

各種ピラゾレート製剤の除草効果と田面水中 destosylpyrazolate濃度との関係

誌名	日本農薬学会誌
ISSN	03851559
著者	谷沢, 欽次 川久保, 克彦 河西, 史人
巻/号	12巻4号
掲載ページ	p. 651-658
発行年月	1987年11月

報 文

各種ピラゾレート製剤の除草効果と田面水中
destosylpyrazolate 濃度との関係*

谷 沢 欽 次, 川久保克彦, 河西 史 人
中 村 利 家**, 石 田 三 雄

三共株式会社農業研究所

(昭和 62 年 3 月 12 日受理)

Relationship between Herbicidal Efficacy of Pyrazolate Formulations
and Concentration of Destosylpyrazolate in Paddy Water*

Kinji TANIZAWA, Katsuhiko KAWAKUBO, Fumito KASAI,
Toshiie NAKAMURA** and Mitsuo ISHIDA

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

Studies were carried out to investigate the relationship between change in DTP (destosylpyrazolate) concentration in paddy water and herbicidal activity after pyrazolate [4-(2,4-dichlorobenzoyl)-1,3-dimethyl-5-pyrazolyl *p*-toluenesulfonate] treatment. Pyrazolate of technical grade was pulverized to provide water suspensions A, B and C which contained pyrazolate particles with a surface area of 1.13, 2.68 and 4.25 m²/g, respectively. Granules and microgranules were prepared by the extrusion method using suspension B. Test plots with or without drainage of paddy water were treated with the above five formulations. In paddy water DTP was found immediately after application, and only a small amount of pyrazolate remained throughout the test period. Correlation was found between the change in DTP concentrations in paddy water and the herbicidal performance. DTP concentration in a plot treated with suspension A was too low to show sufficient herbicidal efficacy. Suspensions B and C released DTP so fast that the herbicidal efficacy was not persistent under the draining condition, because the active ingredient had run out. The microgranular formulation released DTP in a manner similar to suspension B. A release of DTP was delayed and sustained in the granular formulation and the loss was small enough for DTP to show persistent herbicidal efficacy even under the draining condition.

緒 言

* ピラゾレート製剤に関する研究 (第 4 報) (第 3 報: 文献 2) 参照
Studies on Pyrazolate Formulation (Part 4).
For Part 3, see Ref. 2).

本研究の一部は第 5 回国際農薬化学会議 (1982 年 8 月, 京都) で発表した。

** 現在: 島根大学農学部

Present address: Department of Environmental Sciences, Shimane University, Nishikawatsu-cho, Matsue 690, Japan

前報までに筆者らはピラゾレート [4-(2,4-dichlorobenzoyl)-1,3-dimethyl-5-pyrazolyl *p*-toluenesulfonate] の除草効果には, 主剤の粒度¹⁾と田面水中における主剤粒子の分散性²⁾が影響を与えることを報告した。

水田用除草剤の主剤溶出性については多くの報告³⁻¹²⁾がある。島ら³⁾はピペロホス・ジメタメトリン粒剤で, 中山ら⁴⁾はベンチオカーブ・シメトリン粒剤で, 漆原⁵⁾は 3 種類のジフェニルエーテル系除草剤で, それ

ぞれ製剤物性と、有効成分の溶出性および除草効果の関係を報告している。また、一前ら⁹⁾はベンチオカーブの水中濃度に及ぼす漏水の影響を、和田ら^{7-9),12)}はFOE 1976でモデル水田における主剤の溶出性について報告している。ピラゾレートでは、鈴木と山田¹⁰⁾、田中ら¹¹⁾の田面水および土壌中の活性成分濃度の推移に関する報告があるが、除草効果との関係については述べられていない。

田面水中に溶出したピラゾレートは活性本体の4-(2,4-dichlorobenzoyl)-1,3-dimethyl-5-hydroxypyrazole(desotosylpyrazolate, DTP)に加水分解される。本報告では、主剤粒度および剤型の異なるピラゾレートを用いて、田面水中DTPの濃度と除草効果の関係を検討した。

