(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
2024年10月31日(31.10.2024)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2024/225366 A1

(51) 国際特許分類:
C05G 5/30 (2020.01) *C05G 5/10* (2020.01)
B01J 2/00 (2006.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2024/016199

(22) 国際出願日： 2024年4月25日(25.04.2024)

(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 2023-075207 2023年4月28日(28.04.2023) JP

(71) 出願人: ジェイカムアグリ株式会社 (**JCAM AGRI. CO., LTD.**) [JP/JP]; 〒1010041 東京都千代田区神田須田町二丁目６番６号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 沖 ▲ 崎 ▼ 光 平 (**OKIZAKI Kohei**); 〒4168501 静岡県富士市鮫島２－１ ジェイカムアグリ株式会社内 Shizuoka (JP). 鈴木 大地 (**SUZUKI Daichi**); 〒4168501 静岡県富士市鮫島２－１ ジェイカムアグリ株式会社内 Shizuoka (JP). 町田 詠希 (**MACHIDA Eiki**); 〒4168501 静岡県富士市鮫島２－１ ジェイカムアグリ株式会社内 Shizuoka (JP). 青嵜 義宗 (**AOSAKI Yoshimune**); 〒1010041 東京都千代田区神田須田町二丁目６番６号 ジェイカムアグリ株式会社内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 弁理士法人エスエス国際特許事務所 (**SSINPAT PATENT FIRM**); 〒1410031 東京都品川区西五反田七丁目１３番６号 五反田山崎ビル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, MG, MK, MN, MU, 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, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SC, 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, ME, 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:** COATED GRANULAR FERTILIZER

(54) 発明の名称： 被覆粒状肥料

(57) **Abstract:** One embodiment of the present invention pertains to a coated granular fertilizer comprising: a granular fertilizer; and a coating that covers the surface of the granular fertilizer. The coating contains a biodegradable resin (A) and at least one wax (B) selected from the group consisting of natural waxes (b1) having an ester group and modified products (b2) thereof. The wax (B) is contained in an amount of less than 80 mass% in 100 mass% of the coating.

(57) 要約：本発明の一実施形態は、粒状肥料と、該粒状肥料表面を被覆する被膜とを有し、前記被膜が、生分解性樹脂（Ａ）と、エステル基を有する天然ワックス（ｂ１）およびその変性物（ｂ２）からなる群より選択される少なくとも１種のワックス（Ｂ）とを含み、前記被膜１００質量％中、前記ワックス（Ｂ）が８０質量％未満である、被覆粒状肥料。

WO 2024/225366 A1

明　細　書

発明の名称 ： 被覆粒状肥料

技術分野

[0001] 本発明の一実施形態は、被覆粒状肥料に関する。

背景技術

[0002] 合成樹脂等の被膜材料によって粒状肥料の表面を被覆した被覆粒状肥料が知られている。被覆粒状肥料は、肥料成分の溶出をコントロールしやすいため、農作業の省力化の達成および肥料成分による環境負荷低減等の効果が認められている。このような被覆粒状肥料を用いた栽培技術は、近年、普及拡大している。

[0003] しかし、従来の被覆粒状肥料は難分解性の樹脂等で被覆されたものが多く、肥料成分溶出後の被膜に含まれる難分解性の樹脂等が環境中に残存することが問題になっている。

このような問題に対処するため、例えば、特許文献１では、肥料成分の溶出終了後に環境中で被覆材料の分解を生じる被覆肥料として、脂肪族ポリエステル５重量％以上８０重量％以下、及びポリオレフィンワックス２０重量％以上９５重量％以下含有する被覆層を有する被覆粒状肥料が開示されている。

[0004] 特許文献２では、肥料顆粒と、肥料顆粒の表面上に配置されたコーティングとを含む被覆肥料であって、コーティングが、ポリ（乳酸）；ポリ（ブチレンサクシネート）、セルローストリアセテート、または前述の少なくとも１種を含む組み合わせを含む第２のポリマー；及びシーラント；を含む被覆肥料が開示されている。

特許文献３および特許文献４では、生分解性樹脂であるポリヒドロキシアルカン酸またはポリブチレンサクシネートで被覆した被覆肥料が開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献1：特開平９－２６３４７６号公報

特許文献2：特表２０１７－５１７４７１号公報

特許文献3：米国特許出願公開第２０２１／０３８７９２５号明細書

特許文献4：特開平０７－３１５９７６号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] しかしながら、特許文献１の技術は、被覆層の生分解性はあるものの、被覆層に含まれるポリオレフィンワックスが自然界においては安定な物質であることから、肥料成分の溶出終了後に自然界で分解されるまでに長期間を要した。そのため、被覆層の断片が残存するという新たな問題が生じた。被覆層が断片化したまま海洋中に長期間滞留する可能性があり、改善の余地があった。

[0007] 特許文献２の技術では、コーティングの生分解性が満足できるものではなかった。さらに、必須成分のシーラントとして、ポリエチレンワックス等のポリオレフィン系ワックスを使用していた。これらの成分は、自然界で分解されるまでに長期間を要し、田畑に残存するという問題があった。

[0008] 特許文献３の技術では、自然界で容易に分解する崩壊性を有するものの、肥料内部への水分の浸透性が高すぎるために、長期に渡って肥料成分を溶出させるという、溶出コントロール性が満足できるものではなかった。

[0009] 特許文献４の技術では、生分解性プラスチックの水蒸気透過性が高い為に、肥料成分の溶出速度が速く、肥料成分の溶出抑制が不十分だった。

つまり、従来技術の被覆粒状肥料は、環境中における優れた生分解性と、肥料成分の溶出コントロール性とを両立できなかった。

このようなことから、本発明の一実施形態は、生分解性に優れ、かつ、肥料成分の溶出コントロール性にも優れる被覆粒状肥料を提供する。

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べく鋭意検討した。その結果、本発明を完成するに至った。

[0011] 本発明の構成例としては、例えば、以下の〔１〕～〔７〕が挙げられる。

〔１〕粒状肥料と、該粒状肥料表面を被覆する被膜とを有し、前記被膜が、生分解性樹脂（Ａ）と、エステル基を有する天然ワックス（ｂ１）およびその変性物（ｂ２）からなる群より選択される少なくとも１種のワックス（Ｂ）とを含み、

前記被膜１００質量％中、前記ワックス（Ｂ）が８０質量％未満である、被覆粒状肥料。

〔２〕前記ワックス（Ｂ）が、ライスワックス、カスターワックス、モンタンワックス、ミツロウ、カルナバワックス、キャンデリラワックス、パームワックス、大豆油ワックス、およびひまわり油ワックスからなる群より選択される少なくとも１種である、〔１〕に記載の被覆粒状肥料。

〔３〕前記ワックス（Ｂ）が、下記要件（Ｉ）を満たす、〔１〕又は〔２〕に記載の被覆粒状肥料；

（Ｉ）ＪＩＳＫ００７０に規定する酸価の測定方法において、酸価が０．５～１３０である。

〔４〕前記生分解性樹脂（Ａ）が、ポリブチレンサクシネート、ポリ乳酸、ポリブチレンアジペートテレフタレート、ポリヒドロキシアルカン酸、酢酸セルロース、およびポリカプロラクトンからなる群より選択される少なくとも１種である、〔１〕～〔３〕のいずれかに記載の被覆粒状肥料。

〔５〕前記生分解性樹脂（Ａ）が、下記要件（ＩＩ）を満たす、〔１〕～〔４〕のいずれかに記載の被覆粒状肥料；

（ＩＩ）ＩＳＯ１１３３に準拠して、１９０℃、２．１６ｋｇ荷重で測定したメルトフローレート（ＭＦＲ）が０．１～３０ｇ／１０分の範囲にある。

〔６〕被膜１００質量％中、前記生分解性樹脂（Ａ）と、前記ワックス（Ｂ）との質量比（Ａ／Ｂ）が、８／２～５／５である、〔１〕～〔５〕のい

ずれかに記載の被覆粒状肥料。

〔７〕前記被覆粒状肥料１００質量％に対する、前記被膜の割合が３～２０質量％である、〔１〕～〔６〕のいずれかに記載の被覆粒状肥料。

発明の効果

[0012] 本発明の一実施形態によれば、生分解性に優れ、かつ、肥料成分の溶出コントロール性にも優れる被覆粒状肥料を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0013] [図1]図１は、被覆粒状肥料を製造する装置の一例である。

