

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11) 特許出願公開番号

特開2019-199439

(P2019-199439A)

(43) 公開日 令和1年11月21日(2019.11.21)

|                               |              |             |
|-------------------------------|--------------|-------------|
| (51) Int.Cl.                  | F I          | テーマコード (参考) |
| <b>AO 1 N 37/40 (2006.01)</b> | AO 1 N 37/40 | 2 B 1 2 1   |
| <b>AO 1 P 17/00 (2006.01)</b> | AO 1 P 17/00 | 4 H O 1 1   |
| <b>AO 1 M 29/12 (2011.01)</b> | AO 1 M 29/12 |             |

審査請求 未請求 請求項の数 7 O L (全 9 頁)

|           |                            |          |                     |
|-----------|----------------------------|----------|---------------------|
| (21) 出願番号 | 特願2018-94880 (P2018-94880) | (71) 出願人 | 000189659           |
| (22) 出願日  | 平成30年5月16日 (2018.5.16)     |          | 上野製薬株式会社            |
|           |                            |          | 大阪府大阪市中央区高麗橋2丁目4番8号 |
|           |                            | (74) 代理人 | 100106518           |
|           |                            |          | 弁理士 松谷 道子           |
|           |                            | (74) 代理人 | 100104592           |
|           |                            |          | 弁理士 森住 憲一           |
|           |                            | (72) 発明者 | 小松 利豪               |
|           |                            |          | 大阪府大阪市中央区高麗橋2丁目4番8号 |
|           |                            |          | 上野製薬株式会社内           |
|           |                            | (72) 発明者 | 本岡 良太               |
|           |                            |          | 大阪府大阪市中央区高麗橋2丁目4番8号 |
|           |                            |          | 上野製薬株式会社内           |

最終頁に続く

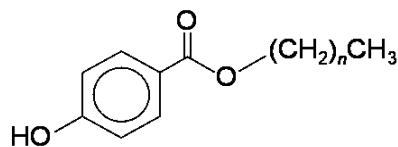
(54) 【発明の名称】 害虫忌避剤

(57) 【要約】

【課題】安全性に優れるとともに、害虫忌避効果が高い害虫忌避剤を提供する。

【解決手段】式(1)

【化1】



・ ・ (1)

(nは9～19の整数を示す)

で表される4-ヒドロキシ安息香酸長鎖エステルを含む害虫忌避剤。

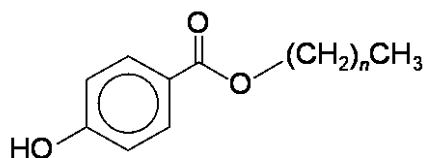
【選択図】 なし

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

式 (1)

【化 1】



・ ・ (1)

10

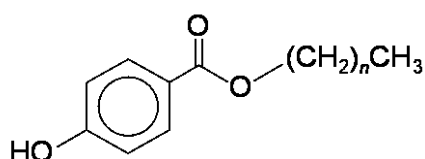
(n は 9 ~ 19 の整数を示す)

で表される 4-ヒドロキシ安息香酸長鎖エステルを含む害虫忌避剤。

【請求項 2】

4-ヒドロキシ安息香酸長鎖エステルは、式 (1)

【化 2】



・ ・ (1)

20

(n は 11 ~ 17 の整数を示す)

で表される、請求項 1 に記載の害虫忌避剤。

【請求項 3】

式 (1) で表される 4-ヒドロキシ安息香酸長鎖エステルが、4-ヒドロキシ安息香酸ヘキサデシルである、請求項 1 または 2 に記載の害虫忌避剤。

【請求項 4】

害虫が、ナメクジ、カタツムリ、マイマイ、ダニ、ゴキブリ、ハチ、ハエ、ハエ幼虫、蚊、アブ、ノミ、ムカデ、ナンキンムシ、サシバエ、イガ、ゾウリムシ、アリ、シロアリ、ヨコバイ、コナジラミ、スクミリンゴカイ、ヤケヤスデ、ダンゴ虫およびコクヌストモドキからなる群から選択される 1 種以上である、請求項 1 ~ 3 のいずれかに記載の害虫忌避剤。

