

学会賞受賞論文

(奨励賞)

エアロゾル製剤の物理特性と殺虫効力

津田 重典

住友化学工業株式会社宝塚総合研究所農業科学研究所

Relationship between Physical Properties of Aerosol
Formulation and Its Insecticidal Efficacy

Shigenori TSUDA

*Agricultural Science Research Laboratory, Takarazuka Research Center,
Sumitomo Chemical Co., Ltd., Konohana-ku, Osaka 554, Japan*

A pesticide formulation should be designed rationally to maximize its pesticidal efficacy by thoroughly investigating the relationship among the formulation factors, the physical properties of the formulation and its pesticidal efficacy. By the rational design of the formulation, pesticides can be used efficiently to the purpose, and maximum efficacy can be obtained by using the smallest amount of pesticide. Standing on this concept, authors studied the influence of the physical properties of aerosol formulations on their insecticidal efficacy. The insecticidal efficacy of an aerosol formulation is thought to be influenced by the behavior of the spray-droplets in the air and by the permeability of the insecticide through the cuticle of the insect to reach the nervous system. Then, the spray-droplet size and the solvent used for the aerosol formulation are thought to be the two most important factors. The spray-droplet size was decisive to maintain the concentration of airborne spray-droplets; the smaller the spray-droplets, the longer the concentration maintained. However, there existed an optimum spray-droplet size to maximize the insecticidal efficacy, which was around 30 μm . This result was explained by the effect of the balance of the catch efficiency of airborne spray-droplets by flying insects which was affected by the inertia of spray-droplets, and the maintenance of the concentration of airborne spray-droplets which was affected by their settling speed. Among the solvents used for the aerosol formulation, the most effective one for knockdown efficacy was tetradecane. This solvent was thought to facilitate the insecticide to penetrate into insect through the cuticle.

はじめに

農薬の製剤設計にあたっては、製剤特性と作用特性の関係ならびにそれらに及ぼす製剤要因の影響について検討し、効力を最大限に発揮させる製剤を合理的に設計することが必要である。さらに、農薬を最も効率的に標的に送達するための合理的な施用方法を検討することも重要である。このような合理的製剤設計および施用方法の検討により、農薬をより合目的かつ効率的に使用するこ

とができ、最少量の農薬を用いて最大限の防除効果を得ることが可能となる。このことは、防除コストのみならず環境安全性の面でもより理想的であるので、近年、製剤・施用法の研究は農薬研究のなかでもきわめて重要な課題と考えられつつある。

エアロゾル製剤は耐圧容器中に充填された液体を噴射剤の圧力によって噴射する製剤であり、直径が数 μm から数十 μm の噴霧粒子を容易に得ることができるため、気相中に微小粒子を噴霧する目的に多用されている。特

に、ハエや蚊等の飛翔する衛生害虫を防除するのに適しているため空間噴霧用殺虫剤として最も汎用されている。この剤は、独自で噴霧粒子を発生して内容の農薬製剤液を飛翔害虫に送達しようという意味で、施用の方法をも独自で備え持った剤である。飛翔する衛生害虫を防除するために用いられる殺虫エアロゾル剤においては、気相中に噴霧されたエアロゾル粒子が害虫に到達するまでの気相中での挙動および、粒子が害虫に到達した後の害虫の表皮を通じた作用部位（神経）への浸透移行性が殺虫効力に重要な影響を与えるものと考えられる。筆者らはエアロゾル剤の製剤要因と噴霧粒子径の関係、噴霧粒子径と気相中粒子濃度の経時変化および殺虫効力との関係、噴霧粒子を構成する溶剤組成と殺虫効力との関係等につき研究を行ない、効力的に最適なエアロゾル剤の設計方法を明らかにした。本稿では、主として殺虫効力に及ぼす各種の製剤要因に関する研究結果について概説する。

エアロゾル剤の噴霧粒子特性に及ぼす 製剤要因の影響

エアロゾル剤の噴霧特性に影響を及ぼす製剤要因としては、噴射剤圧力、噴射剤比および噴射バルブ機構が重要であることが報告されている¹⁻³⁾。著者らはこれらの製剤要因のうち、特に噴射バルブ機構に設けられた各種の孔の大きさと噴霧粒子径との関係について検討を行なった⁴⁾。噴射バルブ機構の断面図を Fig. 1 に示す。噴射バルブ機構中には4種の流量制御孔が設けられているが、これらの各孔径の影響は非常に複雑であり、それぞれの孔が相互作用的に噴霧粒子径に影響を及ぼしていることが判明した。例えば Fig. 2 に示すように、ステム孔 (ST) と噴出孔 (BU) の孔径比 (ST/BU 比) と噴

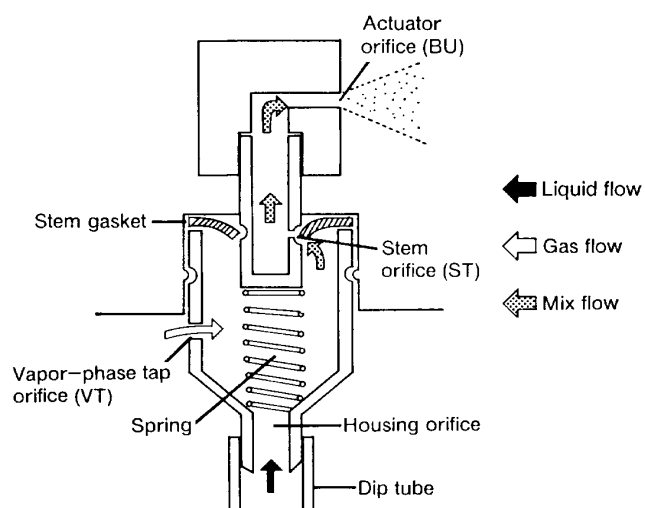


Fig. 1 A cross-sectional diagram of an aerosol valving-system.

