

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第6369278号
(P6369278)

(45) 発行日 平成30年8月8日(2018.8.8)

(24) 登録日 平成30年7月20日(2018.7.20)

(51) Int. Cl.	F 1	
AO 1 N 47/24 (2006.01)	AO 1 N 47/24	G
AO 1 P 3/00 (2006.01)	AO 1 P 3/00	
AO 1 N 25/08 (2006.01)	AO 1 N 25/08	
AO 1 N 51/00 (2006.01)	AO 1 N 51/00	
AO 1 N 43/80 (2006.01)	AO 1 N 43/80	1 0 2
請求項の数 3 (全 16 頁) 最終頁に続く		

(21) 出願番号 特願2014-209693 (P2014-209693)
 (22) 出願日 平成26年10月14日(2014.10.14)
 (65) 公開番号 特開2016-79109 (P2016-79109A)
 (43) 公開日 平成28年5月16日(2016.5.16)
 審査請求日 平成29年8月25日(2017.8.25)

(73) 特許権者 000002093
 住友化学株式会社
 東京都中央区新川二丁目27番1号
 (74) 代理人 100113000
 弁理士 中山 亨
 (74) 代理人 100151909
 弁理士 坂元 徹
 (72) 発明者 西 健太
 東京都中央区新川二丁目27番1号 住友
 化学株式会社内
 (72) 発明者 川中 秀夫
 兵庫県宝塚市高司四丁目2番1号 住友化
 学株式会社内
 審査官 石井 徹

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 固形農薬製剤

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

農薬活性化化合物(a)、乳酸カルシウム、乳酸マグネシウム及び乳酸アルミニウムからなる群より選ばれる1種以上の乳酸塩(b)、並びにアニオン性界面活性剤(c)を含有し、前記農薬活性化化合物の含有量が50~80重量%の範囲である固形農薬製剤(但し、プロシミドン及び乳酸カルシウムを含有する固形農薬製剤を除く)。

【請求項2】

前記アニオン性界面活性剤が、ナフタレンスルホン酸塩及びそのホルムアルデヒド縮合物、並びにアルキルナフタレンスルホン酸塩及びそのホルムアルデヒド縮合物からなる群より選ばれる1種以上のアニオン性界面活性剤である請求項1に記載の固形農薬製剤。

10

【請求項3】

請求項1または2に記載の固形農薬製剤及び水を混合することにより得られる薬液を作物または作物を栽培する土壌へ施用する固形農薬製剤の使用方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、固形農薬製剤に関する。

【背景技術】

【0002】

固形農薬製剤のうち、その使用形態が、水と混合することにより得られる薬液を施用す

20

る形態である固形農薬製剤としては、水和剤、顆粒水和剤、水溶剤及び顆粒水溶剤が知られている。かかる固形農薬製剤は、水と混合する際に泡が発生する場合、作業効率が低下するという問題があり、低起泡性であることが求められている。また、かかる固形農薬製剤及び水を混合することにより得られる薬液中の農薬活性化合物等の水不溶成分が沈殿し、攪拌しても該水不溶成分が容易に分散せず散布機の薬液タンクの底に残留する場合には、農薬としての効力が十分発揮されない、該タンクの洗浄が困難になる等の問題があるため、再分散性が良好であることも求められている。このような要求に応えるべく改良が進められ、種々の固形農薬製剤が提案されている（例えば、特許文献1参照）。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0003】

【特許文献1】国際公開第2004/036994号

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0004】

本発明は、水と混合する際の泡の発生が抑制され、且つ水と混合することにより得られる薬液中の水不溶成分の再分散性が良好な新しい固形農薬製剤を提供することを課題とする。

【課題を解決するための手段】

【0005】

本発明者らは、このような目的に合致する固形農薬製剤を見出すべく検討した結果、農薬活性化合物に、アニオン性界面活性剤及び特定の乳酸塩を配合して固形製剤とすることにより、該製剤及び水を混合する際の泡の発生が抑制され、且つ水と混合することにより得られる薬液中の水不溶成分が良好な再分散性を示すことを見出した。

本発明は、以下の通りである。

[1] 農薬活性化合物(a)、乳酸カルシウム、乳酸マグネシウム及び乳酸アルミニウムからなる群より選ばれる1種以上の乳酸塩(b)、並びにアニオン性界面活性剤(c)を含有する固形農薬製剤(但し、プロシミドン及び乳酸カルシウムを含有する固形農薬製剤を除く)。

[2] 前記アニオン性界面活性剤が、ナフタレンスルホン酸塩及びそのホルムアルデヒド縮合物、並びにアルキルナフタレンスルホン酸塩及びそのホルムアルデヒド縮合物からなる群より選ばれる1種以上のアニオン性界面活性剤である[1]に記載の固形農薬製剤。

[3] [1]または[2]に記載の固形農薬製剤及び水を混合することにより得られる薬液。

[4] [3]に記載の薬液を作物または作物を栽培する土壌へ施用する固形農薬製剤の使用方法。

【発明の効果】

【0006】

本発明により、水と混合する際の泡の発生が抑制され、且つ水と混合することにより得られる薬液中の水不溶成分の再分散性が良好な新しい固形農薬製剤を提供することができる。

【発明を実施するための形態】

【0007】

本発明の固形農薬製剤(以下、本発明製剤と記す)は農薬活性化合物を含有する。かかる農薬活性化合物としては、殺虫活性化合物、殺菌活性化合物、除草活性化合物、植物成長調節活性化合物及び昆虫忌避活性化合物が挙げられ、具体的には下記の化合物が挙げられる。

