

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第4971993号  
(P4971993)

(45) 発行日 平成24年7月11日(2012.7.11)

(24) 登録日 平成24年4月13日(2012.4.13)

(51) Int. Cl.	F 1		
AO 1 N 25/18 (2006.01)	AO 1 N 25/18	1 O 3 C	
AO 1 N 47/46 (2006.01)	AO 1 N 47/46		
AO 1 N 37/02 (2006.01)	AO 1 N 37/02		
AO 1 P 3/00 (2006.01)	AO 1 P 3/00		
AO 1 P 7/00 (2006.01)	AO 1 P 7/00		

請求項の数 24 (全 18 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願2007-547079 (P2007-547079)  
 (86) (22) 出願日 平成17年5月25日 (2005.5.25)  
 (65) 公表番号 特表2008-525318 (P2008-525318A)  
 (43) 公表日 平成20年7月17日 (2008.7.17)  
 (86) 国際出願番号 PCT/AU2005/000741  
 (87) 国際公開番号 W02006/066308  
 (87) 国際公開日 平成18年6月29日 (2006.6.29)  
 審査請求日 平成20年4月16日 (2008.4.16)  
 (31) 優先権主張番号 2004907399  
 (32) 優先日 平成16年12月24日 (2004.12.24)  
 (33) 優先権主張国 オーストラリア(AU)

(73) 特許権者 305039998  
 コモンウェルス サイエントフィック  
 アンド インダストリアル リサーチ オ  
 ーガニゼーション  
 オーストラリア国 2601 オーストラ  
 リアン キャピタル テリトリー キャン  
 ベル ライムストーン アヴェニュー  
 (74) 代理人 100091096  
 弁理士 平木 祐輔  
 (74) 代理人 100096183  
 弁理士 石井 貞次  
 (74) 代理人 100118773  
 弁理士 藤田 節  
 (74) 代理人 100119183  
 弁理士 松任谷 優子

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 殺虫剤組成物および方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

ギ酸メチルおよびギ酸エチルから選択されるギ酸アルキル、ならびにメチル、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル、secブチル、イソブチル、t-ブチル、アリル、メチルアリル、ベンジルおよびフェニルイソチオシアン酸エステルからなる群より選択されるイソチオシアン酸エステルを含む燻蒸剤組成物であって、  
40~0.5重量部(w/w比)のイソチオシアン酸エステルに対して60~99.5重量部のギ酸アルキルが組成物中に存在する、前記燻蒸剤組成物。

【請求項 2】

5重量部(ratio w/w)のイソチオシアン酸エステルに対して95重量部のギ酸アルキルが  
組成物中に存在する、請求項 1 の燻蒸剤組成物。

10

【請求項 3】

希釈剤、賦形剤または担体をさらに含む、請求項 1 の燻蒸剤組成物。

【請求項 4】

ギ酸アルキルがギ酸メチルである、請求項 1 の燻蒸剤組成物。

【請求項 5】

ギ酸アルキルがギ酸エチルである、請求項 1 の燻蒸剤組成物。

【請求項 6】

イソチオシアン酸エステルがイソチオシアン酸メチルおよびイソチオシアン酸アリルから  
選択される、請求項 1 の燻蒸剤組成物。

20

## 【請求項 7】

ギ酸アルキルがギ酸エチルであり、かつ、イソチオシアン酸エステルがイソチオシアン酸メチルである、請求項 1 の燻蒸剤組成物。

## 【請求項 8】

ギ酸アルキルがギ酸エチルであり、かつ、イソチオシアン酸エステルがイソチオシアン酸アリルである、請求項 1 の燻蒸剤組成物。

## 【請求項 9】

物品、建造物または空間にイソチオシアン酸エステルを送達する方法であって、該物品、建造物または空間にギ酸メチルおよびギ酸エチルから選択されるギ酸アルキル中のイソチオシアン酸エステルの燻蒸剤混合物を適用し、該燻蒸剤混合物を蒸発させる

(ここで、イソチオシアン酸エステルが、メチル、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル、secブチル、イソブチル、t-ブチル、アリル、メチルアリル、ベンジルおよびフェニルイソチオシアン酸エステルからなる群より選択され；

40~0.5重量部(w/w比)のイソチオシアン酸エステルに対して60~99.5重量部のギ酸アルキルが組成物中に存在する)

ことによる方法。

## 【請求項 10】

物品が貯蔵穀物であるか、あるいは、建造物または空間が貯蔵穀物を保持または含有する、請求項 9 の方法。

## 【請求項 11】

燻蒸剤混合物が貯蔵穀物内の内部段階の害虫生物相を死滅させる、請求項 10 の方法。

## 【請求項 12】

燻蒸剤としてのイソチオシアン酸エステルの効力を向上させる方法であって、イソチオシアン酸エステルをギ酸メチルおよびギ酸エチルから選択されるギ酸アルキルと組み合わせる工程

(ここで、イソチオシアン酸エステルが、メチル、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル、secブチル、イソブチル、t-ブチル、アリル、メチルアリル、ベンジルおよびフェニルイソチオシアン酸エステルからなる群より選択され；

40~0.5重量部(w/w比)のイソチオシアン酸エステルに対して60~99.5重量部のギ酸アルキルが組成物中に存在する)

を含む方法。

## 【請求項 13】

燻蒸剤としてのギ酸メチルおよびギ酸エチルから選択されるギ酸アルキルの効力を向上させる方法であって、ギ酸アルキルを有効量のイソチオシアン酸エステルと組み合わせる工程

(ここで、イソチオシアン酸エステルが、メチル、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル、secブチル、イソブチル、t-ブチル、アリル、メチルアリル、ベンジルおよびフェニルイソチオシアン酸エステルからなる群より選択され；

40~0.5重量部(w/w比)のイソチオシアン酸エステルに対して60~99.5重量部のギ酸アルキルが組成物中に存在する)

を含む方法。

## 【請求項 14】

燻蒸方法であって、気体形態または溶液中の有効量のギ酸メチルおよびギ酸エチルから選択されるギ酸アルキルおよびイソチオシアン酸エステルを物品および/または建造物および/または空間に適用する工程

(ここで、イソチオシアン酸エステルが、メチル、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル、secブチル、イソブチル、t-ブチル、アリル、メチルアリル、ベンジルおよびフェニルイソチオシアン酸エステルからなる群より選択され；

40~0.5重量部(w/w比)のイソチオシアン酸エステルに対して60~99.5重量部のギ酸アルキルが組成物中に存在する)

10

20

30

40

50

を含む方法。

【請求項 15】

ギ酸アルキルおよびイソチオシアン酸エステルが溶液であるか、あるいは担体ガスと組み合わせられている、請求項 9、12、13 または 14 の方法。

【請求項 16】

担体ガスが、低酸素濃度を有する不活性ガスである、請求項 15 の方法。

【請求項 17】

担体ガスが二酸化炭素を含有する、請求項 16 の方法。

【請求項 18】

物品が、穀物、種子、肉、果実、乾燥果実、野菜、材木、植物、切り花および土から選  
10  
択される、請求項 14 の方法。

【請求項 19】

建造物および/または空間が、農場貯蔵所、サイロ、コンテナ、部屋または建物、製粉  
所または精米所または食品加工工場、スーパーマーケット、ミュージアムである、請求項  
14 の方法。