発明を実施するための形態

[0014] 本発明の一実施形態は、被覆粒状肥料に関する。

本願は、２０２３年４月２８日に、日本に出願された特願２０２３－０７５２０７号に基づき優先権を主張し、その内容をここに援用する。

次に本発明について具体的に説明する。

＜被覆粒状肥料＞

本発明の一実施形態の被覆粒状肥料は、粒状肥料と、該粒状肥料表面を被覆する被膜とを有し、前記被膜が、生分解性樹脂（Ａ）と、エステル基を有する天然ワックス（ｂ１）およびその変性物（ｂ２）からなる群より選択される少なくとも１種のワックス（Ｂ）とを含み、前記被膜１００質量％中、前記ワックス（Ｂ）が８０質量％未満である。

[0015] ＜生分解性樹脂（Ａ）＞

本発明の一実施形態の被覆粒状肥料は、生分解性樹脂（Ａ）を含む。以下、生分解性樹脂（Ａ）を、単に「成分（Ａ）」とも記す。

[0016] 〔生分解性〕

生分解性樹脂とは、通常、微生物によって完全に消費され自然的副産物のみを生じる樹脂のことを指す。本発明において、成分（Ａ）は、ＪＩＳまたはＩＳＯなどの試験方法に準拠して測定した生分解度を有することが確認された樹脂、その他公的機関の認証を受けた樹脂であればよい。

ＪＩＳまたはＩＳＯの試験方法による生分解性の測定法としては、例えば

、ＪＩＳ Ｋ ６９５０（ＩＳＯ １４８５１）、ＪＩＳ Ｋ ６９５３－１（ＩＳＯ １４８５５－１）、ＪＩＳ Ｋ ６９５５（ＩＳＯ １７５５６）、ＪＩＳ Ｋ ６９５１（ＩＳＯ１４８５２）、ＪＩＳ Ｋ６９５３－２（ＩＳＯ１４８５５）等が挙げられる。

[0017] 公的機関の認証としては、例えば、下記が挙げられる。

日本国内では、日本バイオプラスチック協会（ＪＢＰＡとも称す。）が生分解性プラ識別表示制度を定めており、上記のような試験において生分解性が認められたものは、生分解性プラスチックのポジティブリストに登録される。

日本国外では、ベルギーのＴＵＶ ＡＵＳＴＲＩＡ（ＴＵＶとも称す。）が生分解性の認証制度を定めており、上記のような試験において生分解性が認められたものは、認証を取得できる。

本発明において、成分（Ａ）は、ＪＢＰＡまたはＴＵＶの生分解性の認証を取得していることが好ましい。

[0018] 〔メルトフローレート（ＭＦＲ）〕

生分解性樹脂（Ａ）は、ＩＳＯ１１３３に準拠して、１９０℃、２．１６ｋｇ荷重で測定したメルトフローレート（ＭＦＲ）が０．１～３０ｇ／１０分の範囲にあることが好ましく、０．１～２０ｇ／１０分の範囲にあることがより好ましく、２～１０ｇ／１０分の範囲にあることがさらに好ましい。

生分解性樹脂（Ａ）のＭＦＲが上記範囲内にあると、成膜が良好であり、被膜の欠陥が少なく、肥料成分の溶出コントロール性に優れる傾向があるため、好ましい。

[0019] 生分解性樹脂（Ａ）としては、例えば、芳香族ポリエステル系樹脂、脂肪族ポリエステル樹脂、脂肪族芳香族ポリエステル樹脂、多糖類、デンプンを含むポリマー等が挙げられる。

芳香族ポリエステル系樹脂として、具体的には、ポリエチレンテレフタレート、ポリエチレン－２，６－ナフタレート、ポリプロピレンテレフタレート、およびポリブチレンテレフタレート等が挙げられる。

[0020] 脂肪族ポリエステル樹脂として、具体的には、ポリ乳酸（ＰＬＡとも称す。）、ポリ乳酸／ポリエーテル共重合体等のポリ乳酸系樹脂、ポリグリコール酸、ポリヒドロキシブチレート、ポリ（３－ヒドロキシブチレート）、ポリ（３－ヒドロキシブチレート・３－ヒドロキシヘキサノエート）、ポリ（３－ヒドロキシブチレート・３－ヒドロキシバレレート）等のポリヒドロキシアルカン酸、ポリカプロラクトン、ポリブチレンサクシネート（ＰＢＳとも称す。）、ポリブチレンサクシネートアジペート（ＰＢＡＴとも称す。）等が挙げられる。

[0021] 脂肪族芳香族ポリエステル樹脂として、具体的には、ポリエチレンサクシネートテレフタレート、ポリブチレンアジペートテレフタレート等が挙げられる。

脂肪族ポリエステル樹脂および芳香族ポリエステル系樹脂は、１種単独で、または２種以上が共重合されているものでもよい。

[0022] 多糖類、デンプンを含むポリマーとして、具体的には、酢酸セルロース等のセルロース系樹脂、およびキトサン等のグルコサミン系樹脂、デンプンポリエステルが挙げられる。

これらの中でも、生分解性樹脂（Ａ）は、ポリブチレンサクシネート、ポリ乳酸、ポリブチレンアジペートテレフタレート、ポリヒドロキシアルカン酸、酢酸セルロース、およびポリカプロラクトンからなる群より選択される少なくとも１種であることが好ましく、肥料成分の初期溶出量が少なく、溶出コントロール性に優れることから、ポリブチレンサクシネート、ポリ乳酸、ポリブチレンアジペートテレフタレート、およびポリカプロラクトンからなる群より選択される少なくとも１種であることがより好ましく、被膜内部への浸水性が適度であり、肥料成分の溶出コントロール性に特に優れ、被膜の環境中における生分解性にも特に優れ、かつ保存に耐えうる被膜の強度も付与できることから、ポリブチレンサクシネートがさらに好ましい。

[0023] 生分解性樹脂（Ａ）は、１種単独で用いても、２種以上組み合わせて用いてもよい。

生分解性樹脂（Ａ）を組み合わせて用いる場合には、ポリブチレンサクシネートおよびポリブチレンアジペートテレフタレート、ポリブチレンサクシネートおよびポリ乳酸、ポリブチレンサクシネートおよびポリカプロラクトン、ポリブチレンアジペートテレフタレートおよびポリ乳酸、または、ポリブチレンアジペートテレフタレートおよびポリカプロラクトンを組み合わせることが好ましい。

これらの中でも、成膜性に優れることから、ポリブチレンサクシネートおよびポリブチレンアジペートテレフタレート、または、ポリブチレンサクシネートおよびポリ乳酸を組み合わせることがより好ましい。

[0024] 生分解性樹脂（Ａ）として任意の２種類の樹脂（ａ１、ａ２と称す）を組み合わせて用いる場合には、生分解性樹脂（Ａ）１００質量％とした場合の、生分解性樹脂（ａ１）と生分解性樹脂（ａ２）との質量比（ａ１／ａ２）が、１００／１～１／１００であることが好ましい。

[0025] 生分解性樹脂（Ａ）として、ポリブチレンサクシネートおよびポリブチレンアジペートテレフタレートを用いる場合には、生分解性樹脂（Ａ）１００質量％とした場合のポリブチレンサクシネート（ａ１）とポリブチレンアジペートテレフタレート（ａ２）との質量比（ａ１／ａ２）が、１００／１～５０／５０であることが好ましい。

[0026] 生分解性樹脂（Ａ）として、ポリブチレンサクシネートおよびポリ乳酸を用いる場合には、生分解性樹脂（Ａ）を１００質量％とした場合のポリブチレンサクシネート（ａ１）とポリ乳酸（ａ２）との質量比（ａ１／ａ２）が、１００／１～５０／５０であることが好ましい。

[0027] 生分解性樹脂（Ａ）は、市販品を使用することもできる。

ポリブチレンサクシネートとしては、例えば、三菱ケミカル株式会社製のＢｉｏＰＢＳが挙げられる。ポリブチレンアジペートテレフタレートとしては、例えば、ＢＡＳＦ株式会社のＥＣＯＦＬＥＸ、ＥＣＯＶＩＯ等が挙げられる。ポリ乳酸としては、例えば、Ｎａｔｕｒｅ　Ｗｏｒｋｓ株式会社の４０６０Ｄ等が挙げられる。