【0008】

殺虫活性化合物：

10

20

30

40

50

有機リン殺虫活性化合物：アセフェート(acephate)、りん化アルミニウム(Aluminium phosphide)、ブタチオホス(butathiofos)、キヤドサホス(cadusafos)、クロルエトキシホス(chlorethoxyfos)、クロルフエンピンホス(chlorfenvinphos)、クロルピリホス(chlorpyrifos)、クロルピリホスメチル(chlorpyrifos-methyl)、シアノホス(cyanophos:CYAP)、ダイアジノン(diazinon)、DCIP(dichlorodiisopropylether)、ジクロフェンチオン(dichlofenthion:ECP)、ジクロルボス(dichlorvos:DDVP)、ジメトエート(dimethoate)、ジメチルピンホス(dimethylvinphos)、ジスルホトン(disulfoton)、EPN、エチオン(ethion)、エトプロホス(ethoprophos)、エトリムホス(etrimfos)、フェンチオン(fenthion:MPP)、フェニトロチオン(fenitrothion:MEP)、ホスチアゼート(fosthiazate)、ホルモチオン(formothion)、りん化水素(Hydrogen phosphide)、イソフェンホス(isofenphos)、イソキサチオン(isoxathion)、マラチオン(malathion)、メスルフエンホス(mesulfenfos)、メチダチオン(methidathion:DMTP)、モノクロトホス(monocrotophos)、ナレド(naled:BRP)、オキシデプロホス(oxydeprofos:ESP)、パラチオン(parathion)、ホサロン(phosalone)、ホスマット(phosmet:PMP)、ピリミホスメチル(pirimiphos-methyl)、ピリダフェンチオン(pyridafenthion)、キナルホス(quinalphos)、フェントエート(phenthoate:PAP)、プロフェノホス(profenofos)、プロパホス(propaphos)、プロチオホス(prothiofos)、ピラクロホス(pyraclorfos)、サリチオン(salithion)、スルプロホス(sulprofos)、テブピリムホス(tebupirimfos)、テムホス(temephos)、テトラクロルビンホス(tetrachlorvinphos)、テルブホス(terbufos)、チオメトン(thiometon)、トリクロルホン(trichlorphon:DEP)、バミドチオン(vamidothion)、フォレート(phorate)、カズサホス(cadusafos)等

10

20

30

カーバメート殺虫活性化合物：アラニカルブ(alanycarb)、ベンダイオカルブ(bendiocarb)、ベンフラカルブ(benfuracarb)、BPMC、カルバリル(carbaryl)、カルボフラン(carbofuran)、カルボスルファン(carbosulfan)、クロエトカルブ(cloethocarb)、エチオフェンカルブ(ethiofencarb)、フェノブカルブ(fenobucarb)、フェノチオカルブ(fenothiocarb)、フェノキシカルブ(fenoxycarb)、フラチオカルブ(furathiocarb)、イソプロカルブ(isoproc carb:MIPC)、メトルカルブ(metolcarb)、メソミル(methomyly)、メチオカルブ(methiocarb)、NAC、オキサミル(oxamyly)、ピリミカーブ(pirimicarb)、プロポキスル(propoxur:PHC)、XMC、チオジカルブ(thiodicarb)、キシリルカルブ(xyllylcarb)、アルジカルブ(aldicarb)等

40

合成ピレスロイド殺虫活性化合物：アクリナトリン(acrinathrin)、アレスリン(allethrin)、ベンフルスリン(benfluthrin)、ベータ-シフルトリン(beta-cyfluthrin)、ピフェントリン(bifenthrin)、シクロプロトリン(cycloprothrin)、シフルトリン(cyfluthrin)、シハロトリン(cyhalothrin)、シベルメトリン(cypermethrin)、デルタメトリン(deltamethrin)、エスフェンバレレート(esfenvalerate)、エトフェンプロックス(ethofenprox)、フェンプロパトリン(fenpropathrin)、フェンバレレート(fenvalerate)

50

lerate)、フルシトリネート(flucythrinate)、フルフェンプロックス(flufenoprox)、フルメスリン(flumethrin)、フルバリネート(flualinate)、ハルフェンプロックス(halfenoprox)、イミプロトリン(imiprothrin)、ペルメトリン(permethrin)、プラレトリン(prallethrin)、ピレトリン(pyrethrins)、レスメトリン(resmethrin)、シグマ-サイパーメスリン(sigma-cypermethrin)、シラフルオフエン(silafluofen)、テフルトリン(tefluthrin)、トラロメトリン(tralomethrin)、トランスフルトリン(transfluthrin)、テトラメトリン(tetramethrin)、フェノトリン(phenothrin)、シフェノトリン(cyphenothrin)、アルファシペルメトリン(alpha-cypermethrin)、ゼータシペルメトリン(zeta-cypermethrin)、ラムダシハロトリン(lambda-cyhalothrin)、フラメトリン(furamethrin)、タウフルバリネート(tau-flualinate)、2,3,5,6-テトラフルオロ-4-(メトキシメチル)ベンジル(EZ)-(1RS,3RS;1RS,3SR)-2,2-ジメチル-3-プロプ-1-エニルシクロプロパンカルボキシレート、2,3,5,6-テトラフルオロ-4-メチルベンジル(EZ)-(1RS,3RS;1RS,3SR)-2,2-ジメチル-3-プロプ-1-エニルシクロプロパンカルボキシレート、2,3,5,6-テトラフルオロ-4-(メトキシメチル)ベンジル(1RS,3RS;1RS,3SR)-2,2-ジメチル-3-(2-メチル-1-プロペニル)シクロプロパンカルボキシレート等

10

20

ネライストキシシン殺虫活性化合物：カルタップ(cartap)、ベンスルタップ(bensultap)、チオシクラム(thiocyclam)、モノスルタップ(monosultap)、ビスルタップ(bisultap)等

ネオニコチノイド殺虫活性化合物：イミダクロプリド(imidacloprid)、ニテンピラム(nitenpyram)、アセタミプリド(acetamiprid)、チアメトキサム(thiamethoxam)、チアクロプリド(thiacloprid)、ジノテフラン(dinotefuran)、クロチアニジン(clothianidin)等

ベンゾイル尿素殺虫活性化合物：クロルフルアズロン(chlorfluazuron)、ビストリフルロン(bistrifluron)、ジアフェンチウロン(diafenthiuron)、ジフルベンズロン(diflubenzuron)、フルアズロン(fluaazuron)、フルシクロクスロン(flucycloxuron)、フルフェノクスロン(flufenoxuron)、ヘキサフルムロン(hexaflumuron)、ルフエヌロン(lufenuron)、ノバルロン(novaluron)、ノビフルムロン(noviflumuron)、テフルベンズロン(teflubenzuron)、トリフルムロン(triflumuron)、トリアズロン等

30

フェニルピラゾール殺虫活性化合物：アセトプロール(acetoprole)、エチプロール(ethiprole)、フィプロニル(fipronil)、バニリプロール(vaniliprole)、ピリプロール(pyriprole)、ピラフルプロール(pyrafluprole)等

