発明に係る接着性組成物は、ポリヒドロキシアルカン酸の繰り返し単位として、実質的に３－ヒドロキシブタン酸及び３－ヒドロキシヘキサン酸のみからなるものであり、本発明に係るポリヒドロキシアルカン酸（ＰＨＡ）の繰り返し単位における３－ヒドロキシヘキサン酸（３－ＨＨ）の含有割合は、ポリヒドロキシアルカン酸（ＰＨＡ）の繰り返し単位の全量に対して重量比で好ましくは２０％以上であり、好ましくは２７％以下である。ポリヒドロキシアルカン酸の繰り返し単位の全量における３－ヒドロキシヘキサン酸（３－ＨＨ）の含有割合を変化させることにより、ポリヒドロキシアルカン酸としての接着強度を変化させることができ、３－ヒドロキシヘキサン酸（３－ＨＨ）の含有割合が、ポリヒドロキシアルカン酸の繰り返し単位全量

に対して重量比で20%以下である場合には、ポリヒドロキシアルカン酸としての十分な接着性が得られないおそれがある。また、ポリヒドロキシアルカン酸(PHA)の繰り返し単位の全量に対して重量比が27%以上の場合には、ポリヒドロキシアルカン酸を含む組成物の粘度が高くなることから、接着剤としての調製が困難となるおそれがある。

[0022] また、本発明に係るポリヒドロキシアルカン酸(PHA)は、下記の「ポリヒドロキシアルカン酸(PHA)の製造方法」に記載したとおり、その製造方法としては特に制限されるものではないが、微生物を利用した製造方法が有効な製造方法である。微生物を利用した製造方法を適用した場合には、製造されるポリヒドロキシアルカン酸(PHA)の繰り返し単位として、3-ヒドロキシブタン酸及び3-ヒドロキシヘキサン酸以外の3-ヒドロキシアルカン酸や4-ヒドロキシアルカン酸が夾雑物として混在する可能性があるが、培養液や培養条件を調整することにより、夾雑物の混在していない、あるいは極めて微量の夾雑物しか混在していない実質的に3-ヒドロキシブタン酸及び3-ヒドロキシヘキサン酸のみを含有する本発明に係るポリヒドロキシアルカン酸を製造することが可能である。したがって、本発明における「実質的に3-ヒドロキシブタン酸及び3-ヒドロキシヘキサン酸のみを含有する」ポリヒドロキシアルカン酸とは、微生物を利用した製造方法において、培養液や培養条件を調整することにより得られる、夾雑物の混在していない、あるいは極めて微量の夾雑物しか混在していないポリヒドロキシアルカン酸を含むものである。

[0023] 本発明に係るポリヒドロキシアルカン酸(PHA)の別の実施態様としては、ポリヒドロキシアルカン酸(PHA)の重量平均分子量が $1.0 \times 10^5 \sim 13.0 \times 10^5 \text{ g/mol}$ であり、好ましくは $3.0 \times 10^5 \sim 10.0 \times 10^5 \text{ g/mol}$ であり、より好ましくは $3.0 \times 10^5 \sim 8.0 \times 10^5 \text{ g/mol}$ である。ポリヒドロキシアルカン酸(PHA)の重量平均分子量が上記した範囲にある場合には、溶媒への溶解性、及び耐熱性や耐久性を制御可能とするポリヒドロキシアルカン酸(PHA)を提供することができるが

、上記した範囲を逸脱した場合には、こうした効果が得られないおそれがある。

[0024] 本発明に係るポリヒドロキシアルカン酸（PHA）の別な実施態様としては、本発明に係るポリヒドロキシアルカン酸（PHA）の繰り返し単位における3-ヒドロキシヘキサン酸（3-HH）の含有割合を、ポリヒドロキシアルカン酸（PHA）の繰り返し単位の全量に対して重量比で20%以上であり、27%以下とすることにより、ポリヒドロキシアルカン酸（PHA）の融点を60℃以上90℃以下とすることができる。ポリヒドロキシアルカン酸（PHA）の融点を上記の範囲とすることで、加工性が増し、ポリヒドロキシアルカン酸（PHA）を含有する接着性組成物を含む接着剤をホットメルト接着剤として提供するために有利である。なお、ポリヒドロキシアルカン酸（PHA）の融点は、いずれの方法で測定してもかまわないが、例えば、DSC分析により測定可能である。

[0025] [ポリヒドロキシアルカン酸（PHA）の製造方法]

