

報 文

ピラゾレート*の主剤粒度の除草効果に及ぼす影響**

谷 沢 欽 次, 藤 本 昌 彦, 川 久 保 克 彦
河 西 史 人, 本 間 豊 邦, 中 村 利 家***

三共株式会社農薬研究所
(昭和62年3月12日受理)

Influence of the Particle Size on the Herbicidal Efficacy of Pyrazolate*,**

Kinji TANIZAWA, Masahiko FUJIMOTO, Katsuhiko KAWAKUBO,
Fumito KASAI, Toyokuni HONMA and Toshiie NAKAMURA***

*Agricultural Chemicals Research Laboratories, Sankyo Co., Ltd.,
Yasu-cho, Yasu-gun, Shiga 520-23, Japan*

Relationship between the particle size and the herbicidal activity of pyrazolate was investigated under paddy field conditions. Suspensions containing pyrazolate particles classified into different sizes were tested in a greenhouse. By pre-emergence application, fractions less than 44 μm in diameter were effective against *Sagittaria pygmaea* at a dose of 0.5 kg/ha, while particles larger than 20 μm were not active enough against *Echinochloa oryzicola* at the same dose. Pyrazolate larger than 10 μm in diameter gave unsatisfactory efficacy against *Cyperus serotinus* even at a dose of 1 kg/ha. As pyrazolate got coarse, the activity decreased more remarkably by post-emergence application. Granules containing 10% pyrazolate were prepared by an extrusion method with the active ingredient pulverized into 1.36, 1.76, 2.03, 2.15, 5.13, or 7.47 m^2/g of a specific surface area (S_w) and applied into pots and paddy fields. In the pot tests, granules containing the coarsest pyrazolate were less effective than others. In the field, granules containing pyrazolate of 2.03 or 2.15 m^2/g of S_w were more effective than those containing either coarser or finer pyrazolate. The results indicate that the herbicidal efficacy of pyrazolate is affected by its particle size, and that pyrazolate should be pulverized into ca. 2 m^2/g of S_w in order to demonstrate sufficient activity in paddy fields in granule form.

緒 言

ピラゾレート¹⁾ [4-(2,4-dichlorobenzoyl)-1,3-dimethyl-5-pyrazolyl *p*-toluenesulfonate, pyrazolate] は 1973 年に

* 4-(2,4-Dichlorobenzoyl)-1,3-dimethyl-5-pyrazolyl *p*-toluenesulfonate

** ピラゾレート製剤に関する研究 (第2報) (第1報: 文献 34) 参照)
Studies on Pyrazolate Formulation (Part 2). For Part 1, see Ref. 34).

*** 現在: 島根大学農学部
Present address: Department of Environmental Sciences, Shimane University, Nishikawatsucho, Matsue 690, Japan

三共(株)において見いだされた水田用除草剤で、稲に対する安全性がきわめて高く、1年生雑草はもとより多年生雑草、とくに、従来防除の難しいとされていたウリカワに対して優れた除草活性を有し、わが国で1980年にサンバード粒剤として実用に供され、その後数種の混合剤が開発されている。

ピラゾレートは、4-(2,4-dichlorobenzoyl)-1,3-dimethyl-5-hydroxypyrazole(DTP)¹⁾ のパラトルエンスルホン酸エステルである。DTPはそれ自体、水田の1年生および多年生雑草に対し、強い除草活性を有するが、解離性の水酸基を有し、水溶解度が高く(pH 5.9, 4500 ppm/25°C)、ときに稲幼苗に葉害を起こすことがあるうえに、流亡・溶脱・光分解²⁹⁾・微生物分解³⁰⁾・土壌吸着³¹⁾により短

期間のうちにその活性を失うため、残効性が短いという欠点があった。一方、ピラゾレートは水にきわめて難溶性の結晶性固体（蒸留水中溶解度 0.056 ppm/25°C）であるが、水に溶けたものは比較的容易に加水分解され（pH 7.0 で半減期が 25 hr）³²⁾、活性本体の DTP となって除草効果を発現すると考えられている。

