(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
2020年3月26日(26.03.2020)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2020/059864 A1

(51) 国際特許分類:
A01N 61/00 (2006.01) *A01N 65/44* (2009.01)
A01N 25/30 (2006.01) *A01P 3/00* (2006.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2019/037052

(22) 国際出願日： 2019年9月20日(20.09.2019)

(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 2018-177729 2018年9月21日(21.09.2018) JP

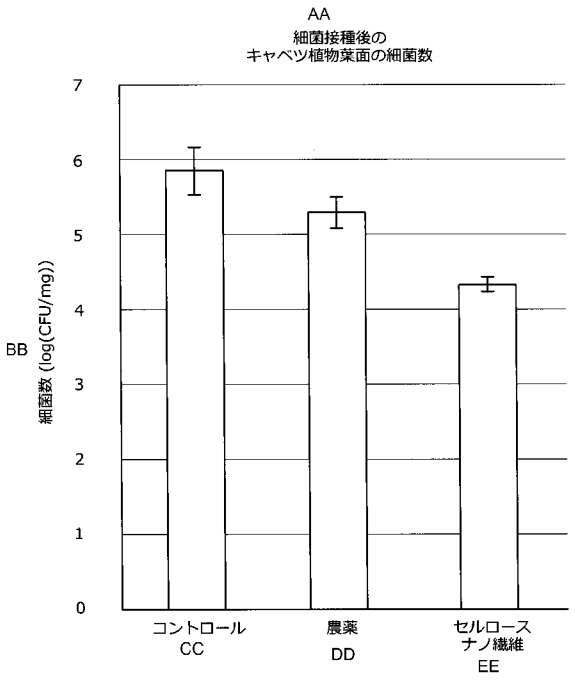
(71) 出願人: 丸 紅 株 式 会 社 (**MARUBENI CORPORATION**) [JP/JP]; 〒1036060 東京都中央区日本橋二丁目７番１号 Tokyo (JP). 国立大学法人 筑波大学(**UNIVERSITY OF TSUKUBA**) [JP/JP]; 〒3058577 茨城県つくば市天王台一丁目１番１ Ibaraki (JP). 中越パルプ工業株式会社 (**CHUETSU PULP AND PAPER CO., LTD.**) [JP/JP]; 〒1048124 東京都中央区銀座２丁目１０番６号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 石 賀 康 博 (**ISHIGA, Yasuhiro**); 〒3058577 茨城県つくば市天王台一丁目１番１ 国立大学法人筑波大学内 Ibaraki (JP). 田中 裕之 (**TANAKA, Hiroyuki**); 〒9338533 富山県高岡市米島２８２ 中越パルプ工業株式会社高岡本社内 Toyama (JP).

(74) 代理人: 秋山 敦, 外(**AKIYAMA, Atsushi** et al.); 〒1076033 東京都港区赤坂１丁目１２番３２号 アーク森ビル３３階 Tokyo (JP).

(54) **Title:** PLANT PATHOGEN CONTROL AGENT

(54) 発明の名称： 植物病原菌防除剤



AA Number of bacteria on leaf of cabbage plant after bacterial inoculation
BB Number of bacteria
CC Control
DD Pesticide
EE Cellulose nanofibers

(57) **Abstract:** Provided is a plant pathogen control agent used to control plant pathogens on plants by a novel method of using cellulose nanofibers. The plant pathogen control agent contains plant-derived cellulose nanofibers as an active ingredient, is sparged or sprayed on the foliage or stem of plants, and forms a hydrophilic nanofiber coating surface after drying. The cellulose nanofibers include plant-derived nanofiber materials selected from the group consisting of gramineous plants, broadleaf trees, and needleleaf trees. Examples of plants that may be applied with the control agent

WO 2020/059864 A1

[続葉有]

(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, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, 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, SM, ST, SV, SY, TH, 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, 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:

— 国際調査報告 (条約第21条(3))

include cabbage plants, soybean plants, tomato plants, tobacco plants, and coffee tree seedlings. Plant pathogens that can be controlled by the control agent include pathogenic bacteria, rust fungi, and pathogenic fungi.

(57) 要約: 植物に対し植物病原菌を防除するために用いられ、セルロースナノ繊維の新規な利用方法となる植物病原菌防除剤を提供する。 植物由来のセルロースナノ繊維を有効成分として含有し、植物の葉面や茎面に対して散布又は噴霧され、乾燥後に形成されるナノ繊維被膜の表面が親水性を示す植物病原菌防除剤である。セルロースナノ繊維としては、イネ科植物、広葉樹、及び針葉樹からなる群から選択される植物由来のナノ繊維材料が挙げられる。施与対象となる植物としては、キャベツ植物、ダイズ植物、トマト植物、タバコ植物またはコーヒーの木幼苗が挙げられる。また、防除対象となる植物病原菌としては、病原細菌、さび病菌、または病原糸状菌が挙げられる。

明　細　書

発明の名称 ： 植物病原菌防除剤

技術分野

[0001] 本発明は、新規な植物病原菌防除剤に係り、特に、植物の葉面や茎面に対して散布又は噴霧され、植物病原菌を防除するための植物病原菌防除剤に関する。

背景技術

[0002] 世界の食糧事情として世界人口が将来１００億人に迫ると予想されるなか、全てのヒトの食糧を賄うべく、食料生産を飛躍的に向上させることが課題とされている。食糧生産の向上にあたっては、病害による食料資源の損失が年間約１５％を占め、約８億人分に相当する食糧が損失していることから、病害による食糧損失を抑制することが重要である。

上記病害に対する対策としては、１）抵抗性作物の栽培による耕種的防除、２）殺菌剤などの農薬による化学的防除、３）天敵を用いる生物的防除、４）粘着板やネットなどの物理的防除を組み合わせて、環境への負荷を軽減しながら病害発生を抑制する総合的な病害虫管理が推奨されている。しかしながら、実際の農業現場では、２）農薬による化学的防除を柱とした防除によって作物生産の損失を最小限にとどめているのが現状である。

このような状況下で、農薬に対する耐性病原菌の出現が報告されており、農業現場では無視できない問題となっている。また、現在使用されている農薬の多くは、病原菌の代謝経路を特異的に阻害する作用を有する一方で、副作用として植物の生育を著しく抑制してしまい、農薬の大量使用によって環境汚染を引き起こすことも問題となっている。

したがって、農薬による化学的防除によらない天然素材を利用した植物病害防除剤の開発が農業上の課題として求められている。

[0003] 一方、植物病害防除剤とは全く異なる技術分野で、木、草、花などを構成する主要素で植物が作り出した天然素材であるセルロースナノ繊維が注目さ

れている。

セルロースナノ繊維は、木材などから得られる植物繊維をナノオーダーまで高度に微細化した世界最先端のバイオマス素材である。

セルロースナノ繊維は、植物繊維由来であって生産や廃棄における環境負荷が小さいこと、軽量でありながら多層カーボンナノチューブやアラミド繊維等の超高強度繊維と同程度の引張破断強度を有すること、温度変化に伴う伸縮度合いはガラスと同程度に良好であること等、優れた特性を有している。また、炭素繊維等と比較して低価格で供給することができ、実用化し易い繊維材料とも言われている。

[0004] セルロースナノ繊維を用いた技術開発としては、例えば、自動車分野における車体材料、家電分野における筐体材料、建材分野における建築材料、情報技術分野における電子部品、包装・容器分野における容器材料等が主に挙げられる。

また、特許文献１や特許文献２には、セルロースナノ繊維を主成分とする乳化剤や腐敗防止剤として、医薬品や食品、化粧品に適用可能であることが開示されている。

特許文献３には、セルロースナノ繊維の両親媒特性を利用して、食品保存用の紙製成型物の表面保護シートとして用いることが開示されている。

しかしながら、上記のようなセルロースナノ繊維を植物病原菌防除剤に適用させるという発想はなく、また植物病原菌防除剤ならではの機能性、操作性に特化した配合や添加剤について検討しているものはなく、あるいは対象となる植物や植物病原菌の特定について検討しているものも知られていなかった。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特開２０１５－１５７７９６号公報

特許文献2：特開２０１６－６５１１６号公報

特許文献3：特開２０１４－５０８３５号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] 本発明は、上記の課題に鑑みてなされたものであり、本発明の目的は、新規な植物病原菌防除剤を提供することにある。

本発明の他の目的は、植物の葉面や茎面に対し植物病原菌を防除するために用いられ、セルロースナノ繊維の新規な利用方法となる植物病原菌防除剤を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0007] 本発明者らは、鋭意研究した結果、セルロースナノ繊維、特に植物由来のセルロースナノ繊維を有効成分とする植物病原菌防除剤が、植物に散布又は噴霧されることで、植物病原菌のうち、特に病原細菌、さび病菌、病原糸状菌を防除する作用を有することを見出して、本発明をするに至った。

また、本発明者らは、当該植物病原菌防除剤が植物の葉面や茎面に対し散布又は噴霧されると、当該葉面や茎面上に形成されるナノ繊維被膜の表面が親水性を示し、その結果、植物表面の構造や疎水性を認識することで植物表面に付着し、葉面から植物内に侵入する植物病原菌を抑制できることを見出した。また、葉面の自然開口部から植物に侵入する植物病原菌について、自然開口部をナノ繊維被膜が物理的に覆うことで侵入することを抑制できることを見出して、本発明をするに至った。

[0008] 従って、前記課題は、本発明によれば、植物に対して植物病原菌を防除するために用いられ、セルロースナノ繊維を有効成分として含有することを特徴とする植物病原菌防除剤によって解決される。

このとき、対象となる前記植物病原菌が、シュードモナス（Pseudomonas）属細菌、キサントモナス（Xanthomonas）属細菌、ペクトバクテリウム（Pectobacterium）属細菌、アグロバクテリウム（Agrobacterium）属細菌、及びクラビバクター（Clavibacter）属細菌からなる群から選択される病原細菌であると良い。

また、対象となる前記植物病原菌が、ファコスポラ（Phakopsora）属さび

病菌、ヘミレイア（Hemileia）属さび病菌、及びパクシニア（Puccinia）属さび病菌からなる群から選択されるさび病菌、または病原糸状菌であると良い。

また、対象となる前記植物が、アブラナ科植物、マメ科植物、ナス科植物、及びアカネ科植物からなる群から選択される植物であると良い。

上記のように、対象となる植物病原菌や植物を特定することによって、植物に対する植物病害の防除効果を有効に発揮することができる。

[0009] このとき、前記植物の葉面又は茎面に与えられ、乾燥後に形成されるナノ繊維被膜の表面が親水性を示すと良い。

また、前記植物の葉面又は茎面に与えられ、乾燥後に形成されるナノ繊維被膜が略網目状となっていると良い。

また、前記セルロースナノ繊維は、イネ科植物、広葉樹、及び針葉樹からなる群から選択される植物由来のナノ繊維材料であると良い。

上記構成により、植物の葉面又は茎面の表面ワックスが通常は疎水性を示すところ、セルロースナノ繊維の両親媒特性を応用して植物の表面上に親水性のナノ繊維被膜を形成することによって、植物病原菌が植物表面の構造や疎水性を認識することができず、植物表面から侵入することを抑制することができる。

また上記構成により、植物の気孔開口部を完全に覆うものではなく、網目状（枝分かれ状）となって覆うため、細菌の侵入経路となる気孔開口部の空隙の大きさを網目状に小さくすることができる。また、植物生育に必要な植物の気孔の機能である酸素や二酸化炭素、水蒸気などの気体の通過を維持しながらも、細菌の侵入を防ぐことができる。

また上記構成により、セルロースナノ繊維が植物由来のナノ繊維材料であるため、植物の表面に対する親和性が高くなり、植物病原菌が植物表面の構造や疎水性を一層認識することができず、植物表面からの侵入を一層抑制することができる。

[0010] このとき、前記セルロースナノ繊維は、太さが３～２００ｎｍであって、

結晶化度が５０以上であって、原料のα－セルロース含有率が６０～９９質量％であると良く、平均重合度が５００～９００であって、平均分子量が９００００～１４００００であると良い（平均重合度及び平均分子量は、後述の測定方法Ｂによって測定された数値である）。

