(19)日本国特許庁(JP)　(12)特　許　公　報(B2)　(11)特許番号

特許第4268685号
(P4268685)

(45)発行日　平成21年5月27日(2009.5.27)　(24)登録日　平成21年2月27日(2009.2.27)

(51)Int.Cl.		F I		
B01J 13/14	(2006.01)	B01J	13/02	B
A01N 25/28	(2006.01)	A01N	25/28	
A01N 33/18	(2006.01)	A01N	33/18	B

請求項の数 12　(全 17 頁)

(21)出願番号　特願平8-165329
(22)出願日　平成8年6月5日(1996.6.5)
(65)公開番号　特開平9-103669
(43)公開日　平成9年4月22日(1997.4.22)
審査請求日　平成15年6月3日(2003.6.3)
(31)優先権主張番号　482586
(32)優先日　平成7年6月7日(1995.6.7)
(33)優先権主張国　米国(US)

前置審査

(73)特許権者　591000791
ワイス・ホールディングズ・コーポレイション
Ｗｙｅｔｈ　Ｈｏｌｄｉｎｇｓ　Ｃｏｒｐｏｒａｔｉｏｎ
アメリカ合衆国ニュージャージイ州０７９４０－０８７４　マディソン・フアイブジラルダフアームス（番地なし）
(74)代理人　110000741
特許業務法人小田島特許事務所
(72)発明者　ブライアン・エリツク・ベノフ
アメリカ合衆国ニユージヤージイ州０７５０６ホーソーン・ナンバー２・テンスアベニユー８０

最終頁に続く

(54)【発明の名称】マイクロカプセル組成物の製造方法

(57)【特許請求の範囲】

【請求項１】

（ａ）塩化リチウム、塩化ナトリウム、塩化カリウム、塩化アンモニウム、塩化マグネシウム、塩化カルシウム、硝酸リチウム、硝酸ナトリウム、硝酸カリウム、硝酸マグネシウム、硝酸カルシウム、硫酸リチウム、硫酸ナトリウム、硫酸カリウム、硫酸アンモニウム、硫酸マグネシウム、リン酸一水素ナトリウム、リン酸一水素カリウム、リン酸一水素アンモニウム、リン酸二水素ナトリウム、リン酸二水素カリウム及びリン酸二水素アンモニウムから成る群より選ばれる塩又はこれらの塩の混合物及び乳化剤又は乳化剤の混合物を含有する水性溶液、ここで該塩又は塩の混合物の含有量が５重量％乃至３０重量％である、を用意し、

（ｂ）第１反応性壁形成性成分及び塩水非混和性除草剤又は殺虫剤を含有する塩水非混和性溶液を前記水性溶液中に撹拌しながら分散させて分散液を形成し、

（ｃ）該第１反応性壁形成性成分と反応する第２反応性壁形成性成分を工程（ｂ）の前記分散液に撹拌しながら加えて該塩水非混和性除草剤又は殺虫剤のまわりに重縮合物又は重付加物外皮壁を形成すること、

によって得られる、重縮合物又は重付加物の外皮壁内に塩水非混和性除草剤又は殺虫剤を含んで成るマイクロカプセル。

【請求項２】

該除草剤が、ジニトロアニリン化合物及びアセトアニリド化合物からなる群より選ばれ、該殺虫剤がリン酸エステル化合物及びピレスロイド化合物から成る群より選ばれる、請

求項１に記載のマイクロカプセル。
【請求項３】
該ジニトロアニリン化合物がペンディメタリン及びトリフルラリンから成る群より選ばれ、該アセトアニリド化合物がアラクロール及びメトラクロールから成る群より選ばれ、該リン酸エステル化合物がターブホス、マラチオン及びクロルピリホスから成る群より選ばれ、該ピレスロイド化合物がシペルメトリン、α－シペルメトリン及びペルメトリンから成る群より選ばれる、請求項２に記載のマイクロカプセル。
【請求項４】
該水性溶液が０．５重量％乃至５重量％の乳化剤又は乳化剤の混合物を含有する、請求項１乃至３のいずれか１つに記載のマイクロカプセル。
【請求項５】
該重縮合物又は重付加物がポリ尿素、ポリウレタン、ポリアミド、ポリカーボネート及びポリスルホンアミドから成る群より選ばれる、請求項１乃至４のいずれか１つに記載のマイクロカプセル。
【請求項６】
（ａ）塩化リチウム、塩化ナトリウム、塩化カリウム、塩化アンモニウム、塩化マグネシウム、塩化カルシウム、硝酸リチウム、硝酸ナトリウム、硝酸カリウム、硝酸マグネシウム、硝酸カルシウム、硫酸リチウム、硫酸ナトリウム、硫酸カリウム、硫酸アンモニウム、硫酸マグネシウム、リン酸一水素ナトリウム、リン酸一水素カリウム、リン酸一水素アンモニウム、リン酸二水素ナトリウム、リン酸二水素カリウム及びリン酸二水素アンモニウムから成る群より選ばれる塩又はこれらの塩の混合物及び乳化剤又は乳化剤の混合物を含有する水性溶液、ここで該塩又は塩の混合物の含有量が５重量％乃至３０重量％である、を用意し、
（ｂ）第１反応性壁形成性成分及び塩水非混和性除草剤又は殺虫剤を含有する塩水非混和性溶液を前記水性溶液中に撹拌しながら分散させて分散液を形成し、
（ｃ）該第１反応性壁形成性成分と反応する第２反応性壁形成性成分を工程（ｂ）の前記分散液に撹拌しながら加えて該塩水非混和性除草剤又は殺虫剤のまわりに重縮合物又は重付加物外皮壁を形成すること、
を含むマイクロカプセル組成物の製造方法。
【請求項７】
該除草剤が、ジニトロアニリン化合物及びアセトアニリド化合物からなる群より選ばれ、該殺虫剤がリン酸エステル化合物及びピレスロイド化合物から成る群より選ばれる、請求項６に記載の方法。
【請求項８】
該ジニトロアニリン化合物がペンディメタリン及びトリフルラリンから成る群より選ばれ、該アセトアニリド化合物がアラクロール及びメトラクロールから成る群より選ばれ、該リン酸エステル化合物がターブホス、マラチオン及びクロルピリホスから成る群より選ばれ、該ピレスロイド化合物がシペルメトリン、α－シペルメトリン及びペルメトリンから成る群より選ばれる、請求項７に記載の方法。
【請求項９】
該水性溶液が０．５重量％乃至５重量％の乳化剤又は乳化剤の混合物を含有する、請求項６乃至７のいずれか１つに記載の方法。
【請求項１０】
該重縮合物又は重付加物がポリ尿素、ポリウレタン、ポリアミド、ポリカーボネート及びポリスルホンアミドから成る群より選ばれる、請求項６乃至８のいずれか１つに記載の方法。
【請求項１１】
殺有害生物有効量の請求項６乃至１０のいずれか１つに記載の方法によりマイクロカプセル化された殺有害生物剤を有害生物の棲息地に施用することを含んで成る有害生物を防除する方法。

