

發明專利說明書

200418378

(本申請書格式、順序及粗體字，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※申請案號：92131277

※申請日期：92年11月07日

※IPC分類：A01N 25/28, B01J 13/02,
A01N 53/10, 65/00

壹、發明名稱：

(中) 微囊化殺蟲組合物

(外) Microencapsulated insecticidal composition

貳、申請人：(共 1 人)

1. 姓名：(中) 住友化學工業股份有限公司

(英) SUMITOMO CHEMICAL COMPANY, LIMITED

代表人：(中) 1. 米倉弘昌

(英)

地址：(中) 日本國大阪市中央區北浜四丁目五番三三號

(英)

國籍：(中英) 日本 JAPAN

參、發明人：(共 2 人)

1. 姓名：(中) 乾圭一郎

(英) INUI, KEIICHIRO

地址：(中) 日本國大阪府松原市天美南一-二三〇-二

(英)

2. 姓名：(中) 重村太博

(英) SHIGEMURA, TAKAHIRO

地址：(中) 日本國兵庫縣神戶市灘區篠原北町四-一六-一-二〇一

(英)

肆、聲明事項：

◎本案申請前已向下列國家(地區)申請專利 ☐ 主張國際優先權：

【格式請依：受理國家(地區)；申請日；申請案號數 順序註記】

1. 日本 ; 2002/11/08 ; 2002-324963 ☒ 有主張優先權

發明專利說明書

200418378

(本申請書格式、順序及粗體字，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※申請案號：92131277

※申請日期：92年11月07日

※IPC分類：A01N 25/28, B01J 13/02,
A01N 53/10, 65/00

壹、發明名稱：

(中) 微囊化殺蟲組合物

(外) Microencapsulated insecticidal composition

貳、申請人：(共 1 人)

1. 姓名：(中) 住友化學工業股份有限公司

(英) SUMITOMO CHEMICAL COMPANY, LIMITED

代表人：(中) 1. 米倉弘昌

(英)

地址：(中) 日本國大阪市中央區北浜四丁目五番三三號

(英)

國籍：(中英) 日本 JAPAN

參、發明人：(共 2 人)

1. 姓名：(中) 乾圭一郎

(英) INUI, KEIICHIRO

地址：(中) 日本國大阪府松原市天美南一-二三〇-二

(英)

2. 姓名：(中) 重村太博

(英) SHIGEMURA, TAKAHIRO

地址：(中) 日本國兵庫縣神戶市灘區篠原北町四-一六-一-二〇一

(英)

肆、聲明事項：

◎本案申請前已向下列國家(地區)申請專利 ☐ 主張國際優先權：

【格式請依：受理國家(地區)；申請日；申請案號數 順序註記】

1. 日本 ; 2002/11/08 ; 2002-324963 ☒ 有主張優先權

(1)

玖、發明說明

【發明所屬之技術領域】

本發明係有關一種微囊化殺蟲組合物。

【先前技術】

於USP 5,063,059中已知係使用微囊化的具有3-苯氧基之合成類除蟲菊精化合物來控制蟑螂。另外，從GB-2,187,957中知道使用多種徑微囊化的除蟲菊精化合物來控制昆蟲。

另一方面，從USP-4,900,551知道有使用微囊化有機磷殺蟲劑來控制白蟻者。

【發明內容】

本發明提出一種微囊化殺蟲組合物，並包括經囊包在合成聚合物所形成的壁內之除蟲菊精且具有5至100微米，較佳者10至50微米之平均粒徑和0.03至1微米的壁厚度，且有關其用途。

【實施方式】

於本發明中，除蟲菊精意指除蟲菊精I，除蟲菊精II，丁烯除蟲菊酯I(Cinerin I)，丁烯除蟲菊酯II，茉莉精(jasmolin)I，茉莉精II或彼等的混合物。天然除蟲菊精含有上述六種殺蟲性化合物且通常都可取得，不過也可以使用經由有機合成得到的除蟲菊精。

(2)