40

ヒドラジン殺虫活性化合物：クロマフェノジド(chromafenozide)、ハロフェノジド(halofenozide)、メトキシフェノジド(methoxyfenozide)、テブフェノジド(tebufenozide)等

有機塩素系化合物：アルドリン(aldrin)、ディルドリン(dieldrin)、ジエノクロル(dienochlor)、エンドスルフアン(endosulfan)、メトキシクロル(methoxychlor)等

殺ダニ活性化合物：アセキノシル(acequinocyl)、アミトラズ(amitraz)、ベンゾキシメート(benzoximate)、ピフェナゼート(bifenazate)、フェニソプロモレート(bromopropylate)、キノメチオネート

50

(chinomethionat)、クロルベンジレート (chlorobenzilate)、CPCBS (chlorfensone)、クロフェンテジン (clofentazine)、シフルメトフェン (cyflumetofen)、ケルセン (ジコホル : dicofol)、エトキサゾール (etoxazole)、酸化フェンブタスズ (fenbutatin oxide)、フェノチオカルブ (fenothiocarb)、フェンピロキシメート (fenpyroximate)、フルアクリピリム (fluacrypyrim)、フルプロキシフェン (fluproxyfen)、ヘキシチアゾクス (hexythiazox)、プロパルギット (propargite : BPPS)、ポリナクチン複合体 (polynactins)、ピリダベン (pyridaben)、ピリミジフェン (Pyrimidifen)、テブフェンピラド (tebufenpyrad)、テトラジホン (tetradifon)、スピロディクロフェン (spirodiclofen)、スピロメシフェン (spiromesifen)、スピロテトラマト (spirotetramat)、アミドフルメット (amidoflumet)、シエノピラフェン (cyenopyrafen) 等

10

その他の殺虫活性化化合物：硫酸ニコチン (nicotine-sulfate)、アベルメクチン (avermectin-B)、ブロモプロピレート (bromopropylate)、ブプロフェジン (buprofezin)、クロルフェナピル (chlorphenapyr)、シロマジン (cyromazine)、D-D (1, 3-Dichloropropene)、エマメクチンベンゾエート (emamectin-benzoate)、フェナザキン (fenazaquin)、フルピラゾホス (flupyrazofos)、ハイドロプレネ (hydroprene)、メトプレネ (methoprene)、インドキサカルブ (indoxacarb)、メトキサジアゾン (metoxadiazone)、ミルベマイシンA (milbemycin-A)、ピメトロジン (pymetrozine)、ピリダリル (pyridalyl)、ピリプロキシフェン (pyriproxyfen)、スピノサッド (spinosad)、スルフラミド (sulfluramid)、トルフェンピラド (tolfeenpyrad)、トリアゼメイト (triazamate)、フルベンジアミド (flubendiamide)、レピメクチン (lepimectin)、亜ひ酸 (Arsenic acid)、ベンクロチアズ (benclothiaz)、石灰窒素 (Calcium cyanamide)、クオルデン (chlordane)、DDT、DSP、フルフェネリウム (flufenferim)、フロニカミド (flonicamid)、フルリムフェン (flurimfen)、ホルメタネート (formetanate)、メタム・アンモニウム (metammonium)、メタム・ナトリウム (metam-sodium)、臭化メチル (Methyl bromide)、ニディノテフラン (nidinotefuran)、オレイン酸カリウム (Potassium oleate)、プロトリフェンビュート (protrifenbute)、スピロメシフェン (spiromesifen)、硫黄 (Sulfur)、メタフルミゾン (metaflumizone)、スピロテトラマト (spirotetramat)、ピリフルキナゾン (pyrifluquinazone)、スピネトラム (spinetoram)、クロラントラニリプロール (chlorantraniliprole) 等

20

30

40

【0009】

殺菌活性化化合物：

アゾール殺菌活性化化合物：プロピコナゾール (propiconazole)、プロチオコナゾール (prothioconazole)、トリアジメノール (triadimenol)、プロクロラズ (prochloraz)、ペンコナゾール (penconazole)、テブコナゾール (tebuconazole)、フルシラゾール (flusilazole)、ジニコナゾール (diniconazole)、ブロムコナゾール (bromuconazole)、エポキシコナゾール (epoxiconazole)、ジフェノコナゾール (difenoconazole)、シプロコナゾール (cyproconazole)、メトコナゾール (metconazole)、トリフルミゾール (

50

triflumizole)、テトラコナゾール(tetraconazole)、マイクروباتニル(microbutanil)、フェンブコナゾール(fenbuconazole)、ヘキサコナゾール(hexaconazole)、フルキンコナゾール(flquinconazole)、トリティコナゾール(triticonazole)、ビテルタノール(bitertanol)、イマザリル(imazalil)、フルトリアホル(flutriafol)、シメコナゾール(simeconazole)、イブコナゾール(ipconazole)等

アミン殺菌活性化合物：フェンプロピモルフ(fenpropimorph)、トリデモルフ(tridemorph)、フェンプロピジン(fenpropidin)、スピロキサミン(spiroxamine)等

10

ベンズイミダゾール殺菌活性化合物：カルベンダジム(carbendazim)、ベノミル(benomyl)、チアベンダゾール(thiabendazole)、チオファネートメチル(thiophanate-Methyl)等

ジカルボキシイミド殺菌活性化合物：プロシミドン(procymidone)、イプロジオン(iprodione)、ビンクロゾリン(vinclozolin)等

アニリノピリミジン殺菌活性化合物：シプロディニル(cyprodinil)、ピリメタニル(pyrimethanil)、メパニピリム(mepanipyrim)等

フェニルピロール殺菌活性化合物：フェンピクロニル(fenpiclonil)、フルジオキソニル(fludioxonil)等

ストロビルリン殺菌活性化合物：クレソキシムメチル(kresoxim-methyl)、アゾキシストロビン(azoxystrobin)、トリフロキシストロビン(trifloxystrobin)、フルオキサストロビン(fluxastrobin)、ピコキシストロビン(picoxystrobin)、ピラクロストロビン(pyraclostrobin)、ジモキシストロビン(dimoxystrobin)、ピリベンカルブ(pyribencarb)、メトミノストロビン(metominostrobin)、オリザストロビン(oryzastrobin)、エネストロビン(enestrobin)等