実験方法

1. 供試製剤

懸濁剤は第2報¹⁾のTable 1湿式粉碎処方で、粒剤は第3報²⁾のTable 2の(1)の処方以下で下記の製剤を調製した。ピラゾレートの粒度は第1報¹³⁾のPE-CC法で測定し、Fig. 1に示した。

A: ハンマーミル(ウェットアトマイザー® EIIW 7.5型, 不二パウダル社)により、スクリーン径0.7mm, ハンマー回転数8500rpm, 供給量120kg/hrで1回粉碎した懸濁剤

B: 攪拌型粉碎機(アトライター® MA210S型, 三井三池製作所)により、直径4mmのステンレスボール2660kg, 攪拌数56rpm, 仕込み量560kgで60分間粉碎した懸濁剤

C: 攪拌型粉碎機(ビスコミル® CVM-2型, 五十嵐機械製造)に直径1.5~2.0mmのガラスビーズを1.6l充填し、回転数3080rpm, 供給量12l/hrで粉碎した懸

濁剤

B-G: 懸濁剤Bを用い、第2報の実験方法1.2)②と同じ方法で調製した粒剤, 粒剤1gの粒数は1900粒であった。

B-MG: 粒剤B-Gをハンマーミル(エックサンプルミル®, 不二パウダル社)により粗砕し, 粒径0.500~0.105mmの範囲をふるい分けた微粒剤

2. 除草効果試験

1×1mの屋外コンクリートポットに滋賀県草津市の水田土壌(Table 1)を詰め, 千代田化成肥料® 14-8-14を400kg/haの割合で加え, 加水して深さ15cmの土と混和後代かきした。タイヌビエ(*Echinochloa oryzicola*), ホタルイ(*Scirpus juncooides*)は種子を各3および1gを表土0.5cmに混和は種し, ミズガヤツリ(*Cyperus serotinus*)は塊茎5個を土壌表面に置き, ウリカワ(*Sagittaria pygmaea*)は塊茎10個を深さ1cmに植え付けた。水稲(日本晴, 2.3葉期, 10.9cm)は1株2本仕立てで12株を移植し, 水深は5cmとした。広葉雑草は自然発生に任せた。

3日後に, 排水区にはピラゾレートとして1, 2kg/ha, 無排水区には0.5, 1, 2kg/ha(有効成分量, 以下a.i.と略記する)を各3連反復で処理した。懸濁剤は各薬量を分散媒(ネオコールSWCE®の0.1w/v%水溶液)で50mlに希釈してコマゴメペットでかん注し, 粒剤および微粒剤は均一に手まきして処理した。

試験期間中の水管理は以下に行なった。

(排水区) 薬剤処理は水深5cmで行なった。処理24時間および2, 3日後に深さ3cm分の水をポット側面を開けた穴より排除し, ただちに処理面を乱さないようにして補水し, 水深を5cmに戻した。4日目に降雨のため約8cmの深水状態となったので, 深さ約5cm分の水

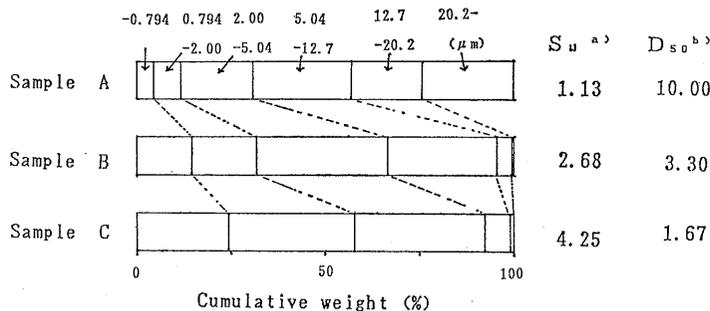


Fig. 1 Particle sizes of pyrazolate.