於本發明中係將除蟲菊精微囊化。微膠囊可以僅裝著除蟲菊精也可裝除蟲菊精溶液。溶液所用溶劑的例子包括二甲基萘，二癸基苯，液體石蠟，異佛爾酮，煤油，己二酸二丁酯，酞酸二乙酯，乙二醇一丁醚乙酸酯，碳酸伸丙基酯，椰子油，油菜籽油，棉子油，蓖麻油，大豆油和玉米油，不過只要具有與除蟲菊精的相容性，也可以使用任何惰性有機溶劑。該溶劑可為二或更多種上述有機溶劑的混合物。另外，可以加入液體或固體物質以調整除蟲菊精或除蟲菊精溶液的比重，於除蟲菊精中可以加入增效劑例如胡椒基丁氧化物(piperonyl butoxide)。再者，可以加入輔助劑例如安定劑，抗氧化劑，等。

本發明微膠囊可用任何已知方法製備，不過較佳者為利用介面聚合法，因其可方便地控制粒度和壁厚度之故。以介面聚合法微囊化係熟知者，例如可參看 USP-4,900,551，GB-2,187,957和 USP-5,063,059。

本發明微膠囊壁係用合成聚合物形成的。合成聚合物的例子包括聚胺基甲酸酯，聚脲，聚醯胺，聚酯和聚碳酸酯。較佳者為使用聚胺基甲酸酯和聚脲。

聚胺基甲酸酯微膠囊可按，例如，下述者予以製備：將含有除蟲菊精和具有至少兩種異氰酸酯基的多官能異氰酸酯化合物之溶液分散在含有一分散劑和有至少二個羥基的多價醇之水溶液內，接著施以介面聚合。或將含有除蟲菊精和有至少二個異氰酸酯基的多官能異氰酸酯化合物之溶水溶液分散在含有一分散劑之水溶液中，加入有至少二

(3)

個羥基的多價醇，接著介面聚合。

聚脲微膠囊可按下述製備：

將含有除蟲菊精和有至少二個異氰酸酯基的多官能異氰酸酯化合物的溶液分散在含分散劑且有或無具有至少二個胺基的多官能胺之水溶液中，接著介面聚合。或將含有除蟲菊精和有至少二個異氰酸酯基的多官能異氰酸酯化合物之溶液分散在含有分散劑的水溶液中，接著在該分散溶液中加入具有至少二個胺基的多官能胺之後施以介面聚合。

聚胺基甲酸酯和聚脲所用多官能異氰酸酯化合物之例子包括甲苯二異氰酸酯，六亞甲基二異氰酸酯，甲苯二異氰酸酯和三甲醇基丙烷的加合物。六亞甲基二異氰酸酯自縮合物，Sumidur L(Sumika-Bayer Urethane Company)和Sumidur N(Sumika-Bayer Urethane Company)。聚胺基甲酸酯所用多價醇的例子包括乙二醇，丙二醇，丁二醇，己二醇，庚二醇，二丙二醇，三乙二醇，甘油，間苯二酚和氫醌。聚脲所用多官能胺的例子包括乙二胺，六亞甲基二胺，苯二胺，甲苯二胺和二伸乙基三胺。

分散劑的例子包括天然多醣類例子阿膠；半合成多醣類例如甲基纖維素和羧甲基纖維素；合成聚合物例如聚乙烯醇；及細礦物質粉例如矽酸鋁鎂。

其他合成聚合物微膠囊可用類似於上述之已知方法予以製備。

微膠囊的平均粒徑和壁厚度可由壁材料的量及機械攪

(4)

拌程度，及分散劑的種類和濃度予以控制。

本發明微囊化殺蟲組合物可為任何類型的殺蟲調配物，不過常為水懸浮液。

該水懸浮液含有囊包在合成聚合物所形成的壁內之除蟲菊精且具有5至100微米之平均粒徑和0.03至1微米的壁厚度。具有太小平均粒徑的除蟲菊精微囊化殺蟲組合物傾向於具有較低的控制昆蟲效用性，而相反地，具有太大平均粒徑的除蟲菊精微囊化殺蟲組合物則具有較低的穩定性。該水懸浮液包括著該微囊化除蟲菊精，分散劑，水和視需要的鉗合劑，防銹劑，消泡劑，抗微生物劑，pH調整劑，比重調整劑等。水懸浮液的pH值較佳者為2或更高且低於7，更佳者為在2至6.5的範圍之內。

