

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 公表特許公報 (A)

(11) 特許出願公表番号

特表2016-515646

(P2016-515646A)

(43) 公表日 平成28年5月30日 (2016.5.30)

(51) Int.Cl.		F I		テーマコード (参考)
AO 1 N 25/08	(2006.01)	AO 1 N 25/08		4 H O 1 1
AO 1 P 3/00	(2006.01)	AO 1 P 3/00		
AO 1 N 65/22	(2009.01)	AO 1 N 65/22		
AO 1 N 25/14	(2006.01)	AO 1 N 25/14		
AO 1 N 25/12	(2006.01)	AO 1 N 25/12	1 O 1	
審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全 25 頁) 最終頁に続く				

(21) 出願番号	特願2016-508284 (P2016-508284)	(71) 出願人	515277540
(86) (22) 出願日	平成26年4月10日 (2014.4.10)		ノバクトラ イスラエル リミテッド
(85) 翻訳文提出日	平成27年12月9日 (2015.12.9)		NOBACTRA ISRAEL LTD
(86) 国際出願番号	PCT/IL2014/050346		.
(87) 国際公開番号	W02014/170893		イスラエル国 スディ ワーブルグ 4 4
(87) 国際公開日	平成26年10月23日 (2014.10.23)		9 3 5 0 0, デレク ハ' ハダリム 7 8
(31) 優先権主張番号	225825	(74) 代理人	100169904
(32) 優先日	平成25年4月18日 (2013.4.18)		弁理士 村井 康司
(33) 優先権主張国	イスラエル (IL)	(74) 代理人	100159916
			弁理士 石川 貴之
		(72) 発明者	ジオラ クリツマン
			イスラエル国, ラアナアナ 4 3 3 9 4 1
			7, アプト. 1 0, ハサシュラヴ ストリ
			ート 1 5
		最終頁に続く	

(54) 【発明の名称】 オイルを保持する粒子状物質およびその使用

(57) 【要約】

本発明の開示内容は、少なくとも1種類の天然オイルと少なくとも1種類の界面活性剤とを含む成分の本質的に乾燥状態の組み合わせを保持する粒子を含む粒子状物質であって、その成分が、水と接触させると水中油型エマルジョンが形成されるように選択される、粒子状物質を提供する。特に、形成されたエマルジョンは、安定なエマルジョンであり、その間に相分離が無いことによって確認されるように、少なくとも数時間の安定性を有する。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

少なくとも 1 種類の天然オイルと少なくとも 1 種類の界面活性剤とを含む成分の本質的に乾燥状態の組み合わせを保持する粒子を含む粒子状物質であって、前記成分が、水と接触させると水中油型エマルジョンが形成されるように選択される、粒子状物質。

【請求項 2】

前記粒子状物質の全重量に対して 20 ~ 50 重量%の量で前記の少なくとも 1 種類の天然オイルを含む、請求項 1 に記載の粒子状物質。

【請求項 3】

前記粒子状物質の全重量に対して 5 ~ 10 重量%の量で前記の少なくとも 1 種類の界面活性剤を含む、請求項 1 または 2 に記載の粒子状物質。

10

【請求項 4】

前記粒子が二酸化ケイ素 (SiO_2) 粒子である、請求項 1 から 3 のいずれか一項に記載の粒子状物質。

【請求項 5】

前記二酸化ケイ素がベントナイト粘土ビーズを含む、請求項 4 に記載の粒子状物質。

【請求項 6】

前記ケイ素酸化物粒子が合成非晶質シリカビーズを含む、請求項 4 に記載の粒子状物質。

【請求項 7】

前記合成非晶質シリカビーズが沈降合成非晶質シリカビーズである、請求項 6 に記載の粒子状物質。

20

【請求項 8】

前記粒子が、ラテックスビーズ；炭酸カルシウム吸収剤粒子；セルロースビーズ；ポリスチレン吸着剤ビーズ；木炭；セファロースビーズ；エマルサン - アルジネートビーズ；キトサンビーズ；アルギン酸ナトリウムビーズ；スチレン - マレイン酸コポリマービーズ、スチレン - ジビニルベンゼンビーズおよびセルロース紙ビーズからなる群から選択される、請求項 1 から 3 のいずれか一項に記載の粒子状物質。

【請求項 9】

前記粒子が、10 ~ 25 μm の範囲のサイズ分布を特徴とする、請求項 1 から 9 のいずれか一項に記載の粒子状物質。

30

【請求項 10】

前記粒子が、400 ~ 550 m^2/g の範囲の表面積を特徴とする、請求項 1 から 10 のいずれか一項に記載の粒子状物質。

【請求項 11】

前記粒子が、250 ~ 350 $\text{ml}/\text{粒子 100 グラム}$ の範囲のオイル容量を特徴とする、請求項 1 から 10 のいずれか一項に記載の粒子状物質。

【請求項 12】

前記の少なくとも 1 種類の天然オイルが植物油を含む、請求項 1 から 11 のいずれか一項に記載の粒子状物質。

40

【請求項 13】

前記植物油が、*Origanum vulgare*、*Origanum* 属、*Mentha* 属、*Thymus* 属、*Myrtus* 属、*Ocimum* 属、*Lavandula* 属、*Micromeria* 属、*Coriandrum* 属、*Aloysia* 属、*Melissa* 属、*Salvia* 属、*Petroselinum* 属、*Rosmarinus* 属、*Prunella* 属、および *Cuminum* 属からなる群から選択される植物に由来する、請求項 12 に記載の粒子状物質。

【請求項 14】

前記の少なくとも 1 種類の天然オイルが精油を含む、請求項 1 から 11 のいずれか一項に記載の粒子状物質。

50

【請求項 15】

前記精油がオレガノ油を含む、請求項 14 に記載の粒子状物質。

【請求項 16】

前記植物油が炭素豊富なオイルを含む、請求項 1 から 15 のいずれか一項に記載の粒子状物質。

【請求項 17】

前記天然オイルが、少なくとも 1 種類の精油と少なくとも 1 種類の炭素豊富なオイルとの組み合わせを含む、請求項 1 から 16 のいずれか一項に記載の粒子状物質。

【請求項 18】

前記の少なくとも 1 種類の天然オイルが、少なくとも 1 種類の精油と少なくとも 1 種類の炭素ベースオイルとの組み合わせを含み、前記の少なくとも 1 種類の精油と前記の少なくとも 1 種類の炭素ベースオイルの比が 60 : 40 ~ 100 : 0 の範囲である、請求項 1 から 17 のいずれか一項に記載の粒子状物質。

10

【請求項 19】

前記比が約 80 : 20 である、請求項 18 に記載の粒子状物質。

【請求項 20】

オレガノ油とゴマ油の組み合わせを含む、請求項 17 から 19 のいずれか一項に記載の粒子状物質。

【請求項 21】

前記界面活性剤が脂肪酸のアルカリ性塩を含む、請求項 1 から 20 のいずれか一項に記載の粒子状物質。

20

【請求項 22】

前記界面活性剤が脂肪酸のカリウム塩を含む、請求項 21 に記載の粒子状物質。

【請求項 23】

前記界面活性剤が、農業的に許容可能な非イオン性界面活性剤である、請求項 1 から 20 のいずれか一項に記載の粒子状物質。

【請求項 24】

前記粒子状物質の全重量に対して 10 重量 % 以下の水分を含む、請求項 1 から 23 のいずれか一項に記載の粒子状物質。

【請求項 25】

有機溶媒を含む、請求項 1 から 24 のいずれか一項に記載の粒子状物質。

30

【請求項 26】

有機溶媒を 5 % まで含む、請求項 25 に記載の粒子状物質。

【請求項 27】

前記有機溶媒が揮発性極性溶媒である、請求項 25 または 26 に記載の粒子状物質。

【請求項 28】

前記溶媒が、アセトン、イソプロピルアルコール、アセトニトリル、エタノールおよびメタノールからなる群から選択される、請求項 27 に記載の粒子状物質。

【請求項 29】

前記粒子が本質的に多孔質粒子であり、かつオイルと界面活性剤の前記組み合わせが、前記粒子の細孔内に少なくとも一部吸収される、請求項 1 から 28 のいずれか一項に記載の粒子状物質。