また、前記植物病原菌防除剤の総質量に対して前記セルロースナノ繊維の含有量が０．０１～２．０質量％であると良い。

また、水性溶媒と、該水性溶媒中に溶解される界面活性剤と、を含有し、該界面活性剤が非イオン界面活性剤であると良い。

上記構成により、植物病原菌防除剤ならではの操作性や、機能性を特化させるべく、セルロースナノ繊維の太さや結晶化度、原料のα－セルロースの含有率、平均重合度、平均分子量等を定めるほか、セルロースナノ繊維の配合成分や界面活性剤の材料等を定めることで、理想的な植物病原菌防除剤を実現することができる。

発明の効果

[0011] 本発明によれば、新規な植物病原菌防除剤を提供することができる。

また、植物の葉面や茎面に対し植物病原菌を防除するために用いられる、セルロースナノ繊維の新規な利用方法となる植物病原菌防除剤を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0012] [図1]本実施例の植物病原菌防除剤を噴霧した後の、細菌接種後のキャベツ植物の葉面を比較した写真である。

[図2]細菌接種後のキャベツ植物葉面の細菌数を比較したグラフである。

[図3]細菌接種後のキャベツ植物葉面の病害防除率を比較したグラフである（その１）。

[図4]細菌接種後のキャベツ植物葉面の病害防除率を比較したグラフである（その２）。

[図5]細菌接種後のダイズ植物の葉面を比較した写真である。

[図6]さび病菌接種後のダイズ植物の葉面を比較した写真である。

[図7]細菌接種後のトマト植物の葉面を比較した写真である。

[図8]細菌接種後のタバコ植物の葉面を比較した写真である。

[図9]さび病菌接種後のコーヒーの木幼苗の葉面を比較した写真である。

[図10]さび病菌接種後のダイズ植物葉面の病斑数を比較したグラフである。

[図11]植物病原菌防除剤を噴霧した後のキャベツ植物の葉面を比較したＳＥＭ画像である。

[図12]細菌接種後のキャベツ植物の葉面を比較した共焦点レーザー顕微鏡画像である。

発明を実施するための形態

[0013] 以下、本発明の実施形態について、図１－図１２を参照しながら説明する。

本実施形態は、植物に対して植物病原菌を防除するために用いられ、植物由来のセルロースナノ繊維を有効成分として含有し、植物の葉面や茎面に対して散布又は噴霧され、乾燥後に形成されるナノ繊維被膜の表面が親水性を示すことを特徴とする植物病原菌防除剤の発明に関するものである。

[0014] ＜セルロースナノ繊維＞

「セルロースナノ繊維」とは、木材をはじめとする植物細胞壁の基本骨格となる天然素材であり、セルロース分子が繊維状に集合した構造を有し、繊維幅が２００ｎｍ以下でアスペクト比が１００以上となる微細繊維状物質である。

本実施形態のセルロースナノ繊維は、竹や葦を含むイネ科植物、広葉樹や針葉樹を含む木本植物等から産生される「植物由来のナノ繊維材料」、ホヤを代表とする海産動物等から産生される「動物由来のナノ繊維材料」、または酢酸菌を代表とする好気性菌類や微細藻類等から産生される「微生物由来のナノ繊維材料」である。これら複数種類を混合させたナノ繊維材料であっても良い。

植物由来のナノ繊維材料としては、竹や葦を含むイネ科植物、広葉樹や針葉樹を含む木本植物等の他、サトウキビ繊維、種子毛繊維、葉繊維、海藻類

等から産出されるものや、バガス、稲わら、茶殻、果汁の搾り粕等の植物の葉、花、茎、根、外皮等に由来する作物残渣から産出されるものであっても良い。

好ましくは、イネ科植物、広葉樹または針葉樹から産生される植物由来のナノ繊維材料であることが良く、より好ましくは、竹または針葉樹から産生される植物由来のナノ繊維材料であると良い。

[0015] 本実施形態のセルロースナノ繊維は、「α－セルロース含有率」が６０～９９質量％のパルプを原料とすることができる。「α－セルロース含有率」について、公知な成分分析法によって測定することができ、上記６０質量％以上の純度であれば、腐敗して植物生長を阻害することなく生育環境を維持することができる。一方で、６０質量％未満のものを用いた場合には、セルロースの天然結晶が有する特性を十分に引き出せなくなるほか、腐敗等による保管時の経時劣化を引き起こす虞があり、９９質量％以上のものを用いた場合には、繊維をナノレベルまで解繊することが困難となる。

従って、好ましくは、「α－セルロース含有率」が７０～９０質量％であると一層効率よく解繊を進めることができ、植物への散布に適した素材ができる。

[0016] パルプとしては、入手しやすく安価である点から製紙用パルプを用いることができ、製造方法は特に限定されないが、例えば漂白クラフトパルプ、未晒クラフトパルプ、サルファイトパルプ、ソーダパルプ、サーモメカニカルパルプ、脱墨パルプ、古紙パルプ、溶解パルプ等のパルプが挙げられる。これらの中でも、より入手しやすいことから、漂白クラフトパルプ、未晒クラフトパルプが好ましい。

[0017] 本実施形態のセルロースナノ繊維は、「平均太さ」が３～２００ｎｍ「平均長さ」が０．１μｍ以上、「結晶化度」が５０以上であって、例えばセルロースを高圧水流によって解繊することで形成される。

「平均太さ」、「平均長さ」について、電子顕微鏡等を用いて測定することができ、上記平均太さまで解繊処理することで、流動性があって噴霧性に

優れた植物病原菌防除剤を実現することができる。一方で、平均太さ３ｎｍ未満の場合には、脱水性に乏しく固形分濃度を高めることが難しくなる虞があり、平均太さ２００ｎｍ超えの場合には、流動性が低下し、噴霧性が良好でなくなる虞がある。

「結晶化度」について、Ｘ線回折法等によって測定することができ、結晶化度５０以上であれば、植物の葉面に噴霧したときに形成されるナノ繊維被膜がより緻密化するため、植物病原菌が葉面から侵入することを一層抑制することができる。好ましくは、「結晶化度」が６０以上であると植物防除効果を一層高めることができる。

[0018] 本実施形態のセルロースナノ繊維は、「平均重合度」が３００～７００、「平均分子量」が６００００～１１００００である。

「平均重合度」及び「平均分子量」について、銅エチレンジアミン溶液を用いた測定法等によって測定することができ、セルロースナノ繊維の物性として解繊処理を進めることで重合度及び分子量が低下することが確認されている。

「平均重合度」の測定方法（以下、測定方法Ａ）について詳しく述べると、以下の通りである。

測定方法Ａでは、セルロースナノ繊維０．１５ｇを３０ｍＬの０．５Ｍ銅エチレンジアミン溶液に溶解させ、キャノン・フェンスケ動粘度管を用いて、セルロースナノ繊維・銅エチレンジアミン溶液の粘度ηを測定し、ＪＩＳ規格（ＪＩＳ　Ｐ８２１５：１９９８）に基づいて極限粘度［η］を求めて、下記のＭａｒｋ－Ｈｏｕｗｉｎｋ－Ｓａｋｕｒａｄａ式から重合度ＤＰを算出した。

重合度ＤＰ＝［η］／Ｋａ

Ｋとａは高分子と溶媒の種類によって決まる固有値であって、銅エチレンジアミン溶液に溶解したセルロースの場合としてＫ＝０．９５２、ａ＝１とした。

[0019] なお、「平均重合度」を以下の測定方法Ｂによって測定した場合には、本

実施形態のセルロースナノ繊維は、「平均重合度」が５００～９００、「平均分子量」が９００００～１４００００となる。

測定方法Ｂでは、セルロースナノ繊維０．１５ｇを３０ｍＬの０．５M銅エチレンジアミン溶液に溶解させ、キャノン・フェンスケ動粘度管を用いて、セルロースナノ繊維・銅エチレンジアミン溶液の粘度ηを測定し、０．５M銅エチレンジアミン溶液の粘度をη０として、下記のＳｃｈｕｌｚ－ＢｌａｓｃｈｋｅＩ式から極限粘度［η］を求めて、下記のＭａｒｋ－Ｈｏｕｗｉｎｋ－Ｓａｋｕｒａｄａ式から重合度ＤＰを算出した。

比粘度　ηsp＝η／η０－１

極限粘度［η］＝ηsp／｛ｃ（１＋Ａ×ηsp）｝

η０は０．５M銅エチレンジアミン溶液の粘度であり、ｃはセルロースナノ繊維濃度（ｇ／ｍＬ）であり、Ａは溶液の種類によって決まる固有値であって０．５M銅エチレンジアミン溶液の場合にはＡ＝０．２８である。

重合度ＤＰ＝［η］／Ｋａ

Ｋとａは高分子と溶媒の種類によって決まる固有値であって、銅エチレンジアミン溶液に溶解したセルロースの場合としてＫ＝０．５７、ａ＝１とした。

[0020] 本実施形態のセルロースナノ繊維は、セルロースナノ繊維を０．１質量％で含有する分散液において「波長４００ｎｍにおける平均透過率」が３０％以上であり、かつ、「波長６００ｎｍにおける平均透過率」が７０％以上である。

なお、本セルロースナノ繊維は、天然素材由来であって個体差が比較的大きいため、平均透過率の設定にあたっては所定の幅（例えば±１０％）を持たせている。

「平均透過率」について、セルロースナノ繊維を水に均一に分散させた分散液において分光光度計を用いることで測定することができる。セルロースナノ繊維分散液は、肉眼で観察した場合には透明な液である。セルロースナノ繊維の物性として解繊処理を進めることで透過率が上昇し、透明性が向上

することが確認されている。

[0021] 上記において解繊度合いが高いほどコストを要するものの、繊維太さの分布が狭くなり、より均一な製品となる。すなわち、水性溶媒に対してより均一に分散したセルロースナノ繊維分散液となって、安定した物性が得られる。また、噴霧時においても、より均一に噴霧することができるため被膜ムラが低減できる。

従って、測定方法Ａで測定した場合には、好ましくは、「平均重合度」が４００～６０４、「平均分子量」が６５０００～９８０００であって、「波長４００ｎｍにおける平均透過率」が３４～７１％であり、かつ、「波長６００ｎｍにおける平均透過率」が５３～９０％であると良く、コストを考慮しながらも良好な噴霧性を持ち、均質に被膜を形成できるため物性が安定した植物病原菌防除剤を実現することができる。

なお、測定方法Ｂで測定した場合には、好ましくは、「平均重合度」が６０７～８２０、「平均分子量」が９８０００～１３３０００であると良いことになる。

[0022] ＜セルロースナノ繊維の製造方法＞

セルロースナノ繊維の製造方法としては、主に高圧ホモジナイザー法やグラインダー法、水中対向衝突法等を利用した「物理的に解繊する方法」と、有機化合物ＴＥＭＰＯを用いた触媒酸化法や酸加水分解法、リン酸エステル化法、酵素処理法等を利用した「化学的処理方法」と、の２種類に分けられる。いずれ一方の方法を用いることもできる他、化学処理方法後に物理的に解繊する等の双方を併用することもできる。

本実施例のセルロースナノ繊維は、物理的に解繊する方法によって製造される。

具体的には、水混合液にした多糖に対し、高圧水を衝突させて解繊処理する「解繊処理工程」を行う製造方法によって製造される。

[0023] 「解繊処理工程」では、例えば、ホモジナイザーで多糖を溶媒に分散させた分散液を処理するホモジナイズ処理法と、水中対向衝突法とが挙げられる

。

ホモジナイズ処理法では、高圧でホモジナイザー内を圧送される多糖が、オリフィス板の狭い間隙内を通過する際に壁面と衝突することで分割され、均一な繊維径を有するミクロフィブリル化が行われる。

また、水中対向衝突法では、水に懸濁させた多糖（天然セルロース繊維）をチャンバー内で相対する二つのノズルに導入し、高圧下でこれらノズルから噴射して、対向衝突させることで、多糖の表面をナノフィブリル化させて引き剥がし、キャリアーである水に対し最終的には溶解に近い状態に至らせることができる。この手法では、繊維間の相互作用のみを解裂させることにより微細化を行うためセルロース分子の構造変化がなく、解裂に伴う重合度の低下を最小限にした状態でセルロースナノ繊維を得ることができる。