Sample A: pulverized with Wet-atomizer® EIIW7.5, Sample B: pulverized for 60 min with Attritor® MA210S, Sample C: pulverized with Visco-mill® CVM-2, ^{a)} Specific surface area (m²/g), ^{b)} Median diameter (μm).

Table 1 Physical properties of soil used in the pot test.

Location	Kusatsu-shi, Shiga
pH (H ₂ O) ^{a)}	6.72
CEC (me/100 g) ^{b)}	9.85
Humus (%) ^{c)}	3.58
Coarse sand (%) ^{d)}	9.7
Fine sand (%) ^{d)}	30.2
Silt (%) ^{d)}	41.6
Clay (%) ^{d)}	18.5
Soil texture ^{e)}	Clay 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.

を排除し、水深を 3 cm とした。以後は排水は行わず、毎日夕刻に蒸発分だけ補給して水深を 3 cm に保った。

(無排水区) 排水区と同様に薬剤を処理し、初めの 3 日間は排水せず、夕刻に蒸発分だけ補給して水深を 5 cm に保った。4 日目に排水区と同様に約 5 cm 分の水を排除したが、以後は毎日夕刻に補給するのみで水深を 3 cm に保った。

試験は昭和 56 年に実施し、日程等は次のとおりであった。

代かき: 8月20日, 田植え・雑草植え付け: 8月21日, 薬剤処理: 8月24日, 中間調査: 8月28日, 9月3日, 7日, 24日, 最終調査: 9月24日, 気温: 試験中の最高気温 33.5°C, 最低気温 17°C, 田面水温: 試験中の最高水温 37.5°C, 最低水温 17.5°C, 降雨: 8月26日(3.1 mm), 28日(27.0 mm), 29日(5.3 mm), 30日(0.2 mm), 9月4日(17.0 mm), 8日(9.0 mm)

除草効果および薬害の判定は次のように行なった。

中間調査: 除草効果と薬害を観察調査した。効果は 5 (効果極大)~0 (無効) の 6 段階で評価した。

最終調査: 残草を抜きとり、地上部生体重を測定し、無処理区に対する残草率 (%) を求めた。

3. 田面水の採取と分析法

a. i. 1 kg/ha 処理区から以下により田面水を採取した。

(排水区) 処理 1, 2, 3, 4 日目の排水時に、反復 3 ポットから各排水量に比例した水量を採取し、混合して合計 500 ml とした。7, 14, 21 日目は反復 3 ポットから、

Paddy water 200 ml in a shaking flask

—Adding 1 N NaOH aq. solution (pH 10)

—Extracting with CH₂Cl₂ 60 ml, 3 times

Aq. layer (DTP)

CH₂Cl₂ layer (pyrazolate)

—Adding 1 N H₂SO₄ (pH 2)

—Extracting with CH₂Cl₂
80 ml, twice

CH₂Cl₂ layer

—Removing CH₂Cl₂ at 60°C

—Adding 3 ml of acetone, 1 ml of TsCl solution,^{a)} and 0.1 ml of Na₂CO₃ solution^{b)}

—Tosylation at 50°C for 1 hr

—Removing acetone

—Translation into a shaking flask with 25 ml of CH₂Cl₂

—Adding 25 ml of 0.1 N NaOH aq. solution

—Extracting with 25 ml of CH₂Cl₂, twice

—Column chromatography with deactivated alumina^{c)} (Developing solvent: 2.5% acetone in hexane)

Pyrazolate fraction

Determination of the active ingredients by GC

{ Detector: ECD, Column: glass column of 2 mm × 50 cm packed with Gas Chrom Q 80-100 mesh coated with 2% of SP 2401, Column oven temp. 230°C, Gas: P-5 gas, 60 ml/min.

Fig. 2 Analytical procedure of DTP and pyrazolate in paddy water.

^{a)} 0.1% acetone solution of *p*-toluenesulfonyl chloride. ^{b)} 1% aq. solution of Na₂CO₃. ^{c)} Alumina (Woelm® neutral alumina for column chromatography) deactivated with 10% of purified water after activation at 130°C for 2 hr.