【請求項 20】

建造物が開放型である、請求項 19 の方法。

【請求項 21】

ウイルス、昆虫、クモ、チャタテムシ、ダニ、線虫、細菌、カビ、ならびに真菌および  
それらの孢子を含む1種以上の生物相の範囲を駆除するために使用される、請求項 14 の  
20  
方法。

【請求項 22】

ギ酸アルキルがギ酸メチルである、請求項 9、12、13 または 14 の方法。

【請求項 23】

ギ酸アルキルがギ酸エチルである、請求項 9、12、13 または 14 の方法。

【請求項 24】

イソチオシアン酸エステルがイソチオシアン酸メチルおよびイソチオシアン酸アリルか  
ら選択される、請求項 9、12、13 または 14 の方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

30

【0001】

本発明は、ギ酸アルキルおよびイソチオシアン酸エステルを含む新規殺虫剤組成物、燻  
蒸剤の送達方法および燻蒸剤の組み合わせを使用する害虫防除(駆除)方法に関する。

【背景技術】

【0002】

発明の背景

燻蒸剤は、害虫駆除、および侵入に対する保護のために広く使用される。それは、粒子  
状物品(例えば穀物(grain))および他の貯蔵製品(耐久性のある生鮮食材または切り花を含  
む)、多孔性バルク材料(例えば土または材木)および空間(空の建造物または物品を含有す  
る建造物)を保護するために通常必要とされる。理想的な燻蒸剤は、昆虫、チャタテムシ  
、ダニ、線虫、細菌、真菌およびそれらの孢子、ウイルスおよびカビおよび他の害虫生物  
相に対して毒性であるべきである。それは低濃度で有効であるべきである。理想的には、  
燻蒸領域中の物質によるその吸収は低レベルであるべきである。それは、物品に対して低  
40  
い植物毒性を有するべきである。それは低い哺乳類の慢性毒性を有するべきであるし、残  
留物または不活性残留物を残さないべきである。さらに、理想的な燻蒸剤は、安全な取扱  
いに関する限りでは、困難を引き起こさないべきであるし、それは燻蒸対象の物品または  
空間に悪影響を与えないべきである。

【0003】

これらの「理想的」基準のすべてを満たす燻蒸剤はない。穀物、他の粒子状物質、果実  
およびタイマー(timer)の燻蒸において最も一般に使用される2種の燻蒸剤は、ホスフィン  
50

および臭化メチルである。しかし、オーストラリアおよび他の先進国において、2005年以降、臭化メチルの使用は段階的に廃止されることになっている。これらの燻蒸剤の代替物として、近年、二硫化炭素が提案された(WO 93/13659)が、ニューサウスウェールズ、オーストラリアでは、燻蒸剤としての用途に関してもはや登録されていない。結果として、ホスフィンがオーストラリアで農場用途に利用可能な唯一の登録燻蒸剤になると予測される。

#### 【0004】

ホスフィンは貯蔵穀物等に関して好ましい燻蒸剤である。その理由は、それが穀物害虫に対して有効であり、ほとんど残留物(本質的に無害のリン酸)を残さないからである。しかし、ホスフィンは、その濃度が比較的低い値を超える場合には、自然発火性であり、許容しうる濃度で使用される場合には、短期間ですべての段階の昆虫を死滅させることができない。

10

#### 【0005】

ホスフィンでの燻蒸は、密封貯蔵所で、15℃を超える温度で、長い(>5日)曝露を必要とする。多数の現存の農場貯蔵所は密封型ではなく、したがって、有効な燻蒸に適していない。その理由は、総昆虫駆除に必要な期間、濃度を維持できないためである。ホスフィンに対する過剰な信頼およびオーストラリアの貯蔵所が非密封型であることによって、(1)より高頻度の耐性、(2)危険な実施、および(3)生存昆虫および未反応リン化アルミニウム残留物を含有する穀物貯蔵所への穀物送達が生じている。

#### 【0006】

ギ酸アルキル、例えばギ酸エチルおよびギ酸メチルは、貯蔵製品用の燻蒸剤としての長い用途歴がある。ギ酸エチルは、オーストラリアにおいて、乾燥果実用の燻蒸剤として現時点で登録されており、現在、オーストラリアにおける非密封型農場貯蔵所で貯蔵される穀物用の代替の燻蒸剤として研究中である。ギ酸アルキルを用いて作業する場合、建造物中で可燃性レベルより低い濃度を保つよう注意を払う必要がある。これは、貯蔵穀物建造物の底部で液状のギ酸アルキルの蓄積を回避することによって、建造物中で、十分な期間、有効濃度のギ酸アルキルを維持するよう蒸発率を調節することによって行われる。

20

#### 【0007】

シアン発生化合物、例えばシアン化水素および塩化シアン、塩素およびヒ素ガスは、すべて別々に使用されていて、燻蒸剤、殺菌剤、消毒薬として、ならびに昆虫および動物の経時的駆除のために多少の成功を収めている。

30

#### 【0008】

シアンガス( $C_2N_2$ )は毒薬として公知であり、燻蒸剤としての使用に好適であることが近年発見された(WO 96/01051)。

#### 【0009】

ジクロロボスは有機リンおよび有機塩素殺虫剤の1種である。ジクロロボスは穀物中の浸透性が不十分であり、長期残留物を残す。また、ジクロロボスに対して耐性になる昆虫に伴う問題がある。

#### 【0010】

イソチオシアン酸エステルは、一般にその結晶性固形物として提供される。典型的には、イソチオシアン酸エステル燻蒸剤の送達は、高い蒸気圧による該固形結晶の昇華に基づく。フッ化スルフリル中に溶存しているイソチオシアン酸エステルを輸送することもできる。フッ化スルフリルの蒸発後、建造物または物品の表面上にイソチオシアン酸エステルの結晶が形成される。その後、イソチオシアン酸エステル結晶は、通常の様式での昇華により燻蒸剤として作用することができる。

40

#### 【0011】

穀物害虫に対して使用されている他の燻蒸剤には、アクリロニトリル、二硫化炭素、四塩化炭素、クロロピクリン、二臭化エチレン、二塩化エチレン、エチレンオキシドおよびフッ化スルフリルが含まれる。

#### 【0012】

50

「慣用の」燻蒸剤はいずれも理想的な燻蒸剤の特性を有さないこと、およびオーストラリアで農場用途に利用可能な唯一の登録燻蒸剤になることになっているのはホスフィンであることが留意される。

【 0 0 1 3 】

長年、新規燻蒸剤に関する継続的な調査が行われているが、改善された燻蒸剤に関する探索が継続することに疑いはない。農場での使用のための多機能的穀物処理の開発に関する特に切迫した要求が存在する。その処理は、理想的には、安価で、かつ、特に非密封型の貯蔵コンテナ、例えば農場貯蔵所において、取扱いおよび実施が容易であるべきである。

【 発明の開示 】

【 0 0 1 4 】

発明の要旨

本発明は、新規燻蒸剤組成物および方法であって、それを用いて、昆虫、チャタテムシ、ダニ、線虫、真菌およびそれらの孢子、細菌、ウイルス、カビおよび他の害虫生物相の信頼できる駆除が可能である、慣用の燻蒸剤の実行可能な代替物としての組成物および方法を提供しようとするものである。本発明は、一緒に適用される場合に安定であり、長期間保存してよい、相乗的に作用する組み合わせの液体または気体を含む新規燻蒸剤組成物をさらに提供しようとするものである。