[0024] 得られたセルロースナノ繊維は、平均太さ３～２００ｎｍ、平均長さ０．１μｍ以上であって、セロビオースユニット内に水酸基を６個有するものとなっている。

なお、セルロースナノ繊維を製造する方法については、例えば、特開２００５－２７０８９１号公報に記載の多糖類の湿式粉砕化法や、特開２０１７－２０５６８３号公報に記載の対向衝突処理法、特開２０１５－１４２９００公報に示すナノ微細化品製造方法等によって、０．５～１０質量％の水に懸濁させた多糖（セルロース繊維）に対し５０～４００ＭＰａ程度の高圧水を衝突させる方法が利用可能である。また、物理的、化学的、酵素法等の製造法でも得ることができるほか、ナタデココもセルロースナノファイバーであって利用することができる。

[0025] ＜植物病原菌防除剤＞

植物病原菌防除剤は、植物の葉面又は茎面に噴霧されることで、葉面又は茎面上にナノ繊維被膜（保護膜）を形成する液状タイプの病原菌防除剤であって、有効成分となる「セルロースナノ繊維」と、セルロースナノ繊維を分散させるための「水性溶媒」と、セルロースナノ繊維を水性溶媒に均一に分散させるための「界面活性剤」と、から主に構成されている。

植物病原菌防除剤は、液状タイプであることが望ましいが、特に限定されることなく、ペースト状、スラリー状、ゲル状等種々のタイプに変更しても良い。

[0026] 「水性溶媒」は、水であることが好ましいが、水性溶媒であれば特に限定されるものではない。例えば、アルコール類、エーテル類、ケトン類、Ｎ，Ｎ-ジメチルホルムアミド、Ｎ，Ｎ-ジメチルアセトアミド、ジメチルスルホキサイド等が挙げられる。これらは、単独で用いられても良いし、２種以上を併用して用いられても良い。

「界面活性剤」は、親水性と疎水性のバランスを調整し易くするため、非イオン界面活性剤であることが好ましいが、特に限定されることなく、アニオン界面活性剤やカチオン界面活性剤、両性界面活性剤等であっても良い。

[0027] 本実施形態の植物病原菌防除剤は、その総質量に対して「セルロースナノ繊維」が０．０１～２．０質量％、「界面活性剤」が０．０１～０．５質量％の含有量となるように調製されている。

好ましくは、植物病原菌防除剤の総質量に対して「セルロースナノ繊維」が０．０１～０．１質量％に調製されていると良い。

上記構成であれば、植物病原菌防除剤ならではの機能性を特化させることができる。

具体的に述べると、本実施形態の植物病原菌防除剤は、植物病原菌を殺すことを目的とするものではなく、植物表面を植物病原菌が認識できないように変化させ、植物病原菌から植物内に侵入する能力を奪うことを目的としているため、植物の葉面又は茎面にナノ繊維被膜（親水性を示す被膜）を形成できれば良く、比較的低濃度であっても防除効果を発揮することができる。そのため、コストも抑えられる。

また、好ましくは、「界面活性剤」が０．０１～０．１質量％の含有量に調製されていると良い。

上記構成であれば、セルロースナノ繊維を水性溶媒に均一に分散させることができ、セルロースナノ繊維の両親媒特性を有効に発揮させ、植物病原菌

が植物表面から侵入することを一層抑制できる。

[0028] 本実施形態の植物病原菌防除剤は、植物の葉面又は茎面に噴霧された後、乾燥後に形成されるナノ繊維被膜の表面が親水性を示すことを特徴としている。

すなわち、植物の葉面又は茎面の表面ワックスは疎水性を示すところ、植物由来のセルロースナノ繊維ならではの微細繊維構造及び両親媒特性を応用して、植物の表面上に親水性のナノ繊維被膜を形成することによって、植物病原菌が植物内に侵入することを物理的に抑制するだけではなく、植物病原菌に対し植物表面の構造や疎水性を認識させないように働きかけ、植物内に侵入することを意識的に断念させるものである。

ここで「ナノ繊維被膜の表面が親水性を示す」とは、ナノ繊維被膜が植物の葉面（茎面）よりも濡れ性が高く、水になじみ易い性質を有することを意味している。

すなわち、植物の葉面に形成されるナノ繊維被膜に水を滴下した場合の接触角が、植物の葉面に直接水を滴下した場合の接触角よりも小さくなっていると良い。

そのようにすれば、植物病原菌防除剤による植物病害防除効果を発揮することができる。

なお、植物病原菌防除剤による防除効果について上記メカニズムに特に限定されるものではない。

[0029] 本実施形態の植物病原菌防除剤は、植物全般に対して植物病原菌を防除するために用いられるところ、特に植物病害防除効果を有効に発揮することが可能な、施与対象となる「植物」、防除対象となる「植物病原菌」は、それぞれ以下の通りである。

施与対象となる「植物」としては、食用作物、飼料作物、緑肥作物、園芸作物及び工芸作物を含む農作物全般が挙げられる。そのため、世界の食糧損失の抑制に大きく貢献することができる。

好ましくは、キャベツ植物等を含むアブラナ科植物、ダイズ植物を含むマ

メ科植物、トマト植物やタバコ植物を含むナス科植物、またはコーヒーの木幼苗を含むアカネ科植物が挙げられ、高い防除効果を示すことが確認されている。

より好ましくは、キャベツ植物、ダイズ植物、トマト植物、タバコ植物またはコーヒーの木幼苗が挙げられる。

[0030] 防除対象となる「植物病原菌」としては、病原細菌、さび病菌、または病原糸状菌が挙げられる。なお、植物病原菌の中には、植物表面の構造や疎水性を認識して、植物の葉面にある気孔等の自然開口部を認識して、そこから侵入する病原細菌、さび病菌、病原糸状菌が存在する一方で、植物表面のクチクラ層から直接侵入する糸状菌も存在する。

「病原細菌」として好ましくは、トマト斑葉細菌病菌、キャベツ黒斑細菌病菌、タバコ野火病菌、及びダイズ斑点細菌病菌を含むシュードモナス（Pseudomonas）属細菌、ダイズ黒斑細菌病菌を含むキサントモナス（Xanthomonas）属細菌、ペクトバクテリウム（Pectobacterium）属細菌、アグロバクテリウム（Agrobacterium）属細菌、またはクラビバクター（Clavibacter）属細菌が挙げられる。

より好ましくは、農業上重要な病原細菌として、キャベツ黒斑細菌病菌、タバコ野火病菌、ダイズ斑点細菌病菌、またはトマト斑葉細菌病菌が挙げられ、高い防除効果を示すことが確認されている。

「さび病菌」として好ましくは、ダイズさび病菌（Phakopsora pachyrhizi）を含むファコスポラ（Phakopsora）属さび病菌、コーヒーさび病菌（Hemileia vastatrix）を含むヘミレイア（Hemileia）属さび病菌、コムギ黒さび病菌（Puccinia graminis）及びコムギ赤さび病菌（Puccinia recondita）を含むパクシニア（Puccinia）属さび病菌が挙げられる。

より好ましくは、農業上重要な病原細菌として、ダイズさび病菌、コーヒーさび病菌、コムギ黒さび病菌、またはコムギ赤さび病菌が挙げられ、高い防除効果を示すことが確認されている。

[0031] 「病原糸状菌」として好ましくは、卵菌類を含むAphanomyces属、疫病菌を

含むPhytophthora属、Pythium属、白さび病菌を含むAlbugo属、べと病菌を含むPernospora属、Pseudopernospora属、Plasmopara属、接合菌類を含むRhizopus属、Choanephora属、子嚢菌類を含むTaphrina属、うどんこ病菌を含むBlumeria属、Cystotheca属、Erysiphe属、Golovinomyces属、Phyllactinia属、Podosphaera属、Sawadaea属、Oidiopsis属、Ceratocystis属、Bionectria属、Calonectria属、Claviceps属、Gibberella属、Haematonectria属、Heteroepichloë属、Nectria属、Neonectria属、Pleonectria属、Pseudonectria属、Rugonectria属、炭疽病菌を含むGlomerella属、Cryphonectria属、Diaporthe属、Gnomonia属、Leucostoma属、Melamconis属、Pseudovalsa属、Valsa属、キンカクキン類を含むBotryotinia属、Ciborina属、Grovesinia属、Monilinia属、Ovulinia属、Sclerotinia属、白紋羽病菌を含むRosellinia属、黒紋病菌を含むRhytisma属、その他の子嚢菌類を含むBotryosphaeria属、Cochliobolus属、Didymella属、Diplocarpon属、Elsinoë属、Guignardia属、Monosporascus属、Mycosphaerella属、Pestalosphaeria属、Phomatospora属、Venturia属。担子菌類、紫紋羽病菌を含むHelicobasidium属、黒穂病菌を含むGraphiola属、Tilletia属、Urocystis属、Ustilago属、もち病菌を含むExobasidium属、さび病菌を含むAecidium属、Blastospora属、Coleosporium属、Cronartium属、Gymnosporangium属、Melampsora属、Nyssopsora属、Phakospora属、Phragmidium属、Pileolaria属、Puccinia属、Stereostratum属、Uromyces属、不完全菌類の分生子殻菌類を含むApiocarpella属、Ascochyta属、Lasiodiplodia属、Macrophomina属、Phoma属、Phomopsis属、Phyllostica属、Pyrenochaeta属、Septoria属、Sphaeropsis属、Stagonospora属、Tubakia属、分生子層菌類を含むAsteroconium属、Colletotrichum属、Cylindrosporium属、Entomosporium属、Marssonina属、Pestalotiopsis属、Seiridium属、Sphaceloma属、糸状不完全菌類を含むAlternaria属、Aspergillus属、Botrytis属、Corynespora属、Curvularia属、Cylindrocarpon属、Fusarium属、Gonatobotryum属、Haradamyces属、Penicillium属、Plectosporium属、Pyricularia属、Stemphylium属、Verticillium属、Zygophiala属、Cercospora属、Cladosporium属、Co

rynespora属、Passalora属、Pseudocercospora属、Pseudocercospolla属、無胞子菌類を含むRhizoctonia属、またはSclerotium属、これら属の病原糸状菌が挙げられる。

植物病害の約７０～８０％は、病原糸状菌が原因であると言われており、本発明に係る植物病原菌防除剤の防除効果を期待することができる。

[0032] 本実施形態の植物病原菌防除剤は、セルロースナノ繊維を有効成分とするため、植物に対する植物病害の防除効果に加えて植物成長促進効果を発揮することもできる。

例えば、植物に噴霧することで植物の表面に付着した植物病原菌防除剤が雨などで土壌中に染みこみ、土壌中のセルラーゼ等の分解酵素によって糖や酢酸等に分解され、土壌の微生物分布を植物育成に望ましい環境に整える効果が認められる。

実施例

[0033] 以下、本発明における植物病原菌防除剤の実施例について詳しく説明する。なお、本発明は本実施例に限定されるものではない。

[0034] ＜実施例１＞

竹から精製されたセルロースナノ繊維（中越パルプ工業社製、ｎａｎｏｆｏｒｅｓｔ－Ｓ（竹漂白パルプ）、平均重合度５３０、平均分子量８６００、波長４００ｎｍ／６００ｎｍでの平均透過率５１％／６７％）を用いた。

当該セルロースナノ繊維を水で所定の濃度となるように希釈し、非イオン界面活性剤（ＩＣＩ社　Ｔｗｅｅｎ２０相当品、和光純薬工業社製）を添加してセルロースナノ繊維分散液を調製した。当該分散液を植物病原菌防除剤として用いた。

なお、上記の平均重合度及び平均分子量は、測定方法Ａによって測定されているところ、測定方法Ｂで測定した場合には、平均重合度７５１、平均分子量１２２０００である。

[0035] ＜実施例２＞

竹から精製されたセルロースナノ繊維（中越パルプ工業社製、ｎａｎｏｆｏｒｅｓｔ－Ｓ（竹漂白パルプ）、結晶化度５６、平均重合度４３０、平均分子量７００００、波長４００ｎｍ／６００ｎｍでの平均透過率６１％／８０％）を用いた。

