

【公報種別】特許法第17条の2の規定による補正の掲載

【部門区分】第3部門第3区分

【発行日】令和4年10月31日(2022.10.31)

【国際公開番号】WO2021/176941

【出願番号】特願2022-505059(P2022-505059)

【国際特許分類】

C 0 8 J 3/16(2006.01)

【F I】

C 0 8 J 3/16

C F D

10

【手続補正書】

【提出日】令和4年8月16日(2022.8.16)

【手続補正1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】

20

(a) pHが7以下であるポリヒドロキシアルカン酸水性懸濁液を調製する工程、および

(b) 前記工程(a)で調製したポリヒドロキシアルカン酸水性懸濁液を、二軸押出機中で設定温度80～300℃で加熱して、ポリヒドロキシアルカン酸を凝集させる工程、を含む、ポリヒドロキシアルカン酸の製造方法。

【請求項2】

前記工程(b)における加熱方法が、二軸押出機ヒーターを用いる方法、および／または加圧蒸気を二軸押出機内に直接投入する方法である、請求項1に記載のポリヒドロキシアルカン酸の製造方法。

【請求項3】

30

以下の式(1)で示される値が、50～20000である、請求項1または2に記載のポリヒドロキシアルカン酸の製造方法。

前記工程(b)で得られたポリヒドロキシアルカン酸凝集体の体積メジアン径／ポリヒドロキシアルカン酸1次粒子の体積メジアン径・・・(1)

【請求項4】

前記工程(a)において、ポリヒドロキシアルカン酸水性懸濁液中のポリヒドロキシアルカン酸濃度が、30～70重量％である、請求項1～3のいずれか1項に記載のポリヒドロキシアルカン酸の製造方法。

【請求項5】

前記二軸押出機のスクリュウの回転数が、30～1000rpmである、請求項1～4のいずれか1項に記載のポリヒドロキシアルカン酸の製造方法。

40

【請求項6】

前記二軸押出機中の圧力が、0.01～0.5Mpaである、請求項1～5のいずれか1項に記載のポリヒドロキシアルカン酸の製造方法。

【請求項7】

前記二軸押出機のスクリュウの一部が、逆送り作用を有するスクリュウである、請求項1～6のいずれか1項に記載のポリヒドロキシアルカン酸の製造方法。

【請求項8】

97重量％以上のポリヒドロキシアルカン酸を含み、かつ、体積メジアン径が300μm以上である、ポリヒドロキシアルカン酸凝集体。

50

## 【手続補正 2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0009

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0009】

また、本発明の一態様は、97重量%以上のポリヒドロキシアルカン酸を含み、かつ、体積メジアン径が300 $\mu$ m以上である、ポリヒドロキシアルカン酸凝集体に関する。

## 【手続補正 3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0033

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0033】

本製造方法の工程(a)において、PHA水性懸濁液のpHの調整は、二軸押出機に投入される前に行われてもよいし、二軸押出機に投入された後に行われてもよい。二軸押出機に投入された後に行われる場合には、まず、PHA水性懸濁液を二軸押出機に投入した後に、上述の酸等を二軸押出機に投入することにより、PHA水性懸濁液のpHを7以下に調整することができる。酸等の投入は、PHA水性懸濁液が二軸押出機中で加熱される前に行われることが好ましい。それにより、二軸押出機における加熱溶解時の着色が低減され、かつ、加熱時および／または乾燥時の分子量低下が抑制されたPHA凝集体を得ることができる。

## 【手続補正 4】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0042

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0042】

本発明の一実施形態において、工程(b)における二軸押出機中の圧力は、熱融着によりPHA凝集体が得られる圧力であれば特に限定されないが、例えば、0.01~0.5Mpaであり、好ましくは、0.05~0.5Mpaであり、より好ましくは、0.08~0.5Mpaである。二軸押出機が戻しスクリュウを備える場合には、上述の通り、二軸押出機中の圧力は高くなる傾向がある。二軸押出機が戻しスクリュウを備える場合の工程(b)における二軸押出機中の圧力は、例えば、0.1~0.5Mpaであり、好ましくは、0.2~0.5Mpaであり、より好ましくは、0.25~0.5Mpaである。

## 【手続補正 5】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0045

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0045】

上述の通り、本製造方法により、PHA凝集体を得ることができる。ここで、PHA凝集体が得られたことは、以下の式(1)で示される値を指標として示すことができる：

前記工程(b)で得られたPHA凝集体の体積メジアン径／PHA1次粒子の体積メジアン径・・・(1)

なお、本明細書において、「PHA1次粒子」とは、工程(a)で調製されたポリヒドロキシアルカン酸水性懸濁液に含まれるPHAの粒子を意味する。また、「PHA凝集体の体積メジアン径」は、「PHA凝集体の平均粒径」と称することもできる。さらに、「PHA1次粒子の体積メジアン径」は、「PHA1次粒子径」と称することもできる。