20

フェニルアמיד殺菌活性化合物：メタラキシル(metalaxyil)、メタラキシルMまたはメフェノキサム(metalaxyil-M or mafenoxam)、ベナラキシル(benalaxyil)、ベナラキシルMまたはキララキシル(benalaxyil-M or kiralaxyil)等

30

カルボン酸アミド殺菌活性化合物：イプロバリカルブ(iprovalicarb)、ベンチアバリカルブイソプロピル(benthiavalicarb-isopropyl)、バリフェナレート(valiphenalate)、メプロニル(mepronil)、フルトラニル(flutolanil)、フラメトピル(furametpyr)、ペンチオピラド(penthiopyrad)、フルオピラム(flupyram)、ビキサフェン(bixafen)、セダキサン(Sedaxane)、フルキサピロキサド(fluxapyroxad)、ビキサフェン(Bixafen)、イサピラザム(Isopyrazam)、ゾキサミド(zoxamide)、フルオピコリド(flupicolide)、チフルザミド(thifluzamide)、カルボキシ(carboxin)、ボスカリド(boscalid)、フェンキサミド(fenhexamid)、チアジニル(tiadinil)、フルモルフ(flumorph)、マンジプロパミド(mandipropamid)、フェノキサニル(fenoxanil)、シルチオファム(silthiofam)、イソチアニル(isotianil)等

40

ピラゾリノン殺菌活性化合物：フェンピラザミン(fenpyrazamine)等

その他の殺菌活性化合物：ジエトフェンカルブ；チウラム；フルアジナム；マンコゼブ；クロクタロニル；キャプタン；ジクロフルアニド；フォルベット；キノキシフェン；フェンヘキサミド；ファモキサドン；フェナミドン；エタボキサム；アミスルブロム；シアゾファミド；メトラフェノン；シフルフェナミド；プロキナジド；フルスルファミド；フォセチル；シモキサニル；ペンシクロン；トルクロホスメチル；カルプロパミド；ジクロシ

50

メット；トリシクラゾール；ピロキロン；プロベナゾール；テブフロキン；ジクロメジン；カスガマイシン；フェリムゾン；フサライド；バリダマイシン；ヒドロキシイソキサゾール；イミノクタジン酢酸塩；イソプロチオラン；オキシソリニック酸；オキシテトラサイクリン；ストレプトマイシン等

【0010】

除草活性化化合物：

トリアジン除草活性化化合物：アトラジン、メトリブジン等

ウレア除草活性化化合物：フルオメツロン、イソプロチュロン、ダイムロン等

ヒドロキシベンゾニトリル除草活性化化合物：プロモキシニル、アイオキシニル等

2, 6 - ジニトロアニリン除草活性化化合物：ペンディメサリン、トリフルラリン等

アリロキシアルカノイック酸除草活性化化合物：2, 4 - D、ジカンバ、フルロキシピル、メコプロップ等

スルホニルウレア除草活性化化合物：ベンスルフロンメチル、メツルフロンメチル、ニコスルフロン、プリミスルフロンメチル、シクロスルファミロン、イマゾスルフロン、プロピリスルフロン等

イミダゾリノン除草活性化化合物：イマザピル、イマザキン、イマゼタピル等

その他の除草活性化化合物：ビスピリバックナトリウム、ビスチオバックナトリウム、アシフルオルフェンナトリウム、サルフェントラゾン、パラコート、フルメツラム、トリフルスルフロンメチル、フェノキサプロップ - p - エチル、シハロホップブチル、ジフルフェニカン、ノルフルラゾン、イソキサクロルトール、ベンタゾン、ベンチオカーブ、メフェナセット、プロパニル、フルチアミド、シメトリン、フェントラザミド、エトベンザニド、スエップ、オキサジクロメフォン、オキサジアゾロン、ピラゾレート、プロジアミン、カフェンストロール、ペントキサゾン、クロメプロップ、ピリフタリド、ベンゾピシクロン、プロモブチド、ピラクロニル等

【0011】

植物成長調節活性化化合物：

マレイックヒドラジド、クオルメコート、エテフォン、ジベレリン、メピカットクロライド、チジアズロン、イナベンファイド、パクロブトラゾール、ウニコナゾール等

【0012】

昆虫忌避活性化化合物：

1 S, 3 R, 4 R, 6 R - カラン - 3, 4 - ジオール、ジプロピル 2, 5 - ピリジンジカルボキシレート等

【0013】

本発明においては、農薬活性化化合物として、ピラゾリノン殺菌活性化化合物、ジカルボキシミド殺菌活性化化合物、カルボン酸アミド殺菌活性化化合物及びネオニコチノイド殺虫活性化化合物からなる群より選ばれる1種以上の農薬活性化化合物の使用が好ましく、ピラゾリノン殺菌活性化化合物、カルボン酸アミド殺菌活性化化合物及びネオニコチノイド殺虫活性化化合物からなる群より選ばれる1種以上の農薬活性化化合物の使用がさらに好ましい。

【0014】

農薬活性化化合物の合計含有量は本発明製剤全量に対して通常40～90重量%、好ましくは50～80重量%の範囲である。

【0015】

本発明製剤は乳酸カルシウム、乳酸マグネシウム及び乳酸アルミニウムからなる群より選ばれる1種以上の乳酸塩（以下、成分bと記すことがある）を含有する。本発明において成分bはそれらの水和物を含み、かかる水和物としては、乳酸カルシウム五水和物{ $(C_3H_5O_3)_2Ca \cdot 5H_2O$ }及び乳酸マグネシウム三水和物{ $(C_3H_5O_3)_2Mg \cdot 3H_2O$ }が挙げられる。

成分bの合計含有量は本発明製剤全量に対して通常0.5～20重量%、好ましくは1～10重量%の範囲である。但し、本発明において、成分bの量は無水物{ $(C_3H_5O_3)_2Ca$ 、 $(C_3H_5O_3)_2Mg$ または $(C_3H_5O_3)_3Al$ }換算の重量である。また、本

10

20

30

40

50

発明製剤における農薬活性化合物と成分 b との含有量の比は、重量比で、通常 1 : 0 . 0 0 5 ~ 1 : 0 . 5、好ましくは 1 : 0 . 0 1 ~ 1 : 0 . 3 の範囲である。

【 0 0 1 6 】

本発明製剤はアニオン性界面活性剤を含有する。かかるアニオン性界面活性剤としては、例えば硫酸エステル塩型アニオン性界面活性剤、スルホン酸塩型アニオン性界面活性剤、カルボン酸塩型アニオン性界面活性剤、及びリン酸エステル塩型アニオン性界面活性剤が挙げられる。