これらの市販品は１種単独で使用してもよく、２種以上を組み合せて用いてもよい。

[0028] ＜エステル基を有する天然ワックス（ｂ１）およびその変性物（ｂ２）からなる群より選択される少なくとも１種のワックス（Ｂ）＞

本発明の一実施形態の被覆粒状肥料は、エステル基を有する天然ワックス（ｂ１）およびその変性物（ｂ２）からなる群より選択される少なくとも１種のワックス（Ｂ）を含み、前記被膜１００質量％中、前記ワックス（Ｂ）が８０質量％未満である。

以下、エステル基を有する天然ワックス（ｂ１）およびその変性物（ｂ２）からなる群より選択される少なくとも１種のワックス（Ｂ）を、単に「成分（Ｂ）」とも記す。

[0029] 本発明の一実施形態の被覆粒状肥料は、被膜１００質量％中、成分（Ｂ）を１質量％以上含むことが好ましく、１０質量％以上含むことがより好ましく、２０質量％以上含むことがさらに好ましく、３０質量％以上含むことが最も好ましい。成分（Ｂ）を１質量％以上含む場合、肥料成分の溶出コントロール性に優れる傾向がある。

[0030] 本発明の一実施形態の被覆粒状肥料は、被膜１００質量％中、成分（Ｂ）を８０質量％未満含み、５０質量％以下含むことが好ましく、４０質量％以下含むことがより好ましい。

成分（Ｂ）を８０質量％未満含むことにより、肥料成分の溶出コントロール性に優れる。ワックスの含有量が多すぎると成膜状態が悪くなるため、被覆粒状肥料内の肥料成分のより長期間の溶出コントロール性を得ることができなくなる。

[0031] 成分（Ｂ）において、エステル基を有するとは、天然ワックス（ｂ１）およびその変性物（ｂ２）からなる群より選択される少なくとも１種のワックスが、エステル基を１つ以上有することを指す。

[0032] 天然ワックス（ｂ１）とは、植物系ワックス、鉱物系ワックス、および動物系ワックスを指す。

[0033] 植物系ワックスとしては、例えば、ライスワックス、ひまわり油ワックス、ホホバワックス、大豆油ワックス、トウモロコシ油ワックス、カルナバワックス、キャンデリラワックス、パームワックス、ヤシワックス、キャンデリラワックス、およびカルナバワックスが挙げられる。

[0034] 鉱物系ワックスとしては、例えば、モンタンワックスが挙げられる。

動物系ワックスとしては、例えば、ミツロウ、鯨ロウが挙げられる。

天然ワックス（ｂ１）は、カーボンニュートラルの観点では、植物系ワックスおよび動物系ワックスが好ましく、ライスワックス、ミツロウ、カルナバワックス、キャンデリラワックス、パームワックス、大豆油ワックス、ひまわり油ワックス、および鯨ロウからなる群より選択される少なくとも１種であることがさらに好ましい。

[0035] 変性物（ｂ２）とは、天然ワックス（ｂ１）の変性物を指す。

変性物（ｂ２）としては、例えば、天然ワックスの全部または一部の水素添加物（硬化物とも称す）、酸化物、けん化物、エステル化物、アミド化物等が挙げられるが、水素添加物が好ましい。

[0036] 変性物（ｂ２）として、具体的には、カスターワックス（硬化ひまし油とも称す）、半硬化ひまし油ワックス、水添ライスワックス、水添パーム油ワックス、水添大豆油ワックス、モンタン酸部分けん化エステルワックス等が挙げられ、一般に水添されたワックスが融点が上がり被覆時の成膜性が改善されるため好ましい。また、化粧品などにも使われ広く流通しているため安価で入手がしやすい観点から、カスターワックスが好ましい。

[0037] 成分（Ｂ）は、被膜の欠陥が少なく、良好な被膜が得られ、肥料成分の溶出コントロール性に優れることから、ライスワックス、カスターワックス、モンタンワックス、ミツロウ、カルナバワックス、キャンデリラワックス、パームワックス、大豆油ワックス、およびひまわり油ワックスからなる群より選択される少なくとも１種であることが好ましく、広く普及しており、品質も安定していることから、モンタンワックス、ライスワックスおよびカスターワックスからなる群より選択される少なくとも１種であることがより好

ましく、高い溶出抑制効果を得られることから、ライスワックスおよびカスターワックスからなる群より選択される少なくとも１種であることがさらに好ましく、ライスワックスを構成する親水性の成分と疎水性の成分のバランスが良く、適度な透湿性を有していることから、ライスワックスが最も好ましい。

[0038] 〔酸価〕

酸価とは、油脂中の遊離脂肪酸の量を示し、酸価は、油脂１ｇ中に含まれる遊離脂肪酸を中和するのに要する水酸化カリウムのｍｇ数で表す。

本発明において、成分（Ｂ）は、ＪＩＳＫ００７０に規定する酸価の測定方法において、酸価が０．５～１３０であることが好ましく、３～５５であることがより好ましく、５～２５がさらに好ましい。

[0039] 本発明者らは、成分（Ｂ）の酸価が０．５より低いと、被膜への親水性が低くなり、肥料成分の溶出コントロール性が高まる傾向がある一方で、被膜の環境中における生分解性はあるものの低い傾向であることを見出した。また、酸価が１３０より高いと被膜への親水性が高まり、短期間で肥料成分が完全溶出する傾向がある。

[0040] そして、本発明者らは、環境中における優れた生分解性と、肥料成分の溶出コントロール性との両立について検討を行い、成分（Ｂ）の中でも、酸価が特定の範囲内である場合に、生分解性と溶出コントロール性が特に好ましいことを見出した。

[0041] 成分（Ｂ）は、酸価が低く、肥料成分の溶出コントロール性が高まる観点から、ライスワックス、カスターワックス、カルナバワックス、キャンデリラワックス、およびモンタンワックスからなる群より選択される少なくとも１種であることが好ましく、ライスワックスであることがより好ましい。

[0042] ［ケン化価］

ケン化価とは、油脂中の遊離脂肪酸及びエステルの量を示し、ケン化価は、油脂１ｇ中に含まれるエステルのけん化及び遊離脂肪酸を中和するのに要する水酸化カリウムのｍｇ数で表す。

本発明の一実施形態において、成分（Ｂ）は、ＪＩＳＫ００７０に規定するケン化価の測定方法において、ケン化価が１～１９０であることが好ましく、１～１７０であることがより好ましく、５０～１６０がさらに好ましく、溶出コントロール性に特に優れる観点から、５０～１２０が最も好ましい。

[0043] ライスワックスは、米ぬかからワックス成分を分離および精製する方法の違いにより、酸価が異なるものが流通している。ライスワックスの酸価は、例えば、７～９、１５～２５、４５～５５、１２５～１３５が挙げられる。これらの中でも、溶出コントロール性に特に優れる観点から、ライスワックスの酸価は、７～９、１５～２５、４５～５５が好ましく、水蒸気透過性に影響を及ぼすと考えられる親水性の高い成分が少なく、溶出コントロール性にさらに優れる観点から、７～９、１５～２５がより好ましい。

成分（Ｂ）において、ライスワックスは、酸価が０．５～１３０の範囲内であることが好ましく、０．５～５５の範囲内であることがより好ましく、肥料成分の溶出コントロール性に特に優れる観点から、５～２５の範囲内であることがさらに好ましい。

[0044] 〔生分解性〕

成分（Ｂ）は、上述した生分解性樹脂（Ａ）と同様に、ＪＩＳまたはＩＳＯ規格に準拠して測定した生分解度を有することが確認された成分であればよく、認証を取得しているものが好ましく、その種類は特に限定されない。

成分（Ｂ）は、１種単独で使用してもよく、２種以上を組み合せて用いてもよい。

[0045] ＜粒状肥料＞

本発明の一実施形態で用いる粒状肥料は、窒素、りん酸、加里等の肥料成分を１種以上含むものであればよい。具体的には窒素質肥料、リン酸質肥料、加里質肥料のほか、必要によって植物必須要素のカルシウム、マグネシウム、硫黄、鉄、マンガン、ほう素等の微量要素、ケイ素等を含有する肥料を挙げることができる。また、硝酸化成抑制材、農薬成分等を含む肥料でもよ

い。これらの中でも、水溶解度が大きく環境流出しやすい硫酸アンモニア、尿素、硝酸アンモニア等を含む窒素質肥料、硫酸加里、塩化加里等を含む加里質肥料、尿素、アンモニア性窒素、硝酸性窒素を含む化成肥料等が好ましく、肥料成分当たりの単価が安い尿素がより好ましい。