本發明殺蟲組合物中的除蟲菊精含量常為1至40重量%，較佳者為3至15重量%。

平均粒徑為一中間值(50%累積體積時的直徑)且可用雷射繞射，例如SALD-200(Shinadzu Corporation所製)經由粒子分布來測量。壁厚度可用下面的方程式大略計算出：

$$\text{壁厚度} = (V_m/V_c) \times (d/b)$$

其中 V_m 為壁材料的體積， V_c 為核材料的體積且 d 為微膠囊的平均粒徑。

本發明殺蟲組合物係用來控制昆蟲，典型地為木材害

(5)

蟲例如白蟻，不衛生的昆蟲例如蟑螂，討厭的昆蟲例如螞蟥和農業害蟲。

目標害蟲的例子包括等翅目昆蟲例如台灣家白蟻 (*Coptotermes formosanus*)(台灣地下白蟻)，*Reticulitermes speratus*和幹木切白蟻 (*Incisitermes minor*)；網翅目昆蟲例如德國小蠊 (*Blattella germanica*)(德國蟑螂)，烟色大蠊 (*Periplaneta fulginosa*)(烟棕色蟑螂)和美洲大蠊 (*Deriplaneta americana*)(美洲蟑螂)；鞘翅目昆蟲例如歐洲竹粉蠹 (*Lyctus brunneus*)(粉柱蟲)，烟草竊蠹 (*Lasioderma serricorne*)(烟草甲蟲)，皮蠹科(白腹皮蠹)和金龜子科(金龜子)；鱗翅目昆蟲例如甘藍夜蛾 (*Mamestra brassicae*)(甘藍行軍蟲)，菜粉蝶 (*Pieris rapae crucivora*)(普通甘藍蟲)，斜紋夜蛾 (*Spodoptera litura*)(烟草切葉蟲)和 *Helicoverpa armigera*(烟草芽害蟲)；膜翅目昆蟲例如日本大黑蟻 (*Camponotus japonicus*)，*Pristomyrmex pungens*和黃翅菜葉蜂 (*Athalia rosae ruficornis*)(甘藍葉蜂)；直翅目昆蟲例如稻蝗 (*Uxya yezoensis*)(稻子蚱蜢)和蟋蟀科(蟋蟀)；半翅目昆蟲；雙翅目昆蟲和其他昆蟲。

於使用本發明殺蟲組合物來控制昆蟲時，施用量常為 0.1至100 克/平方米的除蟲菊精之量。

於使用本發明除蟲組合物來控制白蟻時，該除蟲組合物係經施用到房子下面的土壤或混凝土表面，其劑量為以除蟲菊精的量計算之 0.1至100 克/平方米，較佳者 1至10 克/平方米，於需要時用水稀釋後施用。該除蟲組合物也

(6)

可施用於木材上，劑量為以除蟲菊精的量計算之0.1至10克/平方米，於需要時間用水稀釋後施用。

在使用本發明殺蟲組合物來控制蟑螂時，係將殺蟲組合物施用在地板或蟑螂棲息之處，需要時用水稀釋後施用。較佳施用量為0.1至100克/平方米的除蟲菊精之量及10至1000毫升/平方米之施用稀釋劑。

在使用本發明除蟲組合物來控制農業昆蟲時，係將殺蟲組合物施用在穀物或昆蟲棲息之處，於需要時用水稀釋後施用。其較佳施用量為以施用稀釋劑的量計算之100至10000升/公頃。

實施例

至此要用下列諸實施例更詳細地解釋本發明。於諸實施例中，百分比(%)意指重量百分比(%)。

實施例 1

將96克PYROCIDE-50(50%天然除蟲菊精，McLaughlin Gormley King Company)和4克Sumidur L(多元異氰酸酯，Sumika-Byaer Urethane Company)混合成為油狀液體。另一方面，將6克阿膠和2.9克乙二醇溶解在120克離子交換水中成為水溶液。於使用T.K.Homomixer(Tokushukika Kogyo Company)以4500rpm攪拌水溶液之同時，將油狀液體加到其中並繼續攪拌30分鐘而得一分散液。於60℃固定溫度浴中以500rpm繼續攪拌該分散液14小時而得微囊化組