170 ml ずつをビーカーですく取って均一に混合した。

(無排水区) 処理 4 日目は、排水区と同じ方法で田面水を採取した。他の採水日には排水区の 7 日目を降と同じ方法で田面水を採取した。

田面水中の DTP, ピラゾレート濃度は Fig. 2 の方法により定量した。無処理区田面水に DTP を 0.2, 0.02 ppm 添加したときの本法の回収率, 分析精度は次のとおりであった。

0.2 ppm: 回収率 94.5%, 変動係数 7.2% (n=6)

0.02 ppm: 回収率 91.6%, 変動係数 7.6% (n=6)

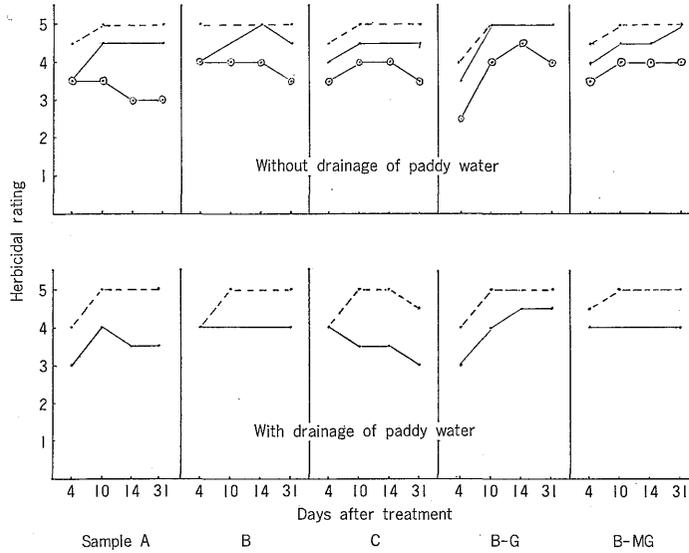


Fig. 3 Visual evaluation of herbicidal activity against barnyardgrass (*Echinochloa oryzicola* VASING) after treatment of pyrazolate formulations.

Herbicidal ratings are shown as follows. 5: growth inhibition 100-91%, 4: 90-71%, 3: 70-51%, 2: 50-31%, 1: 30-11%, 0: 10-0%, -----: Dose amount=a.i. 2 kg/ha, ———: 1 kg/ha, ○—○: 0.5 kg/ha.

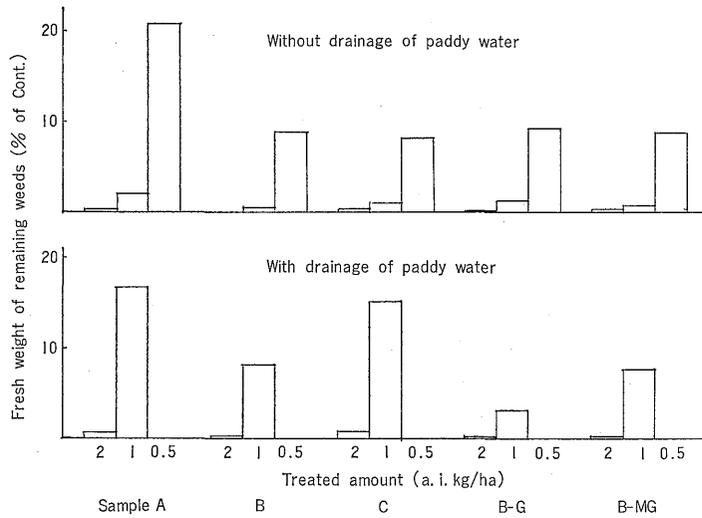


Fig. 4 Herbicidal efficacy by treatment of pyrazolate formulations.