[0046] 肥料成分は、１種単独で使用してもよく、２種以上を組み合せて用いてもよい。

粒状肥料は、本発明の効果を損なわない範囲で、その他の成分を含んでいてもよい。粒状肥料に含まれるその他の成分としては、例えば、担体、結合剤、界面活性剤、廃糖蜜、動物油、植物油、水素添加油、脂肪酸、脂肪酸金属塩、パラフィン、ワックス、グリセリンが挙げられ、１種単独で用いても、２種以上を組み合わせて用いてもよい。

[0047] 本発明の一実施形態で用いる粒状肥料の製造方法は特に限定されず、公知の造粒法を用いて製造することができる。粒状肥料は、例えば、流動層式造粒法、転動造粒法、被覆造粒法、吸着造粒法等を用いて製造することができる。

[0048] 本発明の一実施形態に用いる粒状肥料の形状は、特に限定されるものではないが、被膜材料を表面に均一に被覆しやすいという観点から、球状が好ましい。

粒状肥料の形状は、具体的には、下記式（２）で求められる円形度係数が、０．７以上１以下が好ましく、０．７５以上１以下がより好ましく、０．８以上１以下が最も好ましい。円形度係数の最大値は１であり、１に近づくほど粒状肥料の粒子は真円に近づき、粒子の形状が真円から崩れるに従って円形度係数は小さくなる。

円形度係数＝｛（４π×粒子の投影面積）／（粒子投影図の輪郭の長さ）^{2}｝

・・・式（２）

[0049] 本発明の一実施形態において、粒状肥料は、平均粒径が好ましくは１～１０ｍｍ、より好ましくは２～５ｍｍである。粒状肥料の平均粒径が前記範囲

内であると、粒状肥料の表面を被覆して被覆粒状肥料を作成しやすくなることから好ましい。

粒状肥料としては、市販の粒状肥料、又は製造した粒状肥料を用いることができ、適宜篩い等を用いることにより、平均粒径を所望の値に調製することができる。

本発明の一実施形態において、平均粒径は、動的画像解析法等の粒度分布計により算出された平均粒径のことを指す。

[0050] 本発明の一実施形態において、市販の粒状肥料としては、例えば、粒状尿素として、ｕｒｅａ（ＰＥＴＲＯＮＡＳ Ｆｅｒｔｉｌｉｚｅｒ（Ｋｅｄａｈ）Ｓｄｎ．Ｂｈｄ社製）、粒状燐安としては、りん安（セントラルグリーン株式会社製）、粒状加里としては、硫酸加里（朝日アグリア株式会社製）を用いることができる。

[0051] ＜被膜＞

本発明の一実施形態の被覆粒状肥料は、粒状肥料と、該粒状肥料表面を被覆する被膜とを有する。

被膜は、生分解性樹脂（Ａ）と、エステル基を有する天然ワックス（ｂ１）およびその変性物（ｂ２）からなる群より選択される少なくとも１種のワックス（Ｂ）とを含み、前記被膜１００質量％中、前記ワックス（Ｂ）が８０質量％未満である。

[0052] 被膜は、生分解性樹脂（Ａ）としてポリブチレンサクシネートと、成分（Ｂ）として、ライスワックスとを含むことが好ましい。好ましい理由は不明であるが、本発明者らは、ライスワックスのアルキル鎖長とエステルのバランスが与えるポリブチレンサクシネートへの親和性が非常に高く、その結果として成膜したときの膜の状態が改善し、被膜強度が上がり溶出制御性が改善するため、生分解性樹脂（Ａ）としてポリブチレンサクシネートと、成分（Ｂ）としてライスワックスとを含むことが好ましいのではないかと推察している。

[0053] 本発明の一実施形態の被覆粒状肥料は、被膜１００質量％中、生分解性樹

脂（Ａ）と、エステル基を有する天然ワックス（ｂ１）およびその変性物（ｂ２）からなる群より選択される少なくとも１種のワックス（Ｂ）との質量比（Ａ／Ｂ）が、８／２～５／５であることが好ましく、７．５／２．５～５／５であることがより好ましく、被膜強度と溶出制御性のバランスに優れることから、７／３～５／５であることがさらに好ましい。

[0054] 本発明の一実施形態の被覆粒状肥料は、被膜１００質量％中、成分（Ａ）を１５～８５質量％含むことが好ましく、成膜性が良好であることから、５０～８０質量％含むことがより好ましい。成分（Ａ）が上記範囲内であると、良好な成膜となる傾向がある。また、成分（Ａ）が８５質量％を上回ると、肥料成分の初期溶出量は少ない傾向にあるが、長期間肥料成分を溶出させるという溶出コントロール性が悪化する傾向がある。

被膜中の成分（Ｂ）の質量が１５質量％より少ないと、成分（Ｂ）による肥料溶出抑制効果が小さくなり、肥料成分の溶出速度が速くなる傾向があると考えられる。

[0055] 成分（Ａ）が１００質量％であり、成分（Ｂ）を全く含まない場合には、肥料成分の初期溶出量は低下するが、長期間肥料成分を溶出させるという、溶出コントロール性が悪くなる傾向がある。

[0056] 本発明の一実施形態の被覆粒状肥料は、被膜１００質量％中、成分（Ｂ）が８０質量％未満である。被膜１００質量％中、成分（Ｂ）を１５～７５質量％含むことが好ましく、肥料成分の溶出コントロール性が良好であることから、２０～５０質量％含むことがより好ましい。被膜１００質量％中の成分（Ｂ）の含有量が１５質量％を下回ると、肥料成分の初期溶出量が多く傾向がある。また、８５質量％を上回ると、被膜強度が不足し、肥料成分の初期溶出量が多くなる傾向がある。

[0057] 被膜には、本発明の効果を損なわない範囲において、その他成分としてフィラーを含んでいてもよい。フィラーとしては、例えば、タルク、マイカ、ハイドロタルサイト等の板状フィラー、炭酸カルシウム、シリカ、クレー、ベントナイト、スメクタイト、モンモリロナイト、各種鉱石粉砕品、硫黄等

の無機物のほか、スターチ、セルロースナノファイバー、カーボン等の有機物フィラー、界面活性剤等の有機物が挙げられる。フィラーは、１種単独で使用してもよいし、２種以上を組み合わせて使用してもよい。

[0058] 比較的安価であることから、フィラーは無機物フィラーが好ましく、被膜の強度が向上し、添加に伴う溶出コントロール性の悪化が少ない傾向があることから、板状フィラーがより好ましく、タルクがさらに好ましい。

[0059] フィラーのメディアン径は、１００μｍ以下が好ましく、１～５０μｍがより好ましい。メディアン径が上記の範囲であると、メディアン径が大きすぎて製膜時に被膜が剥離したり、被覆用樹脂組成物が噴霧ノズル等に詰まる等の問題が起きにくい傾向がある。フィラーは、メディアン径が被膜の厚みより大きくて被膜表面から一部分が突出する場合でも、被膜に一部分が取り込まれて接着している状況であれば、目的は達成される。メディアン径の測定は、例えば前記レーザー回折式粒度分布測定装置ほか公知の方法を用いることができる。

[0060] フィラーを配合する場合、フィラーの種類にもよるが、被膜１００質量％中、フィラーを０～８０質量％含むことが好ましく、０～３０質量％含むことがより好ましい。被膜を形成する材料１００質量％中のフィラーの含有量が８０質量％を上回ると、溶出コントロール性が顕著に悪くなりやすい傾向がある。

[0061] 被膜には、本発明の効果を損なわない範囲において、その他成分として相溶化剤を含んでいてもよい。相溶化剤としては、例えば、無水マレイン酸変性ポリプロピレン、無水マレイン酸変性ポリエチレン等の不飽和カルボン酸変性ポリオレフィン；スチレンまたはαオレフィンと無水マレイン酸またはマレイン酸エステルとの共重合体；ポリオレフィンワックスの脂肪族カルボン酸変成物；ＳＢＳ（スチレン－ブタジエン－スチレン）、ＳＥＢＳ（スチレン－エチレン－ブチレン－スチレン）などのスチレン系熱可塑性エラストマー；ＥＰＲ（エチレン－プロピレン）などのゴム等が挙げられる。

