

液は FeCl<sub>3</sub> に依り赤紫色を呈する。

全く同様にして得られる。

16. 天然 asobogenin triacetate (VII) 上記合成品と

### Résumé

Asbotin is one of the toxic components of stagger bush (*Pieris japonicum* D. Don). In order to determine the chemical constitution of its aglycon, aselogenin, the synthesis of phloretin-4-methylether (VII) was tried and succeeded: Phloretinic acid (V) was changed into acid chloride after being protected OH-group by methylchlorocarbonate. Between this acid chloride and phloroglucin, the Friedel-Crafts reaction was carried out. p'-carbomethoxyphloretin (V, mp. 120-122), thus obtained, could be easily changed into phloretin (X) by saponification. The methylation of p'-carbomethoxyphloretin was carried out by diazomethane, and after saponification, phloretin-4-methylether (VII) was separated from the reaction mixture. Phloretin-4-methylether, thus synthesized, was identified with natural asobogenin (VII) and furthermore, its triacetate was also identified. By this experiment, it has been proved that asobogenin is phloretin-4-methylether, as K. Tamura and S. Murakami assumed.

## Testing the Larvicidal Effect of the Household Insecticidal Emulsions against the Larva of the Common Housefly. Studies on the Biological Assay of Insecticides. IV.

Wataru OHSAWA and Sumio NAGASAWA. (Zoological Institute, Faculty of Science, Kyoto University, and Prof. Takei's Laboratory, Institute for Chemical Research, Kyoto University.) Received April 20, 1949. *Botyu-Kagaku* 12: 9-12, 1949 (With English Résumé, p. 11).

### 防疫用殺虫剤のハイのウジにたいする効力試験\* 殺虫剤の生物試験にかんする研究 第4報

大澤 濟・長澤 純夫(京都大薬理學部動物學教室・京都大薬化學研究所武居研究室) 21. 4. 20 受付

#### I 緒 言

殺虫試験の具備すべき第1の条件はその方法が精密であるということである。すなわち操作による誤差が小さいことである。第2には、その方法がなるべく現実に即していることが望ましい。薬剤の効力の相対的な差異が正確に示されると同時に、おのおのの薬剤を實際に使用した場合の効果が試験結果からはほぼ推定できるような方法が理想的である。しかしながら、このような方法を見出すことは多くの場合なかなか困難であつて、2つの条件のうちどちらかを犠牲にしなければならないような場合がしばしば起る。たとえば試験方法によつて薬剤の相対的な効力がいちじるしく異なるようなときには、出来るだけ實際的な試験方法を選び、正確度は供試昆虫の個体数や試験回数を大きくすることによつて、補わなければならない。

筆者らはハイのウジを材料として防疫用殺虫剤の殺虫効力を検定するための標準方法を定めようとして、浸漬法や噴霧法などをいろいろ試みたが、いずれも満足するような結果は得られなかつた。成虫にくらべてウジは抵

抗力がいちじるしく強く薬剤を短時間接觸させただけではなかなか死なない。そのうえ生死の判別がまなはだ難しい。そこで、薬剤が實際に撒布せられた場合を考慮して、以下述べるような低濃度の薬剤に長時間接觸させる試験方法を暫定的に標準方法として選び、これによつて厚生省規格防疫用除虫菊石油乳剤の検定を行つてきた。ここにこの方法による結果の1つを例にあげて統計的な検討を加えてみようと思ふ。

薬剤の調製その他について多大の援助を與えられた京都大薬化學研究所武居研究室の各位、ならびに實驗や計算を手傳つていただいた渡島信子氏に深く感謝する。

#### II 材料と方法

供試薬剤：除虫菊石油乳剤、DDT石油乳剤、石油乳剤の3種である。すべて武居研究室で調製されたもので、その處方は第1表のごとくである。これらを原液として種々の割合に水でうすめたものを用いた。

供試昆虫：イエバイ *Musca domestica* L. の第3令幼虫を用いた。25°Cの恒温室でイーストを加えた馬糞によつて飼育したものである。

方法：内径9.2cm、高さ4.0cmのシャーレに新鮮な馬糞30gをとり、その上に種々の割合に水でうすめた供

\* 日本特殊農産物協会除虫菊検査所生物試験部研究業績 5.