【請求項１２】
農業的に許容し得る担体と、殺有害生物有効量の請求項６乃至１１のいずれか１つに記載の方法によりマイクロカプセル化された殺有害生物剤を含有して成る殺有害生物組成物。
【発明の詳細な説明】
【０００１】
【産業上の利用分野】
本発明はマイクロカプセル組成物に関する。
【０００２】
【従来の技術】
界面重合によるマイクロカプセル組成物の製造は当業界で周知されている（例えば、米国特許第３，５７７，５１５号、米国特許第４，２８０，８３３号及び米国特許第５，３１０，７２１号参照）。これらの特許では、マイクロカプセル組成物は、種々の乳化剤、第一壁形成性成分、カプセル化される（encapsulated)べき物質及び水を含有するエマルションを補足的第二壁形成性成分と反応させることにより同様な方法で製造される。
【０００３】
これらの特許間の主たる差は乳化剤の選択であり、米国特許第３，５７７，５１５号は部分的に加水分解されたポリビニルアルコール、ゼラチン及びメチルセルロースを使用しており、米国特許第４，２８０，８３３号はリグニンスルホネートの塩の使用を開示しており、米国特許第５，３１０，７２１号は、スチレン－無水マレイン酸コポリマーの部分エステルの塩の使用を開示している。
【０００４】
これらの方法は或るマイクロカプセル組成物の製造には有用であるけれども、種々の乳化剤を使用し、容易に結晶しない高い濃度の活性成分を有するマイクロカプセル組成物を製造する方法にたいする当業界における要求は依然として存在する。
【０００５】
【発明が解決しようとする課題】
故に、本発明の目的は、高い濃度の活性成分を有し、容易に結晶化せず且つ種々の乳化剤を使用して製造することができる安定なマイクロカプセル組成物を製造する方法を提供することである。
【０００６】
本発明の目的は、活性剤の放出が迅速で且つ汚染（staining)特性が減少した農業用マイクロカプセル組成物を提供することでもある。
【０００７】
本発明のこれらの目的及び他の目的は、以下に記載するその詳細な説明から明らかになるであろう。
【０００８】
【課題を解決するための手段】
本発明は、マイクロカプセル形成に先立ち塩又は塩の混合物を使用するマイクロカプセル組成物の製造方法に関する。
【０００９】
特に、本発明は
（ａ）塩又は塩の混合物及び乳化剤又は乳化剤の混合物を含有する水性溶液を提供し、
（ｂ）第１反応性壁形成性成分及び塩水非混和性物質（salt water-immiscible material)を含有する塩水非混和性溶液（salt water-immiscible solution)を前記水性溶液中に撹拌しながら分散させて分散液を形成し、
（ｃ）該第１反応性壁形成性成分と反応する第２反応性壁形成性成分を工程
（ｂ）の前記分散液に撹拌しながら加えて該塩水非混和性物質のまわりに重縮合物外皮壁（polycondensate shell wall)を形成すること、
を含むマイクロカプセル組成物の製造方法に関する。