実験結果

1. 除草効果

Fig. 3 に除草効果の中間観察結果を, Fig. 4 には最終調査結果を示した。

中間観察で, 粒剤 B-G の除草効果は処理4日目では

や悪かったが, 10日目以降は排水区・無排水区とも高い効果を示すようになった。懸濁剤Bと微粒剤 B-MG は試験期間中の効果は高かったが, Bは無排水区で残効切れの傾向を示した。懸濁剤Cは初期に比較的高い効果を示したが, とくに排水区で残効切れが目立った。懸濁剤Aは排水区, 無排水区とも全期間を通して除草効果が劣

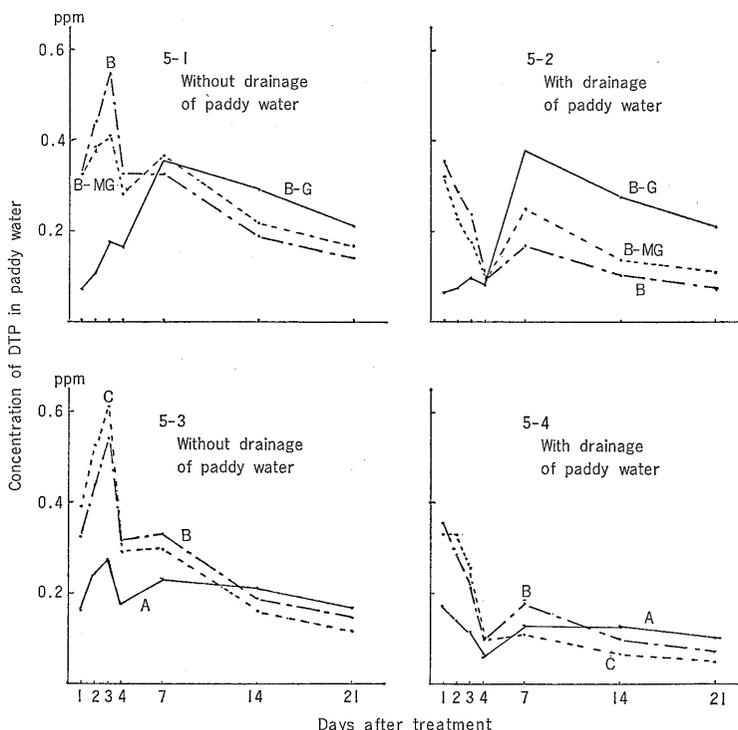


Fig. 5 Change of DTP concentration in paddy water after treatment of pyrazolate formulations.

Pyrazolate was treated at a rate of 1 kg/ha. Paddy water was diluted with rain on the 4th day.

った。

最終調査で、無排水区の除草効果はAが劣った以外はすべて同等であった。排水区では、B-Gが最も優れ、次いでB-MG、Bの順で、A、Cは劣った。

稲に対する葉害はどの区にもみられなかった。

2. 田面水中 DTP 濃度の推移

田面水中 DTP 濃度の推移を Fig. 5 に示した。Fig. 5 の 5-1, 5-2 はそれぞれ無排水区、排水区における懸濁剤 B, 粒剤 B-G, 微粒剤 B-MG の結果で、剤型の違いによる DTP 濃度の推移の差を示している。無排水区で、懸濁剤 B は処理翌日から DTP 濃度が急速に上昇し、3 日目には最高濃度を示したが、その後は急速に減衰した。一方、粒剤 B-G では処理後徐々に DTP 濃度が増加し、7 日目に最高濃度となった後、以降は緩やかな減衰を示した。この場合、ピラゾレートは長期間にわたり溶出し続けるものと考えられた。微粒剤 B-MG は、比較的速やかに DTP 濃度が高くなり、4~7 日目には最高濃度に達した。その後の減衰は B に近い比較的早い減衰を示した。排水区での排水の影響をみると、B は処理直後に DTP が多く生成し、排水により大量の DTP が失われた