霧粒子径との関係では、気相孔 (VT) が小さいときには噴霧粒子径を最小にする ST/BU 比が存在し、それは ST と BU がほぼ等しいとき、すなわち ST/BU 比がほぼ1であるときであるが、VT が大きいときには ST/BU 比が大きいほど噴霧粒子径が小さくなる。このような複雑な影響は、エアロゾル内容液が各孔を通過する際の圧力損失によって説明されるものと考察された⁴⁾。

噴霧粒子の気相中濃度に及ぼす 粒子径の影響

各種の噴霧粒子径を与えるエアロゾル剤を気相中に噴霧した後、噴霧粒子がどのような挙動を示すかを調べた⁵⁾。これらのエアロゾル剤には殺虫有効成分として tetramethrin と *d*-phenothrin を用い、気相中における

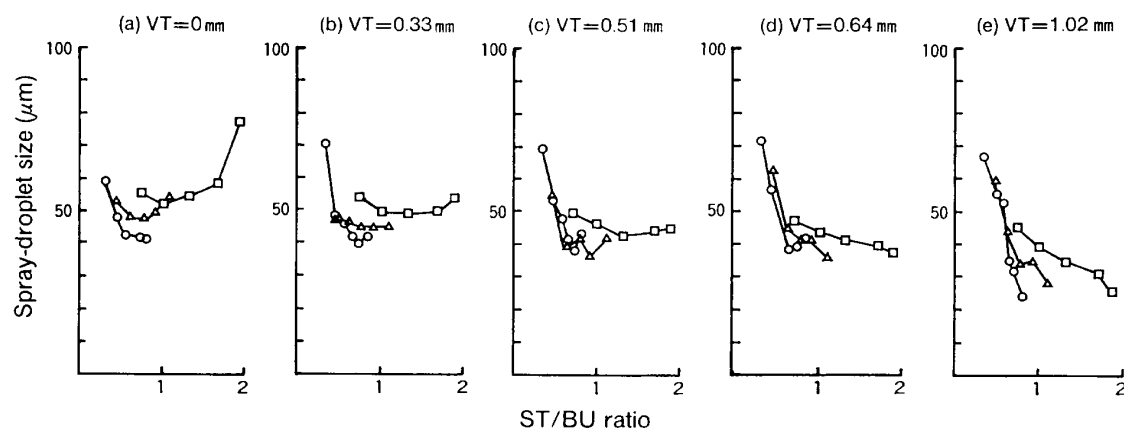


Fig. 2 Effect of ST/BU ratio on the spray-droplet size of aerosol formulations.

ST: ○, 0.33 mm; △, 0.46 mm; □, 0.76 mm.

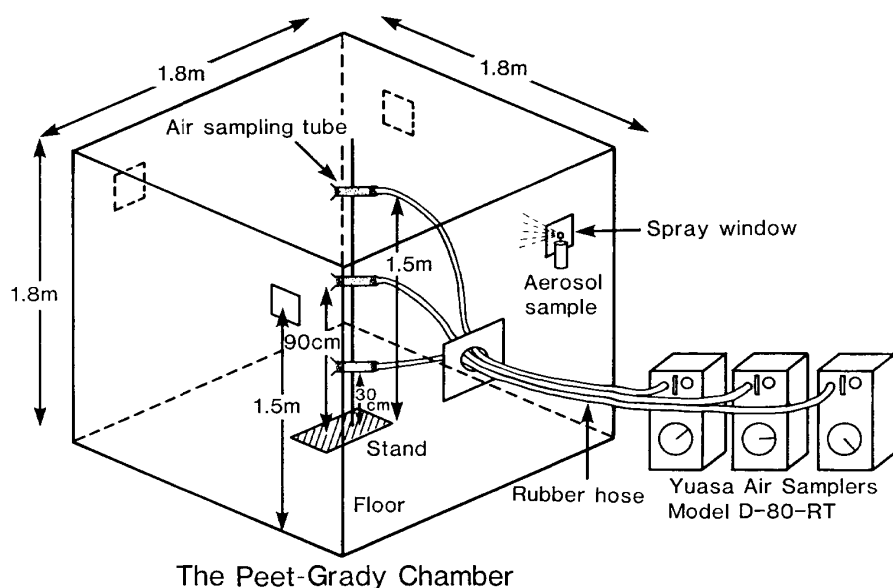


Fig. 3 Method to measure the percentage of airborne spray-droplets.

tetramethrin 濃度を分析することにより噴霧粒子濃度を求めた. Fig. 3 に噴霧粒子の気相中濃度測定方法を示した. 一辺 1.8 m の正立方体の部屋 (Peet-Grady Chamber) の床面中央に, 高さを変えて 3 箇所の空気サンプリング管を設け, それぞれの場所における噴霧粒子を経時的にサンプリングし, 噴霧粒子濃度およびその垂直分布を求めた. また, Fig. 4 に示すように, 沈降した粒子を捕捉するため床面の 4 分の 1 に 30 cm 角のろ紙 9 枚を敷き, 噴霧粒子の測定と同時に各場所における tetramethrin の沈降量を分析することにより沈降粒子量およびその水平分布を求めた.

Fig. 5 に, 粒子径の異なる噴霧粒子の経時的気相中濃度変化を示した (測定位置は部屋の中央). 噴霧粒子径が小さいほど気相中濃度は長く維持された. 比較的噴霧粒子径の大きい処方-II ($35.8 \mu\text{m}$) や処方-III ($71.4 \mu\text{m}$) では噴霧 5 分から 10 分以内に急激に気相中濃度が低下しそれ以降の低下はきわめて緩やかであった. この結果より比較的大きな噴霧粒子はきわめて短時間の内に落下するものと推定された. 一方, 噴霧粒子径の小さい処方-I ($19.4 \mu\text{m}$) の場合には全体として緩やかに気相中濃度が低下したが, 30 分以降の気相中濃度の低下率はきわめてわずかであった. Fig. 6 に, 処方-I および II の噴霧粒子の気相中濃度の垂直分布とその経時変化を示した. エーロゾル製剤噴射位置と同じ 150 cm の高さにおける気相中濃度は, 噴霧 15 分後までは徐々に増大し, その後緩やかに低下した. それ以外の高さにおける気相中濃度は噴霧直後より徐々に低下していった. いずれの

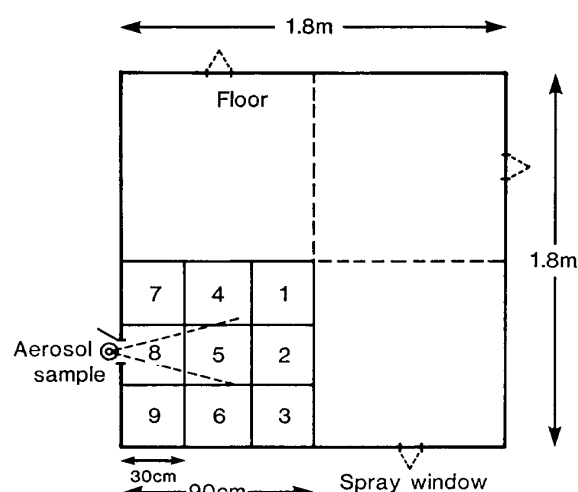


Fig. 4 Layout of droplet collection papers on the floor of the Peet-Grady chamber.