【００１０】
本発明は、マイクロカプセル組成物の殺有害生物剤としての使用（pesticidal use)、マイクロカプセル組成物を含有する殺有害生物組成物（pesticidal compositions)及び本発明の方法により製造されたマイクロカプセルにも関する。
【００１１】
本発明は、水性塩溶液中に懸濁させた重縮合物の外皮壁（shell wall)内に塩水非混和性物質を含有するマイクロカプセルを有する組成物の製造方法であって、塩又は塩の混合物及び乳化剤又は乳化剤の混合物を含有する水性溶液を提供し、外皮壁を形成するのに必要な第１反応性成分及び該塩水非混和性物質を含有する塩水非混和性溶液を前記水性溶液中に撹拌しながら分散させて分散液を形成し、該第１反応性成分と反応する該外皮壁を形成するのに必要な第２反応性成分を前記分散液に撹拌しながら加えて該塩水非混和性物質のまわりに重縮合物外皮壁を形成すること、を含む方法を提供する。
【００１２】
驚くべきことに、本発明の方法は物理的及び化学的に安定なマイクロカプセル組成物を与えることが見いだされた。本発明のマイクロカプセル組成物の安定性は、組成物を製造するのに使用される方法において塩又は塩の混合物の使用により達成される。塩又は塩の混合物はカプセル化されるべき物質の水性溶解性(aqueous solubility)を減少させ、それにより、本発明のマイクロカプセル組成物中に存在するカプセル化されていない物質の量を減少させる。本発明の組成物中に存在するカプセル化されていない物質の量の減少は非常に望ましい。何故ならば、結晶成長のためのポテンシャルが大幅に減少しそして多くの場合に全くなくなるからである。
【００１３】
有利には、本発明の方法は高い濃度の塩水非混和性物質を含有していてもよいマイクロカプセル組成物を提供する。マイクロカプセルが形成されて後塩を加えること、即ち、後添加は知られており、塩の後添加は組成物の全容積を増加させ、それにより、組成物中に存在する塩水非混和性物質の濃度を減少させる。或る種の塩、特に硫酸マグネシウム及び塩化カルシウムの後添加は、マイクロカプセル組成物の物理的化学的安定性を有意に減少させる発熱性水和反応が起こるので、実際的ではないことは知られている。しかしながら、本願の方法は硫酸マグネシウム及び塩化カルシウムの使用を可能とする。当該技術は、本発明のようにマイクロカプセルが形成される前に塩を加えることを教示していない。
【００１４】
本発明の方法で使用するのに好適な塩は、塩化リチウム、塩化ナトリウム、塩化カリウム、硝酸リチウム、硝酸ナトリウム、硝酸カリウム、硫酸リチウム、硫酸ナトリウム、硫酸カリウム、リン酸一水素ナトリウム、リン酸一水素カリウム、リン酸二水素ナトリウム、リン酸二水素カリウム等のようなアルカリ金属塩；塩化マグネシウム、塩化カルシウム、硝酸マグネシウム、硝酸カルシウム、硫酸マグネシウム等のようなアルカリ土金属塩；及び塩化アンモニウム、硫酸アンモニウム、リン酸一水素アンモニウム、リン酸二水素アンモニウム等のようなアンモニウム塩を包含する。本発明で使用するのに好適な塩としては、塩化ナトリウム、塩化カリウム、塩化カルシウム、及び硫酸マグネシウムが挙げられ、硫酸マグネシウムが特に好ましい。
【００１５】
驚くべきことに、広範な種類の乳化剤を使用して安定なマイクロカプセル組成物を製造することができることが見いだされた。特に、エトキシル化リグノスルホン酸塩、リグノスルホン酸塩、酸化リグニン、リグニン塩、スチレン－無水マレイン酸コポリマーの塩、スチレン－無水マレイン酸コポリマーの部分エステルの塩、ポリアクリル酸の部分塩、ポリアクリル酸ターポリマーの部分塩等のような乳化剤が、本発明の方法で使用するのに好適である。上記の乳化剤において、ナトリウム塩、カリウム塩、マグネシウム塩、カルシウム塩及びアンモニウム塩が一般に好ましく、ナトリウム塩及びマグネシウム塩が特に好ましい。本発明で使用するための好ましい乳化剤には、エトキシル化リグノスルホン酸塩、リグノスルホン酸塩及び酸化リグニンが包含され、エトキシル化リグノスルホン酸塩がよ

り好ましく、エトキシル化リグノスルホン酸のナトリウム塩が最も好ましい。
本発明の水性溶液は、好ましくは、約５重量％乃至３０重量％、更に好ましくは約１５重量％乃至３０重量％の塩又は塩の混合物を含有する。５％未満の塩では、本発明の利点はあまり明らかではなく、３０％より多いと、過飽和溶液の危険が増加する。水性溶液は、好ましくは約０．５重量％乃至５重量％、更に好ましくは約１重量％乃至３重量％の乳化剤又は乳化剤の混合物も含有する。

【００１６】

一般に、約６５℃以下の融点を持つか又は塩水非混和性溶媒に可溶でありそして第一反応性壁形成性成分と相容性である塩水非混和性物質は、本発明の方法によりカプセル化される(encapsulated)ことができる。従って、より多様な種類の物質を本発明の方法によりカプセル化することができる。何故ならば、これらの物質の溶解性は本方法においては塩水中で一般に低くなるからである。特に、農業用化合物、製薬学的化合物、染料、インキ、香味剤等のような塩水非混和性物質を含有するマイクロカプセルは、本発明の方法により製造することができる。本発明は、除草剤、殺虫剤、殺ダニ剤、殺線虫剤、殺菌剤（fungicides)、植物生長調節剤、毒性緩和剤(safeners)、殺藻剤(algicides)、殺軟体動物剤(molluscicides)、殺べと病菌剤(mildewicides)、殺外部寄生虫剤(ectoparasiticides)等のような塩水非混和性農業用化合物を含有するマイクロカプセルの製造に特に好適である。