40

【請求項 30】

ワックスを含有しない、請求項 1 から 29 のいずれか一項に記載の粒子状物質。

【請求項 31】

請求項 1 から 30 のいずれか一項に記載の粒子状物質を含む組成物。

【請求項 32】

同一粒子上に保持された 2 種類以上の精油を含む、請求項 31 に記載の組成物。

【請求項 33】

請求項 1 から 30 のいずれか一項に記載の粒子状物質の 2 つ以上の集団を含む組成物で

50

あって、少なくとも１つの集団が、少なくとも１種類の精油と少なくとも１種類の界面活性剤を保持する粒子を含み、少なくとも他の集団が、少なくとも１種類の炭素豊富な栄養素オイルと少なくとも１種類の界面活性剤を保持する粒子を含む、組成物。

【請求項３４】

それぞれが、異なる精油または精油の異なる組み合わせを含む、複数の集団を含む請求項３３に記載の組成物。

【請求項３５】

抗菌性エマルジョンを製造するための、請求項１から３０のいずれか一項に記載の粒子状物質の使用。

【請求項３６】

請求項１から３０のいずれか一項に記載の粒子状物質を水溶液と混合して、前記エマルジョンを形成することを含む、抗菌性エマルジョンを製造する方法。

【請求項３７】

請求項３３から３５のいずれか一項に記載の組成物を水溶液と混合して、前記エマルジョンを形成することを含む、抗菌性エマルジョンを製造する方法。

【請求項３８】

前記エマルジョンが、３～１０μmの範囲の液体粒子サイズを含む、請求項３６または３７に記載の方法。

【請求項３９】

(a) 請求項１から３０のいずれか一項に記載の粒子状物質を水溶液と混合して、エマルジョンを形成する工程；

(b) 植物の少なくとも一部上に、または植物周囲の土壌に前記エマルジョンを適用する工程；

を含む、植物を処置する方法。

【請求項４０】

前記エマルジョンの形成前、形成と同時に、または前記エマルジョンの形成に続いて、前記粒子状物質を少なくとも１種類の抗菌剤と混合する工程を含む、請求項３９に記載の方法。

【請求項４１】

適用が前記エマルジョンの噴霧を含む、請求項３９または４０に記載の方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【０００１】

本発明の開示内容は、特に農業で使用されるオイル粒子状製品に関する。

【０００２】

[先行技術]

本発明で開示される主題に背景として関連すると考えられる参考文献を以下に示す：

- 日本特許出願公開番号ＪＰ２０１０１５０１７８；

- 国際特許出願公開番号ＷＯ０４０３４７９１；

本明細書における上記の参考文献の知識は、これらが、本発明に開示される主題の特許性に関係することを決して意味すると推測されるものではない。

【背景技術】

【０００３】

オイル粉末を得るための粒子上へのオイルの吸収は、例えば日本特許出願公開番号ＪＰ２０１０１５０１７８に記述されている。この特許公開によれば、多孔質炭酸カルシウムと精油で構成される抗菌性機能性粉末が提供されている。

【０００４】

さらに、国際特許出願番号ＷＯ０４０３４７９１には、殺虫性および／または殺真菌性を有する精油と、そのための担持材料と、担持材料からの精油の放出を制御する手段と、

10

20

30

40

50

を含む放出制御組成物が記載されている。その組成物は、易流動性粉末の形をとる。その担持材料は、得られる混合物が易流動性粉末の状態である程度まで、精油を吸収することができる材料、例えば粉末材料であり得る、粘土およびシリカ、セライト；ゼオライトなどの材料である。担持材料からの精油の放出を制御する手段は、担持材料と混合される、高分子量低融点ワックスまたは固体である。

【発明の概要】

【0005】

本発明の開示内容は、その最も広い態様に従って、少なくとも1種類の天然オイルおよび少なくとも1種類の界面活性剤を含む成分の、本質的に乾燥状態の組み合わせを保持する粒子を含む粒子状物質を提供し、その成分は、水と接触させると水中油型エマルジョンが形成するように選択される。好ましくは、水中油型エマルジョンは、その調製から少なくとも24時間、相分離なく、安定なエマルジョンである。

10

【0006】

本発明の開示内容は、本明細書で定義される粒子状物質を含む組成物も提供する。この組成物は、粒子状物質に加えて、目的の用途に適しており、それに従って選択される、補助剤、添加剤、賦形剤等を含む。例えば、農業での粒子状物質の使用を容易にするために、更なる成分が必要とされる場合がある。

【0007】

粒子状物質は、同じ粒子上に保持された1種または複数種の天然オイル（例えば精油）を有する粒子の単一集団、または集団の組み合わせ（つまり、1つの集団は、1タイプまたは1グループのオイルを保持する粒子の集団であり、少なくとも1つの他の集団は、他のタイプまたは他のグループのオイルを保持する集団であり、どちらのタイプの集団も以下でさらに説明する）を含み得る。

20

【0008】

一部の実施形態において、少なくとも1種類の天然オイルは、抗菌活性を有することを特徴とするオイルである。

【0009】

したがって、本発明の開示内容は、抗菌性エマルジョンを調製するための、定義される粒子状物質の使用も提供する。

【0010】

さらに、本発明の開示内容は、粒子状物質を水溶液と混合して、前記抗菌性エマルジョンを形成することを含む、抗菌性エマルジョンを生成する方法を提供する。

30

【0011】

最後に、本発明の開示内容は、粒子状物質を水溶液と混合してエマルジョンを形成すること；前記エマルジョンを植物の少なくとも一部上に、または植物周囲の土壌に適用すること；を含む、植物を処理する方法を提供する。

【0012】

抗菌活性が必要とされる場合、当技術分野で公知の他の抗菌剤と混合するか、あるいは他の抗菌剤と併せて使用してもよい。

【0013】

[実施形態の詳細な説明]

本発明は、水または水性溶液と接触させると、安定なエマルジョンが形成されるように、機能性オイルをその上に吸収した粒状担体を含む、粒子状物質の開発に基づく。

【0014】

したがって、その最も広い態様において、本発明の開示内容は、成分の本質的に乾燥状態の組み合わせを保持する粒子を含む粒子状物質を提供し、その配合は、少なくとも1種類のオイルおよび少なくとも1種類の界面活性剤を含み、かつその成分は、水と接触させると、水中油型エマルジョンが形成されるように選択される。

【0015】

本発明の開示内容の文脈において、「粒子状物質」という用語は、多数の粒子の形をと

40

50

る物質を表すために使用される。粒子は、それに限定されないが、細かく丸いビーズから非晶質構造までの粒状をとり得る。粒子状物質は、あらゆる形状の粉末も含む。

【0016】

一部の実施形態において、粒子状物質は、二酸化ケイ素 (SiO_2 、本明細書でシリカと呼ばれる) を含む。このシリカは、ベントナイト粘土ビーズなどの天然シリカ粒子のみならず、当技術分野で公知の合成シリカビーズであってもよい。

【0017】

一部の実施形態において、粒子状物質は合成シリカを含む。本発明の開示内容の文脈で使用され得る、様々な合成シリカがある。例えば、粒子状物質は、市販の製品、Tixosil および Aerosil 200 などの沈降合成非晶質シリカビーズを含み得る。

10

【0018】

一部の他の実施形態において、粒子状物質は、天然オイルを吸収する能力を有する、合成または天然由来のビーズを含む。かかるビーズとしては、それに限定されないが、ラテックスビーズ；炭酸カルシウム吸収剤粒子；セルロースビーズ；ポリスチレン吸着剤ビーズ、例えば、疎水性架橋ポリスチレンコポリマー吸収剤樹脂である Amberlite (登録商標) XAD (登録商標) - 2；Sephacrose (商標) ビーズ；エマルサン (emulsan) - アルジネートビーズ；キトサンビーズ；アルギン酸ナトリウム；スチレン-マレイン酸コポリマービーズおよびスチレン-ジビニルベンゼンビーズ；セルロース紙ビーズが挙げられる。