相溶化剤は、１種単独で使用してもよいし、２種以上を組み合わせて使用

してもよい。

[0062] なお、生分解性が低下する観点から、被膜には、成分（Ｂ）以外のワックスは実質的に含まないことが好ましい。被膜には、例えば、ポリエチレンワックス等のポリオレフィンワックス、パラフィン、マイクロクリスタリンワックス等の脂肪族炭化水素系のワックスは、実質的に含まないことが好ましい。

[0063] 被膜には成分（Ｂ）以外のワックスは実質的に含まないとは、各成分の不純物として存在するワックス、または本発明の一実施形態の被覆粒状肥料を製造する際に原料等から混入するものについては、被膜に含まれていてもよいが、被膜に、成分（Ｂ）以外のワックスを意図的に添加しないことを意味する。

[0064] 成分（Ｂ）以外のワックスを実質的に含まないとは、具体的には、本発明の被覆粒状肥料中の成分（Ｂ）以外のワックスの含有量が、被膜１００質量％中、通常は０～１質量％、好ましくは、０～０．５質量％、より好ましくは、０～０．１質量％であることを意味する。

[0065] 本発明の一実施形態において、被覆粒状肥料１００質量％に対する被膜の割合を被覆率と定義し、被覆率は下記式（３）で表すことができる。

被覆率（％）＝（被膜の質量）／（被覆粒状肥料の質量）×１００

・・・式（３）

[0066] なお、被膜の質量は、被覆粒状肥料の質量から、被覆前の粒状肥料の質量を差し引いて算出する。また、各質量は被覆粒状肥料、または被覆前の粒状肥料３５０個の平均値を用いることができる。

本発明の一実施形態の被覆粒状肥料は、被覆粒状肥料１００質量％に対する被膜の割合が、３～２０質量％であることが好ましく、４～１５質量％であることがより好ましく、５～１２質量％であることがさらに好ましい。被膜の割合が前記範囲内にあると、肥料成分の溶出コントロール性に優れるため好ましい。

[0067] 〔肥料成分の溶出コントロール性〕

被覆粒状肥料における肥料成分の溶出コントロール性は、例えば、被覆粒状肥料を水中に浸漬した場合の肥料成分の溶出率（％）で評価することができる。肥料成分の溶出率（％）は、下記式（４）で表すことができる。

溶出率（％）＝（溶出した肥料成分の質量）／（被覆粒状肥料に含まれる肥料成分の質量）×１００

・・・式（４）

[0068] 肥料成分の溶出率は、例えば２５℃の水中に被覆粒状肥料を静置し、経時的に水中に溶出した肥料成分を定量分析することにより測定することができる。肥料成分の定量分析法としては、例えば、農林水産省環境技術研究所より提案されている方法（「詳解肥料分析法」越野正義編著、１９８８年、養賢堂発行）が挙げられる。

肥料成分は一般的に水溶性であり、被膜に欠陥があれば施肥と同時に多くの肥料成分が溶出してしまい、溶出コントロール性としては不充分である。

[0069] 本発明の一実施形態の被覆粒状肥料において、溶出コントロール性は、上記の「詳解肥料分析法」に準拠して、２５℃の水中における７日目の溶出率が１００％未満であることが好ましく、９８％未満であることがより好ましく、８０％未満であることがさらに好ましく、４５％未満であることがさらに好ましく、３０％未満であることがさらに好ましい。

[0070] ＜被覆粒状肥料の製造方法＞

本発明の一実施形態の被覆粒状肥料の製造方法は特に制限されない。被覆粒状肥料は、芯材表面に成分（Ａ）、成分（Ｂ）、および本発明の効果を損なわない範囲でその他成分を含む被膜材料を被覆させることにより製造することができる。

[0071] 被覆粒状肥料は、例えば、溶融分散した被膜材料を芯材表面に噴霧する方法、溶媒に被膜材料を溶解又は分散させた被膜材料を芯材表面に噴霧する方法（溶解液噴霧法）、モノマーを芯材表面に噴霧し、表面で反応させて樹脂化（被膜化）する方法、さらに、被膜材料に芯材を浸すディップ法などの公知の技術を用いて製造することができる。これらのなかでも、溶解液噴霧法

が好ましい。

[0072] 溶媒に被膜材料を溶解又は分散させる場合、溶媒は、被膜材料を溶解又は分散させることができれば特に制限はないが、３０℃以上、１５０℃以下の沸点を持つ溶媒が好ましい。沸点が３０℃を下回ると、凝縮回収が難しく、１５０℃を上回ると、乾燥が難しい。不燃又は難燃性の観点から、ハロゲン系の溶媒又は水が好ましく、ハロゲン系の溶媒としては、ジクロロメタン、クロロホルム、ジクロロエタン、トリクロロエタン、トリクロロエチレン、パークロロエチレンなどが挙げられる。溶媒は混合して使用する事も可能である。環境への影響の観点からハロゲン系以外の溶媒が好ましく、トルエン、キシレン、アセトン、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン、酢酸エチル、酢酸イソプロピル、酢酸ブチル、テトラヒドロフラン、ジメトキシエタン、ジエトキシエタンなどが挙げられる。

[0073] 被覆に用いる装置は特に制限されず、被覆方法として、例えば、パン被覆法、噴流層被覆法、流動層被覆法、転動被覆法、ドライ被覆法、或いはこれらの組み合せた方法などを採用する装置が挙げられる。本発明では噴流層被覆法又は流動層被覆法を用いることが好ましい。

実施例

[0074] 次に本発明の一実施形態について実施例を示してさらに詳細に説明するが、本発明はこれらによって限定されるものではない。なお、特にことわりのない限り、以下の実施例における「％」は質量％を意味する。

[0075] ＜材料の準備＞

実施例および比較例では、市販品を用いて被覆粒状肥料を作成した。物性は以下のとおりである。

[0076] 〔粒状肥料〕

粒状尿素（ＰＥＴＲＯＮＡＳ Ｆｅｒｔｉｌｉｚｅｒ（Ｋｅｄａｈ）Ｓｄｎ． Ｂｈｄ社製）、円形度係数０．９

[0077] 〔成分（Ａ）〕

・ポリブチレンサクシネート（ＰＢＳ－１とも記す）

三菱ケミカル株式会社製ＢｉｏＰＢＳ™　ＦＺ９１、密度１．２６ｇ／ｃｍ^3（ＩＳＯ１１８３）、融点１１５℃（ＩＳＯ３１４６）、メルトフローレート（ＭＦＲ：１９０℃、２．１６ｋｇ）０．１～３０。ＪＢＰＡの生分解性プラポジティブリスト　分類番号Ａ－１（生分解性合成高分子化合物）に記載されており、生分解の認証を受けた商品である。

・ポリブチレンアジペートテレフタレート（ＰＢＡＴ－１とも記す）

ＢＡＳＦ株式会社製ＥＣＯＦＬＥＸ™、密度１．２６ｇ／ｃｍ^3（ＩＳＯ１１８３）、融点１１０－１２０℃（ＩＳＯ３１４６）、メルトフローレート（ＭＦＲ：１９０℃、２．１６ｋｇ）２．７～４．９。ＪＢＰＡの生分解性プラポジティブリスト　分類番号Ａ－１（生分解性合成高分子化合物）に記載されており、生分解の認証を受けた商品である。

・ポリ乳酸（ＰＬＡ－１とも記す）

Ｎａｔｕｒｅ　Ｗｏｒｋｓ株式会社製４０６０Ｄ、密度１．２４ｇ／ｃｍ^3（ＩＳＯ１１８３）、融点１６０℃（ＩＳＯ３１４６）、メルトフローレート（ＭＦＲ：１９０℃、２．１６ｋｇ）１０。ＪＢＰＡの生分解性プラポジティブリスト　分類番号Ａ－１（生分解性合成高分子化合物）に記載されており、生分解の認証を受けた商品である。