【 0 0 1 5 】

広い形態では、本発明は、ギ酸アルキルおよびイソチオシアン酸エステルを含む燻蒸剤組成物を提供する。換言すれば、本発明者らは、驚くべきことに、ギ酸アルキルおよびイソチオシアン酸エステルが相乗的に作用することを発見した。

【 0 0 1 6 】

別の広い形態では、本発明は、イソチオシアン酸エステルの効力を向上させる方法であって、イソチオシアン酸エステルと有効量のギ酸アルキルを組み合わせる工程を含む方法を提供する。

【 0 0 1 7 】

さらに別の広い形態では、本発明は、ギ酸エチルの効力を向上させる方法であって、ギ酸エチルと有効量のイソチオシアン酸エステルを組み合わせる工程を含む方法を提供する。

【 0 0 1 8 】

別の広い形態では、本発明は、イソチオシアン酸エステルの送達を改善する方法であって、イソチオシアン酸エステルをギ酸アルキル中に溶解して、燻蒸剤組成物を形成させる工程および該組成物を蒸発させるか、あるいは別の様式で噴射する工程を含む方法を提供する。

【 0 0 1 9 】

別の広い形態では、本発明は、燻蒸方法であって、気体形態または溶液中のギ酸アルキルおよびイソチオシアン酸エステルを物品および/または建造物および/または空間に適用する工程を含む方法を提供する。

【 0 0 2 0 】

好ましい実施形態では、前記燻蒸剤組成物は、希釈剤、賦形剤または担体をさらに含む。燻蒸剤は、溶液中で、あるいは担体ガスと組み合わせ提供してよい。好ましくは、該担体ガスは不活性ガスであり、好ましくは該担体ガスは低濃度の酸素をさらに有する。本発明の好ましい実施形態では、該担体ガスは二酸化炭素を含むか、あるいは二酸化炭素含有環境中で適用される。

【 0 0 2 1 】

好ましい形態では、前記物品には、穀物、種子、肉、果実、乾燥果実、野菜、材木、植物、切り花および土が含まれる。

【 0 0 2 2 】

好ましくは、該物品には、輸入(農)産物および園芸品の検疫害虫駆除のための、バルク

10

20

30

40

50

穀物(例えばコムギ)等を含むサイロまたは同様の建造物、および歯学、医学および/または獣医学適用のための部屋、建物、設備等が含まれる。

【0023】

前記燻蒸剤組成物は、任意の形状の建造物、容器またはコンテナにおいて効果的であることが見出されるが、開放型の農場貯蔵所およびサイロでの使用に特に好適である。

【0024】

好ましい実施形態では、燻蒸剤は、ウイルス、昆虫、クモ、ダニ、線虫、細菌、カビ、真菌およびそれらの孢子を含む1種以上の範囲の生物相を駆除することができる。

【0025】

本発明の実施形態では、該燻蒸剤組成物が適用される環境内の湿度および/または圧力を調節して、該燻蒸剤組成物の特性を調節する(例えば毒性および/または相乗効果の増加)。

10

【0026】

本発明の組成物および方法において使用するためのギ酸アルキルは、好ましくはギ酸エチルおよびギ酸メチルである。より好ましい実施形態では、特に食品を燻蒸する必要がある場合、該ギ酸アルキルはギ酸エチルである。概して、以下の説明全体を通して、好ましいギ酸アルキルであるギ酸エチルに関して言及される。しかし、多数の本発明の組成物および方法においてギ酸メチルを同様に使用できることが理解される。

【0027】

本発明の組成物および方法において使用するためのイソチオシアン酸エステルは、好ましくは低級アルキル、低級アルケニル、フェニルまたはベンジルのイソチオシアン酸エステルであり、それは場合により置換されていてよい。より好ましくは、該イソチオシアン酸エステルは、メチル、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル、secブチル、イソブチルまたはt-ブチル、アリル、メチルアリル、ベンジルまたはフェニルである。該アルキル、ベンジルまたはフェニル基に対するオプションの置換基には、ハロゲン、例えばクロロ、フルオロ、ブロモまたはヨード、メチルまたはエチル、メトキシまたはエトキシ、シアノまたはニトロが含まれるであろう。最も好ましくは、該イソチオシアン酸エステルはイソチオシアン酸メチルおよびイソチオシアン酸アリルである。主として、以下の説明全体を通して、好ましいイソチオシアン酸エステルであるイソチオシアン酸メチルに関して言及される。しかし、本発明の組成物および方法においてイソチオシアン酸アリルおよび他の関連イソチオシアン酸エステルを同様に使用できることが理解される。例えば、イソチオシアン酸アリルは良好な食物許容性を有し、その使用が食材に対する特定の適用において問題になる可能性は低い。

20

30

【0028】

以下の本明細書および特許請求の範囲の全体を通して、前後関係によって特に必要とされない限り、単語「含む(comprise)」、およびバリエーション、例えば「comprises」または「comprising」は、記載の整数もしくは工程または整数群もしくは工程群の包含を意味するが、任意の他の整数もしくは工程または整数群もしくは工程群の排除を意味しないと理解される。

【発明を実施するための最良の形態】

40

【0029】

好ましい実施形態の詳細な説明

ギ酸エチルは天然に存在する物質であり、通常、土壌、海洋および植生において見出される。それは、全種類の植物および動物製品、例えば果実および野菜、ビール、ワインおよびアルコール類、マグロ、肉、筋肉、チーズおよびパンにおいて見出される。いくつかの穀物および穀類、例えばオオムギは、1 mg/kgまでの濃度で存在する測定可能な量のギ酸エチルを有する。

【0030】

ギ酸エチルは無臭の液体(bp 54 )であり、快い芳香を有する。それは、エタノールをギ酸と反応させることによって作成することができ、本来天然に存在する化学物質である

50

。燻蒸剤として使用される際、ギ酸エチルは加水分解または代謝されてこれらの天然に存在する化学物質に戻る。ギ酸およびエタノールは、300 mg/kgまでの量またはそれ以上の量で、穀物中にかなりの量で存在させることができる。

#### 【0031】

ヒトは、広範囲の食物中の天然に存在するギ酸エチルに常に曝露されており、したがって、食餌を通して慢性的に曝露されている哺乳類に対してギ酸エチルは低い毒性しか有さないと考えられていることは驚くべきことではない。それに加えて、加水分解によってギ酸エチルがギ酸およびエタノールに分解される際の共通の代謝経路があり、それはホスフィンまたは臭化メチルの代替物としてのギ酸エチルに関する高い職業曝露限界を許容する。

10

#### 【0032】

ギ酸エチルは、貯蔵穀物昆虫に対して非常に急速な作用を有し、したがって、貯蔵製品の高速害虫駆除、例えば穀物および果実および野菜処理に有用であることが示されている。

#### 【0033】

本発明の組成物および方法においてギ酸メチルを使用してもよい。それは、燻蒸剤として、ギ酸エチルよりわずかに効果的であるが、食物および食品に関するギ酸メチルの使用は、その分解産物の1つであるメタノールの毒性のせいで望ましくない。