【００１７】

本発明の方法は、除草性化合物及び殺虫性化合物を含有するマイクロカプセルの製造に特に好適である。本発明で使用するのに特に好適な除草性化合物には、ペンディメタリン及びトリフルラリンのようなジニトロアニリン化合物、並びにアラクロール、メトラクロール及びプロパクロールのようなハロアセトアニリドが包含される。本発明で使用するのに特に好適な殺虫性化合物にはターブホス(terbufos)、マラチオン、クロルピリホス(chlorpyrifos)、ダイアジノン、及びプロフェノホス(profenofos)のようなリん酸エステル化合物、並びにシペルメトリン(cypermethrin)、α－シペルメトリン（α－cypermethrin)及びペルメトリン（permethrin)のようなピレスロイド化合物が包含される。

【００１８】

本発明の方法により製造されたマイクロカプセル組成物は、好ましくは、約５重量％乃至６０重量％、更に好ましくは約２０重量％乃至５０重量％の塩水非混和性物質を含有する。

【００１９】

塩水非混和性溶液は、塩水非混和性物質の融点以上の温度で第一反応性壁形成性成分を塩水非混和性物質と混合することにより製造される。別法として、塩水非混和性溶液は、第一反応性壁形成性成分を適当な塩水非混和性溶媒中の塩水非混和性物質の溶液と混合することにより製造することができる。

【００２０】

使用するのに好適な塩水非混和性溶媒には、本発明の方法で使用される成分のいずれとも望ましくない反応を引き起こさない溶媒が包含される。好適な溶媒には、塩水非混和性の、炭化水素、芳香族炭化水素、塩素化炭化水素、塩素化芳香族炭化水素、ケトン、長鎖エステル及びそれらの混合物が包含される。

【００２１】

本発明の重縮合物外皮壁は、いかなる公知の外皮壁物質であってもよく、好ましくは、ポリ尿素、ポリウレタン、ポリアミド、ポリカーボネート又はポリスルホンアミドであり、ポリ尿素外皮壁が特に好ましい。重縮合物外皮壁は当業界で周知の反応性成分から生成させることができる。好ましくは、重縮合物外皮壁は、ポリイソシアネート、ポリ酸クロライド、ポリクロロホルメート及びポリスルホニルクロライドから成る群より選ばれる第一反応性成分を、ポリアミン及びポリオールから成る群より選ばれる補足的第二反応性成分と反応させて適当な重縮合物外皮壁を形成させることにより生成される。本発明の好ましい方法では、ポリイソシアネートをポリアミンと反応させてポリ尿素外皮壁を形成する。

【００２２】

使用するのに好適なポリイソシアネートには、イソシアネー基が脂肪族又は芳香族基に結合しているジ－及びトリイソシアネートが包含される。好適なポリイソシアネートには、テトラメチレンジイソシアネート、ペンタメチレンジイソシアネート、ヘキサメチレンジイソシアネート、トルエンジイソシアネート、ジフェニルメタン－４，４′－ジイソシアネート、ポリメチレンポリフェニレンイソシアネート、２，４，４′－ジフェニルエーテルトリイソシアネート、３，３′－ジメチル－４，４′－ジフェニルジイソシアネート、３，３′－ジメトキシ－４，４′－ジフェニルジイソシアネート、１，５－ナフチレンジイソシアネート、４，４′４″－トリフェニルメタントリイソシアネート等が包含され、ポリメチレンポリフェニレンイソシアネートが好ましい。

【００２３】

本発明の方法で使用するのに好適なポリアミンには、エチレンジアミン、プロピレン－１，３－ジアミン、テトラメチレンジアミン、ペンタメチレンジアミン、１，６－ヘキサメチレンジアミン、ジエチレントリアミン、トリエチレンテトラミン、テトラエチレンペンタミン、ペンタエチレンヘキサミン、４，９－ジオキサドデカン－１，１２－ジアミン、１，３－フェニレンジアミン、２，４－及び２，６－トルエンジアミン、４，４′－ジアミノジフェニルメタン等が包含され、１，６－ヘキサメチレンジアミンが好ましい。これらのポリアミンの塩酸塩も本発明の方法において使用することができる。

【００２４】

種々の外皮壁厚さが本発明に従って達成されうる。一般に、壁厚さはマイクロカプセルの所望される用途に関して選ばれるであろう。塩水非混和性溶液は、好ましくは、約１重量％乃至１５重量％、更に好ましくは約２重量％乃至８重量％の第一反応性壁形成性成分を含有する。第二反応性壁形成性成分は、好ましくは、塩水非混和性溶液の量に対し約０．３重量％乃至５重量％、更に好ましくは約０．６重量％乃至３重量％の量で存在する。

【００２５】

本発明の方法は、一般に高められた温度で行われて、塩の溶解性を増加させ、塩水非混和性物質を液体状態に保ち、そして壁形成反応速度を高める。本発明の方法は、好ましくは約３５℃乃至８５℃の温度で行われ、更に好ましくは約５０℃乃至６５℃の温度で行われる。本発明の方法により製造されたマイクロカプセルは、好ましくは、約３マイクロメートル乃至５０マイクロメートル、更に好ましくは約５マイクロメートル乃至１５マイクロメートルのメディアン径（median diameter)を有する。