【0019】

20

最終エマルジョンの分布を良好にするために、かつ一部の実施形態に従って、粒子状物質 (粒子) は、 $10 \sim 25 \mu\text{m}$ 、時に $15 \sim 22 \mu\text{m}$ の範囲のサイズ分布を有する。

【0020】

粒子状物質は、それに限定されないが、その表面積も特徴とし、一部の実施形態において、粒子状物質は、 $400 \sim 550 \text{ m}^2/\text{g}$ の範囲の、時に平均で $500 \text{ m}^2/\text{g}$ の比表面積 (N_2) を有する。

【0021】

一部の更なる実施形態において、粒子状物質は、それに限定されないが、そのDBP吸収も特徴とし得る。DBP吸収 (DOA吸収) は、一般的に使用される数値であり、充填剤の吸収能力を表すために使用され、本発明の開示内容では、粒子状物質のオイル能力を示す。一部の実施形態において、DBPは、 $250 \sim 350 \text{ ml}$ / 粒子 100 g 、時に $280 \sim 320 \text{ ml}$ / 100 g の範囲である。

30

【0022】

第1成分は、1種類の天然オイルまたは天然オイルの組み合わせを保持する粒子状物質を含む。本発明の開示内容の文脈において、「天然オイル」は、自然から得られる有機オイルを包含することを理解されたい。

【0023】

天然オイルは好ましくは、植物に由来するオイルである。一部の実施形態において、天然オイルは精油である。精油は好ましくは、抗菌性 (例えば、抗細菌性) を示すことが知られている精油である。この文脈において、精油の抗菌性に言及する場合、以下にさらに説明される微生物病原体に対して有効であると理解される。

40

【0024】

様々な精油がある。それに限定されないが、本発明の開示内容に従って使用される精油は、*Origanum vulgare* および *Origanum* 属、(例えば、オレガノ)、*Mentha* 属 (ミント)、*Thymus* 属 (タイム)、*Myrtus* 属、*Ocimum* 属 (例えば、バジルとしても知られるバジリコ (*Ocimum basilicum*))、ラベンダー属 (例えば、ラベンダー)、*Micromeria* 属、*Coriandrum* 属 (例えば、コリアンダー/パセリ)、*Aloysia* 属、*Melissa* 属、*Salvia* 属、*Petroselinum* 属、*Rosmarinus* 属 (例えば、ローズマリー)、*Prunella* 属、*Cuminum* 属 (例えば、クミン) の植物に由来する精油

50

であり得る。

【0025】

一部の他の実施形態において、天然オイルは、炭素源として、例えば相反する微生物の食料／栄養素として使用される植物由来オイルである。これらは、本明細書において「炭素ベースオイル」または「炭素豊富な栄養素オイル」という用語で呼ばれる。一部の実施形態において、炭素ベースオイルは植物油である。それに限定されないが、炭素ベースオイルは、ゴマ油、オリーブ油、ラッカセイ油、綿実油、ダイズ油、パーム油、ヒマワリ油、ベニバナ油、カノーラ油、ヒマシ油、ヤシ油、ラッカセイ油からなる群から選択される。

【0026】

一部の好ましい実施形態において、天然オイルは、少なくとも1種類の精油と少なくとも1種類の炭素ベースオイルの組み合わせである。それ自体として、天然オイルに言及する場合、精油（1種または複数種）および炭素ベースオイル（1種または複数種）を包含することも理解されたい。組み合わせられる場合には、少なくとも1種類の精油と少なくとも1種類の炭素ベースオイルの比は、60：40～100：0の範囲であり、時にその範囲は約80：20である。

【0027】

オイルの組み合わせが用いられる場合には、それらは粒子状物質上に共に吸収され、つまり同じ粒子状物質が、複数タイプのオイルを保持する。一部の実施形態において、様々な種類の粒子状物質が形成され、それぞれが、それが保持するオイルの種類によって特徴づけられるように、各オイルタイプが、粒子状物質上に個々に保持される。

【0028】

したがって、比80：20で精油（例えば、オレガノ）および炭素ベースオイル（例えば、ゴマ）を提供する特定の物質に言及する場合、2タイプのオイルが記載の比率で吸収されている、粒子状物質の単一集団、またはオレガノなどの精油を保持する粒子状物質80％とゴマ油などの炭素ベースオイルを保持する粒子状物質20％の2つの集団の混合物のいずれかとして理解されたい。オイルタイプにかかわらず、その上にローディングされるオイルによってそれが提供される場合、粒子状物質は、その全重量に対して20～50重量％である。

【0029】

一部の実施形態において、天然オイルは、少なくとも1種類の炭素ベースオイルと併せて少なくともオレガノ油を含む。オレガノ油は、時に少なくともゴマ油と組み合わせられる。

【0030】

粒子によって保持される（吸収される）天然オイルの量は、使用される天然オイルの種類、ローディングの量、使用される粒子のタイプ、粒子状物質上に天然オイルをローディングする条件、ローディングに使用される界面活性剤および溶媒等に応じて異なる。

【0031】

粒子上へのオイルのローディングに言及する場合、オイルと粒子（例えば、シリカ粒子）との会合（association）のいずれかの形態を意味すると理解されたい。それに限定されないが、オイルは、粒子上かつ／または粒子内への吸収によって粒子によって保持される。粒子とオイルとの会合は、つまり、水と接触している場合など、適切な条件下にて可逆性であり、粒子からオイルが放出されてエマルジョンが形成される。

【0032】

このために、本発明の開示内容は、粒子、少なくとも1種類の天然オイル、および少なくとも1種類の界面活性剤を含む、前記粒子状物質によって提供される安定なエマルジョンも提供する。

【0033】

一部の実施形態において、粒子は、粒子状物質の全重量（ローディング後）に対して天然オイル20～50重量％を保持した。これは、以下にも例示されるように、HPLCま

10

20

30

40

50

たはGCクロマトグラフィーなどの従来の技術によって決定される。他の一部の実施形態において、粒子は、天然オイルを30重量%、時に25~35重量%、時に28~32重量%、時におよそ30重量%保持した。

【0034】

粒子状物質は、少なくとも1種類の界面活性剤も含む。理解されるように、界面活性剤は、液体の表面張力、例えばエマルジョンの形成を可能にする2つの液体間の界面張力を下げる化合物である。以下の非制限的な例でも示されるように、乾燥粒子状物質が水と接触したら、安定なエマルジョンを提供するために界面活性剤は必須であることが、本発明者らによって判明している。

【0035】

界面活性剤は、農業で使用するのに安全である（例えば、植物または動物に対して非毒性）と当技術分野で公知の種類の界面活性剤であることができる。

【0036】

一部の実施形態において、界面活性剤は、非イオン性界面活性剤、特に農業用途に適していることが知られている界面活性剤である。

【0037】

本発明の開示内容に従って使用される、可能性のある非イオン性界面活性剤の非制限的なリストとしては、ポリエチレングリコールトリオレイン酸ソルビタン（Tween）、例えばポリオキシエチレンソルビタントリオレート（Tween 85）、ポリオキシエチレンソルビタントリステアレート（Tween 65）、ソルビタン脂肪酸エステル、例えばモノパルミチン酸ソルビタン（Span 40）、アルコールアルコキシレート（BS 1000）が挙げられる。

【0038】

一部の他の実施形態において、界面活性剤は、脂肪酸の塩を含む。その塩は、カリウム、カルシウム、ナトリウム塩、ならびにアンモニウム塩などのアルカリ性塩を含み得る。

【0039】

一部の実施形態において、脂肪酸の塩は、殺虫剤、除草剤、殺真菌剤、および/または殺藻剤として通常使用される脂肪酸のカリウム塩（石鹸塩としても知られる）を含む（これらは時に、非イオン性界面活性剤とみなされる）。一部の実施形態において、脂肪酸のカリウム塩は、動物油脂および植物油で見いだされる脂肪酸などの天然脂肪酸に水酸化カリウムを添加することによって得られる。脂肪酸は、オリーブ、綿実、ダイズ、ラッカセイ、ヒマワリ、ココナツ、パーム、ナタネ、ゴマ、アマランス、トウモロコシ、ジャトロファ属（Jatropha）などの植物源から抽出され得る。