水に溶けにくい固体化合物の粒度と効力の関係については多くの報告²⁻²³⁾がある。一般に、主剤を微粉碎すると生物活性は高まるが、主剤によっては残効性が短くなったり、作物に対する薬害を助長したりすることがあり、最適粒度があることも多い。除草剤でも、近内²²⁾は DBN (2,6-dichlorobenzonitrile) で主剤粒度が粗いと効力が低いことを認め、アトラジン (2-chloro-2',6'-diethyl-N-methoxymethylacetanilide) も温室内発芽後処理で粒度が細かいほうが効力が高いとの報告がある²³⁾。また、トリアジンや尿素系除草剤も、効力を高めるうえで主剤の微粉碎が必要とされている¹⁰⁾。本報ではピラゾレートの粒度と除草効果の関係について報告する。

実験方法

1. 供試製剤の調製方法

1) ピラゾレートの分級懸濁液

ピラゾレートの工業用原体（純度 98%）をらい解機で粉碎し、分散媒にポリオキシエチレンノニルフェニルエーテル【ニューコール 566®, 日本乳化剤(株)】の 0.1 w/v% 水溶液を用いて分散させ、以下の方法で分級懸濁液を得た。

粒子径 0~5 μm (A), 5~10 μm (B), 10~20 μm (C) の各画分は自然沈降による分級を繰り返し、また 20~37 μm (D), 37~44 μm (E) の各画分は目開き 20, 37, 44 μm の標準ふるいを用いて湿式ふるい分け法により分級した。各画分はピラゾレートを 25 w/w% の濃度で含有する懸濁液とした。

2) 粒度の異なるピラゾレート粉碎品とその粒剤

① ピラゾレート粉碎品

ジェット粉碎機、および攪拌型粉碎機を用い、Table 1 の処方でピラゾレートを粉碎し、それぞれ主剤粒度の異なる粉碎品を得た。

サンプル I, II, III は Table 1 の乾式プレミックスをジェット粉碎機【ジェットミル® PJM100NP 型, 日本ニューマチック(株)】により供給速度 3 kg/hr, 空気圧 6.5 kg/cm² で 3 回繰り返し粉碎し、各 1, 2, 3 回粉碎した段階で採取した粉碎品、サンプル IV はジェット粉碎機【ジェットオーマイザー® 0608 型, セイシン企業(株)】により供給速度 400 kg/hr, 空気圧 7 kg/cm² で 4 回繰り返

Table 1 Recipes of pyrazolate premix for pulverizing.

Dry pulverizing		Wet pulverizing	
	% w/w		% w/w
Pyrazolate tech. ^{a)}	50.00	Pyrazolate tech. ^{a)}	63.00
CaCO ₃ ^{b)}	37.50	Neocol SWCE® ^{e)}	0.85
Silica sand ^{c)}	11.50	Water	36.15
PAP ^{d)}	1.00		

^{a)} Purity 98%.

^{b)} Heavy calcium carbonate.

^{c)} 0.297–0.105 mm ϕ .

^{d)} Mixture of mono-, di- and tri-iso-propyl ester of phosphoric acid (Nihon Kagaku Co., Ltd.).

^{e)} An anionic surfactant (Dai-ichi Kogyo Seiyaku Co., Ltd.).

Table 2 Recipes of 10% granules of pyrazolate.

Dry-pulverized premix		Wet-pulverized premix	
	% w/w		% w/w
Pyrazolate premix ^{a)}	21.4	Pyrazolate premix ^{a)}	16.7
Talc	54.6	Talc	65.3
Bentonite ^{b)}	22.0	Bentonite ^{b)}	22.0
Amicol No.5® ^{c)}	1.5	Amicol No.5® ^{c)}	1.5
Disrol H-12® ^{d)}	2.0	Disrol H-12® ^{d)}	2.0

^{a)} See Table 1.

^{b)} Sodium bentonite.

^{c)} Dextrin (Nichiden Kagaku Co., Ltd.).

^{d)} An anionic surfactant (25% aq. solution, Nihon Nyukazai Co., Ltd.).