(7)

合物懸浮液。於該懸浮液中加入含有0.2% Kelzan S(黃原膠, Sansho Cpmpany)的水溶液到調成10%天然除蟲菊精之濃度。測量其平均粒徑而得19微米之結果。壁厚度為0.12微米且pH為6.0。

實施例 2

將96克PYROCIDE-50(50%天然除蟲菊精, McLaughlin Gormley King Company)和4克Sumidur L(多元異氰酸酯, Sumika-Byaer Urethane Company)混合成為油狀液體。另一方面, 將6克阿膠和2.9克乙二醇溶解在120克離子交換水中成為水溶液。於使用T.K.Homomixer(Tokushukika Kogyo Company)以6000rpm攪拌水溶液之同時, 將油狀液體加到其中並繼續攪拌30分鐘而得一分散液。於60℃固定溫度浴中以500rpm繼續攪拌該分散液14小時而得微囊化組合物懸浮液。於該懸浮液中加入含有0.2% Kelzan S(黃原膠, Sansho Cpmpany)的水溶液到調成10%天然除蟲菊精之濃度。測量其平均粒徑而得12微米之結果。壁厚度為0.08微米且pH為5.8。

實施例 3

將96克PYROCIDE-50(50%天然除蟲菊精, McLaughlin Gormley King Company)和4克Sumidur L(多元異氰酸酯, Sumika-Byaer Urethane Company)混合成為油狀液體。另一方面, 將6克阿膠和2.9克乙二醇溶解在120克離子交換

(8)

水中成爲水溶液。於使用 T.K.Homomixer(Tokushukika Kogyo Company)以 6000rpm 攪拌水溶液之同時，將油狀液體加到其中並繼續攪拌 30 分鐘而得一分散液。於 60℃ 固定溫度浴中以 500rpm 繼續攪拌該分散液 14 小時而得微囊化組合物懸浮液。於該懸浮液中加入含有 0.2% Kelzan S(黃原膠，Sansho Company)的水溶液及接著 1% 乳酸水溶液到調成 10% 天然除蟲菊精之濃度。測量其平均粒徑而得 12 微米之結果。壁厚度爲 0.08 微米且 pH 爲 3.0。

實施例 4

將 48 克 PYROCIDE-50(50% 天然除蟲菊精，McLaughlin Gormley King Company)，48 克胡椒基丁氧化物和 5 克 Sumidur L(多元異氰酸酯，Sumika-Byaer Urethane Company)混合成爲油狀液體。另一方面，將 6 克 Gohsenol(聚乙烯醇，Nippon Synthetic Chemical Industry)和 3.2 克乙二醇溶解在 120 克離子交換水中成爲水溶液。於使用 T.K.Homomixer(Tokushukika Kogyo Company)以 4000rpm 攪拌水溶液之同時，將油狀液體加到其中並繼續攪拌 30 分鐘而得一分散液。於 60℃ 固定溫度浴中以 500rpm 繼續攪拌該分散液 14 小時而得微囊化組合物懸浮液。於該懸浮液中加入含有 0.2% Kelzan S(黃原膠，Sansho Company)的水溶液到調成 5% 天然除蟲菊精之濃度。測量其平均粒徑而得 17 微米之結果。壁厚度爲 0.10 微米且 pH 爲 5.7。

參比彼實施例 1

(9)

將 20 克 PYROCIDE-50(50% 天然除蟲菊精，McLaughlin Gormley King Company)，15克 New Karugen CP-120(界面活性劑，Takemotoyushi Company)和 75 克 IP 溶劑(烴類，Idemitsu Petrochemical Company)混合而得一可乳化的濃縮物。