硫酸エステル塩型アニオン性界面活性剤としては、例えばアルキル硫酸エステル塩、ポリオキシエチレンアルキルエーテル硫酸エステル塩、ポリオキシエチレンアルキルフェニルエーテル硫酸エステル塩、ポリオキシエチレンベンジル化フェニルエーテル硫酸エステル塩、ポリオキシエチレンスチリル化フェニルエーテル硫酸エステル塩、ポリオキシエチレンベンジル化フェニルフェニルエーテル硫酸エステル塩、ポリオキシエチレンスチリル化フェニルフェニルエーテル硫酸エステル塩、及びポリオキシエチレンポリオキシプロピレン硫酸エステル塩を挙げることができる。

スルホン酸塩型アニオン性界面活性剤としては、例えばナフタレンスルホン酸塩及びそのホルムアルデヒド縮合物、アルキルナフタレンスルホン酸塩及びそのホルムアルデヒド縮合物、アルキルベンゼンスルホン酸塩、パラフィンスルホン酸塩、ジアルキルスルホコハク酸塩、アルキルスルホコハク酸塩、アルキルジフェニルエーテルジスルホン酸塩、リグニンスルホン酸塩、ポリオキシエチレンアルキルフェニルエーテルスルホン酸塩、アルケニルスルホン酸塩、及びポリオキシエチレンアルキルエーテルスルホコハク酸エステル塩を挙げることができる。

カルボン酸塩型アニオン性界面活性剤としては、例えば高級脂肪酸塩、N - メチル - 脂肪酸サルトシネーチ塩、メタアクリル酸重合体塩、アクリル酸とメタアクリル酸との共重合体塩、アクリル酸とメタアクリル酸ポリオキシエチレンエステルとの共重合体塩、アクリル酸とアクリル酸メチルエステルとの共重合体塩、アクリル酸と酢酸ビニルとの共重合体塩、アクリル酸とマレイン酸との共重合体塩、マレイン酸とイソブチレンとの共重合体塩、及びスチレンとマレイン酸との共重合体塩を挙げることができる。

リン酸エステル塩型アニオン性界面活性剤としては、例えばポリオキシエチレンアルキルエーテルリン酸エステル塩、ポリオキシエチレンモノアルキルフェニルエーテルリン酸エステル塩、ポリオキシエチレンジアルキルフェニルエーテルリン酸エステル塩、ポリオキシエチレンベンジル化フェニルエーテルリン酸エステル塩、ポリオキシエチレンベンジル化フェニルフェニルエーテルリン酸エステル塩、ポリオキシエチレンスチリル化フェニルエーテルリン酸エステル塩、ポリオキシエチレンポリオキシプロピレンリン酸エステル塩、及びアルキルリン酸エステル塩を挙げることができる。

上記の塩としては、例えばナトリウム塩、カリウム塩、アンモニウム塩、アルカノールアミン塩、カルシウム塩、及びマグネシウム塩が挙げられる。

【 0 0 1 7 】

本発明においては、アニオン性界面活性剤として、ナフタレンスルホン酸塩及びそのホルムアルデヒド縮合物、並びにアルキルナフタレンスルホン酸塩及びそのホルムアルデヒド縮合物からなる群より選ばれる 1 種以上のアニオン性界面活性剤の使用が好ましい。本発明において、ナフタレンスルホン酸塩とは、ナフタレンに直接スルホ基 (- S O₃ H) が結合した化合物の塩を意味する。市販されているナフタレンスルホン酸ナトリウム塩のホルムアルデヒド縮合物としては、Morwet D - 4 2 5 (アクゾノーベル社製)、アルキルナフタレンスルホン酸ナトリウム塩としては、Morwet EFW (アクゾノーベル社製) が挙げられる。

アニオン性界面活性剤の合計含有量は本発明製剤全量に対して通常 0 . 5 ~ 2 0 重量%、好ましくは 1 ~ 1 5 重量% の範囲である。

【 0 0 1 8 】

本発明製剤には必要に応じて、さらに製剤用助剤が含有されていてもよい。該製剤用助

10

20

30

40

50

剤としては、増量成分、結合剤、溶媒、安定化剤、着色剤及び香料等が挙げられる。本発明製剤が製剤用助剤を含有する場合、その合計含有量は本発明製剤全量に対して通常0.01~55重量%、好ましくは0.01~45重量%である。

【0019】

増量成分としては鉱物質担体、植物質担体、合成担体、水溶性担体等が挙げられる。

【0020】

鉱物質担体としては、例えば、カオリナイト、ディッカナイト、ナクライト、ハロサイト等のカオリン鉱物、クリソタイル、リザータイト、アンチコライト、アメサイト等の蛇紋石、ナトリウムモンモリロナイト、カルシウムモンモリロナイト、マグネシウムモンモリロナイト等のモンモリロナイト鉱物、サポナイト、ヘクトライト、ソーコナイト、ハイデライト等のスメクタイト、パイロフィライト、タルク、ろう石、白雲母、フェンジャイト、セリサイト、イライト等の雲母、クリストバライト、クォーツ等のシリカ、アタパルジャイト、セピオライト等の含水珪酸マグネシウム、ドロマイト等の炭酸カルシウム、石膏等の硫酸塩鉱物、ゼオライト、凝灰石、パーミキュライト、ラポナイト、軽石、けい砂、珪藻土、酸性白土、活性白土が挙げられる。

10

【0021】

植物質担体としては、例えば、セルロース、籾殻、小麦粉、木粉、澱粉、糠、ふすま、大豆粉が挙げられる。

【0022】

合成担体としては、例えば、湿式法シリカ、乾式法シリカ、湿式法シリカの焼成品、表面改質のシリカ、加工澱粉（松谷化学社製パインフロー等）が挙げられる。

20

【0023】

水溶性担体としては、例えば、乳糖、ショ糖、デキストリン等の糖類、食塩、芒硝、トリポリリン酸ナトリウム、ピロリン酸カリウム、尿素、硫酸、炭酸水素ナトリウム、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、炭酸水素カリウム、マレイン酸、クエン酸、フマル酸、リンゴ酸が挙げられる。