本発明に係るポリヒドロキシアルカン酸（PHA）の製造方法は、本発明に係るポリヒドロキシアルカン酸の特徴を備えるポリヒドロキシアルカン酸（PHA）が得られるのであれば、どのような製造方法でもよく、特に制限されるものではない。

[0026] 例えば、本発明のポリヒドロキシアルカン酸（PHA）の製造方法の一実施態様としては、以下の工程を含むことができる。

工程1：ポリヒドロキシアルカン酸（PHA）を産生する微生物を準備する工程、

工程2：工程1の微生物を培地内で増殖する工程、

工程3：増殖した微生物を動物に摂取させる工程、及び

工程4：工程3の動物の排泄物からポリヒドロキシアルカン酸（PHA）を回収・精製する工程

[0027] 本発明に係るポリヒドロキシアルカン酸（PHA）は、微生物を用いて製造することが好ましい。例えば、微生物としてはバチルス・ベガテリウム（

Bacillus megaterium)、カプリアビダス・ネカトール (*Cupriavidus necator*)、ラルストニア・ユートロファ (*Ralstonia eutropha*)、アルカリゲネス・ラタス (*Alcaligenes latus*) 等のポリヒドロキシアルカン酸産生能を有する微生物が挙げられる。これらの中でもカプリアビダス・ネカトールが特に好ましい。

[0028] 微生物としては、ポリヒドロキシアルカン酸 (PHA) の合成に関与する遺伝子が欠失又は導入された微生物であることが好ましい。例えば、アセトアセチル-CoAレダクターゼ遺伝子を欠失させた微生物を用いることが好ましい。また、ヒドロキシアルカン酸シンターゼ遺伝子や、エノイル-CoAヒドラターゼ遺伝子を導入することが好ましい。これにより、ポリヒドロキシアルカン酸に含まれる3-ヒドロキシヘキサン酸単位 (3-HH) の含有量を高めることができる。また、熔融流動性が高く、加工性に優れた3-ヒドロキシブタン酸 (3-HB) と3-ヒドロキシヘキサン酸 (3-HH) とからなるコポリマーP (3HB-co-3HH) を製造することができる。

[0029] 微生物の培養に使用する培地は、微生物が増殖するものであれば、特に制限されない。例えば、炭素源として、メタノール、エタノール、ブタノール等のアルコール類、酢酸、プロピオン酸、ヘキサン酸、オクタン酸、デカン酸、ラウリン酸、オレイン酸、パルミチン酸、リノール酸、リノレン酸、ミリスチン酸等の飽和・不飽和脂肪酸などの脂肪酸類、グルコース、フルクトース等の糖類、乳酸等の有機酸類、炭素数が10以上である飽和・不飽和脂肪酸を多く含む油脂類を含有する培地である。油脂類としては、例えば、ヤシ油、パーム核油、パーム油、パームオレイン、菜種油、大豆油、米油、ゴマ油等の植物油脂、ラード、牛脂等の動物油脂、魚油等が挙げられる。なお、油脂類は精製前のものや、廃棄食用油等も使用することができる。培地に炭素源として添加する油脂類としては、ラウリン酸を含有するパーム核油又はヤシ油が好ましい。パーム核油又はヤシ油を含有することにより、ポリヒ

ドロキシアルカン酸（PHA）の含有量を高めることができる。

[0030] 本発明に係るポリヒドロキシアルカン酸（PHA）を生産するための、微生物の培養条件としては、好気性条件下であることが好ましい。また、必要であれば、窒素源や無機物を添加してもよい。窒素源としては、アンモニウム塩等が挙げられる。無機物としては、例えばリン酸第一カリウム、リン酸第二カリウム、リン酸マグネシウム、硫酸マグネシウム、塩化ナトリウム等が挙げられる。

培養温度は20℃～40℃が好ましく、より好ましくは25℃～35℃である。培養時間は特に限定されないが、好ましくは48～72時間である。

[0031] 本発明に係るポリヒドロキシアルカン酸（PHA）の製造方法において、上記のアセトアセチル-CoAレダクターゼ遺伝子と、エノイル-CoAヒドラターゼ遺伝子の発現量を制御することで、3-ヒドロキシブタン酸（3-HB）と3-ヒドロキシヘキサン酸（3-HH）とのコポリマーにおける3-ヒドロキシヘキサン酸（3-HH）の含有量を制御することができる。