## 【手続補正 6】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0052

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0052】

試料であるPHA水性懸濁液は、PHA水性懸濁液投入部10から二軸押出機へ投入される。本実施形態1では、二軸押出機への投入前のPHA水性懸濁液のpHは、7以下に調整されている。すなわち、pHが7以下であるPHA水性懸濁液が二軸押出機へ投入される。PHA水性懸濁液の二軸押出機への投入量は、弁8により調節される。押出機内部領域1へ投入されたPHA水性懸濁液は、スクリュウ2により、押し出し部（排出部）5に向かつて移送される。移送の間、加熱ヒーター3による一定温度での加熱により、PHA水性懸濁液の水分が蒸発する。PHA水性懸濁液中のPHAは、熱融着により結合し、PHA凝集体として押し出し部（排出部）5から排出される。本実施形態1では、最も簡便にPHA水性懸濁液からPHA凝集体を得ることができる。

10

【手続補正7】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0055

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0055】

試料であるPHA水性懸濁液は、PHA水性懸濁液投入部10から二軸押出機へ投入される。本実施形態2では、二軸押出機への投入前のPHA水性懸濁液のpHは、7以下に調整されていない。すなわち、pHが7より大きいPHA水性懸濁液が二軸押出機へ投入される。押出機内部領域1へ投入されたPHA水性懸濁液は、酸投入部11からの酸の投入により、pHが7以下に調整される。投入される酸の量は、弁8により調節される。pHが7以下に調整されたPHA水性懸濁液は、実施形態1と同様に、スクリュウ2により、押し出し部（排出部）5に向かつて移送され、PHA凝集体が得られる。本実施形態2では、PHA水性懸濁液のpHの調整と、PHA水性懸濁液の乾燥とを、押出機内部領域1でまとめて行うことができる。

20

【手続補正8】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0059

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0059】

また、実施形態3の変形例として、実施形態2に記載の酸投入部11および弁8を設ける態様が挙げられる。この変形例では、pHが7以下に調整されていない（pHが7より大きい）PHA水性懸濁液を二軸押出機へ投入し、当該二軸押出機中でPHA水性懸濁液のpHを7以下に調整することができる。

30

【手続補正9】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0063

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0063】

また、実施形態4の変形例として、実施形態2に記載の酸投入部11および弁8を設ける態様が挙げられる。この変形例では、pHが7以下に調整されていない（pHが7より大きい）PHA水性懸濁液を二軸押出機へ投入し、当該二軸押出機中でPHA水性懸濁液のpHを7以下に調整することができる。

40

【手続補正10】

50

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0066

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0066】

また、実施形態5の変形例として、実施形態2に記載の酸投入部11および弁8を設ける態様が挙げられる。この変形例では、pHが7以下に調整されていない（pHが7より大きい）PHA水性懸濁液を二軸押出機へ投入し、当該二軸押出機中でPHA水性懸濁液のpHを7以下に調整することができる。

【手続補正11】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0070

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0070】

さらに、実施形態6の変形例として、実施形態2に記載の酸投入部11および弁8を設ける態様が挙げられる。この変形例では、pHが7以下に調整されていない（pHが7より大きい）PHA水性懸濁液を二軸押出機へ投入し、当該二軸押出機中でPHA水性懸濁液のpHを7以下に調整することができる。

【手続補正12】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0081

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0081】

すなわち、本発明の一実施形態は、以下である。

<1> (a) pHが7以下であるPHA水性懸濁液を調製する工程、および

(b) 前記工程(a)で調製したPHA水性懸濁液を、二軸押出機中で設定温度80～300℃で加熱して、PHAを凝集させる工程、を含む、PHAの製造方法。

<2> 前記工程(b)における加熱方法が、二軸押出機ヒーターを用いる方法、および／または加圧蒸気を二軸押出機内に直接投入する方法である、<1>に記載のポリヒドロキシアルカン酸の製造方法。

<3> 以下の式(1)で示される値が、50～20000である、<1>または<2>に記載のPHAの製造方法。

前記工程(b)で得られたPHA凝集体の体積メジアン径／PHA1次粒子の体積メジアン径・・・(1)

<4> 前記工程(a)において、PHA水性懸濁液中のPHA濃度が、30～70重量％である、<1>～<3>のいずれかに記載のポリヒドロキシアルカン酸の製造方法。

<5> 前記二軸押出機のスクリュウの回転数が、30～1000rpmである、<1>～<4>のいずれかに記載のPHAの製造方法。

<6> 前記二軸押出機中の圧力が、0.01～0.5Mpaである、<1>～<5>のいずれかに記載のPHAの製造方法。

<7> 前記二軸押出機のスクリュウの一部が、逆送り作用を有するスクリュウである、<1>～<6>のいずれかに記載のPHAの製造方法。

<8> 97重量％以上のポリヒドロキシアルカン酸を含み、かつ、体積メジアン径が300μm以上である、ポリヒドロキシアルカン酸凝集体。

10

20

30

40

50