【0040】

界面活性剤を形成する脂肪酸は、合成脂肪酸ならびに半合成（例えば、修飾を受けた天然脂肪酸）であってもよい。

【0041】

一部の実施形態に従って、界面活性剤は、殺虫および/殺真菌活性を有すると認識されている、または表示されている界面活性剤である。それに限定されないが、殺虫性および/または殺真菌性界面活性剤としては、市販の製品Zohar PT-50およびZohar LQ-215が挙げられ、どちらもZohar Dalia社（Israel）によって製造されている。

【0042】

特定の一実施形態において、界面活性剤は、Zohar PT-50およびZohar LQ-215から選択される。

【0043】

これらの界面活性剤の組成物は、Zohar Dalia社から入手可能である。例えば、Zohar PT-50は以下の組成を有することが分かっている：

【0044】

10

20

30

40

【表 1】

植物油							
タイプ	不飽和脂肪酸	一価不飽和脂肪酸	多価不飽和脂肪酸			オレイン酸 (ω -9)	煙点
			合計 多価	リノレン酸 (ω -3)	リノール酸 (ω -6)		
水素化されていない							
カノーラ (ナタネ)	7.365	63.276	28.14	9-11	19-21	—	204℃
ココナッツ	91.00	6.000	3.00	—	2	6	177℃
トウモロコシ	12.948	27.576	54.67	1	58	28	232℃
綿実	25.900	17.800	51.90	1	54	19	216℃
アマニ (Flaxseed/ Linseed (欧州))	6-9	10-22	68-89	56-71	12-18	10-22	107℃
オリーブ	14.00	72.00	14.00	<1.5	9-20	—	193℃
パーム	49.300	37.000	9.30	—	10	40	235℃
ピーナッツ	16.900	46.200	32.00	—	32	48	225℃
ベニバナ (リノール酸>70%)	8.00	15.00	75.00	—	—	—	210℃
ベニバナ (高オレイン酸)	7.541	75.221	12.82	—	—	—	210℃
ダイズ	15.650	22.783	57.74	7	50	24	238℃
ヒマワリ (リノール酸<60%)	10.100	45.400	40.10	0.200	39.800	45.300	227℃
ヒマワリ (オレイン酸>70%)	9.859	83.689	3.79	—	—	—	227℃
完全水素化されている							
綿実(水素化)	93.600	1.529	.587		.287		
ヤシ(水素化)	47.500	40.600	7.50				
ダイズ(水素化)	21.100	73.700	.400	.096			
総脂肪に対する重量パーセント(%)としての値							

10

20

30

40

本明細書に示される結果から、本明細書に開示される脂肪酸の塩は、商業的に知られている Tween 20 または Tween 80 などの他の既知の界面活性剤と比べて、粉末の安定性および / または乳化性、および抗菌活性に関していくつかの利点を有することが分かる。

【 0 0 4 6 】

界面活性剤の量は様々である。一部の実施形態において、粒子状物質は、1 種類の界面活性剤または複数の界面活性剤の組み合わせを 5 ~ 1 0 重量 % 含む。

【 0 0 4 7 】

粒子状物質は、本質的に乾燥状態である。「本質的に乾燥状態」と言及される場合、粒子状物質は完全に乾燥しているか（従来の方法によって決定される）、あるいは少量の水、つまり 1 0 重量 % 以下を含有することを理解されたい。一部の他の、または更なる実施形態において、粒子状物質における含水率は、1 ~ 7 重量 % の範囲内である。

10

【 0 0 4 8 】

粒子状物質は、微量の有機溶媒（1 種または複数種）も含有し得る。以下にさらに説明されるように、溶媒は、粒子状物質の製造に必要であり、一部の残留量が最終粒子状物質に残り得る。一部の実施形態において、粒子状物質は、5 重量 % 以下、4 重量 % 以下、3 重量 % 以下またはさらには 2 重量 % 以下の有機溶媒を含む。溶媒は通常、有機揮発性極性溶媒であり、例えば限定されないが、アセトン、イソプロピルアルコール、アセトニトリル、エタノールおよびメタノールからなる群から選択される溶媒である。

20

【 0 0 4 9 】

特定の一実施形態において、溶媒はエタノールである。

【 0 0 5 0 】

粒子状物質が水と接触した後は、粒子状物質は、安定なエマルジョンを形成するその能力の点で独特である。

【 0 0 5 1 】

本発明の開示内容の文脈において、安定なエマルジョンに言及する場合、エマルジョンの形成後に、少なくとも 1 時間、時に少なくとも 2、3、4、5 時間またはさらには 1 0 時間の間、水（分散媒）中へのオイル（分散相）の分散を意味すると理解されたい。言い換えると、その安定性は、油相および水相への目に見える分離がないことによって決定される。

30

【 0 0 5 2 】

理論によって束縛されないが、粒子状物質中への界面活性剤の組み込みは、形成されるエマルジョンの安定性に寄与することが本発明者らの見解である。これは、以下に提供される非制限的な実施例からも明らかであり、脂肪酸のカリウム塩の使用は、他のタイプの市販の界面活性剤と比べて安定性および安全性の点から利点を示した。

【 0 0 5 3 】

エマルジョンを形成するために、粒子状物質は水と混合される。水の量は粒子状物質の量によって異なる。一部の実施形態において、粒子状物質（その 3 0 % がオイルである）1 グラムに対して、水が添加されて 1 リットルのエマルジョンが提供される。したがって 1 リットルのエマルジョン中で、粒子状物質 0 . 1 g はオイル濃度 0 . 0 3 %（容積）を提供する。一部の実施形態において、最終エマルジョン中のオイルのパーセンテージは、0 . 0 3 ~ 2 %（容積）の範囲である。

40

【 0 0 5 4 】

一部の実施形態において、水と粒子状物質とを混合することによって、範囲 1 ~ 2 0 μ m、一部の実施形態において 3 ~ 1 0 μ m の液体粒子サイズを有するエマルジョンが提供される。

【 0 0 5 5 】

一部の実施形態において、エマルジョンは抗菌性エマルジョンである。

【 0 0 5 6 】

粒子状物質は、そのまま、あるいは他の成分と併せて使用され、粒子状物質を含む組

50

成物が形成され得る。更なる成分は、粒子状物質の使用目的に応じて異なり得る。例えば、粒子状物質は、抗菌活性を含む他の乾燥粉末、更なる乾燥界面活性剤と組み合わせてもよい。

【0057】

一部の実施形態において、組成物は、1タイプ（集団）の粒子状物質を含み得る。一部の他の実施形態において、粒子状物質は、2種類以上の集団の粒子状物質の組み合わせを含んでもよく、各集団は、その中に吸収される精油の種類が少なくとも他と異なる。組成物は、乾燥粒子状物質を含む乾燥組成物である。

【0058】

本発明の開示内容は、粒子状物質または粒子状物質を含む組成物を水溶液と混合して、エマルジョン、特に安定なエマルジョンを形成することを含む、抗菌性エマルジョンを製造する方法も提供する。このようにして形成されたエマルジョンは、とりわけ、範囲3～10 μ mの平均液体粒子サイズを有する、液体粒子の形成を特徴とする。

【0059】

本発明の開示内容は、植物を処理する方法も提供し、その方法は、本明細書で開示される粒子状物質を水溶液と混合してエマルジョンを形成する工程と、前記エマルジョンを植物の少なくとも一部上に、または植物周囲の土壌に適用する工程と、を含む。