ため、排水中止後の DTP 濃度が低く推移した。逆に、B-G は初期の DTP の生成が少ないため流亡の影響は小さく、排水中止後の 7 日目には無排水区と同等の DTP 濃度となり、その後も無排水区と同様の減衰を示した。B-MG は両者の間で推移したが、排水の影響により無排水区の濃度レベルには達しなかった。Fig. 5 の 5-3, 5-4 は懸濁剤における主剤粒度の影響を示している。無排水区で、粒度が細かい C および B 区では、DTP 濃度は処理直後から急激に上昇したが、最高に達した後の減衰も早かった。一方、粒度の粗い A は期間中ほぼ一定の DTP 濃度を維持したが、全体に低位で推移した。どの懸濁剤でも、DTP 濃度は 3 日目で最高に達した。排水区では、C は排水の影響が大きく、7 日目以降の DTP 濃度は著しく低下し、排水中止後も DTP 濃度は回復しなかった。B の DTP 濃度は、7 日目にわずかに上昇したが、以降は無排水区の約 1/2 の濃度で推移した。A は 7 日目にやや高くなり、その後もこれとほぼ同レベルが維持された。しかし、3 懸濁剤とも、同条件下の粒剤 B-G に比べると、7 日目以降の DTP 濃度は 1/2~1/3 にすぎなかった。

Table 2 Active ingredients detected in drained water and in paddy water remaining after the drainage of the 4th day.

Pyrazolate formulation ^{b)}		Active ingredients runout with drained water (% of treated amount) ^{a)}					Active ingredients in paddy water (% of treated amount) ^{d)}
		Days after treatment				Total	
		1	2	3	4		
A	P ^{e)}	0.4	nd	0.4	0.8	25.3	2.6
	D ^{e)}	7.6	6.5	4.9	4.7		
B	P ^{e)}	1.2	0.5	nd	nd	47.7	4.4
	D ^{e)}	15.9	12.9	9.6	7.6		
C	P ^{e)}	4.8	t	nd	t	51.8	4.1
	D ^{e)}	13.9	15.4	10.4	7.3		
B-G	P ^{e)}	nd	nd	t	t	17.3	3.4
	D ^{e)}	2.7	3.4	4.4	6.8		
B-MG	P ^{e)}	0.4	nd	t	1.5	40.9	4.0
	D ^{e)}	14.2	10.3	7.6	6.9		

a) Pyrazolate was treated at a rate of 1 kg/ha.

b) A, B, C; Pyrazolate suspension. B-G; Granules formulated by using B. B-MG; Microgranules made of B-G. See Fig. 1 for particle size of pyrazolate.

c) P; Pyrazolate. D; DTP. Amounts of DTP were calculated as pyrazolate equivalent. nd: Not detected. t: Trace amount.

d) Amounts of DTP in paddy water remaining after the drainage of the 4th day.

3. 活性成分の流亡

排水区において4日目までの排水とともに流亡した活性成分の量、および4日目の排水後ポット中に残存する田面水中のDTP量をTable 2に示した。DTP量はピラゾレート当量に換算し、処理薬量に対する百分率で示した。

製剤間で活性成分の流亡量の差は顕著で、粒度の粗い懸濁剤Aでは流亡量は少なかったが、粒度の細かい懸濁剤BおよびCでは流亡量は多く、処理薬量の約50%に達した。一方、粒剤B-Gの流亡量は供試製剤中でもっとも少なく、Bの約1/3であった。微粒剤B-MGは流亡量が多く、懸濁剤Bに近かった。どの区でもピラゾレートとしての流亡量はごく少なく、粒度の細かい懸濁剤でも処理翌日には田面水中に浮遊または溶解しているピラゾレートはほとんどないと考えられる。また、処理後4日間に排水および田面水中に検出された活性成分の量はBおよびCでは処理薬量の50%以上に達した。DTPは光分解することが知られており、田面水中での半減期は約6日とされている¹⁴⁾。また、土壌吸着量は土性や温度、田面水中のDTP濃度により異なり、処理4日目の土壌に吸着されているDTP量が処理量の何%に相当するかを推定することは難しいが、風乾細土2gにDTPの100 ppm水溶液20 mlを加えて吸着平衡に達するまで振と