また、炭素源の残存量の制御や、培養液における無機成分濃度の調整、酸素の通気量及び培養時間を調整することでも、3-ヒドロキシブタン酸（3-HB）と3-ヒドロキシヘキサン酸（3-HH）とのコポリマーにおける3-ヒドロキシヘキサン酸（3-HH）の含有量を制御することが可能である。

[0032] ポリヒドロキシアルカン酸（PHA）の回収・精製方法は特に限定されないが、培地から遠心分離によって回収し、溶媒等で抽出する方法や、上記微生物を動物により消化・吸収させ、排泄物として回収する方法などが挙げられる。ポリヒドロキシアルカン酸（PHA）の濃度を簡便に濃縮できるという観点から、動物により微生物を消化・吸収させ、排泄物に含まれる顆粒状のポリヒドロキシアルカン酸（PHA）として回収する方法が好ましい。

上記動物としては、げっ歯類、ヤギ、ヒツジ、ウシ、トリ等の動物、水生生物、甲虫、虫等が挙げられる。中でもミールワーム等の甲虫の幼虫が好ま

しく、35日齢のイエバエの虫食い（ダニカムシの幼虫、*Tenebrio molitor*）がより好ましい。

ミールワーム等の幼虫に上記微生物を餌として与えた後に、糞便ペレットを回収し、メッシュを用いて篩い分けした後、水、水酸化ナトリウム等の塩基で洗浄、乾燥を行うことで、ポリヒドロキシアルカン酸（PHA）を回収することができる。

[0033] ポリヒドロキシアルカン酸（PHA）の製造方法についての具体的な態様を以下に例示する。

（1）P（3HB-co-3HH）の製造方法

（ア）P（3HB-co-3HH）製造のためのミネラル培地調製

P（3HB-co-3HH）製造のためのミネラル培地は、4.0 g/Lの NaH_2PO_4 、4.6 g/Lの Na_2HPO_4 、0.45 g/Lの K_2SO_4 、0.39 g/Lの MgSO_4 、62 mg/Lの CaCl_2 、1 mL/Lの微量元素溶液（微量元素溶液は0.1 MのHClに溶解した15 g/Lの $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ 、2.4 g/Lの $\text{MnSO}_4 \cdot \text{H}_2\text{O}$ 、2.4 g/Lの $\text{ZnSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ および0.48 g/Lの $\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ を含む。）からなり、オートクレーブにより滅菌する前に、培地のpHを7.0に調整した。

（イ）13 L発酵槽を用いたP（3HB-co-3HH）の生合成

P（3HB-co-3HH）の生合成は、ポリヒドロキシアルカン酸シンターゼ遺伝子を導入したカプリアビダス・ネカトールを用いて行った。

まず、ポリヒドロキシアルカン酸シンターゼをコードする遺伝子を導入したカプリアビダス・ネカトールを寒天プレート上に画線し、30℃で24時間培養した。次に、前培養として、50 mLの培養液に白金耳を用いて2回前記カプリアビダス・ネカトールを接種し、30℃のインキュベーターシェーカーで、培養液のOD_{600nm}が4になるまで8時間振とうした。尿素0.54 g/L、 MgSO_4 0.39 g/L、 CaCl_2 62 mg/L、微量元素溶液1 mL/L及び粗パーム核油1質量%となるように添加されたミネラル培地100 mLに対して、前記培養液約3 mLを接種した。粗パーム核

油はミネラル培地へ添加する前に、オートクレーブ処理を行った。さらに、このミネラル培地を、18時間培養して、6 Lの発酵槽に接種した。接種された前記カプリアビダス・ネカトルの形態を、発酵槽に移す前にチェックした(10% v/v)。培養培地の温度は30℃に維持しつつ、培地のpHについては3 MのNaOH及び3 MのH₃PO₄の添加により7.0±0.1に設定した。攪拌は、Rushtonタービンを用いて200~900 rpm攪拌速度で攪拌を行った。フィルターカートリッジ(Sartorius stedim, Germany)を通して、1vvm(空气体積/発酵槽の作業体積/分)で空気を供給し、溶存酸素濃度を40%以上に維持した。MgSO₄・7H₂Oは培養後18時間目に、尿素は6時間ごとに添加した。微量元素は植え付けの間及び培養の18時間目に1 mLを添加した。粗パーム核油は、微生物による油の消費に応じて、6時間ごとに10 g/L~20 g/Lの濃度で供給した。細菌培養物の残留油分、湿潤細胞重量および光学密度を決定するために、サンプリングを6時間ごとに行った。培養時間は、細菌の増殖に応じて48時間から72時間の範囲であった。