30

【請求項 5】

害虫がシロアリおよび／またはハチである、請求項 1 ~ 4 のいずれかに記載の害虫忌避剤。

【請求項 6】

請求項 1 ~ 5 のいずれかに記載の害虫忌避剤を適用対象物あるいはその周辺に付与することを特徴とする、害虫忌避方法。

【請求項 7】

適用対象物への付与を撒布、噴霧または塗布により行う、請求項 6 に記載の害虫忌避方法。

40

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、4-ヒドロキシ安息香酸長鎖エステルを含む害虫忌避剤に関する。

【背景技術】

【0002】

昨今、害虫による様々な被害が報告されている。例えば、ナメクジやカタツムリ等の腹足類害虫は植物の新芽や花芽を食害し、シロアリやヒラタキクイムシ等の害虫は木材を侵食し、建築物や家具に深刻な影響を与える。また、ハチやアブ等の害虫はしばしば人を襲

50

い、特にハチに刺されると、アナフィラキシーショックを引き起こし、生命に危険が及ぶこともある。そのため、これらの害虫対策として駆除剤や忌避剤等を用いた方法が種々検討されている。

#### 【0003】

ナメクジ等の腹足類害虫の対策としては、メタアルデヒドを有効成分とした誘引性の毒餌剤を腹足類害虫の生息場所に設置する方法が知られている（特許文献1）。しかし、腹足類害虫がその毒餌を食べないと効果は得られず、また、近隣の植物への悪影響や、犬や猫が毒餌を誤って舐めたりすると中毒死する危険があった。

#### 【0004】

また、腹足類害虫に対して忌避効果のある銅化合物を担持または含有させた成型品やシートを、植木鉢の底や植木鉢台の上面、家屋の外壁の下部および厨房などに設置し、腹足類害虫を忌避する方法が開示されている（特許文献2）。しかしながら、銅化合物を用いた忌避剤は効果が低く、また雨で銅イオンが流れ出し、環境に悪影響を及ぼすこと等が懸念されていた。

#### 【0005】

ハチに対する対策としては、例えばピレスロイド系殺虫成分を含有するハチ用線香を燃焼させる方法が知られている（特許文献3）。しかしながら、この方法では、線香を燃焼させている時間は忌避効果があるものの、忌避成分が時間経過とともに薄まるため、忌避効果を長時間持続させることが困難であった。

#### 【0006】

一方、化粧品や医薬品の防腐剤として広く用いられているパラベン（4-ヒドロキシ安息香酸エステル類）は、高い安全性と低皮膚刺激性を有しており、抗菌・防カビ効果のみならず、シロアリに対しても忌避効果があることが知られている（特許文献4）。

#### 【0007】

しかしながら、エチルパラベンやブチルパラベン等の炭素原子数4以下の低級アルキル基のパラベンは、安全性には優れるものの、シロアリ等の害虫に対する忌避効果が不十分であった。

#### 【先行技術文献】

#### 【特許文献】

#### 【0008】

【特許文献1】特開平8-175906号公報

【特許文献2】特開平8-59417号公報

【特許文献3】特開2015-174822号公報

【特許文献4】特開平11-217310号公報

#### 【発明の概要】

#### 【発明が解決しようとする課題】

#### 【0009】

本発明の目的は、安全性に優れるとともに、害虫忌避効果が高い害虫忌避剤を提供することにある。また、本発明の目的は、安全性に優れるとともに、害虫忌避効果が高い害虫忌避方法を提供することにある。

#### 【課題を解決するための手段】

#### 【0010】

本発明者らは、害虫忌避剤について鋭意検討した結果、特定の4-ヒドロキシ安息香酸長鎖エステルが害虫に対して高い忌避効果を有することを見出し、本発明を完成させるに至った。

#### 【0011】

すなわち本発明は、式(1)で表される4-ヒドロキシ安息香酸長鎖エステルを含む害虫忌避剤を提供する。

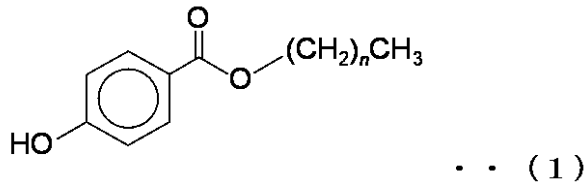
10

20

30

40

【化 1】



(n は 9 ～ 19 の整数を示す。)