[0078]　〔成分（Ｂ）〕

・ライスワックス（ＲＢＷ－１とも記す）

酸価（ｍｇＫＯＨ／ｇ）１５－２５、ケン化価（ｍｇＫＯＨ／ｇ）９２．５、融点（℃）約７９。ＴＵＶの生分解性の認証を取得している材料を使用した。

・ライスワックス（ＲＢＷ－２とも記す）

酸価（ｍｇＫＯＨ／ｇ）１３０、ケン化価（ｍｇＫＯＨ／ｇ）１７０、融点（℃）７８。ＴＵＶの生分解性の認証を取得している材料を使用した。

・カスターワックス（Ｃ　Ｗａｘとも記す）

酸価（ｍｇＫＯＨ／ｇ）３、ケン化価（ｍｇＫＯＨ／ｇ）１７５－１８６、融点（℃）８６。ＪＩＳ　Ｋ６９５５（ＩＳＯ　１７５５６）に準拠して

、１８０日以内に６０％以上の生分解度を有することを確認した。

・ライスワックス（ＲＢＷ－３とも記す）

酸価（ｍｇＫＯＨ／ｇ）４５－５５、ケン化価（ｍｇＫＯＨ／ｇ）１１５、融点（℃）約７８。ＴＵＶの生分解性の認証を取得している材料を使用した。

[0079] ・ライスワックス（ＲＢＷ－４とも記す）

酸価（ｍｇＫＯＨ／ｇ）８．８、ケン化価（ｍｇＫＯＨ／ｇ）８０、融点（℃）約８０．２。ＪＩＳ　Ｋ６９５５（ＩＳＯ　１７５５６）に準拠して、１８０日以内に６０％以上の生分解度を有することを確認した。

・モンタンワックス（ＭｏＷ－１とも記す）

酸価（ｍｇＫＯＨ／ｇ）１３－２５、ケン化価（ｍｇＫＯＨ／ｇ）１８０、融点（℃）７３－７９。ＪＩＳ　Ｋ６９５５（ＩＳＯ　１７５５６）に準拠して、１８０日以内に６０％以上の生分解度を有することを確認した。

・モンタンワックス（ＭｏＷ－２とも記す）

酸価（ｍｇＫＯＨ／ｇ）１２１．５、ケン化価（ｍｇＫＯＨ／ｇ）１５５、融点（℃）７９－８５。ＪＩＳ　Ｋ６９５５（ＩＳＯ　１７５５６）に準拠して、１８０日以内に６０％以上の生分解度を有することを確認した。

・モンタンワックス（ＭｏＷ－３とも記す）

酸価（ｍｇＫＯＨ／ｇ）１４３．５、ケン化価（ｍｇＫＯＨ／ｇ）１７０、融点（℃）７９－８５。ＪＩＳ　Ｋ６９５５（ＩＳＯ　１７５５６）に準拠して、１８０日以内に６０％以上の生分解度を有することを確認した。

・キャンデリラワックス（ＣａｎＷ－１とも記す）

酸価（ｍｇＫＯＨ／ｇ）１７．９、融点（℃）７１．５。ＪＩＳ　Ｋ６９５５（ＩＳＯ　１７５５６）に準拠して、１８０日以内に６０％以上の生分解度を有することを確認した。

・カルナバワックス（ＣａｒＷ－１とも記す）

酸価（ｍｇＫＯＨ／ｇ）７．５、融点（℃）８３．５。ＪＩＳ　Ｋ６９５５（ＩＳＯ　１７５５６）に準拠して、１８０日以内に６０％以上の生分解

度を有することを確認した。

[0080] 〔その他〕

・ポリエチレンワックス（ＰＥ（１０００）とも記す）

重量平均分子量（Ｍｗ）約１０００、酸価（ｍｇＫＯＨ／ｇ）０、融点（℃）１１０。ＪＩＳ　Ｋ６９５５（ＩＳＯ　１７５５６）に準拠して、１８０日以内にほとんど生分解しないことを確認した。

[0081] ＜実施例１～１４、比較例１～２＞

（実施例１）

〔被覆粒状肥料の製造〕

図１に示す製造装置を用いて、次の方法により粒状肥料（粒状尿素）の表面を被覆した。

図１の製造装置内では、熱風が流動層１の下部から上部に向けて流れ、集塵機６を通過し、コンデンサー７でガスを冷却し、溶媒を凝縮回収した。コンデンサー７を通過したガスはブロワー８からヒーター１２を通過して加熱され、熱風として再度流動層１へ導かれるように循環していた。

[0082] 粒子３として、粒状尿素（ＰＥＴＲＯＮＡＳ　Ｆｅｒｔｉｌｉｚｅｒ（Ｋｅｄａｈ）Ｓｄｎ．　Ｂｈｄ社製の「ｕｒｅａ」を、粒子径３．０～４．０ｍｍになるように篩い分けたもの、平均粒径３．３ｍｍ、円形度係数０．９）を用いた。

粒子径、及び平均粒径は、動的画像解析法（Ｍｉｌｌｉｔｒａｃ　ＪＰＡ：日機装株式会社製）にて測定した。

[0083] 粒状尿素４００ｇを流動層１の側面に設置されている投入口から投入し、流動層１下部より導入される熱風及び流動層１底部に設置される攪拌翼で流動状態にした。この際、粒子温度が６０±２℃になるように、熱風流量及び熱風温度を調節した。熱風流量はブロワー８と流動層１の間に設置した流量計で測定しながら調節し、熱風温度は粒子温度および排気温度（流動層１上部温度）を測定しながら調節した。

[0084] 図１の溶解槽９に被膜材料としてポリブチレンサクシネート（ＰＢＳ－１

）６０質量％と、ライスワックス（ＲＢＷ－１）４０質量％と、被覆液の溶媒としてトリクロロエチレン３２００質量％とを投入し、８０±２℃で９０分間混合撹拌することによって均一に溶解し、均一な噴霧液５を調製した。また、被覆が終了するまで溶解槽９は常時攪拌した。

[0085] 噴霧液５を流動層１の上部に設置されているスプレーノズル２に流速約３５．５ｍｌ／分で輸送し、流動中の粒状尿素に噴霧し吹き付けた。吹き付けられた噴霧液に含まれるトリクロロエチレンはコンデンサー７により凝縮・回収されてタンク１１で貯蔵され、溶解槽９へ導かれた。

[0086] 前述の被覆操作は流動中の粒状尿素の温度が６０℃に達した時点から開始し、被覆率が８．４質量％となるまで行った。その後、粒子温度を６０±２℃に維持することに留意して、熱風の温度調節をしながら１０分間熱風のみを吹き付けて乾燥を実施した。

乾燥が終了した時点で被覆された粒状尿素を流動層１の最下部にある抜き出し口１３より排出した後、０．５～１時間の通風処理を行なうことで脱気してトリクロロエチレンを除去し、被覆粒状肥料を得た。

得られた被覆粒状肥料の被膜は、ＪＩＳ　Ｋ６９５５（ＩＳＯ　１７５５６）に準拠して、生分解性があることを確認した。

[0087] 被覆粒状肥料の製造条件を要約すると以下の通りである。

粒状尿素：４００ｇ

被覆中の粒子温度：６０℃

溶解温度：７９±２℃

噴霧液温度：７９±２℃

熱風温度：７０～８０℃

スプレー流速：３５．５ｍｌ／分

被覆率：８．４％

[0088] 〔被覆率〕

被覆率は下記式（５）により算出した。

被覆率（％）＝（被膜の質量）／（被覆粒状肥料の質量）×１００

・・・式（５）

なお、被膜材料の質量は、被覆粒状肥料の質量から、被覆前の粒状肥料の質量を差し引いて算出した。また、各質量は被覆粒状肥料、または被覆前の粒状肥料３５０個の平均値を用いた。