【0060】

エマルジョンの適用は、限定されないが、植物への噴霧、灌漑などの、農業で既知の手段によって適用され得る。

【0061】

さらに他の一部の実施形態において、処理は、ジャガイモの塊茎の噴霧など植物の塊茎への適用を含み得る（時に、塊茎の低散布（low spraying）と呼ばれる）。

【0062】

エマルジョンは、1種または複数種の抗菌剤など他の有効成分と併せて、植物に塗布され得る。このために、エマルジョンの形成前、形成と同時に、またはエマルジョンの形成に続いて、粒子状物質は少なくとも1種類の抗菌剤と混合される。

【0063】

最終エマルジョン（更なる有効成分を含む、または含まない）は1回、2回または3回以上植物に適用される。複数回の投与が適用される場合、1日間隔から複数日数間隔（2、3および4日以上の間隔）の適用の時間間隔で用量が提供され得る。それぞれの投与は同じであっても、異なってもよい。

【0064】

[非制限的な実施例の説明]

実施例1：精油の抗菌作用の検証

材料および方法

精油の抗菌作用を検証するために、以下のアッセイを行った。

【0065】

オイル：以下の詳細：原産国：ブルガリア；植物部分：顕花植物；栽培法：認定オーガニック、抽出法：水蒸気蒸留；のオレガノ油。

【0066】

菌株：大腸菌（*Escherichia coli*）、黄色ブドウ球菌（*Staphylococcus aureus*）、サルモネラ菌（*Salmonella*）、クラビバクター（*Clavibacter*）およびザントモナス・カンペストリス（*Xanthomonas campestris*）は、Prof. G. Kritzman Israelのコレクションから入手された。

【0067】

ディスク拡散法（Disc Diffusion method）：普通ブロス試験管内で27℃にて24時間、細菌を増殖させた。ディスク拡散法の準備で、紙製ディスクをオートクレーブで滅菌した。各細菌（100 μ l）を栄養寒天（NA）プレート上に置き、3～5分間乾燥させた。紙製ディスクを濃度100%のオレガノ精油（20 μ l）中で飽和させ、次いで細菌

10

20

30

40

50

で新たにコーティングされた各 N A プレート上に置いた。使用されたポジティブコントロールは 3 % H_2O_2 溶液であり、ネガティブコントロールは脱イオン水であった。プレートを 27 で 48 時間インキュベートした。阻止帯は、標準的な定規で測定した。

【 0 0 6 8 】

結果

細菌に対する市販の有機オイルの抗菌作用を表 1 にまとめる。コントロールと比較してオレガノ油で処理された細菌の阻止帯が大きいことが示された。

【 0 0 6 9 】

【表 2】

表 1: オレガノ油の抗菌作用

試験された細菌	阻止帯(mm)
大腸菌 (<i>E. coli</i>)	15
黄色ブドウ球菌 (<i>S. aureus</i>)	19
サルモネラ菌 (<i>Salmonella</i>)	21
クラビバクター (<i>Clavibacter</i>)	24
ザントモナス-カンペストリス (<i>Xanthomonas campestris</i>)	22
ポジティブコントロール	8
ネガティブコントロール	0

10

20

30

【 0 0 7 0 】

実施例 2 : 精油粉末の製造

材料

オイル粉末を製造するために、以下の材料を使用した：

天然オイル：

オレガノ油 100 % (精油) およびゴマ油 100 % (炭素ベースオイル)，どちらも M a k e s S c e n t s N a t u r a l S P A l i n e (L a n c a s t e r P A , U S A) から購入した。

界面活性剤：

チモール、カルバクロール、T w e e n 8 0、T w e e n 6 5、T w e e n R 8 5 および卵レシチン，すべて S i g m a - A l d r i c h 社から購入した。

S p a n 4 0 は F l u k a 社 (I s r a e l) から購入した。

Z o h a r L Q - 2 1 5 (カリウム脂肪酸) および Z o h a r P T - 5 0 (カリウム脂肪酸) は Z o h a r D a l i a 社から購入した。

シリカビーズ：

T i x o s i l (SiO_2) は、R h o d i a g r o u p 社から購入した。

A e r o s i l 2 0 0 および S i p e r n a t 5 0 S (SiO_2 , 20 μm) は、E v o n i k I n d u s t r i e s A G から購入した。

溶媒：

アセトンおよびアセトニトリルは、J . T . B e c k e r , I s o p r o p a n o l (

40

50

I P A) , G a d o t から購入した。

【 0 0 7 1 】

方法

粉末の製造

実験室規模の製造で、20～50mlサイズの実験ボトル、スパチュラ、電磁スターラーおよび加熱プレートを含む通常の実験ガラス器具セットアップを用いて、天然オイル、界面活性剤およびシリカビーズを含有する粉末を製造した。一般に、天然オイルを計量し、それぞれ別々に、20mlバイアル中で選択された界面活性剤と混合し、それに溶媒を添加した。各オイルの混合物を混合し、均一溶液が得られるまで約40℃の温度に加熱した。液体がビーズによって吸収されるまで、均一な溶液にシリカビーズを添加した。すべての溶媒が蒸発するまで、ボトルをヒュームフード内に置いた。

【 0 0 7 2 】

最終乾燥粉末におけるオイルそれぞれのローディングは30～42%であった。乾燥粉末は水を2～7%含有した。

【 0 0 7 3 】

粉末製造に使用される成分のすべての割合を表2A～2Dに示す：

【 0 0 7 4 】

【表3】

表 2A: オレガノ油ベース粉末

型番号	オレガノ油	界面活性剤					シリカビーズ		溶媒
		Tween 80	レシチン	Tween 85	Tween 65	Span 40	Tixosil	Aerosil 200	アセトン
ORG-18A	0.5g	0.5g	0.1g					0.8g	1g
ORG-18B	0.5g	0.5g				0.1g		0.8g	1g
ORG-18C	0.5g	0.5g		0.1g				0.8g	1g
ORG-18D	0.5gg	0.5g			0.1g			0.8g	1g
ORG-20C	0.5g	0.5g			0.1g		0.56g	0.24g	1g
ORG-20D	0.5g	0.5g			0.1g		0.4g	0.4g	1g

【 0 0 7 5 】

【表4】

表 2B: ゴマ油ベース粉末

型番号	ゴマ油	界面活性剤					シリカビーズ		溶媒
		Tween 80	レシチン	Tween 85	Tween 65	Span 40	Tixosil	Aerosil 200	アセトン
SES-19A	0.5g	0.5g	0.1g					0.8g	1g
SES-19B	0.5g	0.5g				0.1g		0.8g	1g
SES-19C	0.5g	0.5g		0.1g				0.8g	1g
SES-19D	0.5gg	0.5g			0.1g			0.8g	1g
ORG-21C	0.5g	0.5g			0.1g		0.56g	0.24g	1g
ORG-21D	0.5g	0.5g			0.1g		0.4g	0.4g	1g

【 0 0 7 6 】

【 表 5 】

表 2C: アニオン界面活性剤を使用した自己乳化オレガノ油ベース粉末

型番号	オレガノ油	界面活性剤		シリカビーズ		溶媒	
		Zohar PT-50	Zohar LQ 215	Tixosil	Aerosil 200	イソプロピルアルコール	アセトン
ORG-22A	0.5g		0.5g	0.56g	0.24g		0
ORG-22B	0.5g		0.5g	0.4g	0.4g		1g
ORG-24A	0.5g		0.25g	0.4g	0.4g		0
ORG-24B	0.5g		0.25g	0.4g	0.4g		0.5g
ORG-24C	0.75g		0.25g	0.4g	0.4g		1g
ORG-28	0.5g	0.25g		0.56	0.24g	1g	

10

【 0 0 7 7 】

【 表 6 】

表 2D: アニオン界面活性剤を使用した自己乳化ゴマ油ベース粉末

型番号	ゴマ油	界面活性剤		シリカビーズ		溶媒	
		Zohar PT-50	Zohar LQ 215	Tixosil	Aerosil 200	イソプロピルアルコール	アセトン
ORG-23A	0.5g		0.5g	0.56g	0.24g		0
ORG-23B	0.5g		0.5g	0.4g	0.4g		1g
ORG-25A	0.5g		0.25g	0.4g	0.4g		0
ORG-25B	0.5g		0.25g	0.4g	0.4g		0.5g
ORG-25C	0.75g		0.25g	0.4g	0.4g		1g
ORG-29	0.5g	0.25g		0.56	0.24g	1g	