第1表 供試乳剤の處方

| 成分              | 除虫菊石油乳剤 | DDT石油乳剤 | 石油乳剤 |
|-----------------|---------|---------|------|
| 9.98%除虫菊エキス (g) | 6.38    | —       | —    |
| DDT (g)         | —       | 4.75    | —    |
| 軽油 (cc)         | 259.    | 256.    | 260. |
| ヨネゾール (g)       | 20.     | 20.     | 20.  |
| ロート油 (g)        | 15.     | 15.     | 15.  |
| 水 (cc)          | 107.    | 110.    | 106. |
| ベントナイト (g)      | 4.      | 4.      | 4.   |

試乳剤 10 cc を一様にそそいだのちウジを 20 個体入れる。同じ型のシャーレで覆いをしてウジの逸脱を防いで 25°C の恒温室のなかに数日間放置し、蛹化するかしなにかによつて生死を判別する。1つの試薬について同じ実験を 25 回繰返した。なお対照としては水を用いた。

結果と考察

3種の乳剤および対照における  $x$  個体死んだシャーレの數  $f$  を第 2 表に示す。D は稀率である。

第2表 致死個体數の分布 (f)

| D \ r   | 0  | 1 | 2 | 3 | 4 | 5 | 6 | 7 | 8 | 9 | 10 | 11 | 12 | 13 | 14 | 15 | 16 | 17 | 18 | 19 | 20 |
|---------|----|---|---|---|---|---|---|---|---|---|----|----|----|----|----|----|----|----|----|----|----|
| 除虫菊石油乳剤 |    |   |   |   |   |   |   |   |   |   |    |    |    | 1  | 1  | 1  | 1  | 1  | 2  | 5  | 12 |
| 20      |    | 2 |   | 1 | 1 | 1 |   | 1 |   | 1 | 1  |    |    |    |    | 1  |    | 4  | 1  | 2  | 9  |
| 40      | 5  | 4 | 5 | 2 | 1 |   |   | 1 | 1 |   |    |    |    | 1  |    |    |    |    |    |    | 2  |
| 80      | 7  | 5 | 5 | 1 | 2 | 1 | 3 |   | 1 |   |    |    |    |    |    |    |    |    |    |    | 2  |
| 160     | 15 | 7 |   | 2 |   |   |   |   |   | 1 |    |    |    |    |    |    |    |    |    |    |    |
| 320     | 17 | 5 | 1 | 1 | 1 |   |   |   |   |   |    |    |    |    |    |    |    |    |    |    |    |
| DDT石油乳剤 |    |   |   |   |   | 1 |   |   |   |   |    |    |    |    | 1  | 3  |    | 1  | 2  | 4  | 13 |
| 20      |    |   |   |   |   |   |   |   |   |   |    |    |    |    |    |    |    |    |    |    |    |
| 40      | 2  | 2 | 4 | 1 | 2 | 1 | 1 | 2 | 1 | 3 |    |    |    | 1  | 1  |    | 1  | 1  | 2  |    |    |
| 80      | 9  | 5 | 3 | 2 |   | 3 | 2 | 1 |   |   |    |    |    |    |    |    |    |    |    |    |    |
| 160     | 11 | 5 | 4 | 1 | 1 |   | 1 |   |   |   |    |    |    |    | 1  |    |    |    |    |    | 1  |
| 320     | 18 | 4 | 1 | 2 |   |   |   |   |   |   |    |    |    |    |    |    |    |    |    |    |    |
| 640     | 22 | 2 | 1 |   |   |   |   |   |   |   |    |    |    |    |    |    |    |    |    |    |    |
| 石油乳剤    |    |   |   |   |   |   |   | 1 | 1 | 1 | 1  | 1  | 1  | 2  | 1  | 1  | 2  | 2  | 1  | 10 |    |
| 5       |    |   |   |   |   |   |   |   |   |   |    |    |    |    |    |    |    |    |    |    |    |
| 10      | 1  |   | 1 |   | 1 |   |   |   |   |   |    |    | 3  | 5  |    | 1  | 1  | 4  | 2  | 4  | 2  |
| 20      | 1  | 3 | 1 | 1 | 1 | 3 |   | 2 | 4 |   |    | 4  |    | 1  | 1  |    | 1  |    |    |    | 2  |
| 40      | 9  | 6 | 4 | 3 |   | 2 | 1 |   |   |   |    |    |    |    |    |    |    |    |    |    |    |
| 80      | 14 | 6 | 1 | 1 |   | 1 | 2 |   |   |   |    |    |    |    |    |    |    |    |    |    |    |
| 160     | 20 | 4 | 1 |   |   |   |   |   |   |   |    |    |    |    |    |    |    |    |    |    |    |
| 対照(水)   | 21 | 4 |   |   |   |   |   |   |   |   |    |    |    |    |    |    |    |    |    |    |    |