し粉碎した粉碎品である。また、サンプル V および VI は、Table 1 の湿式プレミックス 2.3 kg を攪拌型粉碎機【アトライター® MA1S 型, (株)三井三池製作所】により、直径 4 mm のステンレススチールボール 18.8 kg, 攪拌回転数 180 rpm で各 1, 2 時間粉碎した懸濁剤である。

② ピラゾレート粒剤

上記粉碎品を用い、Table 2 の処方でピラゾレート 10% 粒剤を調製した。粒剤は押し出し造粒機【エックペレッター® EXK-1 型, 不二パウダル(株)】、スクリーン径 0.7 mm で造粒し、70°C の送風乾燥機中で乾燥後、開孔径 1.000 mm のふるい上から押し出し、開孔径 0.297 mm のふるいで微細部分を除去した。粒剤のサンプルナンバーには対応する粉碎品のナンバーの後に G を付した。

2. 粒度測定法

1) ピラゾレート分級品の粒度

光透過式粒度分布測定機〔SK 型, セイシン企業(株)〕を用いて測定した。吸光係数の補正²⁴⁾は行わず, 結果は粒子径をストークス径²⁵⁾で, 粒度分布を重量基準 % で示した。

2) ピラゾレート粉砕品の粒度

アルキルベンゼンスルホン酸のナトリウム塩を主成分とする界面活性剤〔ネオペレックスパウダー No. 1®, 花王アトラス(株)〕の 0.2 w/v% 水溶液を分散媒とし, アンドレーゼンピペット²⁶⁾で測定した。5, 10, 20 μm 部分の測定は沈降距離を 20 cm とし, 乾式粉砕品はピペット中に 3 g を, 湿式粉砕品は 1.4 g を分散させた。1.2 および 2.5 μm 部分の測定は, 測定時間を短縮するため沈降距離を 10 cm とし, 乾式粉砕品は 3 g を, 湿式粉砕品は 0.95 g を分散させた。試料の分散には家庭用ミキサーを用いた。測定は対流の影響を防ぐため 20°C 恒温室に置いた水槽中で行なった。サンプリング時間は, 分散媒の密度および粘度に 20°C の水の値²⁷⁾を用い, ピラゾレートの密度は 1.4683 g/cm³ としてストークス式²⁵⁾より求めた。

採取した試料液中のピラゾレートは次のようにして定量した。試料液に飽和食塩水 10 ml を加え, 分液ロートを用いてエチルエーテル 50 ml で 2 回抽出した。溶媒を留去し, 厚さ 0.5 mm のシリカゲルプレート (HF₂₅₄, メルク社) を用い, ベンゼン: エタノール 9:1 で展開してピラゾレートを分離し, その部分をかきとりエタノール 50 ml で抽出したのち, 258 nm における吸光度を測定し, 別に求めた検量線よりピラゾレートの量を算出した。

この値からピラゾレートの粒度分布を求め, そのうち 1.2, 2.5, 5 μm におけるふるい上積算分率を Rosin-Rammler 線図²⁸⁾上にプロットし, 作図法により 36.8% 径 ($D_{36.8}$), および比表面積 (S_w) を求めた。

3. 除草効果試験

1) ワグネルポット試験

面積 200 cm² のポットに滋賀県野洲町の水田土壌 (Table 3) を詰め, 化成肥料 (千代田化成肥料® 14-8-14) を 200 kg/ha の割合で加え, 加水して全層に混和し, 代かきした。それぞれ別のポットに, タイヌビエ (*Echinochloa oryzicola*) は種子 1 g を土壌表層 0.5 cm に混和播種し, ミズガヤツリ (*Cyperus serotinus*) は塊茎 2 個を土壌表面に置き, ウリカワ (*Sagittaria pygmaea*) は塊茎 2 個を深さ 1 cm に植えつけ, 水深を 4 cm とした。2 日後 (発芽前) および 9 日後 (タイヌビエ 1 葉期)

Table 3 Physical properties of soils used in pot tests.

Source	Yasu-cho, Shiga	Moriyama-shi, Shiga
pH(H ₂ O) ^{a)}	5.80	5.52
CEC(me/100 g) ^{b)}	7.49	6.91
Humus (%) ^{c)}	2.15	1.68
Coarse sand (%) ^{d)}	15.3	21.4
Fine sand (%) ^{d)}	33.9	44.5
Silt (%) ^{d)}	37.3	22.6
Clay (%) ^{d)}	13.5	11.5
Soil texture ^{e)}	Loam	Sandy loam

a) Glass electrode method.

b) AOAC method.

c) Tyurin's method.

d) Pipette method by G. W. Robinson.

e) Classification by the International Society of Soil Science.