#### 【0034】

驚くべきことに、本発明者らは、ギ酸アルキルとイソチオシアン酸エステルの組成物が、ギ酸アルキル単独、イソチオシアン酸エステル単独またはギ酸アルキルおよびイソチオシアン酸エステルの単純な相加的混合物を用いた場合に予測されるであろう毒性と比較された場合に、より短時間で、かつより低濃度で顕著に高率の穀物の害虫駆除を示すことを発見した。

20

#### 【0035】

ギ酸アルキル燻蒸剤に対して改善された効果を付与するために必要とされるイソチオシアン酸エステルの量は比較的少ない。好ましい実施形態では、イソチオシアン酸エステルに対するギ酸アルキルの割合は40重量%(w/w)イソチオシアン酸エステルまでであり、より好ましくは20重量%までであり、さらにより好ましくは10重量%までであり、最も好ましくは約5重量%イソチオシアン酸エステルである。哺乳類に対するイソチオシアン酸エステルの毒性およびその残留物に関連する問題を最小限にするためにイソチオシアン酸エステルの濃度は低いほうが好ましい。任意の少量のイソチオシアン酸エステルを使用することができるが、ただし、それが相乗効果を提供することを条件とする。相乗効果は約0.5重量%イソチオシアン酸エステルで開始されることが一般に観察される。

30

#### 【0036】

本発明の燻蒸剤組成物は、イソチオシアン酸エステルをギ酸アルキル中に溶解することによって調製される。ギ酸エチルおよびイソチオシアン酸メチルは、製剤化され、25℃で2ヶ月以上保存された場合に安定であることが見出された。ギ酸エチルおよびメチルと種々のイソチオシアン酸エステルの組み合わせに関して、同様の結果が見出される。それにより、燻蒸剤組成物をバルクで製剤化し、適用場所への輸送に利用可能にすることができる。また、個々の成分を燻蒸前に現地で密接に混合するか、あるいは同時に、あるいは連続的に物品または建造物に適用できることが理解される。

40

#### 【0037】

研究対象の昆虫種は、実験室系統のコメゾウムシである*Sitophilus oryzae*であった。それは卵、幼生、蛹または成体として存在するもの、およびコムギの大量貯蔵物におけるその異齢混合培養物(mixed aged culture)であった。5.9 mg/Lの濃度でのギ酸エチル単独は、25℃で24時間の燻蒸で、*Sitophilus oryzae*の成体に対して不活性であることがわかった。それに対して、5%イソチオシアン酸メチルを加えると、同一条件下で該成体の99%が死滅した。他の濃度のギ酸エチルに対して、5%イソチオシアン酸メチルに富む組成物は、*Sitophilus oryzae*の異齢混合培養物全体にわたって強い相乗効果を同様に示

50

した。

【0038】

7日にわたって燻蒸されたコムギについての残留物の研究では、無視できる量のイソチオシアン酸メチルおよびギ酸エチル残留物しか有さず、該燻蒸剤は通気なしでバックグラウンドレベルに減少したことが見出された。

【0039】

燻蒸前および後に採取された代表的なサンプルに関して、燻蒸率および幼芽長を測定した。該ギ酸エチル/イソチオシアン酸メチル製剤は、オオムギ、コムギおよびモロコシの発芽(7日カウント)または幼芽長に影響しないことが見出された。さらに本発明の製剤は、カラスムギ、トウモロコシ、アブラナおよびエンドウマメの発芽に影響しなかった。

10

【0040】

ギ酸アルキルおよびイソチオシアン酸エステルの改善された効果は、担体ガスと混合された製剤中でも明らかであった。該担体ガスは不活性ガスであってよく、好都合には、低い酸素濃度を有しうる。二酸化炭素は好ましい担体ガスであり、二酸化炭素が昆虫および他の生物相の呼吸数を増加させ、ゆえにギ酸エチルおよびイソチオシアン酸メチルが害虫の呼吸器系に入る割合を増加させるであろうと考えられる。該担体ガスはギ酸エチル蒸気の引火点を下げる追加の利点を有し、ギ酸エチルが約16~19%までの濃度で存在する場合は不燃性であることが一般に見出される。

【0041】

本発明のギ酸エチル+イソチオシアン酸エステル製剤は、当業者に公知であるように、液状二酸化炭素または液状~ガス状二酸化炭素または他のそのような担体ガス中で提供しうる。例えば、圧力シリンダー中に含有された83.3重量%の二酸化炭素中の16.7重量%の95:5混合物のギ酸エチル+イソチオシアン酸メチルを、燻蒸対象の物品または建造物にガスとして適用することができる(例えばWO03/061384の方法を参照のこと)。二酸化炭素は、化学物質をエアロゾル粒子として分散させるための溶媒/噴射剤として作用する追加の利点を有する。フロースルー技術は、担体ガスが関与する燻蒸方法をさらに支援するであろう。イソチオシアン酸アシル、イソチオシアン酸メチルまたは任意の他の適切なイソチオシアン酸エステルをギ酸エチルと混合して使用しうる。

20

【0042】

典型的に、上記二酸化炭素混合物はスプレーノズルを通して適用され、その適用割合は処理対象の物品または建造物に見合うように算出される。ギ酸エチル+イソチオシアン酸エステル製剤をガス状二酸化炭素に加えることもでき、該液状製剤を蒸発させ、適用前または適用中に二酸化炭素と混合することができる。すべての適用プロトコルと同様に、用量を完了し、あるいは以前の用量に追加するために、該燻蒸剤を一定期間にわたりまたは周期的に適用される。

30

【0043】

別の燻蒸方法には、低流動ガス状燻蒸、低圧ガス状燻蒸、高圧ガス状燻蒸、溶液中の燻蒸剤のスプレーならびに燻蒸剤および溶液中の物品の浸漬が含まれる。この列挙は網羅的ではなく、本発明の相乗的製剤の適用についての条件を改変して、当業者が決定できるように、該燻蒸方法に最も適するようにしてよい。該製剤は、液体、ガスまたは、担体ガス中の溶存蒸気として、あるいは吸収剤または吸収性の化学的手段を通して適用してよい。当業者に理解されるように、物品の燻蒸は、該製剤を含有する液体を物品にスプレーすることによって達成することができ、あるいは、該製剤を物品上または物品中に注いで、それを覆うか、あるいはそれを通してしたたらせることができる。本発明の燻蒸剤の適用において、小さい穴を有する探針(probes)を穀物貯蔵物中に挿入してよい。空気または任意の他の好適なガスをバブルするか、あるいは物品または建造物に押し通してよい。その目的は、該燻蒸剤を蒸発および/または分散させることである。該燻蒸剤との接触は常時もしくは断続的適用または1回だけの処理によって維持できる。

40

【0044】

2活性成分である、ギ酸アルキルおよびイソチオシアン酸エステルは、場合により担体

50

の固体、液体または気体とともに、密接に混合された製剤として適用してよく、同時に、または前記相乗的な結果を達成するために十分な短い間隔にわたって連続的に適用してよい。