【発明の効果】

【0012】

10

本発明の害虫忌避剤によれば、安全性に優れるとともに、害虫に対して高い忌避効果を得ることができる。

【図面の簡単な説明】

【0013】

【図 1】実施例 1 の試験区およびブランクのろ紙の写真である。

【図 2】比較例 1 の試験区およびブランクのろ紙の写真である。

【図 3】比較例 2 の試験区およびブランクのろ紙の写真である。

【発明を実施するための形態】

【0014】

20

本発明において使用される式 (1) で表される 4-ヒドロキシ安息香酸長鎖エステルは、市販のものを用いてもよく、例えば、特開 2016-210699 号公報に記載されるように、金属触媒の存在下、4-ヒドロキシ安息香酸短鎖エステルと長鎖アルコールとを反応させることによって得られたものを用いてもよい。

【0015】

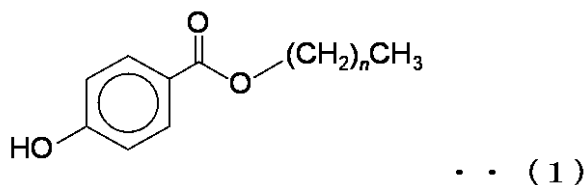
式 (1) で表される 4-ヒドロキシ安息香酸長鎖エステルとしては、4-ヒドロキシ安息香酸デシル、4-ヒドロキシ安息香酸ウンデシル、4-ヒドロキシ安息香酸ドデシル、4-ヒドロキシ安息香酸トリデシル、4-ヒドロキシ安息香酸テトラデシル、4-ヒドロキシ安息香酸ペンタデシル、4-ヒドロキシ安息香酸ヘキサデシル、4-ヒドロキシ安息香酸ヘプタデシル、4-ヒドロキシ安息香酸オクタデシル、4-ヒドロキシ安息香酸ノナデシルおよび 4-ヒドロキシ安息香酸イコシルが挙げられる。

30

【0016】

なかでも、安全性と害虫に対する忌避効果の点で、式 (1) で表される 4-ヒドロキシ安息香酸長鎖エステルは、式 (1)

【化 2】



40

(n は 11 ～ 17 の整数を示す)

で表される 4-ヒドロキシ安息香酸長鎖エステルであることが好ましい。

【0017】

本発明の害虫忌避剤は有効成分として上記特定の 4-ヒドロキシ安息香酸長鎖エステルを含む。4-ヒドロキシ安息香酸長鎖エステルは、これを各種の溶媒に溶解乃至分散させたり固体担体と混合したり吸着させたりして、エアゾール剤、ポンプ剤、液剤、塗布剤、マット剤、シート剤、テープ剤、粉剤、顆粒剤、ゲル剤、クリーム剤等の剤型に調製し、害虫忌避剤とすることができる。

【0018】

溶媒としては、水、メチルアルコール、エチルアルコール等のアルコール類、アセトン

50

、メチルエチルケトン等のケトン類、テトラヒドロフラン、ジオキサン等のエーテル類、ヘキサン、ケロシン、パラフィン等の脂肪族炭化水素類、ベンゼン、トルエン等の芳香族炭化水素類、および、酢酸エチル、ラウリン酸ヘキシル等のエステル類の１種以上が使用できる。

#### 【００１９】

４－ヒドロキシ安息香酸長鎖エステルを溶媒に溶解乃至分散させて本発明の害虫忌避剤とする場合、害虫忌避剤中の４－ヒドロキシ安息香酸長鎖エステルの含有量は、害虫忌避剤の質量に対して好ましくは０．１～５０質量％であり、より好ましくは１～２０質量％である。

#### 【００２０】

固体担体としては、例えば、カオリン、タルク、ベントナイト、クレー、珪藻土、炭酸カルシウム、シリカ、ゼオライト等の鉱物質又は無機質粉末；木粉、大豆粉、小麦粉、澱粉粉等の植物質粉末；フェノール樹脂、ポリアミド、アクリル、ポリエステル等のプラスチック；該プラスチックからなる合成繊維；ポリブタジエン等のゴムまたはその粉末；樟脳、ナフタレン、パラジクロロベンゼン、トリオキサン、シクロドデカン、アダマンタン等の昇華性粉末；リントー、パルプ等の天然繊維；羊毛、綿、絹などの動植物性繊維；レーヨンなどの再生繊維等が挙げられる。また、ガラス繊維、石綿などの無機繊維などから得られる紙、不織布等も固体担体として使用できる。