に 1.1) 項の分級懸濁液をピラゾレートとして 0.5, 1, 2, 4 kg/ha (有効成分量, 以下 a. i. と略記する) の割合で各ポットに処理した。処理は各葉量を 10 ml に希釈し, コマゴメピペットでかん注した。代かき後 32 日目に残草の地上部生体重を測定した。試験は 23~34°C の温室内で, 漏水や流亡のない条件下, 3 連反復で行ない, 水管理は蒸発による減量を毎朝補給し, 水深 4 cm を維持した。

2) コンクリートポット試験

1 × 1 m の屋外コンクリートポットに滋賀県守山市の水田土壌 (Table 3) を詰め, 前項の化成肥料を 400 kg/ha の割合で加え, 加水して深さ 15 cm に混和し, 代かきした。タイヌビエ, ホタルイ (*Scirpus juncooides*) は種子各 5 および 2 g を, ミズガヤツリは塊茎 5 個を, ウリカワは塊茎 10 個をそれぞれ 3.1) 項と同様には種または植えつけた。水稻は日本晴れ 2.5 葉苗を 1 株 2 本仕立てで 16 株移植し, 水深を 5 cm とした。3 日後に各粒剤を a. i. 1.5 および 3 kg/ha の割合で手まきした。処理後 3 日間はポット底部の穴から 1 日当り 2 cm の割合で漏水させ, その後は漏水を中止した。減水後のポットには, 毎朝処理表層を乱さないよう静かに補水し, 水深を 5 cm とした。処理 44 日目に雑草を抜きとり, 地上部生体重を測定した。試験は昭和 53 年 4 月 21 日 (田植え) から 6 月 7 日 (抜きとり調査) まで各 2 連反復で行なった。

3) ほ場試験

滋賀県中主町の水田 (沖積壤土, 減水深 0.5 cm/日) 以

下)で昭和53年に実施した。耕種概要は以下のとおりであった。荒代かき, 4月29日; 植え代かき, 5月3日; 田植え, 5月6日(稚苗機械移植)。

水田は1区面積4.06aに区切り, 田植え3日目に粒剤をa.i. 3kg/haの割合で手まきした。水田は通常の栽培条件で管理し, 処理44日目に各試験区に1×1mの調査区を5か所設け, 区内の残草を抜き取り, 草種ごとに地上部生体重を測定した。

実験結果

1. 分級されたピラゾレートの除草効果

1) 分級懸濁液中のピラゾレートの粒度

実験方法 1.1) 項で分級したピラゾレートの粒度分布をFig. 1に示した。粒度画分Eはやや幅の広い粒度分布となり, 実際の粒度は30~50 μ mであった。他の分級懸濁液はいずれも目標とした粒度画分に分級されていた。

2) 除草効果

これらの分級懸濁液を用い, ポット試験によりピラゾレートの粒度が除草効果に及ぼす影響を調べた。

ウリカワ, ミズガヤツリ植えつけ2日後(発芽前)および9日後(2葉期)処理, ならびにタイヌビエ播種2日後(発芽前)処理における各粒度画分の除草効果をFig. 2に示した。

ピラゾレートにもっとも感受性の高いウリカワに対しては, a.i. 0.5kg/haの薬量で, もっとも粗い粒度画分E(37~44 μ m)でも, ほぼ完全な除草効果を示したが, タイヌビエでは, 20 μ mより粗い画分で除草効果が低下し, ミズガヤツリではa.i. 1kg/haの薬量でも, 10 μ mより粗い画分では除草効果が低下した。ミズガヤツリでは, a.i. 0.5kg/haの薬量では各画分とも除草効果は劣り, 粒度画分間に差はみられなかった。薬剤処理時期との関係では, とくにミズガヤツリの発芽後処理で粗い画分の効果不足が顕著であった。タイヌビエに対する発芽後処理の効果はa.i. 0.5kg/haの薬量ではどの画分も低く, 粒度間の差はみられなかった。