參比彼實施例 2

將 10 克滅滅松(fenitrothion)(有機磷殺蟲化合物)，15 克 New Karugen CP-120(界面活性劑，Takemotoyushi Company)和 75 克 IP 溶劑(烴類，Idemitsu Petrochemical Company)混合而得一可乳化的濃縮物。

參比彼實施例 3

將 48 克滅滅松，48 克己二酸二異丁酯和 4 克 Sumidur L(多元異氰酸酯，Sumika-Byaer Urethane Company)混合成爲油狀液體。另一方面，將 6 克 Gohsenol(聚乙烯醇，Nippon Synthetic Chemical Industry)和 2.9 克乙二醇溶解在 120 克離子交換水中成爲水溶液。於使用 T.K.Homomixer(Tokushukika Kogyo Company)以 4500rpm 攪拌水溶液之同時，將油狀液體加到其中並繼續攪拌 30 分鐘而得一分散液。於 60℃ 固定溫度浴中以 500rpm 繼續攪拌該分散液 14 小時而得微囊化組合物懸浮液。於該懸浮液中加入含有 0.2% Kelzan S(黃原膠，Sansho Company)的水溶液到調成 10% 撲滅松之濃度。測量其平均粒徑而得 18 微米

(10)

之結果。壁厚度為0.12微米。

參比實施例 4

將96克PYROCIDE-50(50%天然除蟲菊精，McLaughlin Gormley King Company)和6克Sumidur L(多元異氰酸酯，Sumika-Byaer Urethane Company)混合成為油狀液體。另一方面，將6克Gohsenol(聚乙烯醇，Nippon Synthetic Chemical Industry)和2.9克乙二醇溶解在120克離子交換水中成為水溶液。於使用T.K.Homomixer(Tokushukika Kogyo Company)以6500rpm攪拌水溶液之同時，將油狀液體加到其中並繼續攪拌60分鐘而得一分散液。於60℃固定溫度浴中以500rpm繼續攪拌該分散液14小時而得微囊化組合物懸浮液。於該懸浮液中加入含有0.2%Kelzan S(黃原膠，Sansho Company)的水溶液到調成10%天然除蟲菊精之濃度。測量其平均粒徑而得4微米之結果。壁厚度為0.04微米且pH為5.2。

試驗實施例 1

將20克沙放置在塑膠培養皿(直徑9厘米)上面。用離子交換水稀釋實施例1-4與參考實施例1和4中所得各調配物到所指定的濃度，並將5毫升各稀釋液分別施加到沙上。緊接在該施加之後或在保持於60℃一段指定時間之後，將10隻工白蟻(台灣家白蟻)釋放其上。於釋放48小時之後觀察致死率。重複該試驗三次並計算平均值。結果列於表

(11)

1 之中。

表 1

樣 品	稀 釋 率	致 死 率 (%)				
		緊 接 在 施 加 之 後	2 個 月 後	3 個 月 後	4 個 月 後	5 個 月 後
實 施 例 1	×50	100	100	100	90	53
	×100	100	97	77	63	43
實 施 例 2	×50	100	100	57	50	31
	×100	100	100	57	27	20
實 施 例 3	×50	100	100	100	100	100
	×100	100	100	100	55	47
實 施 例 4	×25	100	100	100	91	85
	×50	93	67	90	90	87
參 比 實 施 例 1	×50	100	90	37	20	3
	×100	100	33	0	-	-
參 比 實 施 例 4	×50	63	-	-	-	-
	×100	50	-	-	-	-
對 照 樣	-	0	0	0	0	0

試 驗 實 施 例 2

用 離 子 交 換 水 稀 釋 實 施 例 1-4 與 參 考 實 施 例 1-3 中 所 得
各 調 配 物 到 所 指 定 的 濃 度 ， 並 將 0.3 毫 升 各 稀 釋 液 分 別 施
加 到 一 玻 璃 培 養 皿 (直 徑 9 厘 米 ， 高 度 6 厘 米)的 底 部 上 面 。

(12)

緊接在該施加之後或在保持於45℃一段指定時間之後，將5隻雌和5隻雄蟑螂(德國小蠊)釋放其上。於1小時之，將蟑螂到一乾淨容器並於24小時之後觀察致死率。重複該試驗三次並計算平均值。結果列於表2之中。