【0045】

非常に好ましい適用では、本発明の製剤の調製において、固形イソチオシアン酸エステルを液状ギ酸アルキル中に2元(binary)活性混合物として溶解させる。理論に限定されることを望まないが、イソチオシアン酸エステルをギ酸アルキル中に分配すると、ギ酸アルキルを伴うイソチオシアン酸エステルの蒸発が許容されることが考えられる。この製剤は、結晶性イソチオシアン酸エステル単独より、燻蒸対象の建造物、空間または物品を通してイソチオシアン酸エステルのより一様な分配を提供し、穀物じゅうにより良好な吸収勾配を提供すると考えられる。これにより、物品、例えば穀物中の内部段階の昆虫または害虫生物相、特にRhyzopertha dominicaおよびSitophilus oryzaeへの良好なアクセスが許容される。

10

【0046】

ギ酸アルキルを含有する気流をイソチオシアン酸エステルの揮発流(volatilised stream)と混合することによって、適用の成功を達成することもできる。そのような場合、イソチオシアン酸エステルを少なくとも予熱して、該固体の揮発を達成することが通常である。該ストリームを、物品または建造物への適用前に混合するか、あるいは別々に適用し、そこで混合してよい。ギ酸エチルのガス状流を固形イソチオシアン酸エステルの加熱床に通過させて、蒸発および本発明の相乗的燻蒸剤混合物の形成を達成することも可能である。当業者に公知の、燻蒸剤を混合および/または適用して、所望の結果を達成する前記および他の方法は本発明の範囲内である。

20

【0047】

燻蒸の終了時点で、ギ酸エチルは加水分解によってエタノールおよびギ酸に自然に分解されることが通常である。ギ酸メチルはメタノールおよびギ酸に分解する。同様に、イソチオシアン酸エステル残留物は、通気なしで、許容しうるレベルに減少することが見出されている。自然通気によって、あるいは物品を清潔な気流で洗い流すことによって、すべての残留燻蒸剤を除去するための積極的な工程を講じてもよいが、それは通常必要とされない。

【0048】

燻蒸対象の容量に対して提供される燻蒸剤の量は侵襲のレベルおよび存在する種のタイプに応じて変動することが関連分野の当業者に理解される。そして、燻蒸剤濃度および曝露時間の組み合わせを使用して、必要とされる燻蒸剤の量が算出される。概して、低濃度であるほど長い持続時間を必要とし、高濃度であるほど短い持続時間に好適である。

30

【0049】

ギ酸エチルは、Oricaによって供給されるEranol (登録商標)として入手できる。同様に、ギ酸メチルも入手できる。イソチオシアン酸エステルはSigma Aldrichから入手でき、あるいはアブラナ属由来のカラシ油の成分として入手できる。

【0050】

本発明の製剤は、単独使用のギ酸エチルの致死量以下の濃度で、物品についての燻蒸を成功させる。追加または代替的に、該製剤は、ギ酸アルキルの不存在下でのイソチオシアン酸エステルより、短い適用期間および/または低い適用温度によって有効であることが見出されるであろう。

40

【0051】

改善された製剤は、ギ酸エチル単独より約2~3倍有効であり、イソチオシアン酸メチル単独より約4~5倍有効であることが見出されている。

【0052】

本発明の燻蒸製剤は、追加の燻蒸剤を好都合に含有してもよいが、ただし、それらはギ酸アルキルまたはイソチオシアン酸エステルと反応しないか、あるいはそれらに対して有害でないことを条件とする。

50

## 【0053】

種々のタイプの昆虫または害虫生物相が駆除対象である場合、濃度は、好ましくは、駆除が最も困難な昆虫または害虫に関するものである。物品、例えば種子、穀物、果実または産物は、そのコンテナ、例えば輸送機関(船、鉄道貨車、大型トラック)、部屋および建造物(教会、ミュージアム、工場(mills))、貯蔵室(穀物貯蔵所、サイロ、バンカーまたはコンテナ)および小さいバケツ(ドラム、ペール等)と一緒に燻蒸してよい。該燻蒸剤組成物は、密封型または被包型の閉じ込め中で好都合に使用してよいが、非密封型のサイロおよび貯蔵所中の穀物貯蔵物に特に適用可能である。

## 【0054】

該ギ酸エチル製剤を穀物燻蒸剤として使用する場合、処理対象の該穀物または物品は15 またはそれ以上であることが好ましい。フィールド試験では、本発明のギ酸エチル製剤が、非密封型の農場貯蔵所において、単独使用のギ酸エチルと比較して、燻蒸剤として優れた活性を示すことが示されている。昆虫を死滅させるために数日かかるホスフィンと違って、本発明のギ酸エチル製剤は昆虫および生物相を約20時間またはそれ未満のうちに急速に死滅させる。該製剤は、好都合に輸送および保存でき、かつ、適用が容易である。本発明の相乗的製剤は、低濃度のギ酸エチルしか使用せずに、一連の種および生存段階の全体にわたる高い害虫駆除および死亡率と結びつけることを許容する。本発明のギ酸エチル製剤は、2005年から先進国において段階的に廃止される臭化メチルの、好適な高速殺生性の代替品として役立つ。

## 【0055】

本発明の発明者らは、ギ酸アルキルを伴うイソチオシアン酸エステルの、燻蒸剤としての改善された効果を実証するために多数の実験を行った。これらの非限定的な実験のいくつかを、以下の実施例において詳細に説明する。

## 【実施例】

## 【0056】

## 実施例

## 1. 安定性試験

25 で保存された燻蒸剤であるギ酸エチルおよびイソチオシアン酸メチルの安定性を、1日、1ヶ月および2ヶ月の期間で評価した。以下の表1は、種々の保存期間後に存在する元の燻蒸剤のパーセンテージ(M/Mo)を示す。これは図1にも図示される。その結果、ギ酸エチルおよびイソチオシアン酸メチルがともに、製剤化された場合に、2ヶ月の保存期間中に安定であることが示される。

## 【表1】

表1. ギ酸エチルおよびイソチオシアン酸メチル製剤の安定性(M/Mo)

	1日	1ヶ月	2ヶ月
EtF	100	102	98.5
MITC	100	98	101.5

## 【0057】

## 2. 毒性試験

ギ酸エチルおよびイソチオシアン酸エチルと比較したギ酸エチル単独の毒性試験を、コメゾウムシ *Sitophilus oryzae* の成体に対して25 で24時間の燻蒸で行った。該毒性試験は5.9 mg/Lおよび11.8 mg/Lの濃度で行った。その結果を以下の表2および図2に示す。

## 【表 2】

表 2. ギ酸エチル単独ならびにギ酸エチルおよびイソチオシアン酸メチルを用いる成体 *S. oryzae* の死亡率調査(死亡率%)

	5.9 mg/L	11.8 mg/L
EtF	0	48
EtF + MITC	99	100

## 【 0 0 5 8 】

毒性試験では、*S. oryzae*の成体が5.9 mg/Lのギ酸エチルの濃度で25℃で24時間の燻蒸によって影響を受けなかったことが示される。5% イソチオシアン酸メチルを加えると、*S. oryzae*成体の99% 死亡率が観察された。このことは、ギ酸エチルおよびイソチオシアン酸メチル間はかなり顕著な相乗作用を示す。燻蒸剤濃度を倍にして11.8 mg/Lにすると、本発明のギ酸エチル/イソチオシアン酸メチル製剤の場合の*S. oryzae*成体の100% 死亡率と比較して、ギ酸エチル単独の場合は48% 死亡率が示された。