当該セルロースナノ繊維を、実施例１と同様に調製してセルロースナノ繊維分散液を得た。当該分散液を植物病原菌防除剤として用いた。

なお、実施例１と比較して高解繊処理で得られ、繊維太さがより均一な分散液である。

なお、上記の平均重合度及び平均分子量は、測定方法Ａによって測定されているところ、測定方法Ｂで測定した場合には、平均重合度６４４、平均分子量１０４０００である。

[0036] ＜実施例３＞

針葉樹から精製されたセルロースナノ繊維（中越パルプ工業社製、ｎａｎｏｆｏｒｅｓｔ－Ｓ（針葉樹漂白パルプ）、平均重合度５４５、平均分子量８８０００、波長４００ｎｍ／６００ｎｍでの平均透過率４４％／６３％）を用いた。

当該セルロースナノ繊維を、実施例１と同様に調製してセルロースナノ繊維分散液を得た。当該分散液を植物病原菌防除剤として用いた。

なお、上記の平均重合度及び平均分子量は、測定方法Ａによって測定されているところ、測定方法Ｂで測定した場合には、平均重合度７６６、平均分子量１２４０００である。

[0037] ＜実施例４＞

針葉樹から精製されたセルロースナノ繊維（中越パルプ工業社製、ｎａｎｏｆｏｒｅｓｔ－Ｓ（針葉樹漂白パルプ）、結晶化度６４、平均重合度４００、平均分子量６５０００、波長４００ｎｍ／６００ｎｍでの平均透過率５３％／７５％）を用いた。

当該セルロースナノ繊維を、実施例１と同様に調製してセルロースナノ繊維分散液を得た。当該分散液を植物病原菌防除剤として用いた。

なお、実施例３と比較して高解繊処理で得られ、繊維太さがより均一な分散液である。

なお、上記の平均重合度及び平均分子量は、測定方法Ａによって測定されているところ、測定方法Ｂで測定した場合には、平均重合度６０７、平均分子量９８０００である。

[0038] ＜実施例５＞

竹から精製されたセルロースナノ繊維（中越パルプ工業社製、ｎａｎｏｆｏｒｅｓｔ－Ｓ（竹漂白パルプ）、結晶化度６１、平均重合度６０４、平均分子９８０００、波長４００ｎｍ／６００ｎｍでの平均透過率５７％／７４％）を用いた。

当該セルロースナノ繊維を、実施例１と同様に調製してセルロースナノ繊維分散液を得た。当該分散液を植物病原菌防除剤として用いた。

なお、実施例１と比較して極低解繊処理で得られた分散液である。

なお、上記の平均重合度及び平均分子量は、測定方法Ａによって測定されているところ、測定方法Ｂで測定した場合には、平均重合度８２０、平均分子量１３３０００である。

[0039] ＜実施例６＞

針葉樹から精製されたセルロースナノ繊維（中越パルプ工業社製、ｎａｎｏｆｏｒｅｓｔ－Ｓ（針葉樹漂白パルプ）、結晶化度６３、平均重合度５１０、平均分子量８３０００、波長４００ｎｍ／６００ｎｍでの平均透過率４８％／６５％）を用いた。

当該セルロースナノ繊維を、実施例１と同様に調製してセルロースナノ繊維分散液を得た。当該分散液を植物病原菌防除剤として用いた。

なお、実施例３と比較して極低解繊処理で得られた分散液である。

なお、上記の平均重合度及び平均分子量は、測定方法Ａによって測定されているところ、測定方法Ｂで測定した場合には、平均重合度７３０、平均分子量１１８０００である。

[0040] ＜試験１：キャベツ植物に対する病原菌防除効果＞

実施例１～４の植物病原菌防除剤を用いて、キャベツ植物に対する病原菌防除効果を確認する試験を以下の手順で行った。

本試験では、「試験植物」として園芸用培土（片倉コープアグリ社製、げんきくんセル専用培土コープＮ－１５０）にて生育させたキャベツ植物（品種：金系２０１号）を用いた。また、「植物病原菌」としてキャベツ黒斑細菌病菌を用いた。

また、下記表１に示すように、セルロースナノ繊維が０．０１質量％、０．０３質量％、０．１質量％、界面活性剤が０．０１質量％の含有量となるように実施例１～４の植物病原菌防除剤を調製した。

[表1]

	由来物質	解繊処理
実施例１	竹	低解繊
実施例２		高解繊
実施例３	針葉樹	低解繊
実施例４		高解繊

[0041] ＜試験１－１：キャベツ植物の「葉面の様子」＞

播種後３～４週間栽培したキャベツ植物（第２本葉期）の葉面（表面と裏面の両方）に対して植物病原菌防除剤をハンドスプレーを用いて均一に噴霧した（「セルロースナノ繊維群」）。また、「コントロール群」として、植物病原菌防除剤の代わりに水を均一に噴霧したもの、「農薬群」として、プロベナゾール（商品名：オリゼメート（登録商標）、明治製菓社製）の１００倍希釈水を均一に噴霧したものも用意した。

葉面に噴霧して１時間後、キャベツ黒斑細菌病菌を10^8ｃｆｕ／ｍＬとなるように調製し、葉面に対しディップ接種を行った。

そして、キャベツ黒斑細菌病菌接種５日後のキャベツ植物の「葉面の様子」を、コントロール群、農薬群と比較した。

[0042] 本試験結果を図１に示す。なお、「セルロースナノ繊維群」の代表例として、実施例１の植物病原菌防除剤（セルロースナノ繊維０．１質量％）を示した。

図１の試験結果から、キャベツ黒斑細菌病菌接種５日後のキャベツ植物の葉において、水を噴霧した「コントロール群」では、壊死（ネクローシス）及び黄化（クロローシス）を伴う黒斑細菌病の感染が認められた。一方で、「農薬群」では、軽度の壊死及び黄化が認められたものの、黒斑細菌病の感染は認められなかった。また、実施例１～４の「セルロースナノ繊維群」では、軽度の黄化のみが認められ、黒斑細菌病の感染は認められなかった。

[0043] ＜試験１－２：キャベツ植物の「葉面の細菌数」＞

また、キャベツ黒斑細菌病菌接種５日後のキャベツ植物の「葉面の細菌数」を測定し、「病害防除率」を算出した。

具体的には、罹病葉の表面を５％過酸化水素水によって殺菌し、滅菌水で洗浄した後、摩砕した罹病葉サンプルを滅菌水によって段階希釈したものを細菌培養培地にて生育させて、細菌のコロニーを測定した。細菌数は、罹病葉の質量当たりのＣＦＵ（Ｃｏｌｏｎｙ　Ｆｏｒｍｉｎｇ　Ｕｎｉｔ）として測定した。また、農薬群、コントロール群と比較した。Ｎ＝３で実施した。

[0044] 本試験結果を図２に示す。なお、「セルロースナノ繊維群」の代表例として、実施例１の植物病原菌防除剤（セルロースナノ繊維０．１質量％）を示した。

図２の試験結果から、キャベツ植物内のキャベツ黒斑細菌病菌の細菌数において「セルロースナノ繊維群」の細菌数は、「コントロール群」の細菌数と比較して３０分の１程度まで減少したことが認められた。

＜試験１－３：キャベツ植物の「葉面の病害防除率」＞

また、キャベツ黒斑細菌病菌接種５日後のキャベツ植物の「葉面の病害指数」を算出し、病害指数から「葉面の病害防除率」をさらに算出した。

病害指数を「０：病斑なし」、「１：１０％以下の病斑あり」、「２：１０～５０％程度の病斑あり」、「３：５０％程度の黄化を伴う病斑あり」、「４：８０％程度の黄化を伴う病斑あり」、「５：全体が萎れている」とし、各群に対し４植物体の８葉（１植物体につき２葉）を病害指数算出の対象とした。「セルロースナノ繊維群」の病害指数／「コントロール群」の病害指数を算出し、さらに「病害防除率」を算出した。

上記表１に示す通り、「コントロール群」のほか、界面活性剤を添加していない「セルロースナノ繊維群」も比較対象とした。

[0045] 本試験結果を図３、図４に示す。

図３、図４の試験結果から、「コントロール群」と比較して、全ての「セルロースナノ繊維群」において約３０％以上の病害防除率を有することが確認された。

セルロースナノ繊維群の「濃度」に着目して比較すると、セルロースナノ繊維の含有量が高いものの方が高い病害防除率を示すことが分かった。

また、セルロースナノ繊維群の「解繊処理」に着目して比較すると、低解繊処理よりも高解繊処理のものの方が高い病害防除率を示すことが分かった。

また、セルロースナノ繊維群の「界面活性剤の有無」に着目して比較すると、界面活性剤を添加したものの方が高い病害防除率を示すことが分かった。

また、セルロースナノ繊維群の「由来物質」に着目して比較すると、針葉樹由来よりも竹由来のものの方が高い病害防除率を示すことが分かった。

[0046] ＜試験２：ダイズ植物に対する病原菌防除効果「葉面の様子」＞

実施例２の竹由来の植物病原菌防除剤を用いて、ダイズ植物に対する病原菌防除効果を確認する試験を行った。

本試験では、「試験植物」として試験１と同じ園芸用培土（片倉コープア

グリ社製、げんきくんセル専用培土コープＮ－１５０）にて生育させたダイズ植物（品種：エンレイ）、「植物病原菌」としてダイズ斑点細菌病菌及びダイズさび病菌の夏胞子をそれぞれ用いた。

また、セルロースナノ繊維が０．１質量％、界面活性剤が０．０１質量％の含有量となるように実施例２の竹由来の植物病原菌防除剤を調製した。

具体的には、播種後３～４週間栽培したダイズ植物（第２本葉期）の葉面（表面と裏面の両方）に対して植物病原菌防除剤をハンドスプレーを用いて均一に噴霧した（セルロースナノ繊維群）。また、コントロール群として、植物病原菌防除剤の代わりに水を均一に噴霧したものも用意した。

葉面に噴霧して１時間後、ダイズ斑点細菌病菌を10^8ｃｆｕ／ｍＬ、ダイズさび病菌の夏胞子を10^8個／ｍＬとなるように調製し、葉面に対しスプレー接種を行った。

そして、ダイズ斑点細菌病菌接種６日後、及びダイズさび病菌接種１０日後のそれぞれのダイズ植物の葉面の様子を、コントロール群と比較した。

[0047] 本試験結果を図５、図６に示す。

図５に示すように、ダイズ斑点細菌病菌接種６日後のダイズ植物の葉において、水を噴霧したコントロール群では、黄化（クロローシス）を伴う斑点細菌病の感染が認められた。一方で、セルロースナノ繊維群では、軽度の黄化のみが認められた。

また図６に示すように、ダイズさび病菌接種１０日後のダイズ植物の葉において、水を噴霧したコントロール群では、黄化（クロローシス）を伴うさび病の感染が認められた。一方で、セルロースナノ繊維群では、軽度の黄化のみが認められた。

[0048] ＜試験３：トマト植物に対する病原菌防除効果「葉面の様子」＞

実施例２の竹由来の植物病原菌防除剤を用いて、トマト植物に対する病原菌防除効果を確認する試験を行った。

本試験では、「試験植物」として試験１と同じ園芸用培土にて生育させたトマト植物（品種：Ｇｌａｍｏｕｒ）、「植物病原菌」としてトマト斑葉細

菌病菌を用いた。

また、セルロースナノ繊維が０．１質量％、界面活性剤が０．０１質量％の含有量となるように実施例２の植物病原菌防除剤を調製した。

具体的には、播種後４～５週間栽培したトマト植物の葉面（表面と裏面の両方）に対して植物病原菌防除剤をハンドスプレーを用いて均一に噴霧した（セルロースナノ繊維群）。また、コントロール群として、植物病原菌防除剤の代わりに水を均一に噴霧したものも用意した。

葉面に噴霧して１時間後、トマト斑葉細菌病菌を10^8ｃｆｕ／ｍＬとなるように調製し、葉面に対しスプレー接種を行った。

そして、トマト斑葉細菌病菌接種７日後のトマト植物の葉面の様子をコントロール群と比較した。

[0049] 本試験結果を図７に示す。

トマト斑葉細菌病菌接種７日後のトマト植物の葉において、水を噴霧したコントロール群では、壊死（ネクローシス）及び黄化（クロローシス）を伴う斑葉細菌病の感染が認められた。一方で、セルロースナノ繊維群では、軽度の黄化のみが認められた。