[0089] （実施例２）

溶解槽９に、被膜材料としてＰＢＳ－１を６０質量％、Ｃ　Ｗａｘを４０質量％投入した以外は、実施例１と同様にして、被覆粒状肥料を得た。

（実施例３）

溶解槽９に、被膜材料としてＰＢＳ－１を８０質量％、ＲＢＷ－１を２０質量％投入した以外は、実施例１と同様にして、被覆粒状肥料を得た。

（実施例４）

溶解槽９に、被膜材料としてＰＢＳ－１を６０質量％、ＲＢＷ－２を４０質量％投入した以外は、実施例１と同様にして、被覆粒状肥料を得た。

（実施例５）

溶解槽９に、被膜材料としてＰＢＳ－１を９０質量％、ＲＢＷ－１を１０質量％投入した以外は、実施例１と同様にして、被覆粒状肥料を得た。

（比較例１）

溶解槽９に、被膜材料として、ＰＢＳ－１を２０質量％、ＲＢＷ－１を８０質量％投入した以外は、実施例１と同様にして、被覆粒状肥料を得た。

（比較例２）

溶解槽９に、被膜材料として、ＰＢＳ－１を６０質量％、ＰＥ（１０００）を４０質量％投入した以外は、実施例１と同様にして、被覆粒状肥料を得た。

[0090] （実施例６）

溶解槽９に、被膜材料としてＰＢＳ－１を６０質量％、ＲＢＷ－３を４０質量％投入した以外は、実施例１と同様にして、被覆粒状肥料を得た。

（実施例７）

溶解槽９に、被膜材料としてＰＢＳ－１を６０質量％、ＲＢＷ－４を４０

質量％投入した以外は、実施例１と同様にして、被覆粒状肥料を得た。

（実施例８）

溶解槽９に、被膜材料としてＰＢＳ－１を６０質量％、ＭｏＷ－１を４０質量％投入した以外は、実施例１と同様にして、被覆粒状肥料を得た。

（実施例９）

溶解槽９に、被膜材料としてＰＢＳ－１を６０質量％、ＭｏＷ－２を４０質量％投入した以外は、実施例１と同様にして、被覆粒状肥料を得た。

（実施例１０）

溶解槽９に、被膜材料としてＰＢＳ－１を６０質量％、ＣａｎＷ－１を４０質量％投入した以外は、実施例１と同様にして、被覆粒状肥料を得た。

[0091] （実施例１１）

溶解槽９に、被膜材料としてＰＢＳ－１を６０質量％、ＣａｒＷ－１を４０質量％投入した以外は、実施例１と同様にして、被覆粒状肥料を得た。

（実施例１２）

溶解槽９に、被膜材料としてＰＢＡＴ－１を６０質量％、ＲＢＷ－１を４０質量％投入した以外は、実施例１と同様にして、被覆粒状肥料を得た。

（実施例１３）

溶解槽９に、被膜材料としてＰＬＡ－１を６０質量％、ＲＢＷ－１を４０質量％投入した以外は、実施例１と同様にして、被覆粒状肥料を得た。

（実施例１４）

溶解槽９に、被膜材料としてＰＢＳ－１を６０質量％、ＭｏＷ－３を４０質量％投入した以外は、実施例１と同様にして、被覆粒状肥料を得た。

[0092] 〔溶出率の測定〕

実施例及び比較例で得られた被覆粒状肥料について、肥料成分の水中への溶出率を測定した。

実施例及び比較例の被覆粒状肥料を１０ｇと、あらかじめ２５℃に調整をしておいた蒸留水２００ｍｌとを２５０ｍｌの蓋付きポリ容器に加え、２５℃設定のインキュベーター内に静置した。７日後、該容器から水を全て抜き

取り、抜き取った水に含まれる尿素量（尿素溶出量）を定量分析（ジメチルアミノベンズアルデヒド法「詳解肥料　分析法　第二改訂版」越野正義編著　１９８８年　養賢堂）により求め、溶出した尿素量とした。

別途、予め同一ロットの被覆粒状肥料に含まれる尿素含有量もジメチルベンズアルデヒド法で測定した。下記式（６）により、溶出率を算出した。

溶出率（％）＝（溶出した尿素量）／（被覆粒状肥料に含まれる尿素量）×１００

・・・式（６）

２５℃の水中における７日目の溶出率を表１に示す。

[0093] 〔評価〕

肥料成分の溶出コントロール性について、上記の溶出率の測定結果に基づき、以下の基準で評価した。また、生分解性について、成分（Ｂ）の生分解度に基づき評価した。

・溶出コントロール性

〇：溶出率が８０％未満であり、溶出コントロール性に優れる

△：溶出率が９８％未満～８０％以上であり、溶出コントロール性がある

×：溶出率が９８％以上であり、溶出コントロール性が無い

・生分解性

〇：ＪＩＳまたはＩＳＯ規格に準拠して測定した生分解度を有することが確認された

×：ＪＩＳまたはＩＳＯ規格に準拠して測定した生分解度を有することが確認できなかった

・総合評価

◎＝溶出コントロール性および生分解性のどちらも評価が〇であった

〇＝溶出コントロール性の評価が△であり、生分解性の評価が〇であった

×＝溶出コントロール性または生分解性のどちらかに×があった

[0094] [表1]

	被膜［質量%］													溶出率	評価		
	生分解性樹脂（A）			ワックス（B）											溶出コントロール性	生分解性	総合評価
	PBS-1	PBAT-1	PLA-1	RBW-1	RBW-2	RBW-3	RBW-4	MoW-1	MoW-2	MoW-3	CanW-1	CarW-1	C Wax	PE(1000)			
実施例1	60	0	0	40	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	1.8	○	○	◎
実施例2	60	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	40	0	6.1	○	○	◎
実施例3	80	0	0	20	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	28.4	○	○	◎
実施例4	60	0	0	0	40	0	0	0	0	0	0	0	0	0	96.0	△	○	○
実施例5	90	0	0	10	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	84.1	△	○	○
比較例1	20	0	0	80	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	100.0	×	○	×
比較例2	60	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	40	0.2	○	×	×
実施例6	60	0	0	0	0	40	0	0	0	0	0	0	0	0	20.0	○	○	◎
実施例7	60	0	0	0	0	0	40	0	0	0	0	0	0	0	1.5	○	○	◎
実施例8	60	0	0	0	0	0	0	40	0	0	0	0	0	0	15.5	○	○	◎
実施例9	60	0	0	0	0	0	0	0	40	0	0	0	0	0	72.0	○	○	◎
実施例10	60	0	0	0	0	0	0	0	0	0	40	0	0	0	9.2	○	○	◎
実施例11	60	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	40	0	0	5.8	○	○	◎
実施例12	0	60	0	40	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	88.2	△	○	○
実施例13	0	0	60	40	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	81.0	△	○	○
実施例14	60	0	0	0	0	0	0	0	0	40	0	0	0	0	96.5	△	○	○

[0095] 〔考察〕

表１より、実施例１によると、ポリブチレンサクシネート（ＰＢＳ－１）

とライスワックス（ＲＢＷ－１）を組み合わせると、溶出コントロール性と生分解性が優れることがわかる。

[0096] 実施例２によると、成分（Ｂ）をカスターワックス（Ｃ　Ｗａｘ）に変更しても、溶出コントロール性と生分解性が優れることが分かる。

実施例３によると、成分（Ａ）と成分（Ｂ）の質量比（Ａ／Ｂ）が８／２の場合に、溶出コントロール性と生分解性が優れることが分かる。

実施例１と実施例４を比較すると、成分（Ｂ）を酸価の高いライスワックス（ＲＢＷ－２）にしても、溶出コントロール性と生分解性はどちらも確保できるが、酸価の低いライスワックス（ＲＢＷ－１）のほうが、溶出コントロール性に優れる傾向にあることが分かる。

実施例３と実施例５を比較すると、ライスワックス（ＲＢＷ－１）が１０質量％であることで、溶出コントロール性と生分解性はどちらも確保できるが、被膜におけるライスワックスの質量が多いほうが溶出コントロール性に優れる傾向にあることが分かる。

[0097] 比較例１によると、ライスワックス（ＲＢＷ－１）の質量比が８０質量％を超えると、溶出コントロール性を確保できないことがわかる。

比較例２によると、成分（Ｂ）の代わりにポリエチレンワックス（ＰＥ（１０００））を使用すると、生分解性が著しく損なわれることが分かる。

請求の範囲

[請求項1] 粒状肥料と、該粒状肥料表面を被覆する被膜とを有し、前記被膜が、生分解性樹脂（Ａ）と、エステル基を有する天然ワックス（ｂ１）およびその変性物（ｂ２）からなる群より選択される少なくとも１種のワックス（Ｂ）とを含み、

前記被膜１００質量％中、前記ワックス（Ｂ）が８０質量％未満である、被覆粒状肥料。

[請求項2] 前記ワックス（Ｂ）が、ライスワックス、カスターワックス、モンタンワックス、ミツロウ、カルナバワックス、キャンデリラワックス、パームワックス、大豆油ワックス、およびひまわり油ワックスからなる群より選択される少なくとも１種である、請求項１に記載の被覆粒状肥料。

[請求項3] 前記ワックス（Ｂ）が、下記要件（ｉ）を満たす、請求項１又は２に記載の被覆粒状肥料；

（ｉ）ＪＩＳＫ００７０に規定する酸価の測定方法において、酸価が０．５～１３０である。

[請求項4] 前記生分解性樹脂（Ａ）が、ポリブチレンサクシネート、ポリ乳酸、ポリブチレンアジペートテレフタレート、ポリヒドロキシアルカン酸、酢酸セルロース、およびポリカプロラクトンからなる群より選択される少なくとも１種である、請求項１に記載の被覆粒状肥料。