## 【 0 0 5 9 】

表3では、*S. oryzae*の異齡混合培養物(卵、幼生および蛹)に対する、2種の濃度で25℃で6時間の燻蒸後のギ酸エチル単独およびギ酸エチル+イソチオシアン酸メチルの毒性を比較する。これらの結果は図3に図示される。

## 【表 3】

表 3. ギ酸エチル単独およびギ酸エチル+チオシアン酸メチルを用いる、*S. oryzae* の異齡混合培養物に対する成体出現試験。

	コントロール	EtF	EtF + MITC
67.4 mg/L	100	27	3
101.1 mg/L	100	5	0

## 【 0 0 6 0 】

その結果、67.4 mg/Lの濃度のギ酸エチル単独は、*S. oryzae*の異齡混合培養物に対する燻蒸剤として作用し、成体出現数はコントロールサンプルの27% に制限されることが示される。それに比べて、同濃度の本発明のギ酸エチル+チオシアン酸エチル燻蒸剤組成物は、成体出現数を劇的に低減し、コントロールの3% にする。101.1 mg/Lの高濃度のギ酸エチル単独は、成体出現数をさらに低減し、コントロールの5% にする。それに比べて、ギ酸エチル+イソチオシアン酸メチル製剤は、該高濃度では、異齡混合培養物が成体段階に達することを完全に停止させる。

## 【 0 0 6 1 】

表4では、*S. oryzae*の蛹に対する、2種の濃度で25℃で6時間の燻蒸後のギ酸エチル単独およびギ酸エチル+イソチオシアン酸メチルの毒性を比較する。これらの結果は図4に図示される。

## 【表 4】

表 4. ギ酸エチル単独およびギ酸エチル+イソチオシアン酸メチルを用いる6時間燻蒸に関する、*S. oryzae* の蛹に対する成体出現試験(成体出現%)

	コントロール	EtF	EtF + MITC
67.4 mg/L	100	24	1
101.1 mg/L	100	12	0

## 【 0 0 6 2 】

10

20

30

40

50

その結果、67.4 mg/Lの濃度のギ酸エチル単独は、*S. oryzae*の蛹に対する燻蒸剤として作用し、成体出現数はコントロールサンプルの24%に制限されることが示される。それに比べて、同濃度の本発明のギ酸エチル+イソチオシアン酸メチル燻蒸剤組成物は、成体出現数を劇的に低減し、コントロールのほんの1%にする。101.1 mg/Lの高濃度のギ酸エチル単独は、成体出現数をさらに低減し、コントロールの12%にする。それに比べて、ギ酸エチル+イソチオシアン酸メチル製剤は、高濃度では、蛹が成体段階に達することを完全に停止させる。

【0063】

表5では、*S. oryzae*の蛹に対する、2種の濃度で25で24時間の燻蒸後のギ酸エチル単独およびギ酸エチル+イソチオシアン酸メチルの毒性を比較する。これらの結果は図5に図示される。

【表5】

表 5. ギ酸エチル単独およびギ酸エチル+イソチオシアン酸メチルを用いる 24 時間燻蒸に関する、*S. oryzae* の蛹に対する成体出現試験(成体出現%)

	コントロール	EtF	EtF + MITC
34.8 mg/L	100	19	0
67.4 mg/L	100	9	0

【0064】

その結果、34.8 mg/Lの濃度のギ酸エチル単独は、*S. oryzae*の蛹に対する燻蒸剤として作用し、成体出現数はコントロールサンプルの19%に制限され、67.4 mg/Lの濃度では9%に制限されることが示される。それに比べて、ギ酸エチル+イソチオシアン酸メチル製剤は、両濃度で、蛹が成体段階に達することを完全に停止させる。

【0065】

3. 54 kgのコムギシリンダーでの試験

95:5 (w:w)の割合のギ酸エチル+イソチオシアン酸メチルを用いて、通気なしで7日間、コムギのシリンダーを燻蒸した。該シリンダーは、塩化ビニル製であり、75.8 L (=24.2 cmおよびh=165 cm)の容量を有し、52 kgのコムギを含有した。それは図6に示される。該コムギに、ギ酸エチル/イソチオシアン酸メチル製剤を80 g/tの割合で投薬し、低速の再循環空気(1ガス交換/時間)に付した。

【0066】

シリンダーの種々の位置での燻蒸済みコムギ中のギ酸エチルおよびイソチオシアン酸メチル残留物の比較は同様に図6に示される。コムギを通気なしで7日間燻蒸した。ギ酸エチルおよびイソチオシアン酸メチル燻蒸剤は、コムギのシリンダー全体に浸透することが見出され、燻蒸剤の様な分布が達成された。通気なしで7日間燻蒸した後、ギ酸エチル残留物は37 ppmに減少し、イソチオシアン酸エチル残留物は0.06 ppm以下に減少した。

【0067】

ギ酸エチルおよびイソチオシアン酸メチルの濃度は、7日間の燻蒸中にコムギのシリンダー(95% 充填率)中で室温で指数関数的割合で急速に減衰することが見出された。図7では、7日間の燻蒸実験中の時間に対して各燻蒸剤成分の濃度の低下をプロットする。

【0068】

これらの試験を昆虫種Tribolium castaneumおよびRhyzopertha dominicaに拡大した。バイオアッセイ試験では、すべての段階の該被験昆虫種が完全に死滅したことが示された。

【0069】

4. 1トンの貯蔵所での試験

95:5 (w:w)の割合のギ酸エチル+イソチオシアン酸メチルを用いて、通気なしで7日間、コムギの貯蔵所を燻蒸した。該金属貯蔵所は1.35 m<sup>3</sup>の容量を有し、1トンのコムギを含有

した。該貯蔵所を図8に示す。該コムギに、ギ酸エチル+イソチオシアン酸メチル製剤を80 g/tの割合で投薬し、低速の再循環空気(1ガス交換/時間)に付し、7日間燻蒸した。

【0070】

ギ酸エチルおよびイソチオシアン酸メチルの濃度は、7日間の燻蒸中にコムギのシリンダー(95% 充填率)中で室温で指数関数的割合で急速に減衰することが見出された。図9では、7日間の燻蒸実験中の時間に対して各燻蒸剤成分の濃度の低下をプロットする。

【0071】

これらの試験を昆虫種 *Tribolium castaneum* および *Rhyzopertha dominica* に拡大した。バイオアッセイ試験では、すべての段階の該被験昆虫種が完全に死滅したことが示された。

10

【0072】

#### 5. 4トンの積み出し試験

積み出し中に、95:5 (w:w)の割合のギ酸エチル+イソチオシアン酸メチルを160 g/tの割合で用いて、コムギを処理/燻蒸した。その後、処理済みのコムギをオーガーによって4トントラックのトレーに移し、そしてカバーし、一晚維持した(図10を参照のこと)。

【0073】

ギ酸エチルおよびイソチオシアン酸メチルの濃度は、一晚の燻蒸中にコムギのトレー(100% 充填率)中で20 の温度で指数関数的割合で急速に減衰することが見出された。翌日、各燻蒸剤成分の濃度がTLV未満に低下したことが見出され、すべての *Tribolium castaneum*、*Rhyzopertha dominica* および *Sitophilus oryzae* の成体が死滅した。