#### 【００２１】

４－ヒドロキシ安息香酸長鎖エステルを固体担体と混合または吸着させて本発明の害虫忌避剤とする場合、害虫忌避剤中の４－ヒドロキシ安息香酸長鎖エステルの含有量は、害虫忌避剤の質量に対して好ましくは０．１～５０質量％であり、より好ましくは１～２０質量％である。

#### 【００２２】

本発明の害虫忌避剤は、必要に応じて、塗膜形成剤、界面活性剤、湿潤剤、安定化剤、噴射剤、殺菌剤、防黴剤、香料、撥水・撥油剤等の任意成分Ａを含有してよい。塗膜形成剤としては、例えば、エチルセルロース、ヒドロキシプロピルセルロース、シリコーン、アクリル樹脂、塩化ゴム、石油樹脂、メチルセルロース、酢酸ビニル、ポリビニルアルコール、ラテックスエマルジョン等が挙げられる。界面活性剤としては、例えば、脂肪族モノカルボン酸塩、直鎖アルキルベンンスルホン酸塩、アルキル硫酸塩、ソルビタン脂肪酸エステル、ポリオキシエチレンアルキルエーテル、ポリエチレングリコール脂肪酸エステル、脂肪酸アルカノールアミド等が挙げられる。湿潤剤としては、例えば、カゼイン、ゼラチン、アルギン酸、カルボキシメチルセルロース等が挙げられる。噴射剤としては、例えば、ブチルヒドロキシアニソール、ジブチルヒドロキシトルエン、トコフェロール、γ－オリザノール等の安定化剤、液化石油ガス、ジメチルエーテル、フルオロカーボン、圧縮ガス等が挙げられる。殺菌剤としては、パラクロロメタキシレート等が挙げられ、香料としては、レモン系、ローズ系、グリーン系等が挙げられ、撥水・撥油剤としては、ロウ、油脂、金属セッケン、フッ素系撥油剤等が挙げられる。

#### 【００２３】

このような任意成分Ａを配合する場合、その配合量は、害虫忌避剤の質量に対して好ましくは０．１～５質量％であり、より好ましくは０．２～４質量％であり、さらに好ましくは０．５～３質量％である。上記の任意成分Ａは、前記の剤型に調製するに際して配合することができる。

#### 【００２４】

本発明の害虫忌避剤は、必要に応じて、害虫忌避の作用を強化する目的で、４－ヒドロキシ安息香酸長鎖エステルに加えて殺虫剤、他の害虫防除剤または忌避剤等の任意成分Ｂを含有してもよい。殺虫剤としては、例えば、ピレスロイド系殺虫剤、カーバメイト系殺虫剤、有機リン系殺虫剤、フッ素系殺虫剤、昆虫成長制御剤等が挙げられ、忌避剤としては、例えば、Ｎ－ジエチル－ｍ－トル－アミド、ジメチルフタレート等が挙げられる。

#### 【００２５】

このような任意成分 B を配合する場合、その配合量は、4-ヒドロキシ安息香酸長鎖エステル<sup>(1)</sup>の質量に対して好ましくは 1～80 質量%であり、より好ましくは 5～70 質量%であり、さらに好ましくは 8～65 質量%である。上記の任意成分 B は、前記の剤型に調製するに際して配合することができる。

#### 【0026】

本発明の害虫忌避剤により忌避される害虫としては、ナメクジ、カタツムリ、マイマイ、ダニ、ゴキブリ、ハチ、ハエ、ハエ幼虫、蚊、アブ、ノミ、ムカデ、ナンキンムシ、サシバエ、イガ、ゾウリムシ、アリ、シロアリ、ヨコバイ、コナジラミ、スクミリンゴカイ、ヤケヤスデ、ダンゴ虫およびコクヌストモドキからなる群から選択される 1 種以上が挙げられる。それらの中でも、シロアリおよび／またはハチが好適に忌避される。

10

#### 【0027】

本発明の害虫忌避剤を適用対象物またはその所定部位（以下、単に適用対象物と称する）あるいはその周辺に付与することによって害虫をその適用対象物またはその周辺から忌避させることができる。また、害虫忌避剤を不織布、シート、無機担体等の担体に担持させ、害虫を忌避させたい場所にそれらを設置してもよい。