20

30

【 0 0 7 8 】

より多い量に関しては、当業界で使用される手段に類似の実験室電気機械的手段が用いられた。これらは：

1. プロペラを備えた垂直機械攪拌機 D C H s i a n g t a i ；
2. 蠕動ポンプ 4 . 4 C a r t e r 4 / 6 カセットマノスタットおよび管材料；
3. リボン型混合ブレードを備えた D y n a m i c E x i m 5 L 粉末ミキサー
4. 天秤
5. 1 ~ 2 L ビーカーおよび 1 ~ 3 L 容器

40

【 0 0 7 9 】

この製法は、計量、および 1 L ビーカー内でオイルと界面活性剤（1 種または複数種）との混合を含み、均一な溶液が得られるまで混合しながら、イソプロピルアルコールをそれに添加した。シリカビーズ（S i p e r n a t 5 0 S）を 2 L ビーカーに添加し、すべての液体がビーズ内に吸収されるまで混合しながら（3 0 r p m）、均一な溶液をゆっくりと（速度 1 0 m l / 分）添加した。

【 0 0 8 0 】

粉末の製造に使用される成分のすべての割合を表 3 A および 3 B に示す。約 3 0 ~ 4 2 % の範囲のオイルのローディングが維持された。

【 0 0 8 1 】

50

【表 7】

表 3A: オレガノ油ベース粉末

型番号	オレガノ油	界面活性剤	シリカビーズ	溶媒
		Zohar PT 50	Sipernat 50S	IPA
33	20g	10g	30g	20g
34	200g	100g	300g	200g
37A	20g	15g	30g	20g
37B	20g	10g	300g	15g
38	2x200g	2x125g	2x300g	2x125g

10

【0082】

【表 8】

表 3B: ゴマ油ベース粉末

型番号	オレガノ油	界面活性剤	シリカビーズ	溶媒
		Zohar PT 50	Sipernat 50S	IPA
35	200g	100g	300g	200g
39	200g	125g	300g	125g

20

【0083】

さらに、粉末の混合物（オレガノ油を含有する混合物およびゴマ油を含有する混合物）も調製した。具体的には、配合物ORG-34（オレガノ油を保持するビーズ）400gを配合物SES-35（ゴマ油を保持するビーズ）100gとDynamic Exim 5 L 粉末ミキサーで10rpmにて混合し、ミックスO&S-Aを製造した。

【0084】

2つの集団を互いに混合する前に、各タイプのオイルベース粉末を真空オープン内で40にて24時間乾燥させた。

【0085】

異なるプロセスにおいて、配合物ORG-38 800gを配合物SES-39 200gとDynamic Exim 5 L 粉末ミキサーで10rpmにて混合し、混合ビーズ配合物O&S-Bを製造した。

30

【0086】

混合ビーズ粉末をそのまま使用した。

【0087】

特徴付け粉末中の水分含有量の決定

USP<921>法に準拠して、Mettler Toledo DL-38 Karl Fisher 滴定装置を使用して、水分含有量を決定した。

【0088】

粉末中のイソプロパノール含有量の決定

40

以下のパラメーターに従ってヘッドスペース分析を用いて、IPA含油量を決定した：

【0089】

【表 9】

ガスクロマトグラフ	-	Agilent 7890 A
カラム	-	BPX 揮発性物質, 60m×0.25mm, 1.4μm, SGE
オーブンプログラム	-	45℃で2分間、次いで10℃/分で100℃に、 次いで25℃/分で240℃に5分間.
分割	-	1:25
質量分析計	-	Agilent 5975C
自動試料採取装置プログラム		CTC Combi PAL 予備インキュベーション時間: 300s - インキュベーション温度: 80℃ シリンジ温度: 100℃ 注入容積: 500 μl
ヘッドスペースバイアル	-	20 ml
試料 (水) の容積	-	2 ml
較正ポイント (μg/ml)	-	10, 25, 100, 500, 1000
ISTD (エタノール) の濃度	-	50 μg/ml

10

【0090】

20

HPLCを使用した乾燥粉末中のオレガノ油のアッセイ

H. Hajimehdipoor, A validated high performance method for the analysis of thymol and carvacrol in *Thymus vulgaris* L. volatile oil in *Pharmacogn Mag.* 2010 Jul-Sep; 6(23): 154-158 によって報告され、Solubestによって採用された方法に従って、不純物プロファイルを決定した。この目的のために、光ダイオードアレイ (PDA) 検出器およびChromleon Version 6.80ソフトウェアパッケージと共にNucleosil 100 C18 HD、3 μ, 150 × 3 mmカラムおよびUltimate 3000 Dionex (Germany) HPLCシステムを使用した。移動相はアセトニトリル: 水 (50:50, 容積比) である。カルバクロールピークとチモールピークの間の最小分解能は1.5である。

30

【0091】

以下のとおりに、標準溶液を二つ組で調製した:

【0092】

チモール約3 mgおよびカルバクロール20 mgを50 mLメスフラスコ内に計量し、希釈剤40 mLに溶解し、次いで希釈剤を含む体積となり、混合した。チモール標準溶液の得られた濃度は約0.06 mg/mLであり、カルバクロール標準溶液は約0.4 mg/mLであった。

【0093】

以下の通りに、試料溶液を二つ組で調製した:

粉末状試料約70 mgを25 mLメスフラスコに計量し、次いでアセトンを含む体積にし、混合した。

40

【0094】

GCを使用した、配合物中のゴマ油のアッセイ

シリカビーズ上に吸収されたゴマ油をメタノールHCl溶液で60℃にてメチル基転移した。誘導体化前に、内標準として使用されるヘプタデカン酸をビーズに添加した。脂肪酸のメチルエステルをヘキサンで抽出し、GC分析前に無水硫酸ナトリウムで乾燥させた。

【0095】

異なる濃度のゴマ油およびブランクビーズから検定標準を調製した。誘導体化の条件および内標準の量は、試料調製に記載の条件と同じであった。

50

【 0 0 9 6 】

F I D 検出器を備えた A g i l e n t 7 8 9 0 ガスクロマトグラフを使用して、ピーズにおけるゴマ油の定量分析を行った。化合物は、D B - 2 3 キャピラリーカラムで分離された。

【 0 0 9 7 】

結果

オレガノおよび従来のゴマ油アッセイに使用される従来の H P L C および G C 分析法を用いた。

【 0 0 9 8 】

試験された粉末のクロマトグラムから、粉末製造および保管中に、オイルの劣化（従来のマーカー、チモールおよびカルバクロール芳香族化合物による）が起こらなかったことが分かった。以下の表 5 は、H P L C による分析における、チモールおよびカルバクロール芳香族化合物をベースとする粉末におけるオレガノ油およびゴマ油それぞれの % を示す。

10

【 0 0 9 9 】

【表 1 0 】

表 4 -HPLC によって測定された配合物中のオレガノ油含有量

型番号	試料	チモールを介した%	カルバクロールを介した%
ORG-18A	ORG-18A-1	25.2	27.1
	ORG-18A-2	27.1	28.3
	平均	26.1	27.7
	差, %	7.2	4.3
ORG-28	ORG-28-1	33.8	34.9
	ORG-28-2	32.1	33.2
	平均	32.9	34.1
	差	5.5	5.2
ORG-32	ORG-32-1	28.0	30.3
	ORG-32-2	28.1	30.7
	平均	28.0	30.5
	差	0.6	0.7
ORG-34	ORG-34-1	26.9	29.8
	ORG-34-2	27.7	30.1
	平均	27.3	30.0
	差	2.1	2.0
ORG-38	ORG-38-1	28.8	28.7
	ORG-38-2	28.0	29.3
	平均	28.4	29.0
	差	4.1	2.0