表 2

樣 品	稀 釋 率	致 死 率 (%)			
		緊 接 在 施 加 之 後	2 星 期 後	3 星 期 後	4 星 期 後
實 施 例 1	×20	100	100	100	100
	×40	100	100	100	100
實 施 例 2	×20	100	100	100	100
	×40	100	100	100	100
實 施 例 3	×20	100	100	100	100
	×40	100	100	100	100
實 施 例 4	×40	100	100	100	100
	×80	100	100	100	100
參 比 實	×20	100	0	-	-
施 例 1	×40	100	0	-	-
參 比 實	×40	100	0	-	-
施 例 2	×80	100	0	-	-
參 比 實	×40	100	100	100	0
施 例 3	×80	100	100	80	0
對 照 樣	-	0	0	0	0

試驗實施例 3

(13)

將 10 隻 鯉 魚 苗 (約 5 厘 米 全 長 度)放 到 裝 有 10 升 水 的 15- 升 玻 璃 槽 類 。 將 該 鯉 魚 苗 馴 養 1 星 期 之 後 ， 分 別 加 入 實 施 例 1 、 4 與 參 比 實 施 例 1 中 所 得 各 調 配 物 於 槽 中 到 所 指 定 的 濃 度 。 48 小 時 之 後 ， 觀 察 鯉 魚 曲 致 死 率 並 計 算 T L m 48 。 截 過 列 於 表 3 之 中 。

表 3

樣 品	T L m 48 (p p m)
實 施 例 1	> 10
實 施 例 4	> 10
參 比 實 施 例 1	0.08

伍、中文發明摘要

發明之名稱：微囊化殺蟲組合物

一種包括經囊包在由合成聚合物所形成的壁內之除蟲菊精且具有5至100微米的平均粒徑及0.03至1微米壁厚度之微囊化殺蟲組合物可以有效地控制昆蟲。

陸、英文發明摘要

發明之名稱：Microencapsulated insecticidal composition

A microencapsulated insecticidal composition comprising a pyrethrin encapsulated in a wall formed of a synthetic polymer and having an average particle diameter of 5 to 100 μ m and wall thickness of 0.03 to 1 μ m is effective for controlling insects.

(1)

拾、申請專利範圍

1.一種微囊化殺蟲組合物，其包括經囊包在一合成聚合物所形成的壁中除蟲菊精(pyrethrin)，且其具有5至100微米之平均粒徑和0.03至1微米之壁厚度。

2.根據申請專利範圍第1項之微囊化殺蟲組合物，其中該合成聚合物為聚胺基甲酸酯或聚脲。

3.一種殺蟲性水懸浮液，其包括經囊包在一合成聚合物所形成的壁中之除蟲菊精，且其具有5至100微米之平均粒徑和0.03至1微米之壁厚度。

4.根據申請專利範圍第3項之殺蟲水懸浮液，其中該合成聚合物為聚胺基甲酸酯或聚脲。

5.根據申請專利範圍第3或4項之殺蟲性水懸浮液，其中該水懸浮液的pH為2或更大者且小於7。

6.根據申請專利範圍第3或4項之殺蟲性水懸浮液，其中該水懸浮液的pH在2至6.5的範圍之內。

7.一種控制昆蟲之方法，其包括施加有效量的微囊化殺蟲組合物，該微囊化殺蟲組合物包括經囊包在一合成聚合物所形成的壁中之除蟲菊精，且該微囊化殺蟲組合物具有5至100微米之平均粒徑和0.03至1微米之壁厚度。

8.根據申請專利範圍第7項之控制昆蟲之方法，其中該合成聚合物為聚胺基甲酸酯或聚脲。

9.根據申請專利範圍第7或8項之控制昆蟲之方法，其中該昆蟲為白蟻。

10.根據申請專利範圍第7或8項之控制昆蟲之方法，

(2)

其中該昆蟲為蟑螂。

- 柒、
- (一)、本案指定代表圖為：無
 - (二)、本代表圖之元件代表符號簡單說明：無

捌、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：無