場合も噴霧 30 分後以降は高さによる気相中濃度の差は無くなり, 噴霧粒子が部屋全体に均一に分布したものと考えられた. Fig. 7 には床面の各サンプリング位置への噴霧粒子落下量分布を示した. 噴霧粒子径が大きくなるほど落下量が多くなり, かつ落下分布のバラツキが増大した. 噴霧粒子が大きい処方-III の場合, エーロゾル製剤噴霧位置の直下での落下量が特に多くなり, 大きな噴霧粒子は噴射された後速やかに落下するものと考えられた.

以上の結果より, 初期噴霧粒子径が $20 \sim 30 \mu\text{m}$ 以上の大きな噴霧粒子はきわめて短時間の内に落下し気相中

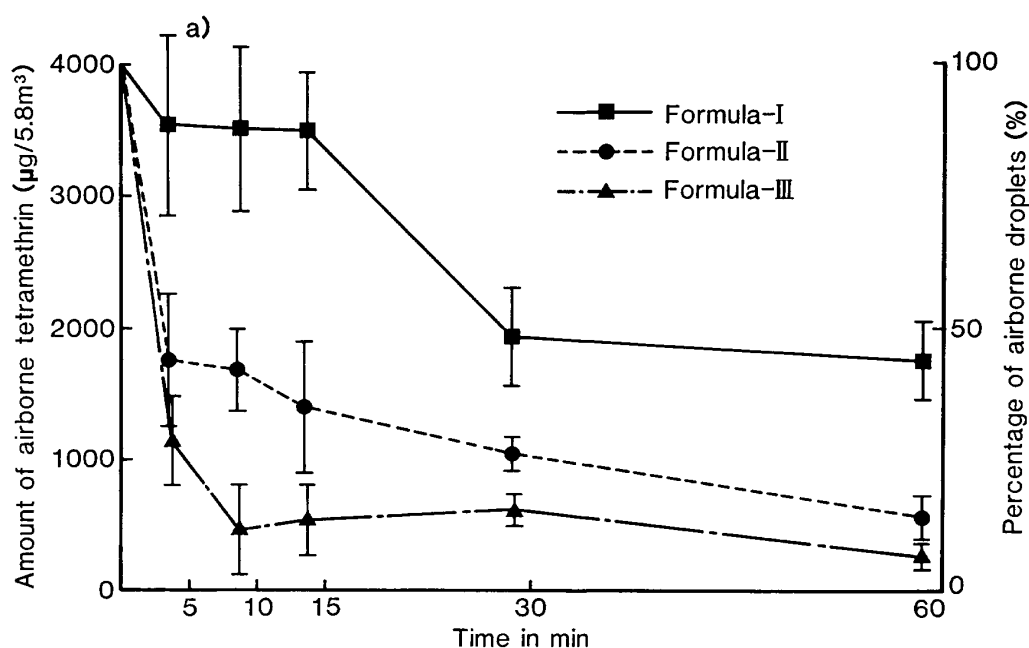


Fig. 5 Time course of the percentage of airborne spray-droplets at the center of the Peet-Grady Chamber. a) Standard deviation.

Spray-droplet size: I, 19.4 μm ; II, 35.8 μm ; III, 71.4 μm .

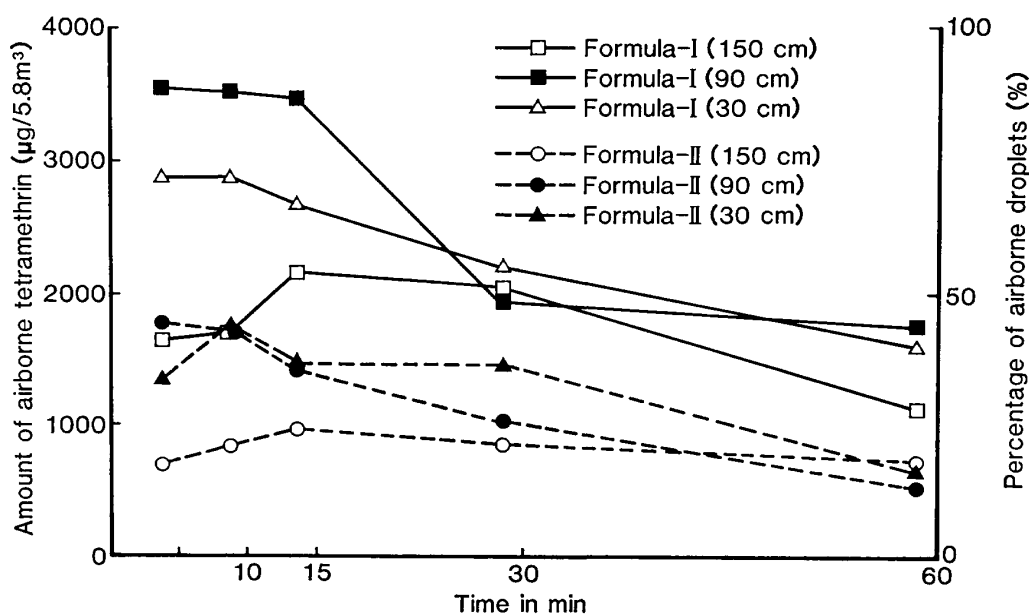


Fig. 6 Vertical distribution of airborne spray-droplets.

Spray-droplet size: I, 19.4 μm ; II, 35.8 μm .

から消失すると考えられ、気相中濃度の維持には寄与しないと判断される。空間噴霧用殺虫エアロゾル製剤においては、飛翔する害虫に対しいかに多くの噴霧粒子を付着させるかが重要であり、この目的のためには気相中粒子濃度の維持が重要である。したがって、空間噴霧用殺虫エアロゾル製剤においては初期噴霧粒子径が20~30

μm 以下の粒子を設計することが必要と考えられる。一方、粒子の慣性力は飛翔する昆虫に対する衝突付着効率に影響を及ぼし、粒径が大きいほど大きくなる。したがって、気相中粒子濃度の維持と、昆虫に対する衝突付着効率の両面から効率的に最適な噴霧粒子径が決定されるはずである。この考えから、次に、噴霧粒子径と効力