(ウ) P(3HB-co-3HH)の生物学的回収

35日齢のミールワーム(ダニカムシの幼虫、Tenebrio molitor)を周囲温度(約25℃)でプラスチック容器で飼育した。前記飼育したミールワーム100 gに対して、上記P(3HB-co-3HHx)を含む乾燥微生物を給した。

給された微生物の量は、ミールワームの体重に基づいて供給した(体重の1日あたり5%)。新しいバッチの微生物を供給する前に、ミールワームの糞便ペレットを回収し、0.50 mmおよび0.25 mmのサイズのメッシュを用いて篩い分けした。二重ふるい分けを行うことにより、他の不純物を取り除き、その後の洗浄工程を容易にすることができた。

(エ) 蒸留水を用いたP(3HB-co-3HH)の精製

約10%(w/v)の糞便ペレットに水道水を加え、100 g/Lの濃度とした。糞便ペレット懸濁液を数回すすぎ、上清を捨てる前に沈降させた。

上清を除去し、回収したP（3HB-co-3HH）を一定質量になるまで50℃のオーブンで乾燥させた。

さらに、前記乾燥させたP（3HB-co-3HH）を0.25M NaOH中で1時間すすぎ、混合物を沈降させ、上清を除去し、回収したペレットをpHが9.5未満に低下するまで水道水中でさらに1時間攪拌した。次いで、回収されたP（3HB-co-3HH）顆粒を50℃のオーブンで一定質量になるまで乾燥させ、目的とするP（3HB-co-3HH）を回収した。

[0034] [ポリヒドロキシアルカン酸（PHA）を含有する接着性組成物]

本発明に係る接着性組成物は、ポリヒドロキシアルカン酸（PHA）のみを用いてもよいが、ポリヒドロキシアルカン酸（PHA）に加えて、溶媒を含むことができる。溶媒の含有量は例えば、5～90重量%の範囲で、適宜選択できる。溶媒の例としては、有機溶媒が挙げられ、有機溶媒としてはメタノール、エタノール、酢酸エチル、酢酸ジメチル、クロロホルム、アセトニトリル、ヘキサンなど挙げられるが、これらに限定されるものではなく、また、2種類以上の溶媒を混合溶媒として用いることも可能である。

[0035] 本発明に係る接着性組成物は、その他の添加物と混合して接着性組成物とすることもできる。その他の添加剤としては、用いられる用途に応じて、本発明のポリヒドロキシアルカン酸（PHA）以外のその他の樹脂、粘着付与剤（タッキファイヤ）、可塑剤、無機充填剤等を用いることができる。

[0036] 本発明に係る接着性組成物に用いられるポリヒドロキシアルカン酸（PHA）以外のその他の樹脂としては、熱可塑性樹脂、熱硬化性樹脂等が挙げられ、ポリエチレン、ポリプロピレン等のポリオレフィン系樹脂、ポリイミド、ポリアミド、ポリフェニレンエーテル、ポリエーテルケトン、ポリエーテルケトンケトン、ポリブタジエン、ポリスチレン、ポリエステル、ポリ乳酸、フェノール樹脂、ポリ（メタ）アクリル酸、ノルボルネン樹脂等が挙げられる。その中でも、本発明に係る接着性組成物が生分解性ポリマーであるポリヒドロキシアルカン酸を用いていることから、かかる接着性組成物に添加

するその他の樹脂としては、ポリ乳酸などの生分解性樹脂が好ましい。

[0037] 本発明に係る接着性組成物に用いられる粘着付与剤（タッキファイヤ）としてはテルペン型樹脂、ロジン・ロジン誘導体、クロマン・インデン樹脂など、可塑剤としてはフタル酸エステル、ラノリン、ミネラルオイルなど、無機充填剤としては炭酸カルシウム、酸化亜鉛など、接着性組成物の用いられる用途に応じて、接着性組成物に通常用いられる添加物が使用できる。

[0038] 本発明に係る接着性組成物を構成する成分の割合には特に制限はないが、ポリヒドロキシアルカン酸（PHA）を溶媒に溶解する実施形態においては、溶解するポリヒドロキシアルカン酸（PHA）の割合は、溶液の粘性などを考慮して、多くとも約50重量%である。