[0050] ＜試験４：タバコ植物に対する病原菌防除効果「葉面の様子」＞

実施例２の竹由来の植物病原菌防除剤を用いて、タバコ植物に対する病原菌防除効果を確認する試験を行った。

本試験では、「試験植物」として試験１と同じ園芸用培土にて生育させたタバコ植物（品種：Ｘａｎｔｈｉ）、「植物病原菌」としてタバコ野火病菌を用いた。

また、セルロースナノ繊維が０．１質量％、界面活性剤が０．０１質量％の含有量となるように実施例２の植物病原菌防除剤を調製した。

具体的には、播種後４～５週間栽培したタバコ植物の葉面（表面と裏面の両方）に対して植物病原菌防除剤をハンドスプレーを用いて均一に噴霧した（セルロースナノ繊維群）。また、コントロール群として、植物病原菌防除剤の代わりに水を均一に噴霧したものも用意した。

葉面に噴霧して１時間後、タバコ野火病菌を１０^{8}ｃｆｕ／ｍＬとなるように調製し、葉面に対しスプレー接種を行った。

そして、タバコ野火病菌接種７日後のタバコ植物の葉面の様子をコントロール群と比較した。

[0051] 本試験結果を図８に示す。

タバコ野火病菌接種７日後のタバコ植物の葉において、水を噴霧したコントロール群では、黄化（クロローシス）を伴う野火病の感染が認められた。一方で、セルロースナノ繊維群では、軽度の黄化のみが認められた。

[0052] ＜試験５：コーヒーの木幼苗に対する病原菌防除効果「葉面の様子」＞

実施例２、４の植物病原菌防除剤を用いて、コーヒーの木幼苗に対する病原菌防除効果を確認する試験を行った。なお、実施例２は竹由来、実施例４は針葉樹由来のものである。

本試験では、「試験植物」として温室にて播種後４～５ヶ月生育させたコーヒーノキ幼苗（品種：ロブスタ）、「植物病原菌」としてコーヒーさび病菌を用いた。

また、セルロースナノ繊維が０．１質量％、界面活性剤が０．０１質量％の含有量となるように実施例２、４の植物病原菌防除剤をそれぞれ調製した。

具体的には、播種後４～５週間栽培したコーヒーノキ幼苗の葉面（表面と裏面の両方）に対して植物病原菌防除剤をハンドスプレーを用いて均一に噴霧した（セルロースナノ繊維群）。また、コントロール群として、植物病原菌防除剤の代わりに水を均一に噴霧したものも用意した。

葉面に噴霧して３時間後、コーヒーさび病菌の夏胞子を１０^{6}個／ｍＬとなるように調製し、葉面に対しスプレー接種を行った。

そして、コーヒーさび病菌接種１０日後のコーヒーノキ幼苗の葉面の様子をコントロール群と比較した。

[0053] 本試験結果を図９に示す。なお、「セルロースナノ繊維群」の代表例として、実施例２の植物病原菌防除剤を示した。

コーヒーさび病菌接種１０日後のコーヒーノキ幼苗の葉において、水を噴霧したコントロール群では、さび病の感染が認められた。一方で、実施例２、実施例４両方のセルロースナノ繊維群では、さび病の感染は認められなかった。

[0054] ＜試験６：ダイズ植物に対する病原菌防除効果「葉面の病斑数」＞

実施例１～６の植物病原菌防除剤を用いたときの、ダイズ植物の葉面の病斑数の変化を確認する試験を行った。

本試験では、「試験植物」として試験１と同じ園芸用培土にて生育させたダイズ植物（品種：エンレイ）、「植物病原菌」としてダイズさび病菌の夏胞子をそれぞれ用いた。

また、下記表２に示すように、セルロースナノ繊維が０．１質量％、界面活性剤が０．０１質量％の含有量となるように実施例１～６の植物病原菌防除剤を調製した。

[表2]

	由来物質	解繊処理
実施例１	竹	低解繊
実施例２		高解繊
実施例３	針葉樹	低解繊
実施例４		高解繊
実施例５	竹	極低解繊
実施例６	針葉樹	

[0055] 第４葉まで展開したダイズ植物の葉面（表面）に対して植物病原菌防除剤をハンドスプレーを用いて均一に噴霧して乾燥させた（セルロースナノ繊維群）。また、コントロール群として、植物病原菌防除剤の代わりに水を均一に噴霧したものも用意した。

乾燥後、ダイズさび病菌の夏胞子を１０^{5}個／ｍＬとなるように調製し、葉面に対しスプレー接種を行った。

そして、ダイズさび病菌接種１０日後のダイズ植物の第２葉面～第４葉面に発生した病斑数を１ｃｍ^{2}当たりで測定した。また、コントロール群と比較した。Ｎ＝３で実施した。

[0056] 本試験結果を図１０に示す。

図１０の試験結果から、「コントロール群」では１ｃｍ^{2}当たり約２５個の病斑が観察された一方で、全ての「セルロースナノ繊維群」では１ｃｍ^{2}当たり２０個以下の病斑が観察された。

また、セルロースナノ繊維群の「解繊処理」に着目して比較すると、低解繊処理よりも高解繊処理のものの方が、病斑数が減少することが示された。

以上の結果から、全てのセルロースナノ繊維群の実施例においてコントロール群よりもさび病菌の病斑数が有意に低下することが認められた。

[0057] ＜試験７：キャベツ植物に対する病原菌防除効果「葉面の形質変化」＞

実施例２の植物病原菌防除剤を用いたときの、キャベツ植物の葉面の形質変化を確認する試験を行った。

本試験では、「試験植物」として試験１と同じ園芸用培土にて生育させたキャベツ植物（品種：金系２０１号）、「植物病原菌」としてキャベツ黒斑細菌病菌をそれぞれ用いた。

また、セルロースナノ繊維が０．１質量％、界面活性剤が０．０１質量％の含有量となるように実施例２の植物病原菌防除剤を調製した。

具体的には、第２葉まで展開したキャベツ植物の葉面（表面）に対して植物病原菌防除剤を噴霧して乾燥させたもの（セルロースナノ繊維群）と、水を噴霧したもの（コントロール群）とを用意し、それぞれの葉面の様子を走

査型原子顕微鏡によって比較観察した。

その後、蛍光タンパク質で標識したキャベツ黒斑細菌病菌を10^8ｃｆｕ／ｍＬとなるように調製し、それぞれの葉面に対しディップ接種を行った。そして、キャベツ黒斑細菌病菌接種後のキャベツ植物の葉面の様子を共焦点レーザー顕微鏡によって比較観察した。

[0058] 本試験結果を図１１、図１２に示す。

図１１の試験結果から、「セルロースナノ繊維群」では、植物の葉面上にセルロースナノ繊維（繊維状の物質）が多数観察された。葉面の気孔開口部においてはセルロースナノ繊維が網目状（枝状）となって葉面の気孔開口部表面を覆っていることが観察され、また当該セルロースナノ繊維によって葉面の気孔開口部の少なくとも一部が物理的に閉鎖されていることが観察された。

図１１に示される植物の気孔開口部は幅約３μｍ、長さ約１２μｍ程度の大きさである。一方、病気の原因となる細菌の一般的な大きさは１～２μｍ程度である。セルロースナノ繊維は平均太さ３～２００ｎｍの繊維であることから、植物の気孔開口部表面を完全に塞ぐものではなく、気孔開口部表面を網目状（枝分かれ状）となって覆うことで、細菌の侵入経路となる気孔開口部の空隙の大きさを網目状に小さくすることが示唆された。また、気孔開口部表面を網目状（枝分かれ状）となって覆うことで、植物生育に必要な植物の気孔の機能である酸素や二酸化炭素、水蒸気などの気体の通過を維持しながら、細菌の侵入を防ぐものであることが示された。

なお、本試験とは別に、植物に植物病原菌防除剤を噴霧した場合であっても、当該植物の生育が阻害されないことが確認されている。

[0059] 図１２の試験結果から、「セルロースナノ繊維群」では、「コントロール群」と比較して植物の葉面上への細菌の付着が多数観察された。

このことから、植物の葉面上にナノ繊維被膜が形成されており、当該ナノ繊維被膜が細菌に対し植物表面の構造や疎水性を認識させないように働きかけ、植物内に侵入することを意識的に断念させていることが示唆された。

また、「セルロースナノ繊維群」では、葉面の気孔開口部の一部に膜物質が観察された。このことから、セルロースナノ繊維が葉面の気孔の一部を物理的に閉鎖していることが示された。

[0060] これら試験結果から、セルロースナノ繊維を有効成分とする植物病原菌防除剤が、植物に散布又は噴霧されることで、植物病原菌を防除する効果を確認することができた。

請求の範囲

[請求項1] 植物に対して植物病原菌を防除するために用いられ、

セルロースナノ繊維を有効成分として含有することを特徴とする植物病原菌防除剤。

[請求項2] 対象となる前記植物病原菌が、シュードモナス（Pseudomonas）属細菌、キサントモナス（Xanthomonas）属細菌、ペクトバクテリウム（Pectobacterium）属細菌、アグロバクテリウム（Agrobacterium）属細菌、及びクラビバクター（Clavibacter）属細菌からなる群から選択される病原細菌であることを特徴とする請求項１に記載の植物病原菌防除剤。

[請求項3] 対象となる前記植物病原菌が、ファコスポラ（Phakopsora）属さび病菌、ヘミレイア（Hemileia）属さび病菌、及びパクシニア（Puccinia）属さび病菌からなる群から選択されるさび病菌、または病原糸状菌であることを特徴とする請求項１に記載の植物病原菌防除剤。

[請求項4] 対象となる前記植物が、アブラナ科植物、マメ科植物、ナス科植物、及びアカネ科植物からなる群から選択される植物であることを特徴とする請求項１乃至３のいずれか１項に記載の植物病原菌防除剤。

[請求項5] 前記植物の葉面又は茎面に与えられ、乾燥後に形成されるナノ繊維被膜の表面が親水性を示すことを特徴とする請求項１乃至４のいずれか１項に記載の植物病原菌防除剤。

[請求項6] 前記植物の葉面又は茎面に与えられ、乾燥後に形成されるナノ繊維被膜が略網目状となっていることを特徴とする請求項１乃至５のいずれか１項に記載の植物病原菌防除剤。

[請求項7] 前記セルロースナノ繊維は、イネ科植物、広葉樹、及び針葉樹からなる群から選択される植物由来のナノ繊維材料であることを特徴とする請求項１乃至６のいずれか１項に記載の植物病原菌防除剤。