【0024】

本発明製剤が増量成分を含有する場合、その合計含有量は本発明製剤全量に対して通常2~55重量%、好ましくは2~45重量%である。

【0025】

結合剤としては、例えば、カルボキシメチルセルロースナトリウム、ヒドロキシプロピルメチルセルロース、メチルセルロース、メチルエチルセルロース、ヒドロキシプロピルセルロース、ポリビニルアルコール又はその誘導体、化デンプン、酵素変性デキストリン、焙焼デキストリン、ポリアクリル酸ナトリウム、アルギン酸ナトリウム、キサンタンガム、アラビアガムが挙げられる。本発明製剤が結合剤を含有する場合、その合計含有量は通常0.5~20重量%、好ましくは0.5~5重量%の範囲である。

30

【0026】

溶媒としては、例えば、デカン、トリデカン、テトラデカン、ヘキサデカン、オクタデカン等の飽和脂肪族炭化水素類、1-ウンデセン、1-ヘンエイコセン等の不飽和脂肪族炭化水素、セクロールS45（ICI製溶剤）等のハロゲン化炭化水素類、メチルエチルケトン、シクロヘキサノン等のケトン類、エタノール、ブタノール、オクタノール等のアルコール類、酢酸エチル、フタル酸ジメチル、ラウリン酸メチル、パルミチン酸エチル、酢酸オクチル、コハク酸ジオクチル、アジピン酸ジデシル等のエステル類、キシレン、エチルベンゼン、オクタデシルベンゼン、ソルベッソ100（エクソンモービルケミカル社製）、ハイゾールSAS-296（JX日鉱日石エネルギー株式会社製）等のアルキルベンゼン類、ドデシルナフタレン、トリデシルナフタレン、ソルベッソ200（エクソンモービルケミカル社製溶剤）等のアルキルナフタレン類、プロピレングリコールモノメチルエーテル、エチレングリコールモノエチルエーテル等のグリコールエーテル類、オレイン酸、カプリン酸、エナント酸等の脂肪酸類、N,N-ジメチルホルムアミド、N,N-ジエチルホルムアミド等の酸アミド類、オリーブ油、大豆油、菜種油、ヒマシ油、亜麻仁

40

50

油、綿実油、パーム油、アボガド油、サメ肝油等の動植物油、マシン油等の鉱物油、グリセリン、グリセリン脂肪酸エステル等のグリセリン誘導体が挙げられる。本発明製剤が溶媒を含有する場合、その合計含有量は通常30重量%以下、好ましくは0.1~20重量%の範囲である。

【0027】

安定化剤としては、例えば、フェノール系酸化防止剤、アミン系酸化防止剤、リン系酸化防止剤、イオウ系酸化防止剤、pH調整剤、ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤、ベンゾフェノン系紫外線吸収剤、ベンゾエート系紫外線吸収剤、シアノアクリレート系紫外線吸収剤、サリチル酸系紫外線吸収剤、ヒンダードアミン系紫外線吸収剤等の紫外線吸収剤、エポキシ化大豆油、エポキシ化亜麻仁油、エポキシ化菜種油等のエポキシ化植物油、イソプロピルアシッドホスフェート、流動パラフィンが挙げられる。本発明製剤が安定化剤を含有する場合、その合計含有量は通常0.01~10重量%の範囲である。

10

【0028】

着色剤としては、例えば、ローダミンB等のローダミン類、黄色4号、青色1号、赤色2号が挙げられる。本発明製剤が着色剤を含有する場合、その合計含有量は通常0.01~5重量%の範囲である。

【0029】

香料としては、例えば、アセト酢酸エチル、アントラニル酸メチル、イソ吉草酸イソアミル、エナント酸エチル、桂皮酸エチル、酪酸イソアミル等のエステル類、カプロン酸、桂皮酸等の有機酸類、桂皮アルコール、ゲラニオール、シト랄ール、デシルアルコール等のアルコール類、バニリン、ピペロナル、ペリルアルデヒド等のアルデヒド類、マルトール、メチル - ナフチルケトン等のケトン類、メントール類が挙げられる。本発明製剤が香料を含有する場合、その合計含有量は通常0.01~5重量%の範囲である。

20

【0030】

但し、本発明においては、プロシミドン及び乳酸カルシウムを含有する固形農薬製剤を除く。

【0031】

本発明製剤は、農薬活性化合物、成分b、アニオン性界面活性剤、及び必要に応じて、製剤用助剤を用いて製造することができる。その製造方法は特に限定されるものでないが、顆粒水和剤である本発明製剤（以下、本発明顆粒水和剤と記す）は、押出し造粒法、転動造粒法、噴霧造粒法、流動層造粒法、攪拌造粒法、コーティング造粒法等により製造することができる。

30

【0032】

本発明顆粒水和剤を押出し造粒法により製造する場合の製造方法は以下の通りである。

A1) 農薬活性化合物、成分b、アニオン性界面活性剤、及び必要に応じて、製剤用助剤を混合し、混合物を得る。

A2) 得られた混合物を粉碎し、農薬混合粉末を得る。

A3) 得られた農薬混合粉末に必要に応じて水を添加して練合し、練合物を得る。該水には必要に応じて、水溶性担体、結合剤、安定化剤等を溶解又は分散させることができる。また、A1)においてアニオン性界面活性剤を添加する代わりに、該水にアニオン性界面活性剤を添加してもよい。

40

A4) 得られた練合物を所定の径の穴を有するスクリーンを用いて押出すことにより、造粒物を得る。

A5) 得られた造粒物を所定の長さに解砕し乾燥・整粒する。

得られる本発明顆粒水和剤は、その粒長が通常0.3~5.0mm、好ましくは0.6~3.0mmの範囲である。なお、本発明において粒長とは、粒が取り得る最大長さを意味する。

【0033】

前記工程A1)においては混合機を用いることができ、該混合機としてはリボンミキサー、ヘンシェルミキサー、ナウターミキサー、レディゲミキサー、ジュースミキサー等が

50

挙げられる。

前記工程 A 2) においては粉碎機を用いることができ、該粉碎機としては遠心粉碎機、ハンマーミル、フェザーミル、ピンミル、ジェットミル等が挙げられる。

前記工程 A 3) においては練合機を用いることができ、該練合機としては、ニーダー、ナウターミキサー、レディゲミキサー、乳鉢等が挙げられる。

前記工程 A 4) においては押出造粒機が用いられ、該押出造粒機としては、スクリー型押出造粒機、ディスクペレッター型押出造粒機、バスケット型押出造粒機、ブレード型押出造粒機、オシレーティング型押出造粒機、リングダイス式押出造粒機等が挙げられ、具体的には株式会社ダルトン製のツインドームグラン、バスケットリューザ、ペレッターダブル、株式会社畑鉄工所の畑式造粒機を用いることができる。そのスクリーンの押出し径(パンチング穴径)は通常 0 . 5 ~ 2 . 0 mm 、好ましくは 0 . 6 ~ 1 . 2 mm の範囲である。