[0039] [ポリヒドロキシアルカン酸（PHA）を含有する接着性組成物を含む接着剤]

ポリヒドロキシアルカン酸（PHA）を含有する接着性組成物は、溶液系接着剤、ポリヒドロキシアルカン酸（PHA）を乳化して水に分散させた水中ラテックス系を含めた水分散系接着剤、無溶媒系接着剤、及び固体系接着剤のいずれの形態の接着剤としても使用することが可能である。中でもホットメルト接着剤は、不燃性でしかも水分や溶媒が含まれていないことから、環境面からも優れており、生分解性ポリマーであるポリヒドロキシアルカン酸（PHA）を含有する接着性組成物を用いることの効果は大きい。本発明に係る接着剤は、本発明に係る接着性組成物を用い、通常的手段により、製造することができるものであり、接着剤を製造する手段は特に制限されるものではない。

[0040] 以下に、実施例を挙げて本発明をさらに詳細に説明する。なお、これらは本発明を何ら限定するものではない。

実施例

[0041] [実施例1] 3-ヒドロキシヘキサン酸（3-HH）を27%含むポリヒドロキシアルカン酸を含有する接着性組成物の接着性測定

ポリヒドロキシアルカン酸（PHA）の繰り返し単位として、3-ヒドロ

キシブタン酸（３－HB）と３－ヒドロキシヘキサン酸（３－HH）とのみからなるポリヒドロキシアルカン酸を上記したポリヒドロキシアルカン酸（PHA）の製造方法により製造した。

製造したポリヒドロキシアルカン酸について、ポリヒドロキシアルカン酸（PHA）の繰り返し単位の全量に対する３－ヒドロキシヘキサン酸（３－HH）の含有割合が重量比で２７％であり、また、３－ヒドロキシブタン酸（３－HB）と３ヒドロキシヘキサン酸（３－HH）とは、 $P(3HB-co-3HH)$ の構造であるコポリマーで存在することを確認した。得られた３－ヒドロキシヘキサン酸（３－HH）を２７％含むポリヒドロキシアルカン酸の融点は８１．２１℃であった。

得られた $P(3HB-co-3HH)$ の構造であるコポリマーを含有する接着組成物を用いて接着強度測定を、以下のとおり行った。

１）JIS K 6850（引張せん断接着強さ）に準拠して、以下の金属板、ガラス、樹脂及び木材をサンプルとして、 $P(3HB-co-3HH)$ の構造であるコポリマーの紛体のみを、溶媒を使用せずホットメルト接着剤として使用し、接着強度を測定した。

２）サンプルはJIS K 6850に従い、幅２５mm長さ１００mmの寸法にカットして、用いた。

３）接着剤は１サンプル当たり０．０２g使用し、接着剤をサンプルの端部から１２．５mmの範囲に全幅均等に塗布した。

４）上記サンプルの１２．５mmの端部の接着部ともう一方のサンプルを重ね合わせダブルクリップで固定し、９０℃のオーブンの中に２時間置いた。

接着評価に用いたサンプルは以下のとおりである。

ガラス：厚さ２．１mmの透明ガラス

鉄(鋼板)：厚さ０．２５mm

アルミ：厚さ１mm

ステンレス：厚さ０．３mm

ポリスチレン：厚さ１．２mm

ポリプロピレン：厚さ 0.8 mm

アクリル：厚さ 1 mm

ポリ塩化ビニル：厚さ 1 mm

合板：厚さ 2.6 mm

5) 引張せん断接着強さは、株式会社オリエンテック製テンシロン万能試験機 R T C-1325 で測定した。剛性被着材相互の接着接合物の重ね合わせ引張せん断強さの測定は、試験片の接着部分と主軸に平行な引張力を被着材に与え、剛性被着材間における単純重ね合せ部分に負荷を与えることによって測定した。前記の試験機で引張速度は毎分 1 mm の速さに設定して、測定した。測定結果は以下のとおりであった。