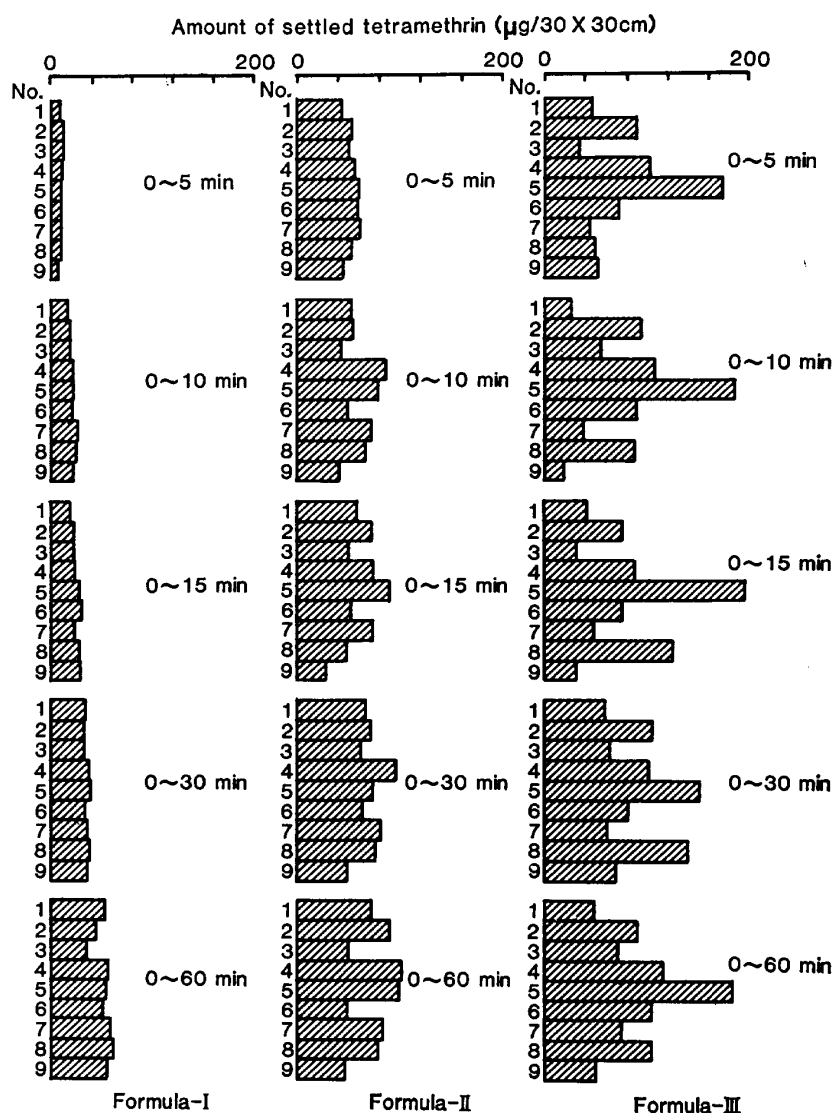


Fig. 7 Distribution of settled spray-droplets on the floor.
 Spray-droplet size: I, 19.4 μm ; II, 35.8 μm ; III, 71.4 μm .

の関係を調べた。

エーロゾル製剤の噴霧粒子径と 殺虫効力の関係

エーロゾル製剤の噴霧粒子径と殺虫効力との関係についての研究報告はきわめて少ない^{6,7)}。著者らは、各種の噴霧粒子径を与えるエーロゾル製剤を用いて殺虫効力試験を行ない、噴霧粒子径と効力の関係を調べた⁸⁾。

Fig. 8 に、気相中粒子濃度の測定で用いた噴霧粒子径の異なる3種のエーロゾル製剤のイエバエに対するノックダウン効力の経過時間に対する回帰直線を示した。

噴霧粒子径が小さい処方-Iでは回帰線の傾きは急角度であるが初期のノックダウン効果が低い。一方、噴霧粒子径の大きい処方-IIIでは回帰線の傾きが緩やかであ

り、かつ初期のノックダウン効果も低い。処方-IIにおいては、回帰線の傾きは比較的緩やかではあるものの噴霧15分後のノックダウン率は95%に達しており“つめ”が良く、かつ初期のノックダウン効果も高い。これらの結果をまとめると以下の結論が得られた。

- 1) 噴霧粒子径が過大もしくは過小であるとき、初期ノックダウン効力は十分ではない。
- 2) 噴霧粒子径が小さいほど後期のノックダウン効力の“つめ”が良くなる。すなわち、飛翔する害虫を最終的には完全にノックダウンさせることができる。

上記の結果は、気相中粒子濃度の維持と、昆虫に対する衝突付着効率の両面から効力的に最適な噴霧粒子径が存在することを示唆している。そこで、各種の噴霧粒子径を与えるエーロゾル製剤を作成し、イエバエに対する

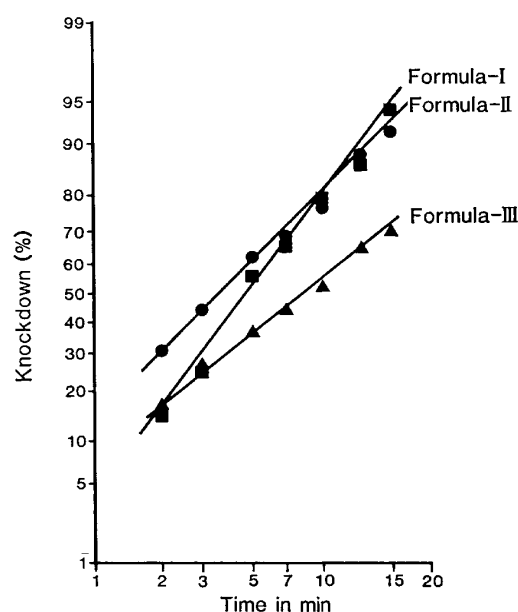


Fig. 8 Knockdown-time regression lines of three aerosol formulations having different spray-droplet size.

Spray-droplet size: I, 19.4 μm ; II, 35.8 μm ; III, 71.4 μm .

殺虫効力を調べた⁸⁾。

Fig. 9 に結果を示す。半数ノックダウン時間 (KT_{50}) は約 30 μm の平均粒径において最小となり、最も速いノックダウン効果が得られ、また、致死効力においては平均粒径が小さいほど高くなる傾向にあるものの、20 から 30 μm 付近で平衡に達する傾向がみとめられた。し

たがって、総合的な殺虫効力において、平均噴霧粒子径の最適値は約 30 μm であると結論された。なお、同様の試験をアカイエカに対しても行なったが、その結果はほぼ同様であり、半数ノックダウン時間 (KT_{50}) に対する平均噴霧粒子径の最適値は 20 から 30 μm であった。しかし、そのピークはイエバエに対するよりもやや小さい方にずれていた。この原因は、両昆虫の飛翔活動の差によるものと推定される。