20

【0074】

#### 6. 55トンのサイロでのフィールド試験

95:5 (w:w)の割合のギ酸エチル+イソチオシアン酸メチルまたはギ酸エチル+イソチオシアン酸アリルを用いて、通気なしで、コムギのサイロを燻蒸した。サイロの容量は55トンであり、50トンの穀物を含有した。該コムギに、EtF+MITCまたはEtF+AITCを80 g/tの割合で投薬し、低速の再循環空気(1ガス交換/時間)に付し、7日間燻蒸した。

【0075】

2種の燻蒸製剤は試験対象のすべての昆虫種の死滅に有効であったが、処理されたコムギの発芽および種子の色に対する影響はなかったことが見出された。7日間の曝露後、通気なしで、残留物はギ酸エチルおよびイソチオシアン酸メチルまたはアリルのバックグラウンドレベルに低下した。その結果を以下の表6に示す。

30

【表6】

表 6. ギ酸エチル+イソチオシアン酸メチルまたはギ酸エチル+イソチオシアン酸アシルを用いたサイロ量のコムギに対する害虫生物相の死亡率調査

場所	Canberra	Canberra	Brisbane
物品	コムギ	コムギ	コムギ
サイロの容量	55 t	55 t	50 t
穀物の量	50 t	50 t	50 t
穀物温度	20-23℃	20-23℃	22-24℃
製剤	EtF+MITC (95:5, v/w)	EtF+AITC (95:5, v/w)	EtF+MITC (95:5, v/w)
投薬量	80g/穀物1t	80g/穀物1t	80g/穀物1t
適用	サイロの上部から注入	サイロの上部から注入	サイロの上部から注入
再循環	1空気交換/hr	1空気交換/hr	1空気交換/hr
バイオアッセイの結果	全段階の昆虫の100% 死滅: <i>T. castaneum</i> <i>T. variable</i> <i>R. dominica</i> <i>S. oryzae</i> <i>O. surinamensis</i>	全段階の昆虫の100% 死滅: <i>T. castaneum</i> <i>T. variable</i> <i>R. dominica</i> <i>S. oryzae</i> <i>O. surinamensis</i>	全段階の昆虫の100% 死滅: <i>T. castaneum</i> <i>R. dominica</i> <i>S. oryzae</i>
コムギの品質	処理されたコムギの発生および種子の色に対する影響なし	処理されたコムギの発生および種子の色に対する影響なし	処理されたコムギの発生および種子の色に対する影響なし
残留物	7日の暴露により、通気なしでEtFおよびMITCのバックグラウンドレベルに減少	7日の暴露により、通気なしでEtFおよびAITCのバックグラウンドレベルに減少	7日の暴露により、通気なしでEtFおよびMITCのバックグラウンドレベルに減少

10

20

30

## 【0076】

当業者は、本明細書中に記載の発明が、具体的に記載されているもの以外にバリエーションおよび改変の余地があることを認識する。本発明には、すべてのそのようなバリエーションおよび改変が含まれることが理解されるべきであろう。本発明には、さらに、本明細書中で参照または指摘される個別または包括的にすべての段階、特徴、組成物および化合物、ならびに該段階または特徴の任意の2種以上の任意およびすべての組み合わせが含まれる。

## 【0077】

本明細書中の任意の先行技術に対する参照は、該先行技術が、目的のための活動の分野における共通の一般的知識の部分を形成するという認定またはいかなるの形式の示唆とも解釈されず、そうされるべきではない。

40

## 【図面の簡単な説明】

## 【0078】

本発明は、発明者らによる実験手順を概説する種々の実施例および添付の図面とともに、以下に記載の好ましいが非限定的なその実施形態についての以下の詳細な説明からさらに完全に理解されることになる。

【図1】図1は、25 で2ヶ月間保存されたギ酸エチルおよびイソチオシアン酸メチルの製剤の安定性を1日、1ヶ月および2ヶ月間隔で図示する。M/Moは種々の保存期間後に存在する元の燻蒸剤のパーセンテージである。

【図2】図2は、*Sitophilus oryzae*の成体に対する、燻蒸剤の2種の濃度に関する25 24

50

時間の燻蒸でのギ酸エチル単独およびギ酸エチル+イソチオシアン酸メチルの毒性の比較を図示する。

【図3】図3は、Sitophilus oryzaeの異齢混合培養物(mixed aged cultures) (卵、幼生および蛹)に対する、燻蒸剤の2種の濃度に関する25 6時間の燻蒸でのギ酸エチル単独およびギ酸エチル+イソチオシアン酸メチルの毒性の比較を図示する。

【図4】図4は、Sitophilus oryzaeの蛹に対する、燻蒸剤の2種の濃度に関する25 6時間の燻蒸でのギ酸エチル単独およびギ酸エチル+イソチオシアン酸メチルの毒性の比較を図示する。

【図5】図5は、蛹段階のSitophilus oryzaeに対する、燻蒸剤の2種の濃度に関する25 24時間の燻蒸でのギ酸エチル単独およびギ酸エチル+イソチオシアン酸メチルの毒性の比較を図示する。

10

【図6】図6は、52 kgのコムギを含有する75.8 L ( =24.2 cmおよびh=165 cm)ポリ塩化ビニル(polyvinyl chloride)シリンダーを模式的に示す。通気せずに7日間燻蒸した後にシリンダー中の種々の位置で採取されたコムギサンプルのギ酸エチルおよびイソチオシアン酸メチル残留物濃度を示す。

【図7】図7は、室温7日間の燻蒸にわたるコムギのシリンダー(95%充填率)中のギ酸エチルおよびイソチオシアン酸メチルの濃度を図示する。

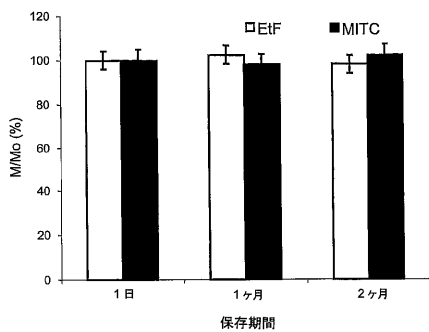
【図8】図8は、1トンのコムギを含有する1.35 m<sup>3</sup> ( =100 cmおよびh=172 cm)金属貯蔵所を模式的に示す。

【図9】図9は、室温7日間の燻蒸にわたるコムギの1トン貯蔵所(95%充填率)中のギ酸エチルおよびイソチオシアン酸メチルの濃度を図示する( はギ酸エチルの濃度であり、はMITCの濃度である)。