ガラス：1.14 N/mm²

鉄(鋼板)：0.83 N/mm²

アルミ：1.20 N/mm²

ステンレス：1.07 N/mm²

ポリスチレン：0.52 N/mm²

ポリプロピレン：0.30 N/mm²

アクリル：0.87 N/mm²

ポリ塩化ビニル：0.78 N/mm²

木材合板：0.65 N/mm²

[0042] [実施例 2] 3-ヒドロキシヘキサン酸 (3-HH) を 20% 含むポリヒドロキシアルカン酸を含有する接着性組成物の接着性測定

ポリヒドロキシアルカン酸中の 3-ヒドロキシブタン酸と 3-ヒドロキシヘプタン酸との含有割合の接着強度に与える影響を調べるために、ポリヒドロキシアルカン酸 (PHA) の繰り返し単位の全量に対する 3-ヒドロキシヘキサン酸 (3-HH) の割合が重量比で 20% であるポリヒドロキシアルカン酸 (PHA) を実施例 1 に記載した製造方法に準じて、製造した。得られたポリヒドロキシアルカン酸の繰り返し単位の全量に対する 3-ヒドロキシヘキサン酸 (3-HH) の割合が重量比で 20% であることを確認し、ま

た、3-ヒドロキシブタン酸（3-HB）と3ヒドロキシヘキサン酸（3-HH）とは、 $P(3HB-co-3HH)$ の構造であるコポリマーで存在することを確認した。得られた3-ヒドロキシヘキサン酸（3-HH）を20%含むポリヒドロキシアルカン酸の融点は75.82℃であった。

実施例1の測定条件と同一の測定条件で測定し、サンプルとしては実施例1に用いたアクリルとポリ塩化ビニルとを使用した。

引張せん断接着強さの測定結果は以下のとおりであった。

アクリル：0.41 N/mm²

ポリ塩化ビニル：1.08 N/mm²

[0043] 以上の結果から、ポリヒドロキシアルカン酸として、その繰り返し単位が実質的に3-ヒドロキシブタン酸及び3-ヒドロキシヘキサン酸のみからなる、本発明に係る接着性組成物は、ガラス、鉄（鋼板）、アルミ、ステンレス、ポリスチレン、ポリプロピレン、アクリル、ポリ塩化ビニル及び木片に対して良好な接着性を示したことから、本発明に係るポリアルカン酸を含む接着性組成物は接着剤としての幅広い用途への適用が可能であることが確認できた。接着強度については、市販のホットメルトスティックタイプと同等の引張せん断接着強さを示すことが確認できた。また、本発明に係る接着剤において、接着性組成物中の3-ヒドロキシブタン酸と3-ヒドロキシヘキサン酸との含有割合を変化させることにより、ポリヒドロキシアルカン酸（PHA）の融点を60℃から90℃の範囲とすることができたことから、加工性に優れたホットメルト接着剤として利用できることを確認できた。さらに、本発明に係る接着剤は、ポリヒドロキシアルカン酸の繰り返し単位としての3-ヒドロキシブタン酸と3-ヒドロキシヘキサン酸との配合割合を変化させることで、接着強度を変化させることが確認でき、接着強度は対象により調整できることが確認できたことから、様々な使用環境と用途に応じた適用が可能である。

産業上の利用可能性

[0044] 本発明に係るポリヒドロキシアルカン酸（PHA）を含む接着性組成物及

び接着剤は、自然環境下での生分解性、生体適合性・生体内分解性等に優れ
ると共に、接着強度を有し、しかも、接着強度を調整することができること
から、多くの産業用途や医療用に用いる事ができる。

請求の範囲

- [請求項1] ポリヒドロキシアルカン酸を含む接着性組成物であって、ポリヒドロキシアルカン酸の繰り返し単位が、実質的に3-ヒドロキシブタン酸及び3-ヒドロキシヘキサン酸のみからなる接着性組成物。
- [請求項2] ポリヒドロキシアルカン酸が、3-ヒドロキシブタン酸と3-ヒドロキシヘキサン酸とのコポリマー（ $P(3-HB-co-3-HH)$ ）として含まれる請求項1に記載の接着性組成物。
- [請求項3] 請求項1または2に記載の接着性組成物を含む接着剤。
- [請求項4] 請求項3に記載の接着剤が、ホットメルト接着剤であることを特徴とする接着剤。
- [請求項5] 請求項3または4に記載の接着剤において、前記接着剤に含まれる接着性組成物中の3-ヒドロキシブタン酸と3-ヒドロキシヘキサン酸との含有割合を変化させることにより、接着剤の接着強度を変化させる方法。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2022/028306

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**C09J 167/04**(2006.01)i

FI: C09J167/04

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)