時間-反応率特性に及ぼす噴霧粒子径の影響

上記の実験で得られた結果をもとに、エーロゾル製剤のイエバエに対するノックダウン効力をさらに詳細に検討した⁹⁾。噴霧後の経過時間と、ノックダウン率との間には下記の回帰式が適用できることが知られている。

$$Y = A + B(X - MX)$$

ここで、 Y は経過時間 X における累積ノックダウン率の確率分布値、 X は経過時間の常用対数値、 MX は半数ノックダウン時間 (KT_{50})、 A および B は回帰定数を示す。経過時間が 1 分のとき、 X はゼロとなるので、 Y は $A - B \cdot MX$ に等しい。したがって、 $A - B \cdot MX$ は経過時間が 1 分のときの累積ノックダウン率の確率分布値そのものである。 B は、 X を横軸に、 Y を縦軸にとったときの回帰直線の傾きを意味し、 B が大きいほど回帰直線は急勾配である。したがって、 $A - B \cdot MX$ の値から速効性が判断でき、 B の値からノックダウン効力の“つめ”（時間の経過とともにいかにノックダウン効力がのびたか）を判断することができる。殺虫

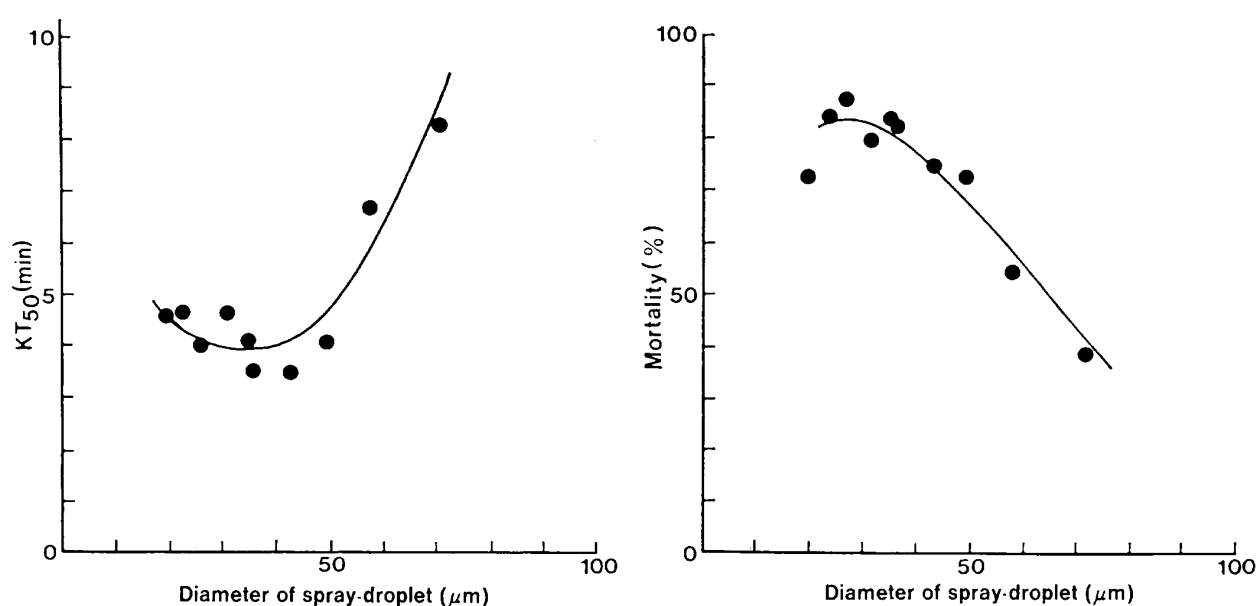


Fig. 9 Relationship between the diameter of spray-droplets and the insecticidal efficacy of aerosols.

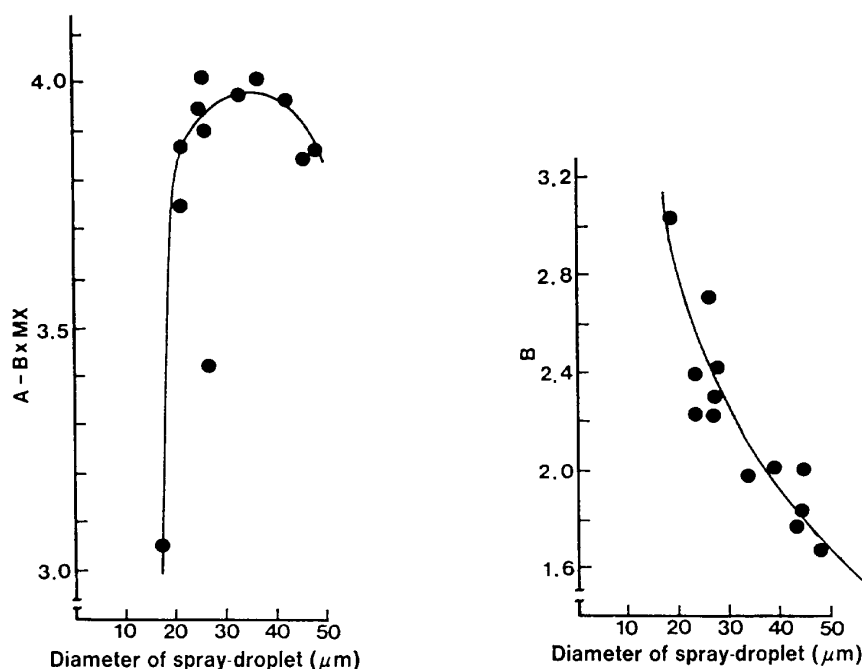


Fig. 10 The rapidity of knockdown ($A - B \cdot MX$) and the completeness of knockdown (B) vs. spray-droplet size.

エーロゾル製剤の効力は、速効的であり、かつ飛翔する害虫を完全にノックダウンさせることが理想的である。すなわち、 B および $A - B \cdot MX$ の両方の値ともに大きい値を示す殺虫エーロゾル製剤が理想的と考えられる。

Fig. 10 にこれらの値と噴霧粒子径との関係を示す。 $A - B \cdot MX$ の値を最大にする噴霧粒子径の大きさは約 30 μm であり、 B の値は噴霧粒子径が小さくなるほど大きくなった。すなわち、ノックダウン効力の“つめ”は噴霧粒子径が小さいほど優れているが、速効性は噴霧粒子径が約 30 μm のときに最適化される。

以上述べてきたように、ノックダウン効力における最適噴霧粒子径は約 30 μm であると結論される。この結論はノックダウン効力の指標として KT_{50} 値を用いた解析の結果および、時間-反応率回帰直線の解析の結果の両者から得られたものであり、速効性と“つめ”の両面における最適値である。致死効力に対しては、噴霧粒子径が小さいほど高くなったが、約 30 μm 以下においてはほとんど変わらない。したがって、噴霧粒子径が約 30 μm のときこれらのいずれの面においても最適化されていると結論することができる。

飛翔する衛生害虫を防除するために用いられるエーロゾル製剤においては、それらの害虫によって人間が被害を受ける前にこれを阻止する必要がある、この意味から致死効力ばかりでなく速いノックダウン効力もきわめて重要である。これらのことを考慮したとき、気中に噴霧