ある乳液によつてウジの死ぬ確率を  $p$ 、死なない確率を  $q(=1-p)$  とすると、実験方法が十分精密であるならば、 $n$  頭のうち  $r$  頭が死ぬ確率は理論的に 2 項展開  $(q+p)^n$

の第  $r+1$  番目の項で表される。したがつて  $N$  回実験を繰返したとすると  $r$  の期待度數  $F$  は

$$N(q+p)^n$$

の展開項に相當する。この実験では  $n=20$ ,  $N=\sum f=25$  である。ところが第 2 表をみても判るように致死個體數  $r$  は多くの場合きわめて不規則に分布して 2 項分布とみなすことは無理である。2 項分布とみなしてよいかどうかを實際に檢定するには、 $f$  がかなり大きいときには

$$\chi^2 = \frac{N(F-f)^2}{F}$$

が近似的に自由度  $N-1$  の  $\chi^2$  分布をすることを利用するが、この場合は  $f$  が小さいからこの方法は不適當である。FISHER (1924) によると、2 項分布をする小試料では撒布指數

$$\chi^2 = \frac{\sum f(r-\bar{r})^2}{npq}$$

はだいたい自由度  $N-1$  の  $\chi^2$  分布をするものとみなし

てさしつかえない。 $\bar{r}$  は  $r$  の算術平均である。 $p$  は判らないからこれを統計値

$$P = \frac{\sum fx}{nN}$$

で置き換える。この場合自由度は 21 であつて撒布指數が 42、980 より大きければ 0.01 以下の危険率で試料が 2 項分布をするという假説は棄てられる。實際に計算してみると  $\chi^2$  はいつても非常に大きくなる。第 3 表に除虫菊石油乳剤にかんするものを示す。

第3表 除虫菊石油乳剤による致死個體數の撒布指數

| D        | 10   | 20    | 40     | 80   | 160   | 320  |
|----------|------|-------|--------|------|-------|------|
| $\chi^2$ | 91.9 | 259.9 | 3142.9 | 68.2 | 103.0 | 48.1 |