以上のように, ピラゾレートの除草効果は草種によっては主剤の粒度の影響を受け, ピラゾレートに抵抗性の草種ほどピラゾレートを微細にする必要があった。

2. 粒剤に製剤した場合の主剤粒度と除草効果

1) ピラゾレート粉砕品の粒度

実験方法 1.2) ①項の粉砕品のピラゾレート粒度をFig. 3に示した。乾式粉砕品は粉砕回数とともに粉砕が進行したが, IVでは大型機特有のいわゆる“とび”による粗粒子が残存し, その量はIIIより多かった。湿式粉砕品V, VIでは, 1.2 μ m以下の微細部分が増加した。こ

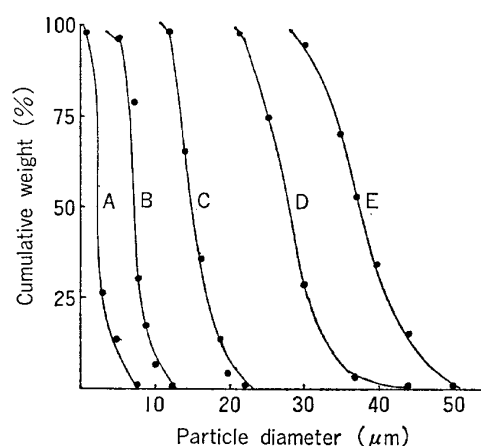


Fig. 1 Particle size distributions of pyrazolate in classified suspensions.

A: 0-5 μ m, B: 5-10 μ m, C: 10-20 μ m, D: 20-37 μ m, E: 37-44 μ m.

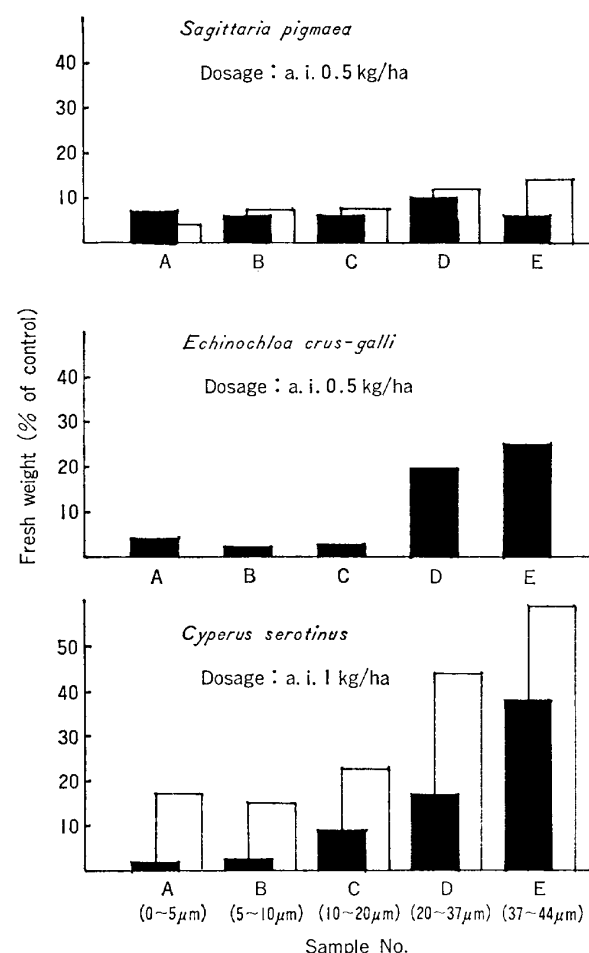


Fig. 2 Relationship between particle size of pyrazolate and the herbicidal efficacy against *Sagittaria pygmaea*, *Echinochloa oryzicola*, and *Cyperus serotinus*.

□: Postemergence application, ■: Pre-emergence application.

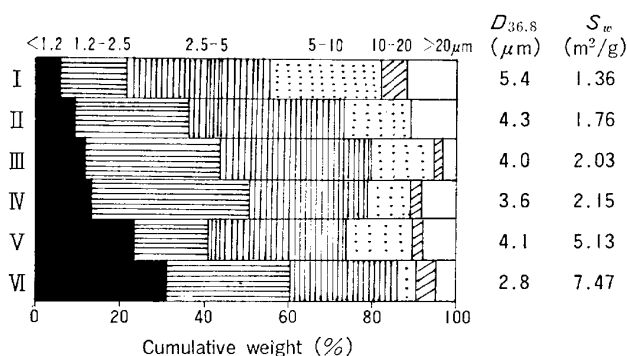


Fig. 3 Particle sizes of pyrazolate used in the herbicidal tests.