20

30

40

【 0 1 0 0 】

表 5 は、G C クロマトグラフによって決定された配合物中のゴマ油の % を示す。

【 0 1 0 1 】

【表 1 1】

表 5 - GC クロマトグラフィーによって測定された配合物中のゴマ油の含有量

型番号	試料	C16:0 を介した%	C18:0 を介した%	C18:2 を介した%
SES-19A	SES-19A-1	—	—	28.0
	SES-19A-2	—	—	27.6
	平均	—	—	27.8
	差, %	—	—	1.4
SES-35	SES-35-1	29.8	30.5	37.5
	SES-35-2	30.6	30.6	33.4
	平均	30.2	30.6	35.5
	差, %	2.6	0.3	12.3
SES-39	SES-39-1	32.8	33.0	39.8
	SES-39-2	31.5	32.3	37.4
	平均	32.2	32.7	38.6
	差, %	4.1	2.2	6.4

10

【0 1 0 2】

20

K a r l F i s h e r 滴定を用いて測定された含水率によって、粉末が水を 5 ~ 7 % 含有することが分かった。水の供給源は、水を 5 0 % 含有する Z o h a r P T 5 0 界面活性剤であると思われる。

【0 1 0 3】

I P A 含有量に関しては、G C ヘッドスペースの正確な分析から、配合物中の I P A 含有量が実証され、それを表 6 に示す。

【0 1 0 4】

【表 1 2】

表 6 - 粉末中の IPA 含有量

型番号	試料の量 (グラム)	IPA (μg/ml)	IPA (%)
34	19.6	1,265	12.9
35	200	1,139	11.4
38	20.3	1,117	11.0
39	19.8	492	5.0

30

【0 1 0 5】

表 6 から分かるように、I P A の量は 5 ~ 1 3 % と様々である。しかしながら、この場で、配合物は少なくとも 3 0 回希釈され、したがって、I P A の含有率は 0 . 1 7 ~ 0 . 4 3 % に低下し、これはごくわずかであり、非常に安全な量である。

40

【0 1 0 6】

様々なタイプの製造された乾燥粉末は、長期間 (1 年を超える) の保管後に安定性を示した。上記に加えて、その粉末は特徴的な臭気を有することに留意されたい。オレガノ油ベースの配合物はオフホワイトの色を有し、ゴマ油ベース粉末は白色である。

【0 1 0 7】

水を試験配合物 (O R G - 2 8 および S E S - 2 9) と接触させると、直ぐにエマルジョンが形成し、2 4 時間安定性であった。このエマルジョンは、3 ~ 1 0 ミクロンの液体粒子からなった。エマルジョンの噴霧能力は、フィルターを詰まらせることなく良好であった。

【0 1 0 8】

50

この分野の安全性の研究から、試験されたオイルベース粉末は安全であることが分かった。これは、従来の植物毒性パラメーターによって決定される、植物上の病変 (burn) の有無によって決定された。

【 0 1 0 9 】

さらに、粉末の長期間 (8 週) 安定性を決定した。具体的には、オレガノおよびゴマベースの粉末を別々に、アルミニウム箔の袋内に密閉し、促進貯蔵条件においた (40 で 8 週間)。H P L C - U V を使用して、安定性研究の開始時 (初期の時点) および 8 週後に 2 つの主要な成分カルバクロールおよびチモールを介してオレガノ油のアッセイを行った。得られた値を純粋なオレガノ油におけるマーカーの量に正規化した。

【 0 1 1 0 】

メチル化脂肪酸の G C - F I D 分析を用いて、安定性研究の開始時 (初期の時点) および 8 週後に 2 つの主要な成分 - C 1 6 : 0 および C 1 8 : 0 - を介して、ゴマ油のアッセイを行った。内標準として C 1 7 : 0 を用いて、酸性触媒上でメチル基転移を行った (M e O H / H C l を用いて)。得られた値を純粋なゴマ油におけるマーカーの量に正規化した。

【 0 1 1 1 】

どちらの配合物にも有意な変化は確認されなかった：オレガノ油およびゴマ油の量は、安定性研究前および後にも同様であった。

【 0 1 1 2 】

K a r l F i s h e r 法を用いて、含水率を試験した。どちらの配合物においても促進条件で 8 週間貯蔵した後に、水の量が 4 2 % に低下した。

【 0 1 1 3 】

G C 法を用いて、イソプロパノール含有量を試験した。I P A の量は、オレガノ配合物において促進条件で 8 週間貯蔵した後に 3 6 % に低下したが、ゴマ配合物中では維持された。

【 0 1 1 4 】

理論によって束縛されないが、容器に漏れがあったと思われ、水または I P A の損失を減らすために、容器はより密閉封止され得る。

【 0 1 1 5 】

40 で 8 週間保管された粉末は、初期の粉末と同様な安定なエマルジョンを形成する優れた能力を示した。安定性の測定は、以下の表 7 にまとめる：

【 0 1 1 6 】

【 表 1 3 】

表 7: 安定性のアッセイ

	時点	オレガノ油 (%)		ゴマ油 (%)		水, %	IPA, %
		C16:0 を介した	C18:0 を介した	チモールを介した	カルバクロールを介した		
オレガノ粉末 SORG-121-38	初期			28.4	29.0	7.05	11
	8 週			29.8	29.1	4.05	7
ゴマ粉末 SES-121-39	初期	32.2	32.7			6.65	5
	8 週	33.3	34.2			3.81	5

【 0 1 1 7 】

実施例 3：様々な界面活性剤を用いての可溶化および抗菌活性

安定な水中油型エマルジョンを形成するために、H L B 8 - 20 を有する界面活性剤 (乳化剤) が必要とされる。したがって、以下で 2 種類の界面活性剤、H L B 値 15 を有する T w e e n 80 およびヤシ、ココナツ、オリーブ、トウゴマ、および綿実植物から抽出される脂肪酸のカリウム塩 (H L B 値 20 を有するオレイン酸カリウム塩) を試験した。

【 0 1 1 8 】

脂肪酸のカリウム塩を使用する場合、オレガノ油の安定なエマルジョンを得るのに必要なオイル / 界面活性剤の比は 1 : 0 . 4 であるのに対して、T w e e n 80 を使用した場

10

20

30

40

50

合、必要とされるオイル／界面活性剤比は 1 : 1 であることが判明している。

【 0 1 1 9 】

H L B 値と各界面活性剤の可溶化能力との相関性は、オレガノ油の本発明の事例で見いだされ、つまり脂肪酸のカリウム塩を用いた場合により良い可溶化が得られる。イソプロパノールは加工助剤化合物として使用され、エマルジョンの形成に更なる安定性も提供した。

【 0 1 2 0 】

抗菌作用に関して、水中のオレガノ油およびゴマ油を使用して、数種類の乳化剤を試験した。

【 0 1 2 1 】

試験された乳化剤は、T w e e n 2 0 ; T w e e n 8 0 ; T r i t o n X 1 0 0 ; レシチン ; S D S ; ステアリン酸ナトリウムおよびカリウム脂肪酸を含んだ。オレガノ油 2 5 % を含有する水とゴマ油 5 % との混合物に関して、以下の濃度 (パーセンテージ) 1 ; 5 ; 1 0 ; 1 5 ; 2 0 でそれぞれの乳化剤を試験した。

【 0 1 2 2 】

各エマルジョンの最初の 2 4 時間の安定性 (つまり、相分離が無い) および抗菌活性を決定した。抗菌活性は、以下の植物病原性細菌 : クラビバクター (C l a v i b a c t e r) ; ザントモナス (X a n t h o m o n a s) およびストレプトミセス (S t r e p t o m y c e s) 属に対してエマルジョン 2 0 μ l の阻止帯を測定し、植物毒性症状の試験植物としてコショウ (p e p p e r) 植物にエマルジョンを噴霧することによって決定した。