したエーロゾル粒子がいかに効率良く飛翔害虫に到達するか、到達した粒子の中の有効成分薬剤が虫の表皮を通じていかに効率良く、かつ速く作用部位（神経）へ浸透移行するかという2点が問題となる。

ノックダウン効果は昆虫が飛翔しているきわめて短時間の間にもたらされるため、噴霧粒子の昆虫に対する付着効率 (catch efficiency)⁹⁾ と薬剤の迅速な皮膚透過性により大きな影響を受けると考えられる。逆に、致死効果は最終的な薬剤の虫体内蓄積量により決定されると考えられ、噴霧粒子の昆虫に対する付着確率 (catch probability)⁹⁾ と薬剤の効率的な皮膚透過性により大きな影響を受けると考えられる。

噴霧粒子の気相中における存在率は粒子の落下沈降速度によって決定され、粒子が大きいほど落下沈降速度が速く気相中から速やかに消失する。一方、粒子の慣性力は飛翔する昆虫に対する付着に影響を及ぼし、粒径が大きいほど大きくなる。したがって、殺虫効力に影響を与えられと考えられるこれらの二つの要因は粒子の大きさによって互いに逆方向に作用する。このため、噴霧粒子が過大であるときには粒子の落下消失によるロスが大きく、逆に噴霧粒子が過小であるときには慣性力不足によって飛翔する昆虫への付着性が低下し、いずれも効力が低下すると説明され、これらのバランスを最適化する噴霧粒子径が最高効力を与えたものと考えられた^{8,10)}。

Table 1 Physical properties of solvents used in this study.

Solvent name	Common name	Boiling point (°C)	Specific gravity (15–20°C)
Ondina 17 (Shell)	Kerosene	350 (50%)	0.868
Neochiozol (Cyuokasei)	"	224–268	0.769
Isopar M (Esso)	"	207–257	0.781
Isopar H (Esso)	"	174–189	0.757
Isopar E (Esso)	"	115–142	0.723
Fog solvent (Nisseki)	"	202–272	0.847
O-solvent M (Nisseki)	"	219–247	0.760
Diesel oil (Esso)	"	205–252	0.822
Solvesso 150 (Esso)	Alkylbenzene	188–210	0.895
Methyl cellosolve (reagent)	—	122–126	0.974
Chlorothene NU (Dow)	Methylchloroform	72– 88	1.325
Isopropanol (reagent)	—	81– 83	0.790

殺虫効力に及ぼす溶剤の影響

殺虫剤を害虫に対して施用する際に用いる溶剤の種類が効力に影響を及ぼすことについては過去よりいくつかの報告があり^{11–16)}、一般に石油系炭化水素溶剤（ケロシン）が高い効力を示すことが知られている。著者らはまず、エーロゾル製剤において殺虫効力に及ぼす溶剤の影響を調べた。次に、それらの溶剤のうちある沸点範囲のケロシン類が高い効力を示すことが明らかとなったため、それらの組成につき分析検討を行ないその炭化水素の成分を同定した。さらに、炭素数の異なるパラフィン系炭化水素を用いて実際に効力比較を行なうことにより、最も高い効力が得られる炭化水素の炭素数を明らかにした¹⁷⁾。

Table 1 に用いた溶剤の一覧表を示す。これらの溶剤に tetramethrin および *d*-phenothrin を溶解して油剤とし、噴霧試験法にてイエバエおよびアカイエカに対する半数ノックダウン時間 (KT₅₀) および致死率を求めた。Table 2 に示すように、ケロシン類は一般にその他の溶剤に比較しノックダウン効力が高く、かつこれらの溶剤の中でも 200–250°C 付近に沸点をもつケロシン類の効力が優れていた。一方、致死効力においては必ずしもノックダウン効力の高低と一致せず、ノックダウン効力の低い溶剤においても高い致死活性がみとめられるものもあった。そこでこれらの溶剤自身の毒性を調べるため、直接微量施用法にてイエバエおよびアカイエカに対する半数致死薬量 (LD₅₀) を求めた。結果を Table 3 に示す。Table 2 と比較すると一般にノックダウン効力の高い溶剤ほど、溶剤自身の毒性も強いことがわかったが、いくつかの例外もみとめられた。以上の結果より、溶剤自身

Table 2 Insecticidal efficacy of oil-liquid formulations containing 0.05% of tetramethrin and 0.025% of *d*-phenothrin using various kinds of solvents against flying insects by the Peet-Grady method.

Solvent	Housefly		Mosquito	
	KT ₅₀ (min)	Kill (%)	KT ₅₀ (min)	Kill (%)
Ondina 17	5.3	62	3.2	93
Neochiozol	1.9	90	1.8	93
Isopar M	2.4	87	1.4	100
Isopar H	2.4	100	2.3	99
Isopar E	6.0	91	9.5	87
Nisseki fog solvent	1.9	98	2.1	100
Nisseki O-solvent M	1.3	91	1.1	97
Diesel oil	2.5	95	2.7	95
Solvesso 150	2.0	100	1.5	95
Methyl cellosolve	5.0	97	7.4	95
Chlorothene NU	5.3	93	6.7	98
Isopropanol	5.2	97	8.2	96

の毒性とノックダウン効力はある程度の相関を有するが、完全には一致しないものと結論された。溶剤自身の毒性は殺虫剤の毒性と比べるとはるかに弱く、通常の空間噴霧殺虫試験において溶剤のみを噴霧してもほとんどノックダウン活性がみとめられないことから、各溶剤による殺虫効力の差は昆虫の表皮を通じて薬剤が体内に浸透移行する際の移行速度が溶剤によって異なることによると考えられた。溶剤自身の毒性の差も、昆虫表皮を通じての溶剤の浸透移行性の差に大きく依存していると思われるが、いくつかの溶剤では昆虫体内における生理活性自体がその他の溶剤と異なっているとも考えられた。

Table 3 Toxicity of various kinds of solvents against houseflies and mosquitoes by the topical application method.