I: Pulverized once with Jet-Mill®, II: Pulverized twice with Jet-Mill®, III: Pulverized three times with Jet-Mill®, IV: Pulverized four times with Jet-O-Mizer®, V: Pulverized for 1 hr with Attritor®, VI: Pulverized for 2 hr with Attritor®.

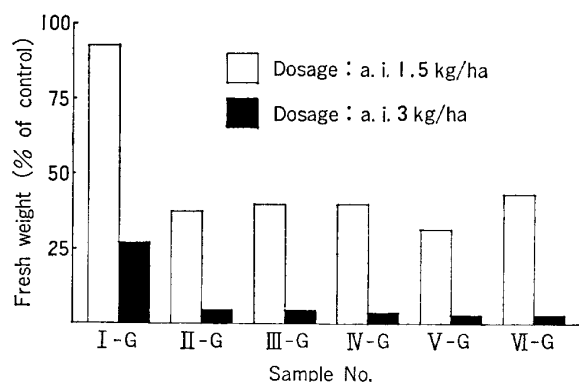


Fig. 4 Herbicidal efficacy of pyrazolate granules in outdoor pots.

I-G, II-G, III-G, IV-G, V-G, VI-G: Granules containing pyrazolate particles I, II, III, IV, V, and VI, respectively (See Fig. 3 and Table 2).

のため、Vの S_w はIVの約2.5倍となった。VIは $1.2\mu\text{m}$ 以下の微細部分が30%に達し、 $D_{36.8}$ および S_w からみても6サンプル中で最も細かった。

2) 除草効果

① コンクリートポット試験

屋外コンクリートポットにおける除草効果試験の結果をFig. 4に示した。I-G(S_w 1.36 m^2/g)の除草効果は明らかに劣った。他のサンプル間に差はみられなかった。残草の多くはピラゾレートがやや効きにくいホタルイで、他の草種では差は認められなかった。

② ほ場試験

ほ場試験の結果をFig. 5に示した。除草効果は、III-G、およびIV-G(S_w 各2.03, 2.15 m^2/g)がもっとも高く、次いでV-G, VI-G(S_w 各5.13, 7.47 m^2/g)で、I-Gおよ

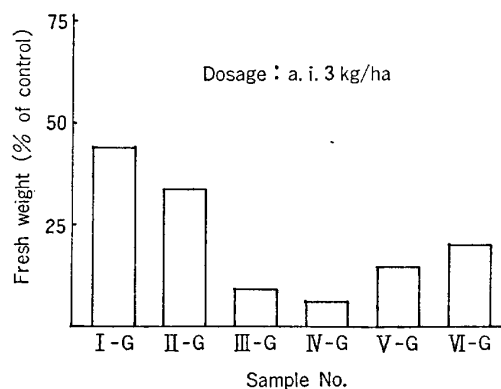


Fig. 5 Herbicidal efficacy of pyrazolate granules in a paddy field.

I-G, II-G, III-G, IV-G, V-G, VI-G: see Fig. 4.

びII-G(S_w 各1.36, 1.76 m^2/g)は明らかに劣った。

このように、ほ場において粒剤を処理して高い除草効果を得るために必要なピラゾレートの粒度は S_w 約2 m^2/g で、粒度が粗くても細かすぎても除草効果は低下した。

考 察

水田に処理されたピラゾレートは、徐々に田面水に溶解拡散したのち、順次活性成分DTPに加水分解され、生成したDTPは流亡、溶脱、光分解²⁹⁾、微生物分解³⁰⁾、植物による吸収を経ながら、田面水中濃度と平衡関係を保ちつつ、土壌表面に吸着³¹⁾されてDTPの処理層を形成し、除草効果を発現すると考えられている。この場合、主剤の粒度が細かいほどピラゾレートの溶出、すなわちDTPの生成は早いが、一方で上記のような過程による消失も生じやすい。DTPの供給と消失のバランスから除草効果をもっとも強く発現する溶出パターンがあり、これに近い溶出を示す製剤が除草効果も高いと考えられる。DTPの生成が遅い場合は雑草の生育に追いつけず、逆に、早すぎる場合は消失が早く、真に必要なときに水田中のDTPが必要量存在しなくなる。