【００２６】

本発明は、本発明の方法により製造されたマイクロカプセルにも関する。有利には、本発明の方法の期間中、少量の塩水をマイクロカプセルに導入することができることが見いだされた。少量の塩水をマイクロカプセルに導入することの利点の一つは、マイクロカプセル内容物の放出速度が水による希釈により増加するということである。この性質は、本発明のマイクロカプセルを急速な放出が望まれる農業用用途に特に有用にすることができる。

【００２７】

本発明は、更に、雑草、昆虫、ダニ、菌類（カビ）、線虫等のような有害生物のいる場所に、本発明の方法によりマイクロカプセル化された(microencapsulated)殺有害生物有効量の殺有害生物剤(pesticide)を施用することにより、該有害生物を防除する方法に関する。特に、本発明は、望ましくない植物の葉、又は該植物の種子もしくは他の繁殖器官を含有する土壌又は水に、本発明の方法によりマイクロカプセル化された除草有効量の除草剤を施用することにより、望ましくない植物種を防除する方法を提供する。

【００２８】

本発明は、農業的に許容され得る不活性固体又は液体担体と、殺有害生物的有効量の本発明に方法によりマイクロカプセル化された殺有害生物剤を含んで成る殺有害生物組成物も提供する。有利には、本発明の方法により製造されたマイクロカプセル組成物は、直接殺有害生物組成物として使用することができ、そして使用のために水で希釈される。別法として、沈降防止剤、塩、発泡防止剤、界面活性剤、ｐＨ調節剤、凍結防止剤等のような追

加の成分を本発明の方法により製造されたマイクロカプセル組成物に加えて、濃縮されたマイクロカプセル殺有害生物組成物を形成することができる。特に、本発明は、塩水非混和性物質が除草剤であるマイクロカプセル組成物約９０重量％乃至９９重量％、更に好ましくは約９５重量％乃至９９重量％と、約１重量％乃至５重量％の沈降防止剤及び約０．５重量％以下の発泡防止剤を含有する水性溶液約１重量％乃至１０重量％、更に好ましくは約１重量％乃至５重量％とを含んで成る濃縮されたマイクロカプセル除草性組成物を提供する。

【００２９】

所望により、ろ過のような当業界で知られた方法によって、本発明の方法により製造されたマイクロカプセル組成物からマイクロカプセルを分離して貯蔵安定性流動性粉末を得ることができる。

【００３０】

或る種の除草性組成物の施用と関連した問題の一つは非標的区域の汚染が起こるということである。汚染は、或る種の芝生（lawn and turf)除草性組成物が施用されるとき特に面倒である。何故ならば、ビニルの羽目及びコンクリートのような或る種の非標的区域が容易に汚染されるからである。特に、ペンディメタリンのような或る種のジニトロアニリン除草剤は望ましくない汚染を引き起こした。有利には、ペンディメタリンのような除草剤の商業的に入手可能な処方の使用と関連した汚染問題は、除草剤を本発明の方法により製造されるマイクロカプセルの形態で施用すると、完全には排除されないとしても有意に減少させられることが見いだされた。

【００３１】

本発明の更なる理解を促進するために、以下の実施例を主として本発明を更に詳しく説明するために提供する。本発明の完全な範囲は特許請求の範囲に記載されているので、本発明は実施例により限定されるものと見なすべきではない。

【００３２】

実施例１

マイクロカプセル組成物の製造

塩化ナトリウム（３５ｇ）、サイプレス(ＣＹＰＲＥＳ)(R)４８（４．２５ｇ）及び水（１５０ｇ）の混合物を６０℃に加熱し、撹拌して水性溶液を得た。塩水非混和性溶液（ペンディメタリン（１４０ｇ）及びモンジュール（ＭＯＮＤＵＲ)(R)ＭＲＳ（ペンシルバニア州、ピッツバーグのモベイ・コーポレーションにより製造された４,４′－ジフェニルジイソシアネートポリマー）１．７３ｇの混合物を６０℃に加熱することにより前以て製造された）を前記水性溶液に撹拌しながら加えてエマルションを形成する。しかる後、撹拌器の速度を減少させ、水（５．６ｇ）中の１，６－ヘキサメチレンジアミン（ＨＭＤＡ，０．６ｇ）の溶液を前記撹拌したエマルションに加え、得られる混合物を約２時間撹拌して、表IIにおいて組成物番号１として示されたマイクロカプセル組成物を形成する。

本質的に同じ手順を用い、表Iに記載の成分を用いて、表IIにおいて組成物番号２－４０として示されたマイクロカプセル組成物を得る。追加の成分が使用される場合には、それらは、塩水非混和性溶液の添加の前に前記水性溶液に添加される。