10

前記工程 A 5) の乾燥においては通常乾燥機が用いられ、該乾燥機としては流動層乾燥機、振動流動層乾燥機、回転型乾燥機、箱型通気ドライヤー等が挙げられる。乾燥温度は通常 3 0 ~ 9 0 、好ましくは 5 0 ~ 8 0 の範囲である。

【 0 0 3 4 】

本発明製剤の形態(剤型)としては、水和剤、顆粒水和剤、水溶剤及び顆粒水溶剤が挙げられ、好適な形態は水和剤及び顆粒水和剤である。本発明製剤は、農薬活性化合物が所定濃度になるように本発明製剤及び水を混合し、得られる薬液を作物または作物を栽培する土壌へ施用することにより使用される。

20

【実施例】

【 0 0 3 5 】

次に、実施例を示して、本願発明をより詳細に説明するが、本願発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

製剤例及び比較製剤例に記載される原料及び機器は特に断りのない限り以下のものを使用した。

【 0 0 3 6 】

[原料]

M o r w e t D - 4 2 5 : アクゾノーベル社製 ナフタレンスルホン酸ナトリウム塩のホルムアルデヒド縮合物

30

M o r w e t E F W : アクゾノーベル社製 アルキルナフタレンスルホン酸ナトリウム塩

乳酸カルシウム五水和物 : ナカライテスク株式会社製

乳酸マグネシウム三水和物 : 和光純薬株式会社製

乳酸アルミニウム : 和光純薬株式会社製

L a c t o s e : GLANBIA FOOD INC製 Refined Edible Grade

A S P - 4 0 0 : BASF社製 カオリン

[機器]

超遠心粉碎機 Z M - 2 0 0 : 株式会社レッチェ製

ナウターミキサー : ホソカワミクロン株式会社製

40

マルチグラン MG - 55 型 : 不二パウダル株式会社製

流動層乾燥機 : パウレックス株式会社製

【 0 0 3 7 】

製剤例 1

フェンピラザミン 7 6 2 . 2 重量部、M o r w e t D - 4 2 5 1 0 0 . 0 重量部、乳酸カルシウム五水和物 1 4 . 1 重量部及び A S P - 4 0 0 1 2 7 . 8 重量部を混合し、さらに、超遠心粉碎機 Z M - 2 0 0 (スクリーン 0 . 5 mm、ローター回転数 1 2 0 0 0 r p m) で粉碎して 1 0 0 4 . 1 重量部の農薬混合粉末を得た。

得られた農薬混合粉末 1 0 0 4 . 1 重量部と練合水 9 0 重量部とをナウターミキサーで混合、練合し、得られた練合物をマルチグラン MG - 5 5 型(横押出アタッチメント

50

、押出し径0.8mm)で造粒し、得られた造粒物を流動層乾燥機で熱風入口温度70で10分間乾燥した後、目開き1000μmの篩と目開き500μmの篩とを用いて整粒を行い、本発明顆粒水和剤1を得た。

【0038】

製剤例2

乳酸カルシウム五水和物 14.1重量部を56.3重量部とし、ASP-400 127.8重量部を97.8重量部とし、1016.3重量部の農薬混合粉末とした以外は製剤例1と同じ操作を行い、本発明顆粒水和剤2を得た。

【0039】

製剤例3

フェンピラザミン 762.2重量部を406.5重量部とし、ASP-400 127.8重量部を483.5重量部とした以外は製剤例1と同じ操作を行い、本発明顆粒水和剤3を得た。

【0040】

製剤例4

フェンピラザミン 762.2重量部を406.5重量部とし、ASP-400 97.8重量部を453.5重量部とした以外は製剤例2と同じ操作を行い、本発明顆粒水和剤4を得た。

【0041】

製剤例5

乳酸カルシウム五水和物 14.1重量部を乳酸マグネシウム三水和物 12.7重量部とし、1002.7重量部の農薬混合粉末とした以外は製剤例1と同じ操作を行い、本発明顆粒水和剤5を得た。

【0042】

製剤例6

乳酸マグネシウム三水和物 12.7重量部を50.6重量部とし、ASP-400 127.8重量部を97.8重量部とし、1010.6重量部の農薬混合粉末とした以外は製剤例5と同じ操作を行い、本発明顆粒水和剤6を得た。

【0043】

製剤例7

乳酸マグネシウム三水和物 12.7重量部を101.3重量部とし、ASP-400 127.8重量部を57.8重量部とし、1021.3重量部の農薬混合粉末とした以外は製剤例5と同じ操作を行い、本発明顆粒水和剤7を得た。

【0044】

製造例8

乳酸カルシウム五水和物 14.1重量部を56.3重量部とし、Morwet D-425 100.0重量部をMorwet EFW 15.0重量部とし、ASP-400 127.8重量部を182.8重量部とし、1016.3重量部の農薬混合粉末とした以外は製剤例1と同じ操作を行い、本発明顆粒水和剤8を得た。

【0045】

製造例9

乳酸カルシウム五水和物 14.1重量部を乳酸アルミニウム 40.0重量部とし、Morwet D-425 100.0重量部をMorwet EFW 15.0重量部とし、ASP-400 483.5重量部を538.5重量部とし、1000.0重量部の農薬混合粉末とした以外は製剤例3と同じ操作を行い、本発明顆粒水和剤9を得た。

【0046】

製造例10

乳酸アルミニウム 40.0重量部を80.0重量部とし、ASP-400 538.5重量部を498.5重量部とした以外は製剤例9と同じ操作を行い、本発明顆粒水和剤10を得た。

10

20

30

40

50

【0047】

製剤例11

フェンピラザミン 762.2重量部をクロチアニジン 755.3重量部とし、ASP-400 127.8重量部を134.7重量部とした以外は製剤例1と同じ操作を行い、本発明顆粒水和剤11を得た。