ピラゾレートの分級懸濁液を用いたポット試験、および粒度の異なるピラゾレートを含む粒剤を用いたコンクリートポット試験の結果、ピラゾレートの粒度が粗くなると、抵抗性の草種ほど除草効果が低下した。一方、同じ粒剤を用いたほ場試験では、ピラゾレートの粒度が粗い場合だけでなく、細かすぎる場合にも除草効果は低下した。この理由は次のように考えることができる。

コンクリートポット試験では、処理直後の3日間、底部の穴から漏水させたが、横移動による田面水の流出はなかった。DTPは下方移行性は小さいことが知られており³³⁾、ピラゾレートの粒度が細かくDTPの生成が早

い粒剤でも、DTPの溶脱は少なく、高い除草効果を示したと考えられる。一方、ほ場試験はコンクリートポット試験に比して、試験期日が8日間遅く、その分だけ水温は高かったと推定される。ピラゾレートの溶出やDTPへの加水分解は温度依存性が高いから、ピラゾレートの粒度が細かい粒剤は田面水中でのDTPの生成が早かったと考えられる。また、一般に、田植え直後の水田は土壌の状態が不安定で、畦畔からの漏水など横移動による田面水の流出が多い。ピラゾレートの粒度が細かい粒剤は処理後早い時期に生成したDTPが、田面水の流出とともに流亡したため除草効果が低かったと推定される。どちらの試験でも、ピラゾレートの粒度が粗い粒剤は、DTPの生成が遅いため雑草の生育に追いつけず、除草効果が不十分であったと考えられる。このように、必要なときに水田中にDTPが十分量存在しないような条件では、1.2)や2.1)①に示されるようにピラゾレートに対し抵抗性の草種から除草効果が低下するものと考えられる。

前述したように、水に難溶性の固体農薬の粒度と効力については多くの報告があり、有効成分が微細なほど効力が高いものと、最適粒度があるものとに大別できる。しかし、水田用除草剤では最適粒度があるという報告はみられない。ピラゾレート粒剤は、ほ場では S_w 約 $2\text{ m}^2/\text{g}$ のものがもっとも高い除草効果を示したが、この原因は、①ピラゾレートがきわめて難溶性のため、粒度が粗い場合はピラゾレートの溶出が遅く、除草効果に十分な量のDTPが生成しない、②ピラゾレートより加水分解されて生成する活性成分DTPは水に対する溶解度が比較的高いため、ピラゾレートの粒度が細かすぎると田面水中へのDTPの生成が早く、田面水の流出がある条件ではDTPが流亡するためと考えられる。

要 約

水田除草剤ピラゾレートの粒度と除草効果の関係を検討した。ピラゾレートを粒径 $44\text{ }\mu\text{m}$ 以下で5画分に分級し、懸濁液で除草活性を評価すると、発芽前処理では、ウリカワにはa. i. 0.5 kg/ha の薬量でどの画分もほぼ完全な除草効果を示したが、タイヌビエには $20\text{ }\mu\text{m}$ より粗い画分は活性が低下し、ミズガヤツリではa. i. 1 kg/ha の薬量でも $10\text{ }\mu\text{m}$ より粗い画分は活性が劣った。発芽後処理では、粗い画分の活性が低い傾向がより顕著であった。また、粒度の異なるピラゾレートの粉碎品を用い、押し出し造粒法によりつくられた粒剤の除草活性を評価すると、ポット試験では粒度の粗いピラゾレートを含有する粒剤(S_w $1.36\text{ m}^2/\text{g}$)は劣った。ほ場でも有効成分

が粗い粒剤(S_w $1.36, 1.76\text{ m}^2/\text{g}$)は活性が劣ったが、有効成分がきわめて微細な粒剤(S_w $5.13, 7.47\text{ m}^2/\text{g}$)も活性が低下する傾向があり、 S_w 約 $2\text{ m}^2/\text{g}$ のピラゾレートを含有する粒剤がもっとも活性が高かった。