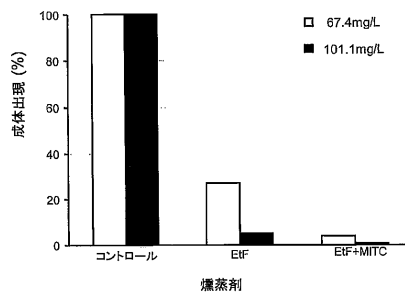
20

【図10】図10は、貯蔵所由来の穀物に対する、オーガーにより該穀物をトラックへ積み出す間のギ酸エチル+イソチオシアン酸メチル組成物の適用を模式的に示す。

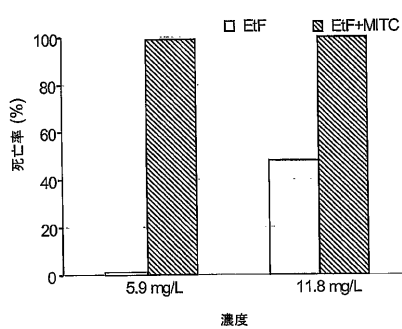
【図1】



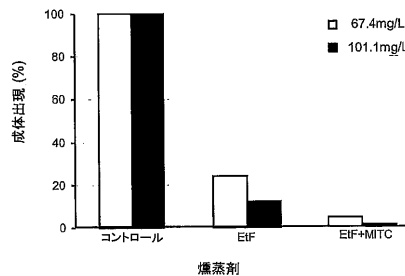
【図3】



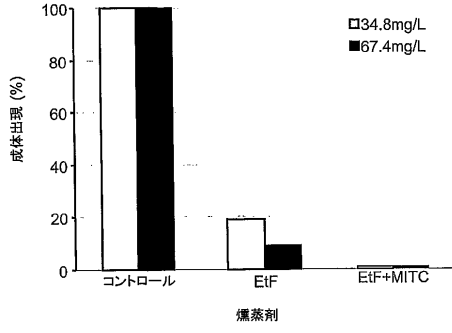
【図2】



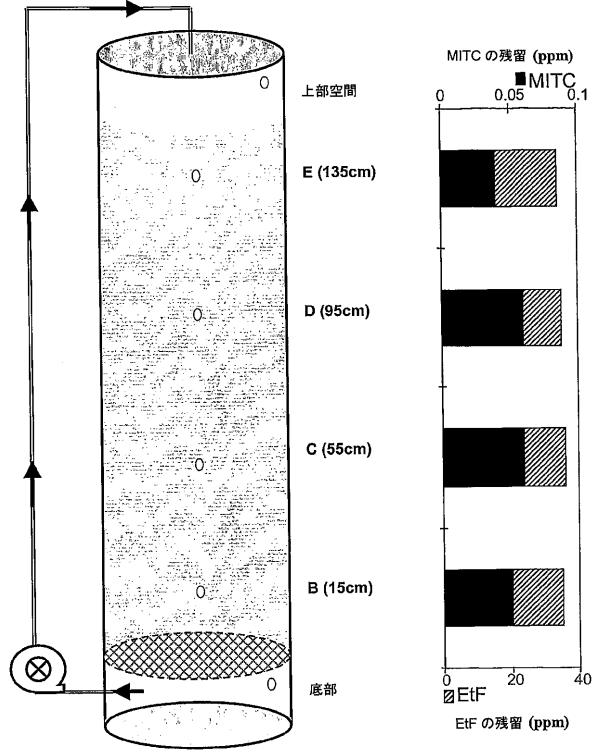
【図4】



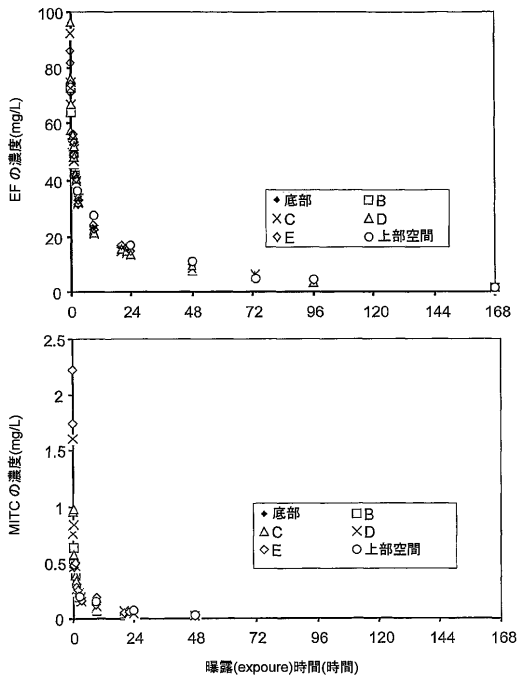
【図5】



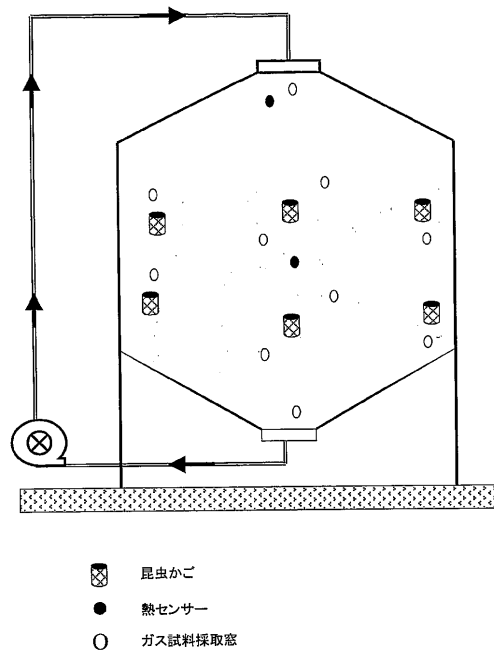
【図6】



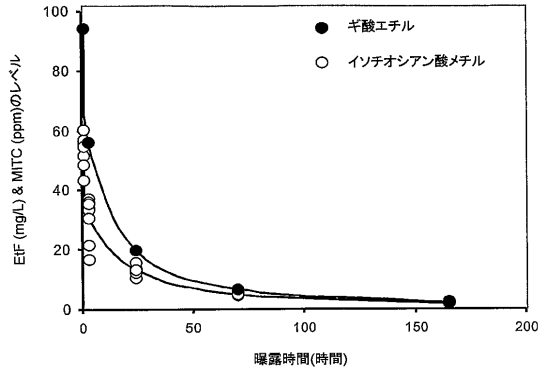
【図7】



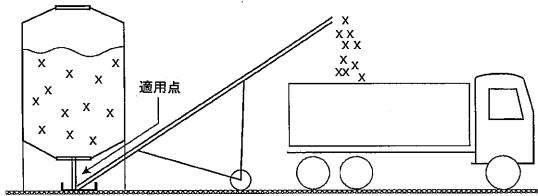
【図8】



【 図 9 】



【 図 10 】



## フロントページの続き

(51)Int.Cl.			F I		
A 0 1 P	5/00	(2006.01)	A 0 1 P	5/00	
A 0 1 P	1/00	(2006.01)	A 0 1 P	1/00	
A 0 1 M	1/20	(2006.01)	A 0 1 M	1/20	R

(72)発明者 レン, ヨンリン  
 オーストラリア国 2 9 1 3 エーシーティー, ニコルズ, キャンドルパーク クローズ 1 6

(72)発明者 ウォーターフォード, コリン  
 オーストラリア国 2 6 1 5 エーシーティー, マクレガー, プリエン クレセント 5 8

(72)発明者 リー, ビョンホ  
 オーストラリア国 2 9 1 3 エーシーティー, ガナウォール, ユンバ アヴェニュー 5 4

審査官 坂崎 恵美子

(56)参考文献 特開昭58-035101(JP, A)  
 特開平03-153607(JP, A)  
 特開平10-152408(JP, A)  
 特開2001-031501(JP, A)  
 特表2004-526729(JP, A)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

A01N 25/18

A01N 37/02

A01N 47/46