【００３３】

表I

除草剤

ａ．　ペンディメタリン
ｂ．　トリフルラリン

塩

ｃ．　塩化ナトリウム
ｄ．　塩化カルシウム
ｅ．　塩化カリウム
ｆ．　硫酸マグネシウム
ｇ．　硫酸ナトリウム

乳化剤
ｈ．　サイプレス（ＣＹＰＲＥＳ）(R)４８、ニュージャーシー州、ウエストパターソンのサイテック（ＣＹＴＥＣＨ）・インダストリーズ・ンイコーポレーテッドにより製造された無水マレイン酸コポリマーのナトリウム塩、
ｉ．　レアックス（ＲＥＡＸ）(R)８８Ｂ、サウスカロライナ州、チャールストンハイツのウエストバコ（Ｗｅｓｔｏｖａｃｏ）により製造されたリグノスルホン酸のナトリウム塩、
ｊ．　インジュリン（ＩＮＤＵＬＩＮ）(R)Ｃ、サウスカロライナ州、チャールストンハイツのウエストバコにより製造されたリグニンのナトリウム塩、
ｋ．　レアックス(R)８２５Ｅ　１．２モルエトキシル化、サウスカロライナ州、チャールストンハイツのウエストバコにより製造されたエトキシル化リグノスルホン酸のナトリウム塩、
ｌ．　レアックス(R)８２５Ｅ　２．４モルエトキシル化、サウスカロライナ州、チャールストンハイツのウエストバコにより製造されたエトキシル化リグノスルホン酸のナトリウム塩、
ｍ．　レアックス(R)８２５Ｅ　３．６モルエトキシル化、サウスカロライナ州、チャールストンハイツのウエストバコにより製造されたエトキシル化リグノスルホン酸のナトリウム塩、
ｎ．　リグノテク（ＬＩＧＮＯＴＥＣＨ）(R)、ウィスコンシン州、ロスシールドのリグノテク（Ｌｉｇｎｏｔｅｃｈ）（ＵＳＡ）により製造された酸化クラフトリグニンのナトリウム塩、
ｏ．　ＸＳＭＡ(R)１５０００；ペンシルバニア州、マルベルンのアトケム・インコーポレーテッド（Ａｔｏｃｈｅｍ　Ｉｎｃ．，）により製造された１．５：１．０スチレン／無水マレイン酸コポリマー、
ｐ．　ＸＳＭＡ(R)１００００；ペンシルバニア州、マルベルンのアトケム・インコーポレーテッド（Ａｔｏｃｈｅｍ　Ｉｎｃ．，）により製造された１．０：１．０スチレン／無水マレイン酸コポリマー、
ｑ．　グッドライト（ＧＯＯＤＲＩＴＥ）(R)Ｋ－７３２、オハイオ州、ブレックスビレのビーエフ・グッドリッチ・カンパニーにより製造されたポリアクリル酸ナトリウムとポリアクリル酸の混合物、
ｒ．　グッドライト（ＧＯＯＤＲＩＴＥ）(R)Ｋ－７９８、オハイオ州、ブレックスビレのビーエフ・グッドリッチ・カンパニーにより製造された部分的に中和されたアクリルターポリマー、
ｓ．　ＳＭＡ(R)３０００Ａ　１０％溶液；水３３８ｇ、ＳＭＡ(R)３０００Ａ（ペンシルバニア州、マルベルンのアトケム・インコーポレーテッドにより製造されたスチレン－無水マレイン酸ポリマー）４０ｇ及び５０％水酸化ナトリウム溶液２９．８ｇから製造された、
追加の成分
ｔ．　シンド(ＴＨＩＮＤ)(R)３０、カンサス社、カンサス市のハークロス・ケミカルズ・インコーポレーテッド（Ｈａｒｃｒｏｓ　Ｃｈｅｍｉｃａｌｓ　Ｉｎｃ，）によれ製造されたシリコーン発泡防止剤、
ｕ．　１０％ＨＣｌ溶液
Ｖ．　５０％水酸化ナトリウム溶液。
【００３４】
【表１】

【００３５】
【表２】

表　ＩＩ
マイクロカプセル組成物

組成物番号	成分／重量／重量%						
	除草剤	塩	乳化剤	ﾓﾝｼﾞｭｰﾙ ®MRS	HMDA	水	その他
1	a/41.52	c/10.38	h/1.26	0.51	0.18	46.15	-
2	a/41.52	c/10.38	i/1.26	0.51	0.18	46.15	-
3	a/39.09	c/15.63	h/1.19	0.48	0.17	43.44	-
4	a/39.09	c/15.63	i/1.19	0.48	0.17	43.44	-
5	a/41.52	c/10.38	j/1.26	0.51	0.18	46.15	-
6	a/39.09	c/15.63	j/1.19	0.48	0.17	43.44	-
7	a/41.52	c/10.38	k/1.26	0.51	0.18	46.15	-
8	a/41.52	c/10.38	l/1.26	0.51	0.18	46.15	-
9	a/41.52	c/10.38	m/1.26	0.51	0.18	46.15	-
10	a/41.52	c/10.38	n/1.26	0.51	0.18	46.15	-
11	a/41.52	c/10.38	o/1.26	0.51	0.18	46.15	-
12	a/41.52	c/10.38	p/1.26	0.51	0.18	46.15	-
13	a/41.52	c/10.38	q/1.26	0.51	0.18	46.15	-
14	a/39.09	d/15.63	m/1.19	0.48	0.17	43.44	-
15	a/40.33	d/12.96	m/1.22	0.50	0.17	44.82	-