#### 【0028】

適用対象物としては、例えば、植木鉢やプランター、育苗鉢の底部または周辺部、該底部と土との間、排水口の内側、枯葉の下等が挙げられる。また、害虫の栄養源となり得る生物それ自体または該生物の周辺部も本発明における適用対象物に含まれる。例えば、農作物自体やそれが栽培されている畑、果樹園、花卉等の生育している花壇等が挙げられる。

20

#### 【0029】

また、屋内での害虫忌避剤の適用場所としては、一般家庭や食堂等の厨房、洗面所、ベランダ、物置等が挙げられる。

#### 【0030】

本発明の害虫忌避剤の適用対象物への付与方法としては、撒布、噴霧または塗布等が挙げられる。本発明の害虫忌避剤の適用量は、忌避剤の剤型や適用方法、適用場所に応じて適宜決定することができる。

#### 【0031】

本発明の害虫忌避剤において、式（1）で表される 4-ヒドロキシ安息香酸長鎖エステル<sup>(1)</sup>の含有量は、害虫忌避剤の剤型や適用方法、適用場所に応じて適宜決定できる。例えば、エアゾール剤の原液やポンプ剤のように液体で用いる場合には、害虫忌避剤中の 4-ヒドロキシ安息香酸長鎖エステルを好ましくは 0.1～50 質量%、より好ましくは 1～20 質量%含有させることができる。また、不織布等の固体担体に担持させて用いる場合、害虫忌避剤中の 4-ヒドロキシ安息香酸長鎖エステルを好ましくは 0.1 質量%～50 質量%、より好ましくは 1～30 質量%、さらに好ましくは 2～20 質量%含有させることができる。使用する固体担体は、例えば上記した材料の中から、適用場所や適用方法に応じて任意に選択することができる。

30

#### 【実施例】

#### 【0032】

〔参考例 1〕 4-ヒドロキシ安息香酸ヘキサデシル（C16）の製造

攪拌機、温度センサーおよびディーンスターク装置を備えた 1 L の 4 口フラスコにセチルアルコール 179 g を加え、窒素気流下、70℃まで昇温し、溶融させた。次いで、4-ヒドロキシ安息香酸メチル 125 g、および触媒としてテトライソプロポキシチタン 3.76 g を加え、1 時間かけて 160℃まで昇温し、同温度で 6 時間反応させて粗組成物を得た。

#### 【0033】

攪拌機、温度センサーおよび冷却管を備え、底部にコック付きの排出口を設けた 2 L の底抜き 4 口フラスコに、水 372 g、メタノール 875 g および 85 質量%リン酸 15 g の混合溶液を仕込んだ。次いで、273 g の粗組成物を 110℃まで冷却した後、混合

40

50

溶液に加えた。溶液を60℃まで昇温して溶融させた後、同温度で1時間攪拌し、攪拌を停止して同温度で1時間静置することにより有機層と水層に分離し、下層の有機層を底部の排出口から回収した。

#### 【0034】

回収した有機層にメタノール688gを加え、再度60℃まで昇温して溶解させた後、15℃まで冷却して晶析させた。晶析で得られた固形物を濾別によって取り出し、メタノール230gで洗浄した後、45℃、10mmHgの条件で乾燥させて、結晶236gを得た。得られた結晶を、HPLCおよびGCにて定量分析を行ったところ、純度99.4質量%であった。

#### 【0035】

#### シロアリ忌避試験

##### [実施例1]

ドラフト内に蛇腹状に折ったアルミホイルを敷き、アルミホイルの上に直径55mmの定性ろ紙(ADVANTEC)を置いた。予め1.8%w/vに調整した4-ヒドロキシ安息香酸ヘキサデシルのアセトン溶液0.4mLを、ろ紙の片面全体に万遍なく滴下した(処理量10%w/w)。そのままドラフト内にて3時間、風乾した(4-ヒドロキシ安息香酸ヘキサデシル処理ろ紙)。ブランク用として、同様の方法でアセトンのみを滴下し乾燥させたろ紙(ブランクろ紙)を用意した。

#### 【0036】

ステンレスバット(24cm×20cm×高さ3cm)の2隅(対角線上)に、上記の4-ヒドロキシ安息香酸ヘキサデシル処理ろ紙およびブランクろ紙を各1枚設置し、両ろ紙にそれぞれ水道水1mLを滴下した。バット中央にイエシロアリ30頭を放虫し、保湿の為にビニール袋を被せ、更に上から遮光のために黒ポリ袋を被せた状態で25℃で6日間放置した。ヘキサデシルパラベン処理ろ紙およびブランクろ紙の質量を測定し、質量減少を計算した。結果を表3に示す。ろ紙の質量減少が多いほど、ろ紙がシロアリに摂食されたことを示す。