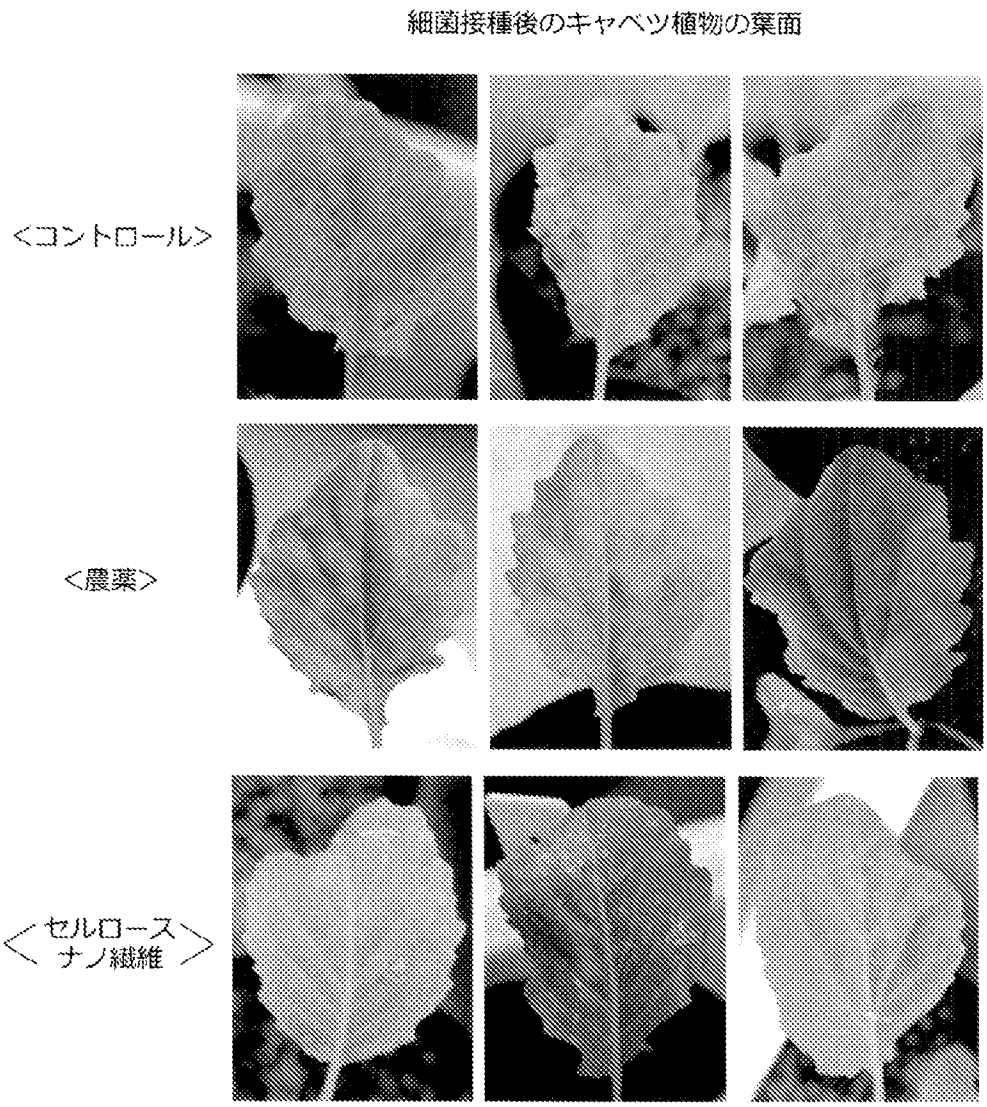
[請求項8] 前記セルロースナノ繊維は、太さが３～２００ｎｍであって、結晶化度が５０以上であって、原料のα－セルロース含有率が６０～９９

質量％であって、平均重合度が５００～９００であって、平均分子量が９００００～１４００００であることを特徴とする請求項１乃至７のいずれか１項に記載の植物病原菌防除剤。

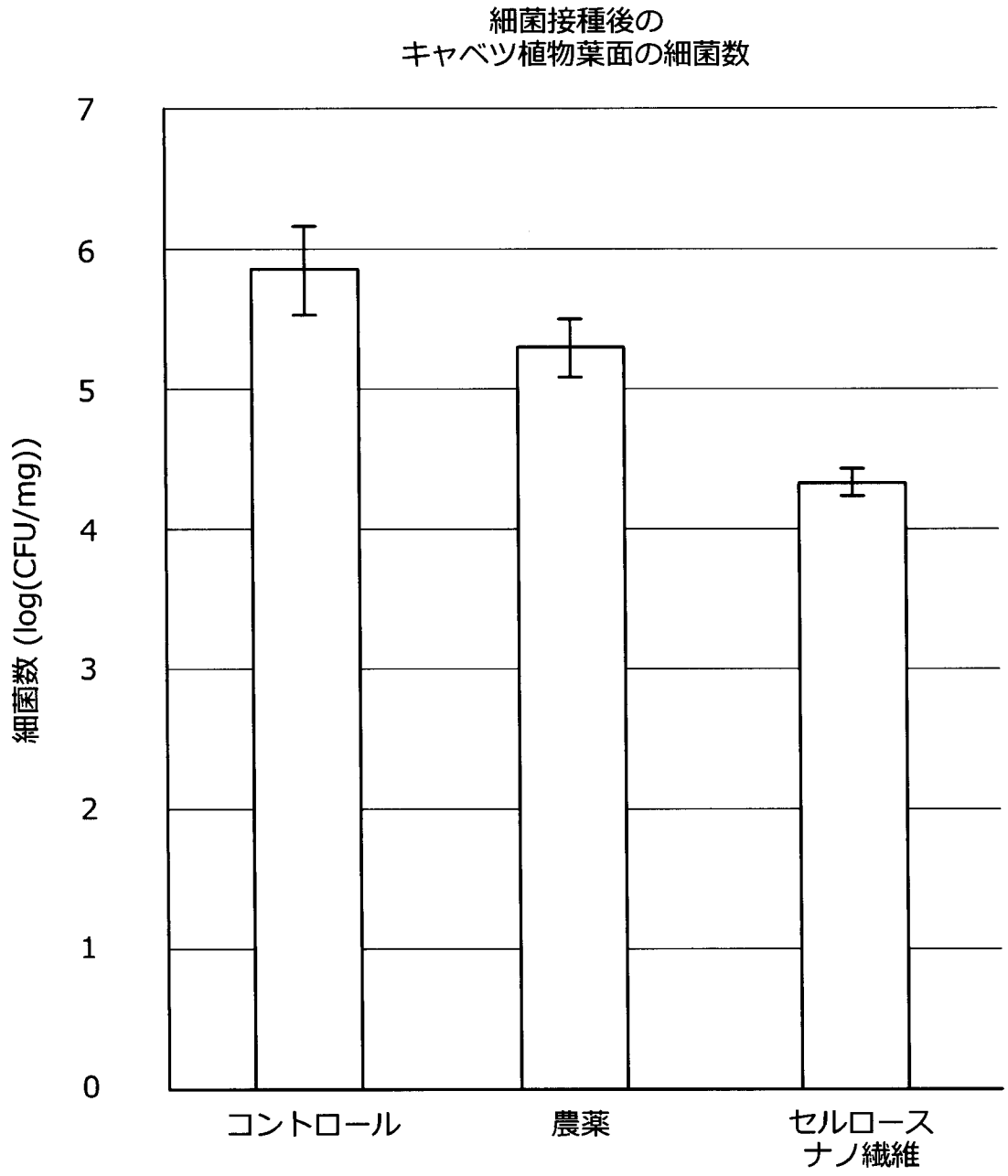
[請求項9] 前記植物病原菌防除剤の総質量に対して前記セルロースナノ繊維の含有量が０．０１～２．０質量％であることを特徴とする請求項１乃至８のいずれか１項に記載の植物病原菌防除剤。

[請求項10] 水性溶媒と、該水性溶媒中に溶解される界面活性剤と、を含有し、該界面活性剤が非イオン界面活性剤であることを特徴とする請求項１乃至９のいずれか１項に記載の植物病原菌防除剤。

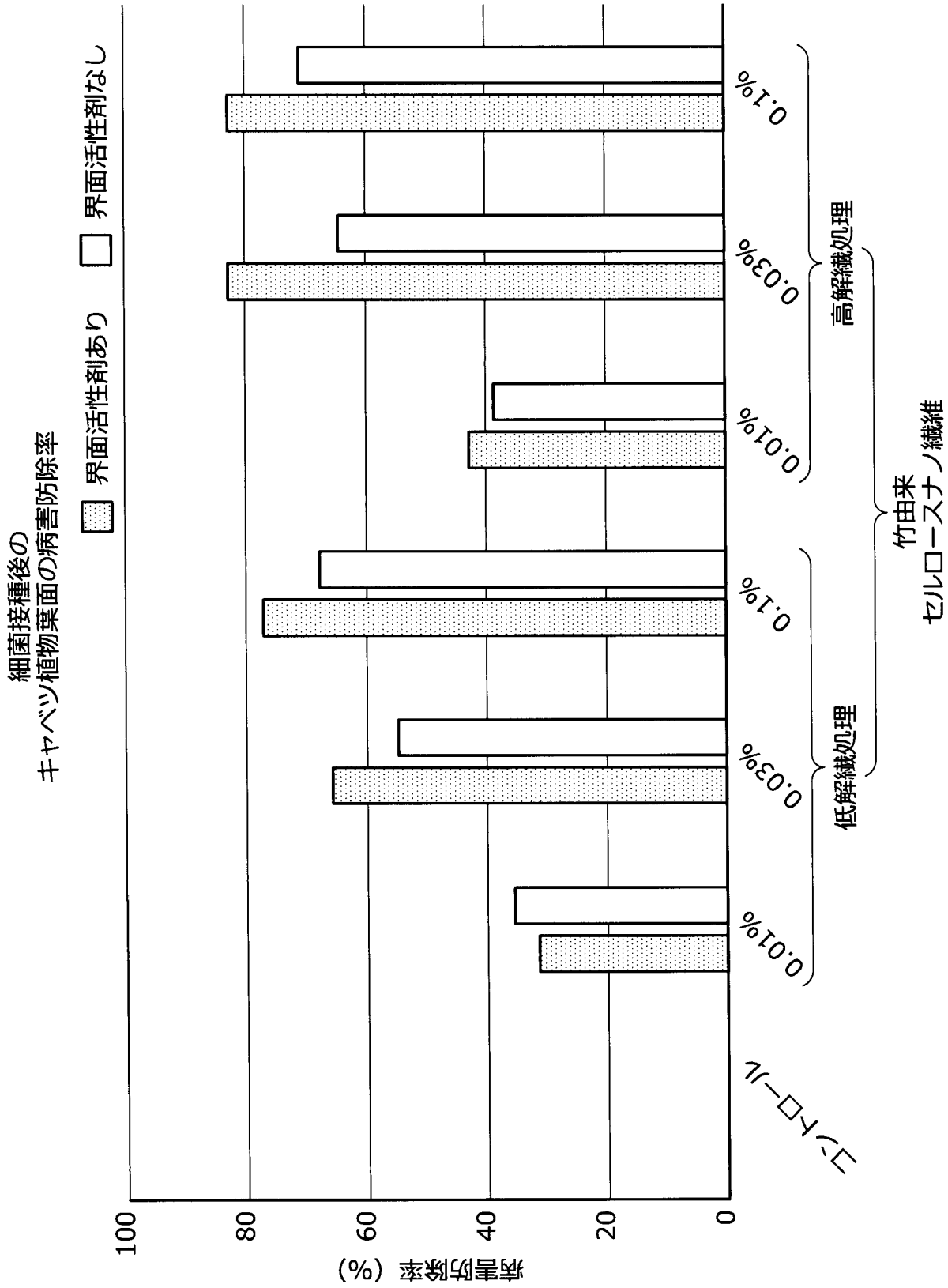
[図1]