【００３６】
【表３】

表 II （続き）

組成物番号	成分／重量／重量% 除草剤	塩	乳化剤	ﾓﾝｼﾞｭｰﾙ®MRS	HMDA	水	その他
16	a/41.32	c/10.33	i/1.26	0.51	0.18	45.75	u/0.64
17	a/39.54	e/14.12	i/1.21	0.49	0.17	43.78	u/0.69
18	a/47.33	d/8.79	h/1.30	0.70	0.24	41.58	t/0.06
19	a/47.35	d/8.80	h/1.30	0.85	0.29	41.35	t/0.06
20	a/40.77	f/9.72	m/1.08	1.48	0.51	46.39	t/0.06
21	a/49.04	f/8.36	m/0.93	1.27	0.44	39.91	t/0.05
22	a/40.21	c/10.05	q/1.29	0.50	0.17	44.69	u/2.11 v/0.98
23	a/41.23	c/10.31	r/1.33	0.51	0.18	45.83	u/0.20 v/0.42
24	a/47.50	d/12.26	s/3.68	0.74	0.26	35.50	t/0.06
25	a/46.91	d/11.94	h/0.33	0.74	0.26	39.78	t/0.05
26	a/48.48	g/8.98	h/0.34	0.76	0.26	41.12	t/0.06
27	a/48.21	c/9.49	h/0.34	0.76	0.26	40.89	t/0.06
28	a/46.55	f/11.85	i/1.08	0.73	0.25	39.48	t/0.05
29	a/46.55	d/11.85	i/1.08	0.73	0.25	39.48	t/0.05
30	a/48.11	g/8.91	i/1.11	0.76	0.26	40.80	t/0.06

表 II （続き）

組成物番号	成分／重量／重量% 除草剤	塩	乳化剤	ｷｼﾘｺｰﾙ @MRS	HMDA	水	その他
31	a/47.84	c/9.41	i/1.11	0.75	0.26	40.57	t/0.06
32	b/35.57	c/11.32	i/1.38	0.43	0.15	50.27	u/0.88
33	b/41.16	c/10.29	i/1.26	0.51	0.18	45.74	u/0.87
34	a/44.40	f/8.63	m/0.99	2.79	0.97	42.15	t/0.06
35	a/44.42	f/8.48	m/0.99	3.50	1.22	41.38	t/0.01
36	a/44.42	f/9.85	m/0.99	2.22	0.78	41.73	t/0.01
37	a/47.24	c/9.29	i/1.09	1.49	0.51	40.32	t/0.05
38	a/46.65	c/9.18	i/1.08	2.20	0.76	40.07	t/0.05
39	a/45.98	f/11.71	i/1.06	1.45	0.50	39.24	t/0.05
40	a/45.43	f/11.57	i/1.05	2.15	0.74	39.02	t/0.05

【００３７】

実施例２

濃縮されたマイクロカプセル組成物の製造

塩化ナトリウム（２１ｇ）及び２％ケルザン（ＫＥＬＺＡＮ）{R}Ｓ（カリフォルニア州、サンジエゴのケルコ（Ｋｅｌｃｏ）により製造されたキサンタンゴム沈降防止剤）溶液（１２ｇ）を番号１の組成物（実施例１からの）３３７．２ｇに撹拌しながら加えて表II

Iにおいて組成物番号４１として示された濃縮されたマイクロカプセル組成物を形成する。

【００３８】

本質的に同じ手順を用い、実施例１からの適当なマイクロカプセル組成物を使用しそしてケルザン{R}溶液を単独で又は追加の塩と組み合わせて加えて、表IIIにおいて組成物番号４２－４８として示された濃縮されたマイクロカプセル組成物を得る。

【００３９】

【表４】

表 ＩＩＩ
濃縮されたマイクロカプセル組成物

組成物番号	成分／重量／重量％ 除草剤	塩	乳化剤	ｾﾙｼﾞｪｰﾙ®MRS	HMDA	水	ケルザン®S	その他
41	a/37.82	c/15.13	h/1.15	0.47	0.16	45.21	0.06	-
42	a/37.82	c/15.13	i/1.15	0.47	0.16	45.21	0.06	-
43	a/37.82	c/15.13	j/1.15	0.47	0.16	45.21	0.06	-
44	a/43.75	f/8.50	m/0.98	2.75	0.96	42.98	0.03	t/0.06
45	a/43.78	f/8.36	m/0.98	3.45	1.20	42.20	0.03	t/0.01
46	a/44.74	c/10.36	i/1.04	0.70	0.24	42.80	0.06	t/0.05
47	a/44.22	c/10.24	i/1.02	1.39	0.48	41.10	0.06	t/0.05
48	a/43.70	c/10.12	i/1.01	2.06	0.71	40.86	0.06	t/0.05

【００４０】

実施例３

マイクロカプセル組成物の汚染特性の評価

この実施例では、本発明のペンディメタリン含有マイクロカプセル組成物は、ニュージャーシー州、ウエインのアメリカン・シアナミド・カンパニーにより製造された市販のペンディメタリンの乳化性濃厚物組成物であるプロウル（ＰＲＯＷＬ）{R}３．３ＥＣと比較

して、引き起こす汚染が有意に少ないことを証明する。以下の試験において、適当な試験組成物（各々約５０７Ｌ）３滴をポリ塩化ビニルのテープ（ミネソタ州、セントポールの３Ｍ社のスコッチ（ＳＣＯＴＣＨ）(R)ブランドテープ、コアー　シリーズ　２－０３００）上に置き、乾燥させる。１時間室温で放置した後、テープ上の残留物を水で洗浄する。次いでテープ上に残った汚染を０から１０の線状スケールで視覚により評価した。０は汚染がないことを表し、１０はプロウル(R)３．３ＥＣにより引き起こされた１００％の深い黄色の汚染を表す。結果を表ＩＶに要約する。表ＩＶのデータは表IIに与えられた組成物番号により報告される。