【 0 1 2 3 】

この結果から、カリウム脂肪酸は、濃度 1 0 % の安定なエマルジョンの形成に最も適切な材料であり ; 脂肪酸のカリウム塩の阻止帯は、試験された他のエマルジョンよりも大きく、コショウ植物に対して植物毒性を持たないことが分かった。得られたデータ (示されていない) から、ステアリン酸ナトリウム、カリウム脂肪酸を噴霧した場合には非常に生き生きしていたのに対して、それらを用いて形成されたエマルジョンを噴霧した植物が枯れたため、乳化剤が T w e e n 2 0 、 T w e e n 8 0 、 T r i t o n X 1 0 0 または S D S である場合にコショウ植物への植物毒性がはっきりと実証された。

【 0 1 2 4 】

様々なセットの実験において、オレガノ油および界面活性剤がシリカビーズに吸収された (上述のようにイソプロパノールを使用して) 。オレガノベース粉末 0 . 5 % を水に分散させた場合に、良好な抗菌性の結果が得られた。この粉末は、オレガノ油約 2 5 % 、カリウム脂肪酸乳化剤 1 0 % を含有し、つまり、エマルジョン中のオレガノ油 0 . 1 2 5 % の濃度は十分に活性であり、粉末状から可溶化するのに必要とされる界面活性剤は 0 . 0 5 % だけだった。

【 0 1 2 5 】

意外なことに、さらに低濃度の粉末であっても、温室研究において良好な作物保護をもたらすのに十分であった。粉末 0 . 2 % のみ、したがってオレガノ油 0 . 0 5 % は、水中に分散するのに (エマルジョンを形成するのに) 十分であり、優れており、かつ再現可能な抗菌作用を示し、感染しているが未処理のコントロールと比較して、それで処理されている植物は完全に生き生きとしたままであった。

【 0 1 2 6 】

実施例 4 : 好ましい配合物および粉末の製造

材料および組成

オイル : ゴマ油 1 0 0 % (S P A l i n e L o t s i c P 1 A 1 1 / 0 1) ; オレガノ油 1 0 0 % (S P A l i n e L o t 0 0 1 5 1 8 1)

界面活性剤 : Z o h a r P T - 5 0 (Z o h a r D a l i a , B a t c h 0 5 5 1 1 P M 1 1 4 2) ;

S i O ₂ 粒子 : S i p e r n e t 5 0 S (2 0 μ m , E v o n i k I n d u s t r i

10

20

30

40

50

e s , l o t 1 4 6 2)

アルコール：イソプロパノール（ I P A , G a d o t ） .

配合

【 0 1 2 7 】

【表 1 4】

量	オレガノ油	ゴマ油	Zohar PT-50	Sipernat 50S	IPA	合計
Kg	40	10	31	75	21	177
%	22.6	5.6	17.5	42.4	11.9	100

10

【 0 1 2 8 】

粉末の製造

最初に、オレガノ油とゴマ油を混合し、均一な溶液が得られるまで、I P A を添加した。非粘性の均一な溶液が得られるまで、混合することによって、その溶液に界面活性剤を添加した。溶液を S i O₂ 粉末に噴霧し、低せん断力装置を使用して、すべての液体が吸収されるまで混合を行い、さらに 1 5 ~ 3 0 分間続けた。次いで、粉末を粉碎して凝集塊を破壊し、メッシュ 1 , 0 0 0 μ m を通してふるいにかけた。保管するために、粉末が入った袋を密閉封止し、保管した。1 5 ~ 3 0 にて少なくとも 2 年間保管した。

【国際調査報告】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No

PCT/IL2014/050346

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

INV. A01N25/04 A01N25/10 A01N25/34 A01N63/00 A01N65/00
A01P1/00

ADD.

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)

A01N

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

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

EPO-Internal, CHEM ABS Data, WPI Data

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 2012/083412 A1 (TREVINO RAMIRO [US] ET AL) 5 April 2012 (2012-04-05) paragraphs [0008] - [0011], [0013], [0017], [0019] - [0021], [0038] - [0041], [0051], [0053], [0060] - [0065], [0069], [0072] paragraphs [0076], [0081] -----	1-4, 6-16,30, 35-37
X	WO 2006/060213 A2 (UNIV CALIFORNIA [US]; VANDERGHEYNST JEAN S [US]; SCHER HERBERT B [US]) 8 June 2006 (2006-06-08)	1-5,8, 10-16, 23,30, 31,35-41
Y	page 1, line 5 - line 15 page 3, line 16 - page 4, line 5 page 4, line 25 - page 5, line 24 page 9, line 20 - page 13, line 6 examples 1,2 ----- -/-	24-29

☒ 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

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

G document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

25 July 2014

Date of mailing of the international search report

04/08/2014

Name and mailing address of the ISA/

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel: (+31-70) 340-2040,
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Zanobini, Alessandra

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No

PCT/IL2014/050346

C(Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	WO 2004/034791 A1 (GIVAUDAN SA [CH]; MCGEE THOMAS [US]; SGARAMELLA RICHARD P [US]; JOHNSO) 29 April 2004 (2004-04-29) page 2, line 10 - page 4, line 10 page 5, line 13 - page 6, line 5 examples 1-3 -----	24-29
X	GB 2 376 887 A (ROBERTS GILLIAN [GB]; DAYFIELD TECHNOLOGY PLC [GB]) 31 December 2002 (2002-12-31) page 2, paragraph 3 - page 3, paragraph 5 -----	1,4,12, 23,30-32
Y	GB 2 449 876 A (POST HARVEST SOLUTIONS LTD [IL]) 10 December 2008 (2008-12-10) figures 1-4 page 1, line 3 - line 4 page 2, line 13 - page 4, line 19 page 7, line 11 - line 29 page 11, line 1 - line 6 -----	24-29
A	O M Olanya ET AL: "Efficacy of Essential oils and biopesticides on Phytophthora infestans suppression in laboratory and growth chamber studies", 18 January 2007 (2007-01-18), XP055130332, Retrieved from the Internet: URL: http://www.tandfonline.com/doi/full/10.1080/09583150600827918#preview [retrieved on 2014-07-18] abstract & OLANYA O M ET AL: "Efficacy of Essential oils and biopesticides on Phytophthora infestans suppression in laboratory and growth chamber studies", BIOCONTROL SCIENCE AND TECHNOLOGY,, vol. 16, no. 9, 1 January 2006 (2006-01-01), pages 901-917, XP009179204, Materials and methods; page 903 Inhibition of in vitro growth of P. infestans; page 904 page 911, paragraph 3 - page 912, paragraph 1 page 913, paragraph 2 - page 914, paragraph 1 table III -----	1-41

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No

PCT/IL2014/050346

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 2012083412 A1	05-04-2012	CA 2813741 A1 CN 103108555 A EA 201390503 A1 EP 2624708 A1 US 2012083412 A1 WO 2012161726 A1	29-11-2012 15-05-2013 30-08-2013 14-08-2013 05-04-2012 29-11-2012
WO 2006060213 A2	08-06-2006	US 2009010890 A1 WO 2006060213 A2	08-01-2009 08-06-2006
WO 2004034791 A1	29-04-2004	AU 2003269660 A1 BR 0315454 A EP 1553835 A1 MX PA05004251 A NZ 538939 A US 2005214337 A1 WO 2004034791 A1	04-05-2004 23-08-2005 20-07-2005 05-07-2005 28-03-2008 29-09-2005 29-04-2004
GB 2376887 A	31-12-2002	NONE	
GB 2449876 A	10-12-2008	AU 2008259508 A1 EP 2170043 A2 GB 2449876 A WO 2008149232 A2	11-12-2008 07-04-2010 10-12-2008 11-12-2008

フロントページの続き

(51) Int.Cl.		F I		テーマコード (参考)
A 0 1 N 25/04 (2006.01)		A 0 1 N 25/04	1 0 1	
A 0 1 N 65/00 (2009.01)		A 0 1 N 65/00	A	

(81) 指定国 AP(BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), EP(AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, 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, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US

F ターム (参考) 4H011 AA01 BA01 BA04 BA05 BB22 BC03 BC05 BC08 BC17 BC18
 BC19 BC20 BC22 DA15 DA16 DB01 DC03 DC05 DC09 DD03
 DD04 DE15 DF03 DG05 DH02 DH03 DH10