Solvent	LD ₅₀ (μg/♀)	
	Housefly	Mosquito
Ondina 17	>433	81
Neochiozol	253	48
Isopar M	255	60
Isopar H	237	59
Isopar E	>362	97
Nisseki fog solvent	158	34
Nisseki O-solvent M	269	41
Diesel oil	>411	27
Solvesso 150	71	37
Methyl cellosolve	>320	>292
Chlorothene NU	>663	>398
Isopropanol	>395	>237

前述のように、同じケロシン類においてもその沸点範囲により殺虫効力が大きく異なる原因を調べるため、これらの各溶剤の分析を行なった。その結果を Fig. 11 に示した。殺虫効力に優れていたケロシン類の主成分はドデカンからテトラデカンであることがわかった。以上の結果から、これらのケロシン類の中で殺虫効力が大きく異なる原因はそれらに含有される炭化水素の種類によるものと推定され、特にそれらの炭素数が重要な意味を有するものと考えられた。

以上の結果を確認するために炭素数の異なる各種の直鎖炭化水素を用いて tetramethrin および *d*-phenothrin を含むエーロゾル製剤を作成し、イエバエ、アカイエカおよびチャバネゴキブリに対する効力を比較した。結果を Fig. 12 に示す。いずれの害虫に対しても *n*-テトラデカンが最も高いノックダウン効力を示した。致死効力においては、アカイエカおよびチャバネゴキブリではノ

ックダウン効力と同様に *n*-テトラデカンが最も効力が高くなったものの、イエバエに対しては *n*-オクタンから *n*-ドデカンが優れていた。対照とした Neochiozol® の効力は *n*-ドデカンから *n*-ヘキサデカンの効力とほぼ一致した。これは Neochiozol® がこれらの直鎖炭化水素によって構成されていることを考えれば当然の結果と考えられた。いずれの結果からも炭素数が 16 以上では殺虫効力が低下する傾向がうかがえるが、そのような直鎖炭化水素は室温にて固体であり溶剤としては用いることができない。したがって、噴霧施用型殺虫剤のノックダウン効力上最適な溶剤は *n*-テトラデカンであると結論することができる。この溶剤はアカイエカおよびチャバネゴキブリに対する致死効力においても最適溶剤である。イエバエに対する致死効力のみににおいて *n*-オクタンから *n*-ドデカンが優れていた。イエバエに対するノックダウン効力と致死効力における最適溶剤の不一致は、溶剤自身の毒性に起因している可能性がある。そこでイエバエに対する各直鎖炭化水素自身の毒性を直接微量施用法で調べた。その結果を Table 4 に示す。各直鎖炭化水

Table 4 Toxicity of *n*-paraffins against houseflies and mosquitoes by the topical application method.

<i>n</i> -Paraffin	LD ₅₀ (μg/♀)	
	Housefly	Mosquito
<i>n</i> -Octane	<352 (25%) ^{a)}	55
<i>n</i> -Decane	207	57
<i>n</i> -Dodecane	189	47
<i>n</i> -Tetradecane	<383 (28%)	38
<i>n</i> -Hexadecane	<387 (8%)	43

^{a)} Figures in parentheses mean mortality % when the maximum amount of the solvent was topically applied.

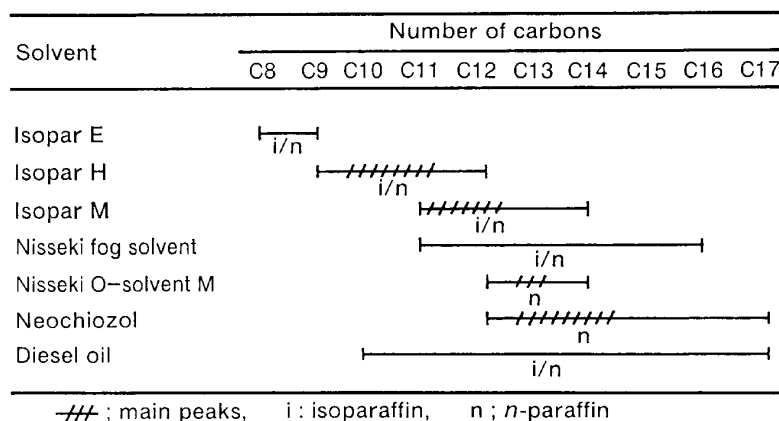


Fig. 11 Number of carbons of paraffins contained in each solvent.

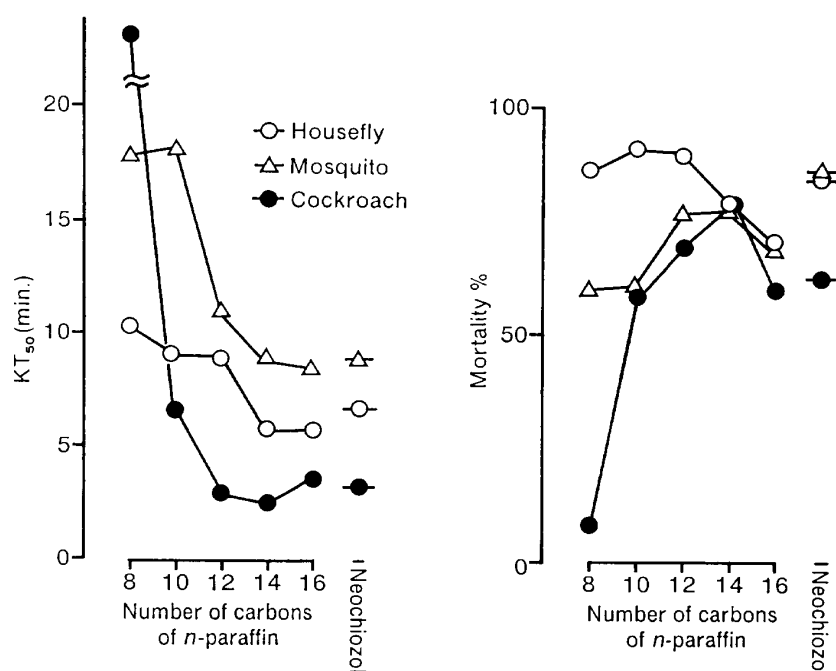


Fig. 12 Insecticidal efficacy of aerosol formulations containing 0.4% of tetramethrin and 0.1% of *d*-phenothrin using *n*-paraffin as a solvent by the aerosol test method for flying insects and the direct spray method for cockroaches.

Table 5 Insecticidal efficacy of oil-liquid formulations containing tetramethrin using different kind of *n*-paraffin as a solvent against houseflies by the topical application method.

μg of tetramethrin in solvent	Mortality %						
	<i>n</i> -Octane		<i>n</i> -Dodecane		<i>n</i> -Hexadecane		Acetone
	0.2 μl^{a}	0.3 μl	0.1 μl	0.2 μl	0.2 μl	1.0 μl	0.3 μl
0.8	76%	88%	100%	—	76%	88%	40%
0.4	52	52	88	96%	36	48	12
0.2	20	52	32	72	0	52	8
0.1	12	24	12	44	0	24	0
0.05	12	20	4	12	0	16	0
0.025	—	16	0	—	—	16	0
Solvent control	8	8	4	20	0	0	0

^{a)} Applied amount of the solvent on an insect (♀).