終りに、本研究に当たりご助言ご指導いただいた当研究所長 石田三雄博士、実験の一部を担当していただいた新藤正宏、寺村正弘、田井中昌子の各氏に深甚なる謝意を表します。なお、Table 3は東京農業大学土壌学教室の測定値である。

引 用 文 献

- 1) 石田三雄・松井孝司・矢内利明・川久保克彦・本間豊邦・谷沢欽次・中川昌之・奥平洋己：三共研年報 **36**, 44 (1984)
- 2) J. M. Hamilton, D. H. Palmiter & G. L. Mack: *Phytopathology* **33**, 533 (1943)
- 3) E. F. Feichtmeier: *Phytopathology* **39**, 605 (1949)
- 4) 高橋清興：農薬の物理化学的研究，三共(株)農薬部，p. 59, 1951
- 5) H. P. Burchfield & G. L. McNew: *Contrib. Boyce Thompson Inst.* **16**, 131 (1950-1952)
- 6) G. L. McNew & H. P. Burchfield: *Contrib. Boyce Thompson Inst.* **16**, 163 (1950-1952)
- 7) 黒坂諫雄・鎌田 裕・奥田逸輝・嘉戸 勝：農薬生産技術 **14**, 23 (1966)
- 8) P. A. Backman, G. D. Munger & A. F. Marks: *Phytopathology* **66**, 1242 (1976)
- 9) W. Mass: "Advance in Pesticide Science," ed. by H. Geissbühler, Part 3, Pergamon Press, Oxford, p. 772, 1978
- 10) 坂本 彬：農薬一デザインと開発指針，山本 出，深見順一編，ソフトサイエンス社，pp. 1033-1034, 1979
- 11) 中村利家・清水宏道・藤本昌彦・高日幸義・近藤泰彦：農薬誌 **6**, 293 (1981)
- 12) R. E. Holm & A. F. Marks: *Hortscience* **11**, 324 (1976)
- 13) E. J. Butterfield, R. J. Pocchiarri, & W. R. Landis: *Phytopathology* **71**, 864 (1981)
- 14) A. B. Hadaway, F. Barlow, & C. R. Turner: *Bull. Entomol. Res.* **60**, 17 (1970)
- 15) 鎌田 裕・井上忠彦・近藤和信・平尾忠紀：農薬生産技術 **22**, 2 (1970)
- 16) 鎌田 裕・近藤和信・坂本 彬・井上忠彦：農薬生産技術 **24**, 27 (1971)
- 17) S. J. Yu & F. O. Morrison: *Can. Entomol.* **101**, 846 (1969)
- 18) 坂本 彬：植物防疫 **28**, 363 (1974)
- 19) 藤本昌彦・西田 剣・山本慎二郎・中村利家：農薬誌 **6**, 301 (1981)
- 20) 大林 久・河野義明・川上 剛・佐藤安夫：武田研究所報 **42**, 78 (1983)

-
- 21) A. Sakamoto, K. Nakamura, S. Hayashi & S. Maeno: Abstr. Fifth Int. Congr. Pestic. Chem., VIII b-5, 1982
- 22) 近内誠登: 雑草研究 **12**, 7 (1971)
- 23) A. Rahman: *Weed Res.* **24**, 255 (1984)
- 24) 粉体工学研究会: 粒度測定技術, 日刊工業新聞社, p. 165, 1975
- 25) 粉体工学研究会: 粒度測定技術, 日刊工業新聞社, p. 125, 1975
- 26) 粉体工学研究会: 粒度測定技術, 日刊工業新聞社, p. 144, 1975
- 27) 粉体工学研究会: 粒度測定技術, 日刊工業新聞社, p. 146, 1975
- 28) 粉体工学研究会: 粒度測定技術, 日刊工業新聞社, p. 13, 1975
- 29) 山岡 剛・安藤 満・辻野泰宏・中川昌之: 未発表
- 30) 加藤重博・中神和人・中西逸朗・高日幸義: 未発表
- 31) 山岡 剛・当寺ヶ盛学: 未発表
- 32) 山岡 剛・中川昌之・石田三雄: *J. Pesticide Sci.* **12**, 209 (1987)
- 33) 山岡 剛・当寺ヶ盛学・石田三雄: 未発表
- 34) 谷沢欽次・河西史人: 三共研年報 **37**, 121 (1985)