C09J167/04

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

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

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 9-508424 A (THE PROCTER & GAMBLE COMPANY) 26 August 1997 (1997-08-26) example 17	1-5
X	CN 102867459 A (CHINA ACADEMY OF PRINTING TECHNOLOGY) 09 January 2013 (2013-01-09) claim 4, paragraphs [0011], [0035]	1-3
X	JIAN, Jia et al. Metabolic engineering for microbial production of polyhydroxyalkanoates consisting of high 3-hydroxyhexanoate content by recombinant aeromonas hydrophila. Bioresource Technology. 16 March 2010, vol. 101, no. 15, pp. 6096-6102 table 5, 4. Conclusions	1-3, 5
A	JP 2006-519293 A (METABOLIX, INCORPORATED) 24 August 2006 (2006-08-24) claim 1, paragraph [0042]	1-5
A	JP 2006-518799 A (METABOLIX, INCORPORATED) 17 August 2006 (2006-08-17) paragraphs [0067], [0107]	1-5
A	JP 2004-512419 A (METABOLIX, INCORPORATED) 22 April 2004 (2004-04-22) claim 31	1-5



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

26 September 2022

Date of mailing of the international search report

11 October 2022

Name and mailing address of the ISA/JP

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

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2022/028306

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P, X	WO 2021/153250 A1 (KANEKA CORPORATION) 05 August 2021 (2021-08-05) claim 5	1-5

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2022/028306

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP	9-508424	A	26 August 1997	US 5502116 A example 17 WO 1995/20615 A1	
CN	102867459	A	09 January 2013	(Family: none)	
JP	2006-519293	A	24 August 2006	US 2004/0213941 A1 claim 1, paragraph [0043] WO 2004/076582 A1	
JP	2006-518799	A	17 August 2006	US 2004/0213941 A1 paragraph [0043] WO 2004/076582 A1	
JP	2004-512419	A	22 April 2004	US 2002/0068810 A1 claim 31 WO 2002/34857 A2	
WO	2021/153250	A1	05 August 2021	(Family: none)	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C09J 167/04(2006.01)i FI: C09J167/04		
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）） C09J167/04		
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 1971-2022年 日本国実用新案登録公報 1996-2022年 日本国登録実用新案公報 1994-2022年		
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）		
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	JP 9-508424 A（ザ、プロクター、エンド、ギャンブル、カンパニー）26.08.1997 (1997 - 08 - 26) 例17	1-5
X	CN 102867459 A (CHINA ACADEMY OF PRINTING TECHNOLOGY) 09.01.2013 (2013 - 01 - 09) 請求項4, [0011], [0035]	1-3
X	JIAN, Jia et al., Metabolic engineering for microbial production of polyhydroxyalkanoates consisting of high 3-hydroxyhexanoate content by recombinant Aeromonas hydrophila, Bioresource Technology, 2010.03.16, Vol.101 No.15, Page.6096-6102 Table 5, 4. Conclusions	1-3, 5
A	JP 2006-519293 A（メタボリックス インコーポレイティッド）24.08.2006（2006 - 08 - 24） 請求項1, [0042]	1-5
A	JP 2006-518799 A（メタボリックス インコーポレイティッド）17.08.2006（2006 - 08 - 17） [0067], [0107]	1-5
☒ 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、一般的な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抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの “X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの “Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの “&” 同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日 26.09.2022		国際調査報告の発送日 11.10.2022
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		権限のある職員（特許庁審査官） 本多 仁 4Z 3447 電話番号 03-3581-1101 内線 3483

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
A	JP 2004-512419 A (メタボリックス・インコーポレーテッド) 22.04.2004 (2004 - 04 - 22) 請求項31	1-5
P, X	W0 2021/153250 A1 (株式会社カネカ) 05.08.2021 (2021 - 08 - 05) 請求項5	1-5

国際調査報告
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2022/028306

引用文献			公表日	パテントファミリー文献			公表日
JP	9-508424	A	26.08.1997	US	5502116	A	
				EXAMPLE 17			
				WO	1995/20615	A1	
CN	102867459	A	09.01.2013	(ファミリーなし)			
JP	2006-519293	A	24.08.2006	US	2004/0213941	A1	
				claim 1, [0043]			
				WO	2004/076582	A1	
JP	2006-518799	A	17.08.2006	US	2004/0213941	A1	
				[0043]			
				WO	2004/076582	A1	
JP	2004-512419	A	22.04.2004	US	2002/0068810	A1	
				claim 31			
				WO	2002/34857	A2	
WO	2021/153250	A1	05.08.2021	(ファミリーなし)			