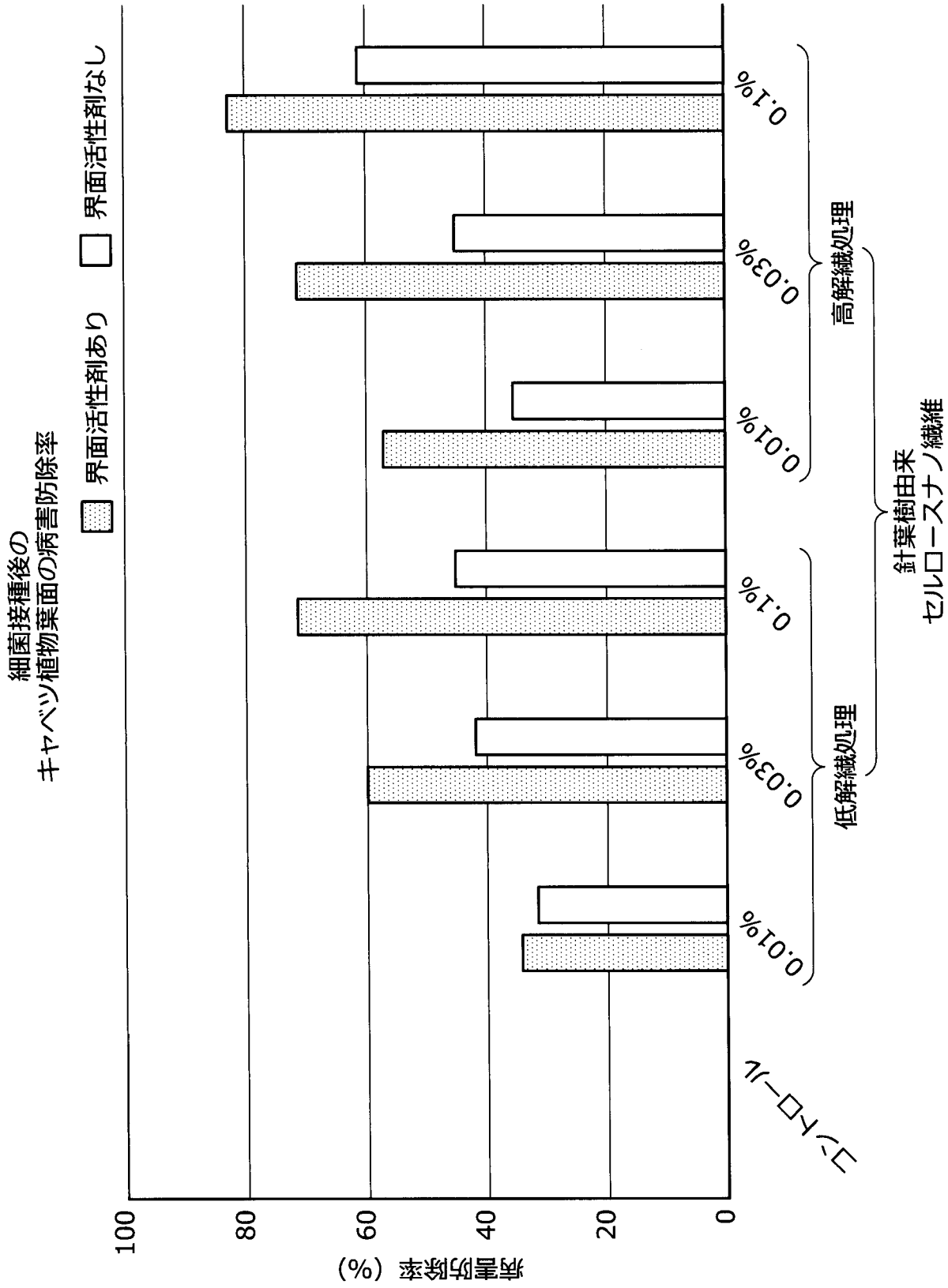
[図2]


細菌接種後の
キャベツ植物葉面の細菌数
細菌数 (log(CFU/mg))
7
6
5
4
3
2
1
0
コントロール
農薬
セルロース
ナノ繊維

[図3]

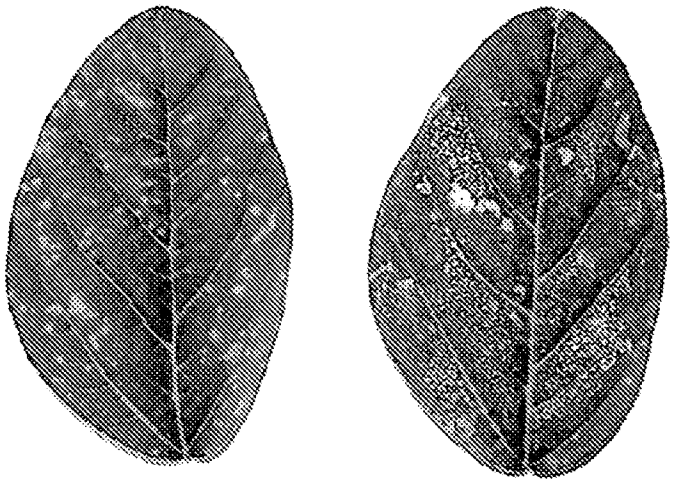

細菌接種後の
キャベツ植物葉面の病害防除率
界面活性剤あり
界面活性剤なし
病害防除率（%）
100
80
60
40
20
0
コントロール
0.01%
0.03%
0.1%
低解繊処理
0.01%
0.03%
0.1%
高解繊処理
竹由来
セルロースナノ繊維

[図4]


細菌接種後の
キャベツ植物葉面の病害防除率
界面活性剤あり
界面活性剤なし
病害防除率（%）
100
80
60
40
20
0
コントロール
0.01%
0.03%
0.1%
0.01%
0.03%
0.1%
低解繊処理
高解繊処理
針葉樹由来
セルロースナノ繊維

[図5]

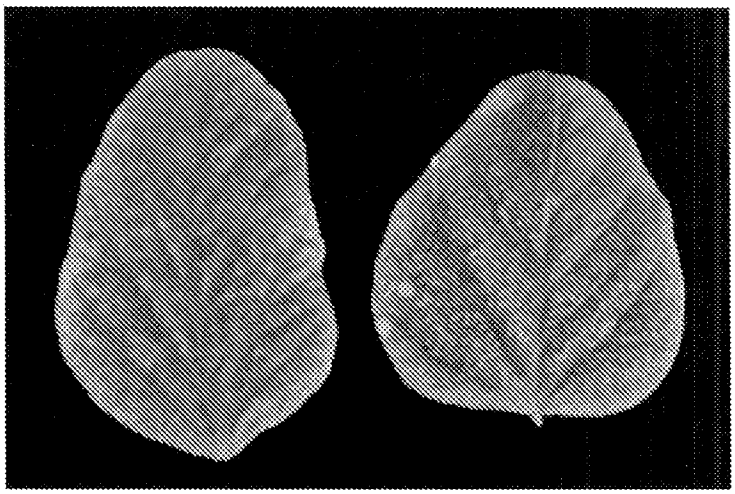
細菌接種後のダイズ植物の葉面



<コントロール> <セルロースナノ繊維>

[図6]

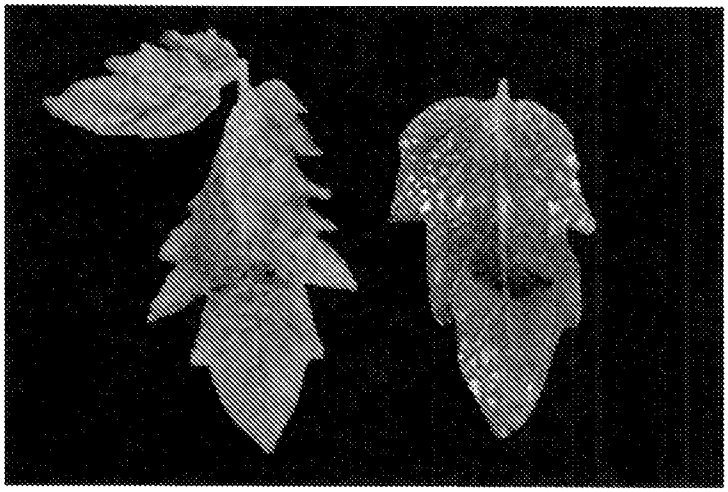
さび病菌接種後のダイズ植物の葉面



<コントロール> <セルロースナノ繊維>

[図7]

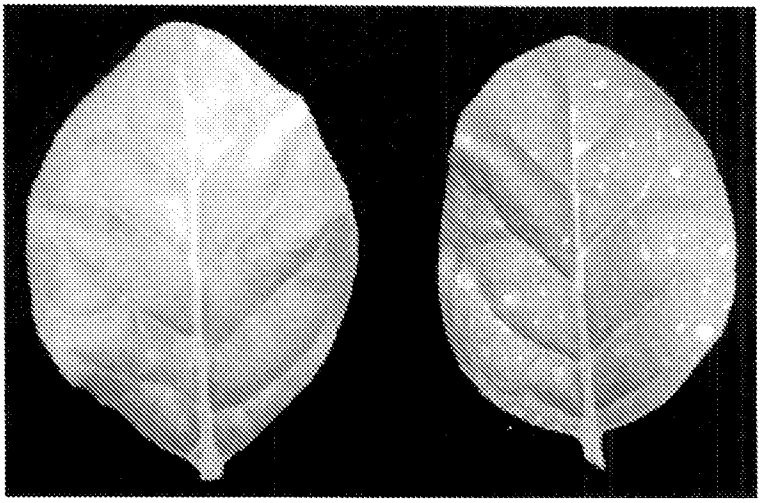
細菌接種後のトマト植物の葉面



<コントロール> <セルロースナノ繊維>

[図8]

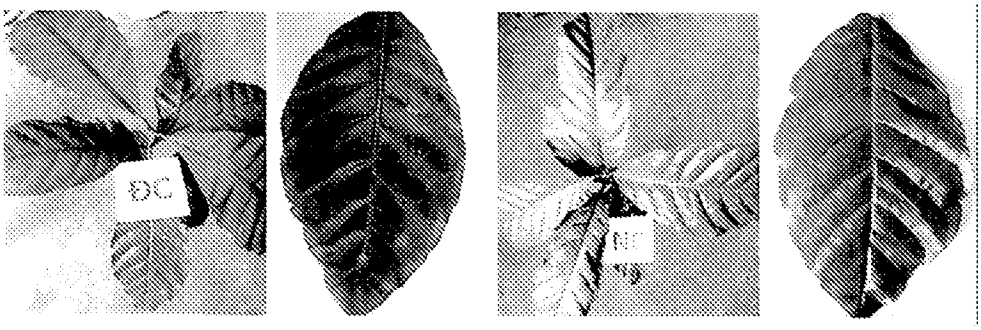
細菌接種後のタバコ植物の葉面



<コントロール> <セルロースナノ繊維>

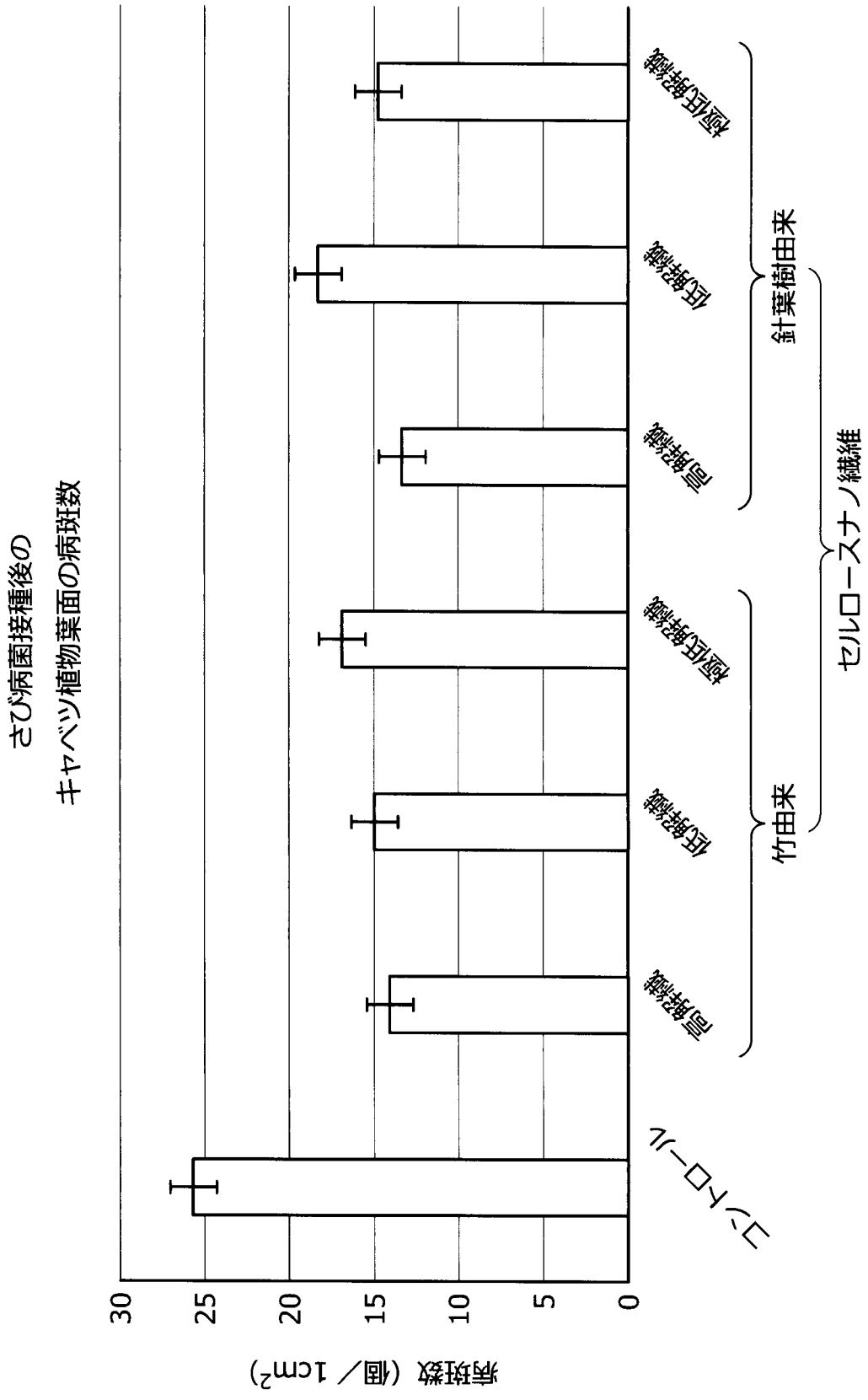
[図9]