素自身の毒性の順位は、各害虫に対するエーロゾル製剤の致死効力の順位とほぼ一致し、イエバエに対しては *n*-デカンから *n*-ドデカンが最も強く、アカイエカに対しては *n*-テトラデカンが最も強かった。以上の結果から、各害虫に対する噴霧施用時の致死効力には、用いた溶剤自身の毒性も大きく寄与しているものと思われた。次に、主薬と溶剤との相互作用を見るため *n*-オクタン、*n*-ドデカン、および *n*-ヘキサデカンに tetramethrin を溶解した油剤を直接微量施用し、イエバエに対する致死効力を調べた。結果を Table 5 に示す。同量の油剤を施用しても *n*-ドデカンの効力は *n*-オクタン、および *n*-ヘ

キサデカンより優れていた。溶剤のみの施用による致死率を差引いてもこの順位は変わらず、薬剤と溶剤との相互作用が示唆された。すなわち、薬剤のイエバエ皮膚透過性は溶剤により異なり、*n*-ドデカンは最も皮膚透過性を促進するものと考えられた。おそらく *n*-ドデカン自身のイエバエに対する毒性が高いのも皮膚透過性において優れているためと考えられる。なお、施用する溶剤の量を多くすると致死率も高くなったが、その差が薬剤の皮膚透過性の促進によるものか、溶剤自身の毒性によるものであるのかは判然としなかった。

以上の結果より総合的に判断すると、イエバエ、アカ

イエカ、チャバネゴキブリ等の重要な衛生害虫に対して総合的に高い効力を得るためには、炭素数が12から14程度のパラフィン系炭化水素を用いることが最も良いと結論された。

お わ り に

以上、著者らはエーロゾル製剤における製剤特性と殺虫効力の関係について検討し、その効力を最適化する製剤設計および噴霧粒子設計の方法を明らかにした。従来、農薬の製剤は、少量の有効成分を広い面積に均一に施用するために最も使いやすい形態にすることを主目的として設計されてきた。しかし、最近では、より高い効力を期待し、また、より安全な使用が可能である製剤設計が求められるようになった^{18,19)}。これらの要求を満たすためには、最少量の農薬を用いて最大限の防除効果が得られる製剤および施用方法の研究が重要である。これは、すなわち、防除対象に対する農薬の bioavailability (生物学的有効利用能率) を最大化することにほかならない。そのためには、必要量の農薬を、必要な場所(部位)に、必要なときにのみ送達することができれば理想的であると考えることができる。この考え方はすでに医薬品分野における製剤学の主要テーマとして研究されており、Drug Delivery System という理念で取扱われている²⁰⁾。最近、Pesticide Delivery System という言葉が、同じような考え方を農薬分野に導入した新しい理念として提唱されるようになった¹⁸⁾。著者らの行なったエーロゾル製剤に関する一連の研究も、このような理念を達成することを目標としたものであるが、より安全かつ、少量で高い効力の得られる製剤および施用法の開発が益々重要視されている今日、Pesticide Delivery System に関する総合的な研究の重要性は益々高まっているものと考えられる。今後は、Pesticide Delivery System の理念をより具体化して、農薬の有効かつ安全な利用が可能とすべく、農薬製剤・施用法研究が益々発展していくことを期待したい。

本研究を遂行するにあたり、終始御懇篤なる御指導、御鞭撻を賜りました住友化学工業(株)相談役 西澤吉彦 博士、同社常務理事宝塚総合研究所所長 宮本純之 博士、同研究所副所長 上田 実 博士、同研究所農業科学研究所所長 藤浪 曄 博士、同研究所主席研究員 辻孝三 博士、同社生活環境事業部部長補佐 奥野吉俊氏、新庄五朗氏、山口堯士氏ならびに同社生物環境科学研究所主任研究員 阪上重幸 博士に深く感謝致します。

また、本研究を行なうにあたり住友化学工業(株)宝塚総合研究所農業科学研究所において共同研究者として実験にご協力いただいた牧田光康、西部 勲、堂原一伸、松永(旧姓東野)寛子、藤浦(旧姓藤本)善子の各氏、および御指導御協力いただいた多くの方々に心から感謝するとともに、榮譽をともに分かち合いたいと思います。

引 用 文 献

- 1) 村山 普・京極和旭・山口 洋・三宅西作: 薬剤学 **29**, 41 (1969)
- 2) 村山 普・山口 洋・丸山喜靖・朝比奈菊雄: 薬剤学 **31**, 22 (1971)
- 3) 村山 普・山口 洋・丸山喜靖・朝比奈菊雄: 薬剤学 **31**, 30 (1971)
- 4) S. Tsuda, K. Dohara & G. Shinjo: *Chem. Pharm. Bull.* **37**, 2777 (1989)
- 5) S. Tsuda, I. Nishibe & G. Shinjo: *J. Pesticide Sci.* **13**, 253 (1988)
- 6) M. S. Schechter, W. N. Sullivan & A. H. Yeomans: *J. Econ. Entomol.* **53**, 908 (1960)
- 7) G. P. Polli, W. M. Grim, F. A. Bacher & M. H. Yunker: *J. Pharm. Sci.* **58**, 484 (1969)
- 8) S. Tsuda, I. Nishibe & G. Shinjo: *J. Pesticide Sci.* **12**, 483 (1987)
- 9) J. J. Spillman: *Agric. Aviat.* **17**, 29 (1976)
- 10) S. Tsuda: *SP World*, No. 6, 2 (1986)
- 11) W. A. L. David: *Bull. Entomol. Res.* **37**, 1 (1946)
- 12) A. G. Kanellopoulos: *Chem. Ind.* **6**, 211 (1976)
- 13) V. M. Tsetlin, I. V. Bessonova & Y. B. Zhuk: *Int. Pest Control* **14**, 16 (1972)
- 14) K. Dixon & M. Davies: "The Formulation of Pesticides," Society of Chemical Ind., London, 1965
- 15) L. P. Schouest Jr., N. Umetsu & T. A. Miller: *J. Econ. Entomol.* **76**, 973 (1983)
- 16) 林 晃史: 薬局 **31**, 69 (1980)
- 17) S. Tsuda & Y. Okuno: *J. Pesticide Sci.* **10**, 621 (1985)
- 18) 辻 孝三: *J. Pesticide Sci.* **14**, 245 (1989)
- 19) 今井正芳・堀出文男・大坪敏朗・津田重典・辻孝三: 住友化学 **73**, 1990-II
- 20) 瀬崎 仁: ドラッグデリバリーシステム, シーエムシー, 南江堂, 東京, 1986

略歴

津田重典

生年月日: 1952年2月1日

最終学歴: 京都大学薬学部薬学科

趣 味: 音楽鑑賞, 飛行機, 野鳥観察