#### 【0037】

##### [比較例1]

4-ヒドロキシ安息香酸ヘキサデシルを4-ヒドロキシ安息香酸ブチル(ブチルパラベン)に変更した以外は実施例3と同様に試験を実施した。結果を表3に示す。

##### [比較例2]

4-ヒドロキシ安息香酸ヘキサデシルを4-ヒドロキシ安息香酸ドコシルエステル(C22)に変更した以外は実施例3と同様に試験を実施した。結果を表3に示す。

#### 【表1】

|      | 忌避試験後のろ紙の乾燥質量減少(mg) |      |
|------|---------------------|------|
|      | 試験区                 | ブランク |
| 実施例1 | 0.3                 | 7.2  |
| 比較例1 | 2.9                 | 6.9  |
| 比較例2 | 3.1                 | 7.4  |

#### 【0038】

#### ハチ忌避試験

##### [実施例2]

36mLの透明なプラスチックの容器内に、はちみつを浸み込ませた綿を入れ、4-ヒドロキシ安息香酸ヘキサデシルを処理したろ紙(ハチが侵入できる程度の穴空き)で蓋をしてカップAを作製した。ブランク用として、同様の方法により通常のろ紙で蓋をしたカップBを用意した。

#### 【0039】

ナイロンゴースケージ(30cm×30cm×高さ30cm)の2隅(対角線上)に、

10

20

30

40

50

上記のカップ A およびカップ B を各 1 個設置し、ケージの中にミツバチ 50 匹を放虫した。24 時間後のそれぞれのカップ内のミツバチの数を観測した。結果を表 2 に示す。

【0040】

〔比較例 3〕

4-ヒドロキシ安息香酸ヘキサデシルを 4-ヒドロキシ安息香酸ブチル（ブチルパラベン）に変更した以外は実施例 2 と同様に試験を実施した。結果を表 2 に示す。

【0041】

〔比較例 4〕

4-ヒドロキシ安息香酸ヘキサデシルを 4-ヒドロキシ安息香酸ドコシルエステル（C22）に変更した以外は実施例 2 と同様に試験を実施した。結果を表 2 に示す。

10

【0042】

【表 2】

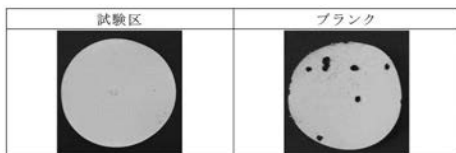
|       | 誘引虫数（匹）    |             | 忌避率（%） |
|-------|------------|-------------|--------|
|       | 試験区（カップ A） | ブランク（カップ B） |        |
| 実施例 2 | 6          | 42          | 85.7   |
| 比較例 3 | 12         | 11          | −9.1   |
| 比較例 4 | 20         | 26          | 23.1   |

※忌避率＝ $[1 - (\text{カップ A 内での誘引率} / \text{カップ B 内での誘引率})] \times 100$

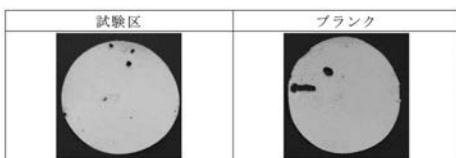
誘引率＝ $(\text{誘引虫数} / \text{放虫数}) \times 100$

20

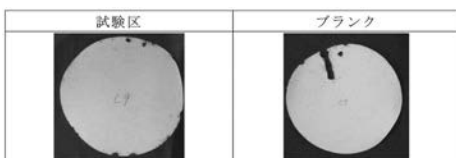
【図 1】



【図 2】



【図 3】



---

フロントページの続き

(72)発明者 土谷 美緒

大阪府大阪市中央区高麗橋2丁目4番8号 上野製薬株式会社内

Fターム(参考) 2B121 AA11 AA12 AA13 AA14 AA16 AA17 CA02 CA59 CA61 CA64  
CC02 CC03 CC04 CC22 CC28 CC29 CC31 EA01 EA24 EA25  
EA26 FA13 FA15  
4H011 AC06 BB06 DE15 DE17 DG05