【0048】

製剤例12

乳酸カルシウム五水和物 14.1重量部を56.3重量部とし、ASP-400 134.7重量部を104.7重量部とし、1016.3重量部の農薬混合粉末とした以外は製剤例11と同じ操作を行い、本発明顆粒水和剤12を得た。

10

【0049】

製剤例13

クロチアニジン 755.3重量部をイソチアニル 758.3重量部とし、ASP-400 134.7重量部を131.7重量部とした以外は製剤例11と同じ操作を行い、本発明顆粒水和剤13を得た。

【0050】

製剤例14

乳酸カルシウム五水和物 14.1重量部を56.3重量部とし、ASP-400 131.7重量部を101.7重量部とし、1016.3重量部の農薬混合粉末とした以外は製剤例13と同じ操作を行い、本発明顆粒水和剤14を得た。

20

【0051】

製剤例15

乳酸カルシウム五水和物 14.1重量部を乳酸マグネシウム三水和物 126.6重量部とし、ASP-400 127.8重量部をLactose 22.8重量部とし、さらにMorwet EFW 15.0重量部を加えて1026.6重量部の農薬混合粉末とした以外は製剤例1と同じ操作を行い、本発明顆粒水和剤15を得た。

【0052】

製剤例16

フェンピラザミン 762.2重量部をクロチアニジン 755.3重量部とし、Lactose 22.8重量部を29.7重量部とした以外は製剤例15と同じ操作を行い、本発明顆粒水和剤16を得た。

30

【0053】

製剤例17

フェンピラザミン 762.2重量部をイソチアニル 758.3重量部とし、Lactose 22.8重量部を26.7重量部とした以外は製剤例15と同じ操作を行い、本発明顆粒水和剤17を得た。

【0054】

製造例18

ASP-400 97.8重量部を82.8重量部とし、Morwet EFW 15.0重量部を加えた以外は製剤例2と同じ操作を行い、本発明顆粒水和剤18を得た。

40

【0055】

製剤例19

フェンピラザミン 762.2重量部をクロチアニジン 755.3重量部とし、ASP-400 82.8重量部を89.7重量部とした以外は製剤例18と同じ操作を行い、本発明顆粒水和剤19を得た。

【0056】

製剤例20

フェンピラザミン 406.5重量部をプロシミドン 753.8重量部とし、ASP-400 538.5重量部をLactose 91.2重量部とし、Morwet D-425 100.0重量部を加えた以外は製剤例9と同じ操作を行い、本発明顆粒水和

50

剤 20 を得た。

【 0 0 5 7 】

製剤例 2 1

フェンピラザミン 762.2 重量部をプロシミドン 753.8 重量部とし、Lactose 22.8 重量部を 31.2 重量部とした以外は製剤例 15 と同じ操作を行い、本発明顆粒水和剤 2 1 を得た。

【 0 0 5 8 】

比較製剤例 1

乳酸カルシウム五水和物 14.1 重量部をステアリン酸ナトリウム 10 重量部とし、1000 重量部の農薬混合粉末とした以外は製剤例 1 と同じ操作を行い、比較顆粒水和剤 1 を得た。

【 0 0 5 9 】

比較製剤例 2

ステアリン酸ナトリウムをステアリン酸カルシウムとした以外は比較製剤例 1 と同じ操作を行い、比較顆粒水和剤 2 を得た。

【 0 0 6 0 】

試験例 1

250ml 栓付メスシリンダーに 30 の脱イオン水 200ml を入れ、試験製剤 1.33g を加えて栓をし、該メスシリンダーを 1 秒で 180° 転倒させ 1 秒で元に戻す操作を 30 回繰り返した後静置し、1 分後の泡の量を測定した。結果を表 1 に示す。

【 0 0 6 1 】

【表 1】

試験製剤	泡の量(ml)
本発明顆粒水和剤 1	22
本発明顆粒水和剤 2	18
本発明顆粒水和剤 3	14
本発明顆粒水和剤 6	14
本発明顆粒水和剤 9	2
本発明顆粒水和剤 1 1	8
本発明顆粒水和剤 1 2	6
本発明顆粒水和剤 1 4	16
本発明顆粒水和剤 1 5	12
本発明顆粒水和剤 1 6	16
本発明顆粒水和剤 1 7	16
本発明顆粒水和剤 1 8	18
本発明顆粒水和剤 1 9	6
本発明顆粒水和剤 2 0	12
本発明顆粒水和剤 2 1	18
比較顆粒水和剤 1	18

【 0 0 6 2 】

試験例 2

250ml 栓付メスシリンダーに脱イオン水 250ml を入れ、試験製剤 1.67g を加えて栓をし、該メスシリンダーを 1 秒で 180° 転倒させ 1 秒で元に戻す操作を 30 回程度繰り返すことにより試験製剤を完全に分散させた後、室温で静置した。24 時間後に該メスシリンダーを 1 秒間に 1 回の割合で上下に転倒させ、該メスシリンダー底部に沈殿した水不溶成分が完全に再分散するのに要する転倒回数を測定した。結果を表 2 に示す。

【 0 0 6 3 】

【表 2】

試験製剤	転倒回数
本発明顆粒水和剤 1	8回
本発明顆粒水和剤 2	2回
本発明顆粒水和剤 6	4回
本発明顆粒水和剤 9	2回
本発明顆粒水和剤 1 2	2回
本発明顆粒水和剤 1 5	4回
本発明顆粒水和剤 1 6	3回
本発明顆粒水和剤 1 8	3回
本発明顆粒水和剤 1 9	4回
比較顆粒水和剤 1	7 7回
比較顆粒水和剤 2	2 1回

フロントページの続き

(51)Int.Cl.			F I		
A 0 1 N	37/32	(2006.01)	A 0 1 N	37/32	1 0 1
A 0 1 N	43/38	(2006.01)	A 0 1 N	43/38	
A 0 1 N	25/14	(2006.01)	A 0 1 N	25/14	

(56)参考文献 特開2001-151604(JP,A)
特開平06-219903(JP,A)
特開2014-205652(JP,A)
特開2011-157322(JP,A)
特開平10-248385(JP,A)
特開2008-297285(JP,A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

A 0 1 N

J S T P l u s / J S T 7 5 8 0 (J D r e a m I I I)