う後、新鮮な薬液に交換して10回吸着実験を繰り返した後の土壌1g当りのDTP吸着量は2~6 mgとなり、なお飽和に達しなかったとされている¹⁵⁾。またピラゾレートを散布した水田の土壌中DTP濃度は散布直後から高い値を示したと報告されている¹⁶⁾ことから、確認された以外にも相当量のDTPが生成していたと考えられる。本研究で確認された以外のこれらの部分を考慮するとB、Cでは4日後にはピラゾレート粒子として残存する量はごく少量であったと推定される。一方、粒剤B-Gの4日目までの総検出量は処理量の約20%にすぎず、DTPの光分解や土壌吸着を考慮しても、まだ大量のピラゾレート粒子が水田中に残存していたと考えられる。B-MGの総検出量は処理薬量の約45%でBに近く、主剤粒度の粗い懸濁剤Aは総検出量が低かった。

考 察

ピラゾレートの粒度、および製剤型の違いによる田面水中での主剤の分散の差が、活性本体であるDTPの田面水中濃度に影響するため、ピラゾレートの除草効果が大きな影響を受けることが明らかになった。元来、ピラゾレートは水溶解度の大きいDTPをエステル化し、難溶性にすることによって稲に対する安全性を高め、残効性を付与した化合物である。生成したDTPは、一部は

田面水中に溶出し、一部は土壤表層に吸着され平衡関係を保ちながら、除草効果を発揮しているが、本研究では、田面水中の DTP 濃度の推移と除草効果の経過とがよく一致していた。Table 2 に示したように、処理後 4 日間の活性成分の溶出量は、粒度の粗い懸濁剤では少なく、粒度が細くなるに従って多くなった。また、懸濁剤を粒剤にすると溶出は著しく抑制され、この粒剤を粗砕した微粒剤では、元の懸濁剤に近い溶出量となった。一方、Fig. 5 で明らかなように、DTP 濃度は懸濁剤では速やかに最高に達し、以後急激に減衰したが、微粒剤、粒剤へと田面水中での主剤粒子の分散性が抑制されるに従い、最高濃度に達するまでの時間が長くなり、以後の減衰も緩やかになった。主剤粒度、および剤型の違い、つまり、田面水中での主剤粒子の分散の差で、田面水中への DTP の生成速度が著しく異なるわけである。処理直後に田面水の流亡がある場合には、このような生成速度の違いは除草効果に大きな影響を与える。一方、DTP は雑草の発芽時に作用すると高い除草効果を発現する。一般に、雑草の発芽は耕起入水と同時に始まると考えられるが、この時期には土壤が安定していないことや畦畔からの漏水などのため、田面水は流亡することが多い。田面水の流亡のある条件では、DTP の生成が早い B より生成の抑制された B-G の効果が高かった。これは処理後早い時期に生成した DTP が田面水とともに流亡したのが原因で、この時期には DTP の生成は抑制されるのが望ましい。一方、A の除草効果が悪かったことから考えると、雑草の発芽以前に、いったん DTP が最低有効濃度にまで達していることも必要である。この点に関して本間ら¹⁶⁾は、冷涼な時期の処理では 10 日後、温暖な時期では 5 日後の田面水中 DTP 濃度が重要で、これが 0.3 ppm 以上の場合にきわめて高い除草効果が得られることを認めている。また、無排水区でも B や C では残効不足の傾向がみられたことから、この濃度はできるかぎり維持されることが望ましい。製剤技術によってピラゾレートの有効性を高めるには、水の流亡や雑草の発芽状態を考えて、このような DTP の濃度が達成されるように、主剤粒度と主剤粒子の田面水中における分散とを調節することが重要である。どちらか一方だけでは不十分で、両者が最適の組合せになったときに、ピラゾレートは高い除草効果を発現すると考えられる。その意味で、粒剤 B-G (ピラゾレートの比表面積 $2.68 \text{ m}^2/\text{g}$ 、1 g 当りの粒数 1900 粒、10 度硬水中で良好な崩壊分散性を示す) は本実験条件下では上記のような要件を満たしたピラゾレート製剤であるということができよう。