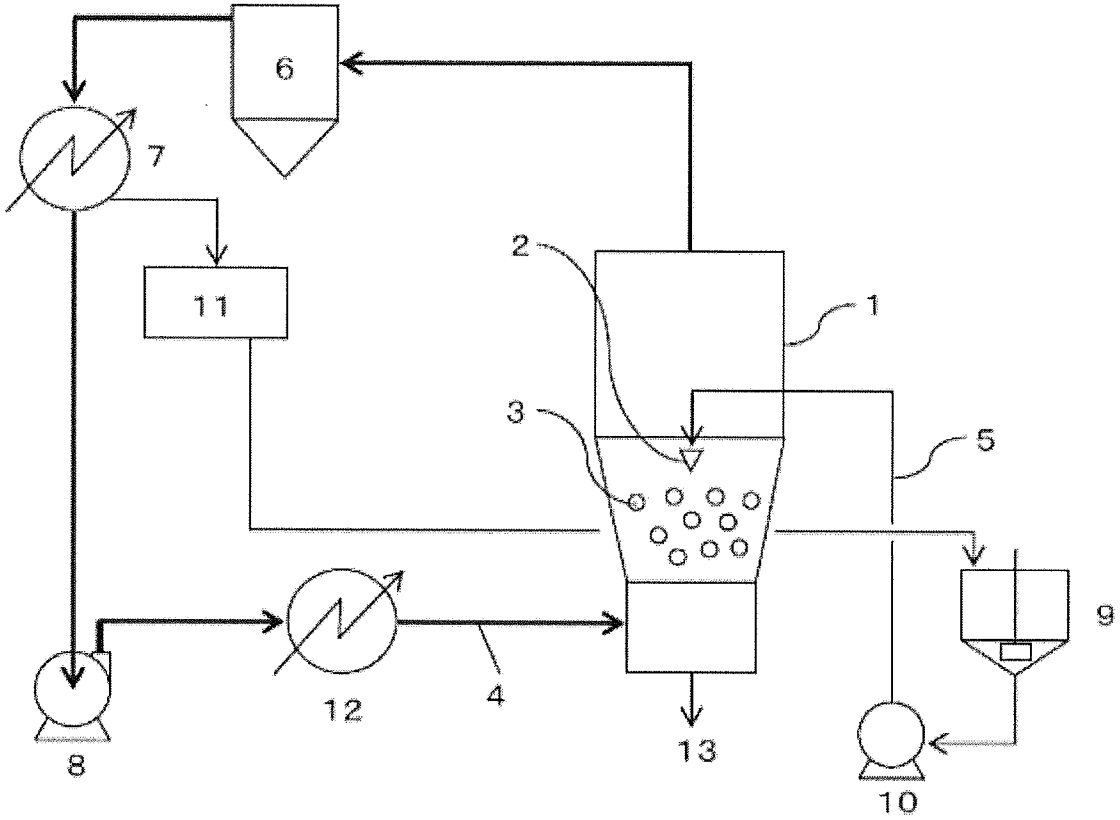
[請求項5] 前記生分解性樹脂（Ａ）が、下記要件（ｉｉ）を満たす、請求項１に記載の被覆粒状肥料；

（ｉｉ）ＩＳＯ１１３３に準拠して、１９０℃、２．１６ｋｇ荷重で測定したメルトフローレート（ＭＦＲ）が０．１～３０ｇ／１０分の範囲にある。

[請求項6] 被膜１００質量％中、前記生分解性樹脂（Ａ）と、前記ワックス（Ｂ）との質量比（Ａ／Ｂ）が、８／２～５／５である、請求項１又は２に記載の被覆粒状肥料。

［請求項7］　前記被覆粒状肥料１００質量％に対する、前記被膜の割合が３～２０質量％である、請求項１又は２に記載の被覆粒状肥料。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2024/016199

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C05G 5/30(2020.01)i; ***B01J 2/00***(2006.01)i; ***C05G 5/10***(2020.01)i
FI: C05G5/30 ZBP; C05G5/10; B01J2/00 B; B01J2/00 C

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)

C05G5/30; B01J2/00; C05G5/10

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 1971-2024
Registered utility model specifications of Japan 1996-2024
Published registered utility model applications of Japan 1994-2024

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

CAplus/REGISTRY (STN)JSTPlus/JMEDPlus/JST7580 (JDreamIII)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2019-084522 A (JCAM AGRI CO., LTD.) 06 June 2019 (2019-06-06) claims, paragraphs [0034], [0059]-[0079]	1-7
A	JP 2003-192482 A (UBE INDUSTRIES, LTD.) 09 July 2003 (2003-07-09) claims, paragraphs [0050]-[0086]	1-7
A	JP 2002-145691 A (UBE INDUSTRIES, LTD.) 22 May 2002 (2002-05-22) claims, paragraphs [0046]-[0123]	1-7
A	JP 2000-143379 A (DAICEL CHEM. IND. LTD.) 23 May 2000 (2000-05-23) claims, paragraphs [0018]-[0032]	1-7
A	EL, Mouat, A. et al. Exploiting poly(ε-caprolactone) grafted from hydrohydroxymethylated sunflower oil as biodegradable coating material of water-soluble fertilizers, Progress in Organic Coatings, (2023), vol. 179, pp. Null , doi: 10.1016/j.porgcoat.2023.107513 abstract	1-7

☑ 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
"D" document cited by the applicant in the international application
"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
20 June 2024	**02 July 2024**

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

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2024/016199

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2023-009027 A (JCAM AGRI CO., LTD.) 19 January 2023 (2023-01-19) claims, paragraphs [0045]-[0063]	1-7

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2024/016199

Patent document cited in search report	Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP 2019-084522 A	06 June 2019	(Family: none)	
JP 2003-192482 A	09 July 2003	(Family: none)	
JP 2002-145691 A	22 May 2002	(Family: none)	
JP 2000-143379 A	23 May 2000	US 2002/0094444 A1 claims, paragraphs [0753]-[1147] WO 1999/063001 A1 EP 1008629 A1	
JP 2023-009027 A	19 January 2023	(Family: none)	

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2024/016199

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

C05G 5/30(2020.01)i; B01J 2/00(2006.01)i; C05G 5/10(2020.01)i
FI: C05G5/30 ZBP; C05G5/10; B01J2/00 B; B01J2/00 C

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））

C05G5/30; B01J2/00; C05G5/10

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	１９７１－２０２４年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０２４年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０２４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）

CAplus/REGISTRY (STN)JSTPlus/JMEDPlus/JST7580 (JDreamIII)

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 2019-084522 A (ジェイカムアグリ株式会社) 06.06.2019 (2019-06-06) 特許請求の範囲、段落[0034], [0059]-[0079]等	1-7
A	JP 2003-192482 A (宇部興産株式会社) 09.07.2003 (2003-07-09) 特許請求の範囲、段落[0050]-[0086]等	1-7
A	JP 2002-145691 A (宇部興産株式会社) 22.05.2002 (2002-05-22) 特許請求の範囲、段落[0046]-[0123]等	1-7
A	JP 2000-143379 A (ダイセル化学工業株式会社) 23.05.2000 (2000-05-23) 特許請求の範囲、段落[0018]-[0032]等	1-7
A	EL MOUAT, A. et al., Exploiting poly(ε-caprolactone) grafted from hydrohydroxymethylated sunflower oil as biodegradable coating material of water-soluble fertilizers, Progress in Organic Coatings, (2023), vol.179, pp. Null , doi : 10.1016/j.porgcoat.2023.107513 ABSTRACT等	1-7

☑ 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
"D" 国際出願で出願人が先行技術文献として記載した文献
"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	国際調査報告の発送日
20.06.2024	02.07.2024

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）

井上　恵理 4V 4767

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 2023-009027 A (ジェイカムアグリ株式会社) 19.01.2023 (2023-01-19) 特許請求の範囲、段落[0045]-[0063]等	1-7

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/JP2024/016199

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP 2019-084522 A	06.06.2019	（ファミリーなし）	
JP 2003-192482 A	09.07.2003	（ファミリーなし）	
JP 2002-145691 A	22.05.2002	（ファミリーなし）	
JP 2000-143379 A	23.05.2000	US 2002/0094444 A1 CLAIMS, 段落[0753]-[[1147]等 WO 1999/063001 A1 EP 1008629 A1	
JP 2023-009027 A	19.01.2023	（ファミリーなし）	