さび病菌接種後のコーヒー木幼苗の葉面



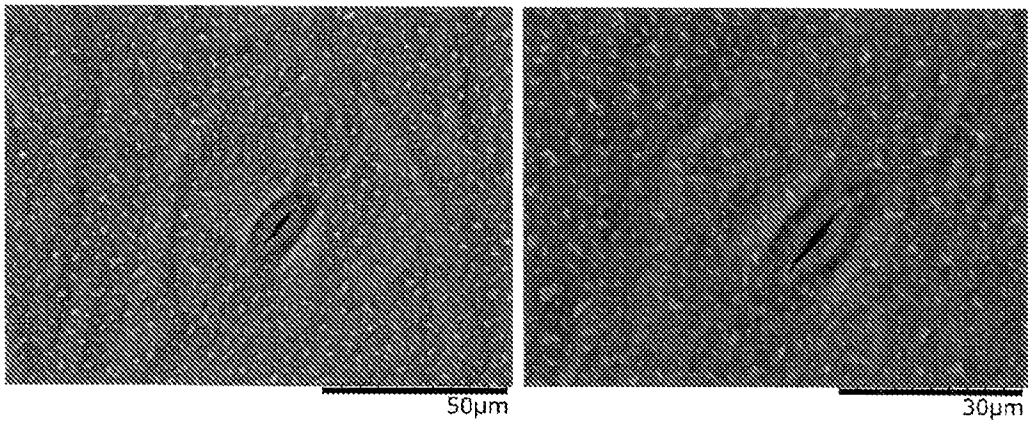
<コントロール> <セルロースナノ繊維>

[図10]

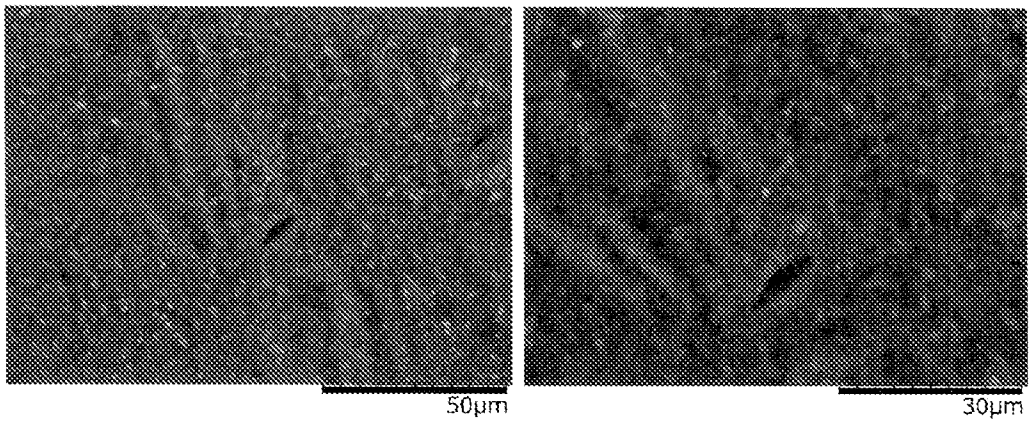

さび病菌接種後の
キャベツ植物葉面の病斑数
病斑数（個／1cm²）
0
5
10
15
20
25
30
コントロール
高解繊
低解繊
極低解繊
高解繊
低解繊
極低解繊
竹由来
針葉樹由来
セルロースナノ繊維

[図11]

細菌接種後のキャベツ植物の葉面の
SEM 画像



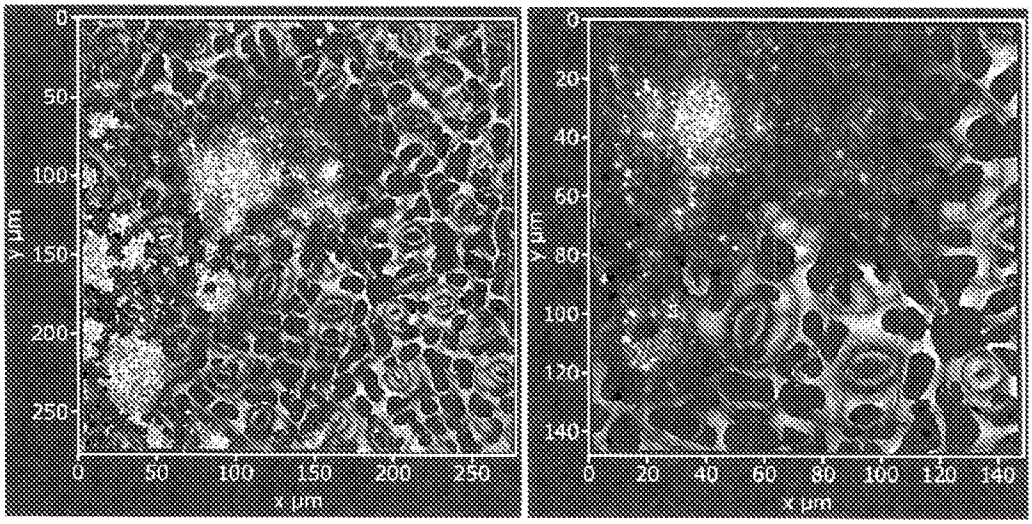
<コントロール>



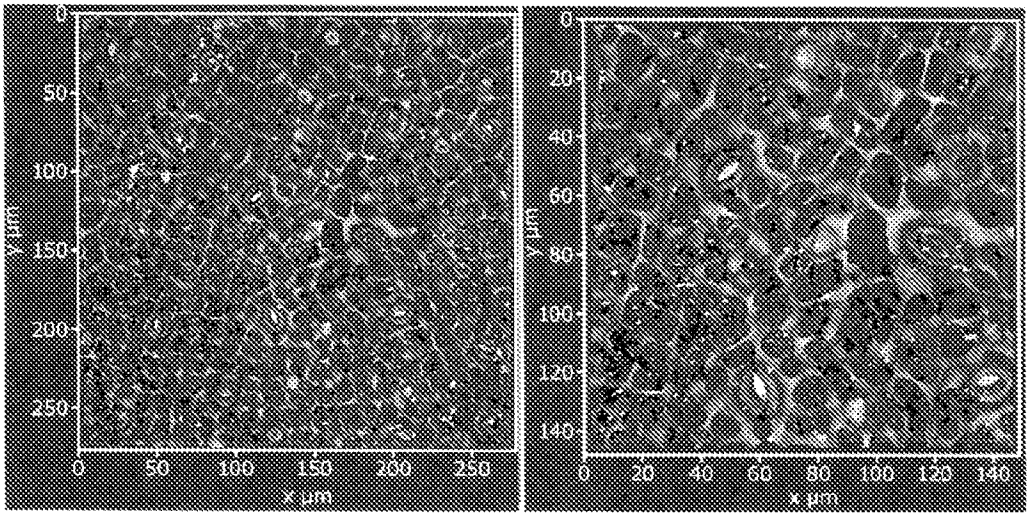
<セルロースナノ繊維>

[図12]

細菌接種後のキャベツ植物葉面の
共焦点レーザー顕微鏡画像



<コントロール>



<セルロースナノ繊維>

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2019/037052

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl. A01N61/00(2006.01)i, A01N25/30(2006.01)i, A01N65/44(2009.01)i, A01P3/00(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)
Int.Cl. A01N61/00, A01N25/30, A01N65/44, A01P3/00

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	1971-2019
Registered utility model specifications of Japan	1996-2019
Published registered utility model applications of Japan	1994-2019

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
JSTPlus/JMEDPlus/JST7580 (JDreamIII)
CAPlus/EMBASE/BIOSIS (STN)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2016-69295 A (DKS CO., LTD.) 09 May 2016, claims, paragraphs [0003], [0029], production examples 2, 3, examples 5, 6 (Family: none)	1, 5-7, 9, 10
X	WO 2018/083539 A2 (POLYNATURAL HOLDING SPA) 11 May 2018, claims, page 13, line 25 to page 26, examples, table 2 & US 2019/0281844 A1 & EP 3534710 A1 & CN 110234227 A	1-10

☒ 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	Date of mailing of the international search report
06 December 2019 (06.12.2019)	17 December 2019 (17.12.2019)

Name and mailing address of the ISA/	Authorized officer
Japan Patent Office 3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915, Japan	Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2019/037052

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2017/158626 A1 (COUNCIL OF SCIENTIFIC & INDUSTRIAL RESEARCH) 21 September 2017, claims, page 4, lines 4-6, examples (Family: none)	1-10
A	WO 2014/203121 A1 (STORA ENSO OYJ) 24 December 2014, claims, examples & SE 1350743 A1	1-10
A	JP 2-104501 A (NIPPON SODA CO., LTD.) 17 April 1990, claims, examples (Family: none)	1-10
A	JP 2012-188367 A (MITSUI CHEMICALS AGRO, INC., KAGAWA UNIVERSITY, SHIKOKU RESEARCH INSTITUTE INC.) 04 October 2012, claims, examples (Family: none)	1-10
P, X	WO 2018/174239 A1 (CHUETSU PULP & PAPER CO., LTD.) 27 September 2018, claims, paragraph [0008], examples (Family: none)	1-9

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１９／０３７０５２

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　A01N61/00(2006.01)i, A01N25/30(2006.01)i, A01N65/44(2009.01)i, A01P3/00(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.　A01N61/00, A01N25/30, A01N65/44, A01P3/00

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　　１９７１－２０１９年
日本国実用新案登録公報　　１９９６－２０１９年
日本国登録実用新案公報　　１９９４－２０１９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）

JSTPlus/JMEDPlus/JST7580 (JDreamIII)
CAplus/EMBASE/BIOSIS (STN)

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 2016-69295 A（第一工業製薬株式会社）2016.05.09, 特許請求の範囲、［０００３］、［００２９］、製造例２、３、実施例５、６（ファミリーなし）	1, 5-7, 9, 10
X	WO 2018/083539 A2 (POLYNATURAL HOLDING SPA) 2018.05.11, ＣＬＡＩＭＳ、第１３頁第２５行目－第２６行目、ＥＸＡＭＰＬＥＳ、Ｔａｂｌｅ　２ & US 2019/0281844 A1 & EP 3534710 A1 & CN 110234227 A	1-10

☑　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	国際調査報告の発送日
０６．１２．２０１９	１７．１２．２０１９

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）　４Ｈ　７８８２
薄井　慎矢
電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４４３

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
A	WO 2017/158626 A1 (COUNCIL OF SCIENTIFIC & INDUSTRIAL RESEARCH) 2017.09.21, ＣＬＡＩＭＳ、第４頁第４行目－第６行目、ＥＸＡＭＰＬＥＳ（ファミリーなし）	1-10
A	WO 2014/203121 A1 (STORA ENSO OYJ) 2014.12.24, Ｃｌａｉｍｓ、Ｅｘａｍｐｌｅ & SE 1350743 A1	1-10
A	JP 2-104501 A（日本曹達株式会社）1990.04.17, 特許請求の範囲、実施例（ファミリーなし）	1-10
A	JP 2012-188367 A（三井化学アグロ株式会社、国立大学法人　香川大学、株式会社四国総合研究所）2012.10.04, 特許請求の範囲、実施例（ファミリーなし）	1-10
P, X	WO 2018/174239 A1（中越パルプ工業株式会社）2018.09.27, 請求の範囲、［０００８］、実施例（ファミリーなし）	1-9