本研究は、高温期に処理直後の降雨による流亡を想定

して行なった。ピラゾレートの溶出および加水分解速度や、雑草の生育は温度依存性が高い。水田用初期除草剤は、早期栽培では、冷涼な時期に使用される。このような条件では、除草効果に必要なピラゾレートの溶出性は、本研究の結果とは異なるかもしれない。これについては次報で報告する。

要 約

比表面積 (S_w) $1.13, 2.68, 4.25 \text{ m}^2/\text{g}$ のピラゾレート含有する 3 種類の懸濁剤を調製した。また、 $S_w 2.68 \text{ m}^2/\text{g}$ のピラゾレートを押し出し造粒法による粒剤、微粒剤を調製した。これらを屋外のポットに処理し、田面水の流亡のある条件とない条件で、除草効果と、田面水中 DTP 濃度の推移ならびに活性成分の流亡との関係を調べた。

その結果、田面水中 DTP 濃度の推移と除草効果の発現過程には明瞭な関連がみられた。粒度の細かいピラゾレート懸濁剤は、活性本体である DTP が早く生成するため流亡の影響を受けやすく、残効性が不足した。粒度の粗い懸濁剤は田面水中の DTP 濃度が低く、除草効果は劣った。一方、粒剤では、DTP の生成が遅延され、かつ持続的であった。このため、流亡の影響は小さく残効性にも優れ、排水、無排水の両条件下で安定した除草効果を示した。微粒剤は懸濁剤に近い溶出性を示し、除草効果も粒剤に比してやや劣った。

終りに本研究に当たり実験の一部を担当していただいた寺村正弘、田井中昌子の両氏に深甚なる謝意を表します。

引用文献

- 1) 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: 農業誌 12, 635 (1987)
- 2) 谷沢欽次・本間豊邦・河西史人・川久保克彦・中村利家: 農業誌 12, 643 (1987)
- 3) 島 芳郎・磯崎之信・明石寛治: 雑草研究第 21 巻別号第 15 回講演会講演要旨, pp. 64-66, 1976
- 4) 中山治彦・則武晃二・塚本伸也・坂本 彬・安達享一・箕輪正夫: 雑草研究第 22 巻別号第 16 回講演会講演要旨, pp. 4-5, 1977
- 5) 一前宣正・竹松哲夫・竹内安智: 雑草研究第 22 巻別号第 16 回講演会講演要旨, pp. 75-76, 1977
- 6) 漆原久幸: 雑草研究 6, 21 (1967)
- 7) Y. Wada, T. Nakahara, H. Orii, Y. Okano, M. Aya, Y. Yasui, S. Kamochi, Y. Yamada, O. Katsumata & S. Sakawa: Abstr. The Fifth Int. Congr. Pestic. Chem., VII S-3, 1982

- 8) 和田 譲・中原武良・岡野良則・安井一臣・加持集三・綾 正弘: 日本農薬学会大会講演要旨集(昭和57年度), p. 304, 1982
- 9) 中原武良・鈴木衆一・澤藤禎子・和田 譲: 日本農薬学会大会講演要旨集(昭和59年度), p. 62, 1984
- 10) 鈴木隆之・山田忠雄: 日本農薬学会大会講演要旨集(昭和60年度), p. 94, 1985
- 11) 田中文隆・柴田吉有・浜田虔二・園田正則・卷淵進・上園孝雄: 日本農薬学会大会講演要旨集(昭和60年度), p. 138, 1985
- 12) 西 康司・和田 譲: 日本農薬学会大会講演要旨集(昭和61年度), p. 112, 1986
- 13) 谷沢欽次・河西史人: 三共研年報 **37**, 121 (1985)
- 14) 山岡 剛・安藤 満・辻野泰宏・中川昌之: 未発表
- 15) 山岡 剛・当寺ヶ盛学: 未発表
- 16) 本間豊邦・新藤正宏・川久保克彦・谷沢欽次・辻野泰宏: 未発表