【００４１】

表ＩＶのデータから分かるように、本発明のマイクロカプセル組成物はプロウル(R)３．３ＥＣと比較して汚染が有意に少ない。

【００４２】

表　ＩＶ

汚染評価

組成物番号	等　級
２５	＜1
２６	５－６
２７	＜1
２８	1
２９	1
３０	5
３１	2
３７	1
３８	＜1
３９	0
４０	0
プロウル(R)3.3ＥＣ	１０

実施例４

結晶成長の評価

この実施例は、マイクロカプセル組成物の製造において塩又は塩の混合物を使用すると、結晶成長が有意に減少することを証明する。以下の試験において、適当なマイクロカプセル組成物（約３０ｇ）のサンプルをガラスびんに注ぎ、そのびんを試験チャンバに入れる。サンプルを０°－４０℃の温度サイクルに付し、各サイクルは約２４時間を要する。数週間の後、サンプルを取り出し、そして結晶成長を光学顕微鏡により評価する。結果を表Ｖに要約する。表Ｖのデータは、表ＩＩに与えられた組成物番号により報告される。対照組成物は、塩が使用されないこと以外は実施例１の手順に従って製造される。

【００４３】

対照組成物

成分	重量／重量％
ペンディメタリン	４５．８６
レアックス(R)８８Ｂ	１．４０
モンジュール(R)ＭＲＳ	０．５７
ＨＭＤＡ	０．２９
１０％塩化水素酸	０．８１
水	５１．０７

表Ｖ

結晶成長評価

組成物番号	サイクル時間（週間）	結晶成長観察
１６	３	いくらかの小さな結晶
２８	９	結晶なし
３９	９	結晶なし
４０	９	結晶なし
対照	３	多くの大きな結晶

本発明の態様を示せば以下のとおりである。

【００４４】

１．（ａ）塩又は塩の混合物及び乳化剤又は乳化剤の混合物を含有する水性溶液を提供し、

（ｂ）第１反応性壁形成性成分及び塩水非混和性物質を含有する塩水非混和性溶液を前記水性溶液中に撹拌しながら分散させて分散液を形成し、

（ｃ）該第１反応性壁形成性成分と反応する第２反応性壁形成性成分を工程　（ｂ）の前記分散液に撹拌しながら加えて該塩水非混和性物質のまわりに重縮合物外皮壁を形成すること、

を含むマイクロカプセル組成物の製造方法。

【００４５】

２．該塩が、塩化リチウム、塩化ナトリウム、塩化カリウム、塩化アンモニウム、塩化マグネシウム、塩化カルシウム、硝酸リチウム、硝酸ナトリウム、硝酸カリウム、硝酸マグネシウム、硝酸カルシウム、硫酸リチウム、硫酸ナトリウム、硫酸カリウム、硫酸アンモニウム、硫酸マグネシウム、リン酸一水素ナトリウム、リン酸一水素カリウム、リン酸一水素アンモニウム、リン酸二水素ナトリウム、リン酸二水素カリウム及びリン酸二水素アンモニウムから成る群より選ばれる、上記１の方法。

【００４６】

３．該水性溶液が約５重量％乃至３０重量％の該塩又はその混合物を含有する、上記１の方法。

【００４７】

４．該塩水非混和性物質が除草剤又は殺虫剤である、上記１の方法。

【００４８】

５．該除草剤が、ジニトロアニリン化合物及びアセトアニリド化合物からなる群より選ばれ、該殺虫剤がリン酸エステル化合物及びピレスロイド化合物から成る群より選ばれ、該

ジニトロアニリン化合物がペンディメタリン及びトリフルラリンから成る群より選ばれ、該アセトアニリド化合物がアラクロール及びメトラクロールから成る群より選ばれ、該リン酸エステル化合物がターブホス、マラチオン及びクロルピリホスから成る群より選ばれ、該ピレスロイド化合物がシペルメトリン、α－シペルメトリン及びペルメトリンから成る群より選ばれる、上記４の方法。

【００４９】

６．該水性溶液が約０．５重量％乃至５重量％の乳化剤又はその混合物を含有する、上記１の方法。

【００５０】

７．該重縮合物がポリ尿素、ポリウレタン、ポリアミド、ポリカーボネート又はポリスルホンアミドから成る群より選ばれる、上記１の方法。

【００５１】

８．上記１の方法により製造される、重縮合物の外皮壁内に塩水非混和性物質を含んで成るマイクロカプセル。

【００５２】

９．殺有害生物有効量の請求項１の方法によりマイクロカプセル化された殺有害生物剤を有害生物の棲息地に施用することより成る有害生物を防除する方法。

【００５３】

１０．農業的に許容し得る担体と、殺有害生物有効量の上記１の方法によりマイクロカプセル化された殺有害生物剤を含有して成る殺有害生物組成物。

フロントページの続き

(72)発明者　ロビン・ウイリアム・デクスター
アメリカ合衆国ペンシルベニア州１９０６７ヤードレイ・フリーダムドライブ５４１

審査官　福井　美穂

(56)参考文献　特開昭５５－１２９１４６（ＪＰ，Ａ）
特開平０５－２２０３８４（ＪＰ，Ａ）
特開平０６－０２７７１７（ＪＰ，Ａ）

(58)調査した分野(Int.Cl.，ＤＢ名)
B01J 13/02-22
A01N 25/00-65/02