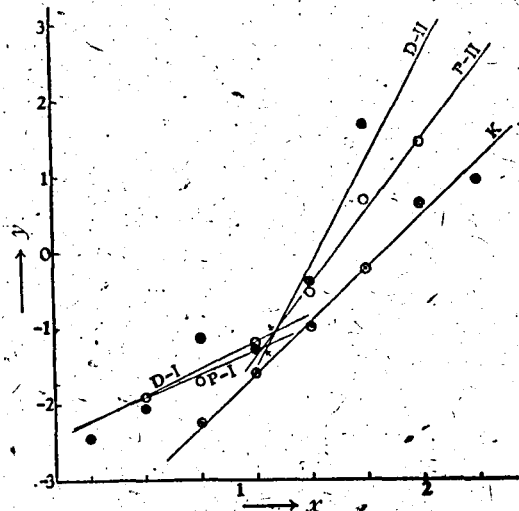
このように撒布指数が大きくなる原因としては供試昆虫の抽出が random でなかつたこと、馬糞と薬剤の混りかたが均質でなかつたことなどが考えられる。これらの誤差の要因を除くことは困難であるから、この方法によつて試験を行うときには実験回数  $N$  (すなわちシャーレの数) をなるべく大きくする必要がある。

つぎに  $D$  と平均致死百分率  $P \times 100$  との関係を第 4 表に示す。対照の水では 0.8% である。

第 4 表 稀薄度  $D$  にたいする致死百分率  $P \times 100$

| D           | 5    | 10   | 20   | 40   | 80   | 160 | 320 | 640 |
|-------------|------|------|------|------|------|-----|-----|-----|
| 除虫菊<br>石油乳劑 |      | 91.6 | 74.0 | 29.6 | 11.4 | 4.4 | 2.8 |     |
| DDT<br>石油乳劑 |      | 90.8 | 35.4 | 10.2 | 11.8 | 2.0 | 0.8 |     |
| 石油乳劑        | 83.0 | 72.2 | 40.0 | 16.6 | 5.4  | 1.2 |     |     |

濃度を  $O = 1000/D$  として、 $P$  の正規相違偏差  $y$  を  $z = \log O$  にたいしてとつたところの變換せられた濃度-致死率關係は第 1 圖のようになる。白丸は除虫菊石油乳劑、黒丸は DDT 石油乳劑、2 重丸は石油乳劑である。



第 1 圖 變換せられた濃度-致死率關係とそれより計算した回歸直線。白丸は除虫菊石油乳劑、P-I と P-II はその第 I、第 II 回歸直線；黒丸は DDT 石油乳劑、D-I と D-II はその第 I、第 II 回歸直線；2 重丸は石油乳劑；矢印は第 I と第 II 回歸直線との交点。

除虫菊石油乳劑と DDT 石油乳劑とにおいては回歸直線は明かに 2 つの部分に分れている。第 I 回歸直線

P-I と D-II とはほぼ一致しているが、これは石油乳劑の回歸線  $K$  とは異つたものであつて、石油の致死作用は表面には現れていない。主劑である pyrethrin や DDT と補助劑とのあいだに複雑な相互作用があるものと推定せられる。

計算によつて求めた回歸直線

$$y = \frac{1}{\sigma} (x - m)$$

の parameter である標準偏差  $\sigma$  と中央値  $m$ 、および回歸直線と實測値とのあいだの  $\chi^2$  にたいする確率  $P_r$  を第 5 表に示す。

第 5 表 回歸直線の parameter、標準偏差  $\sigma$  と中央値  $m$ 、および回歸直線と實測値のあいだの  $\chi^2$  にたいする確率  $P_r$

|     | $\sigma$ | $m$  | $P_r$ |      |
|-----|----------|------|-------|------|
| P { | I        | 0.97 | 2.24  | 0.23 |
|     | II       | 0.33 | 1.53  | 0.31 |
| D { | I        | 0.85 | 2.07  | 0.16 |
|     | II       | 0.22 | 1.44  | 0.02 |
| K   | 0.44     | 1.81 | 0.21  |      |

D-II を除くほかはすべて  $P_r$  が 0.05 よりはるかに大きいから 1 次變換の假説は棄てなくてもよい。

個々の実験における致死個体数  $r$  が 2 項分布をしているという假説は棄てられたけれども、実験の回数  $N$  を相當大きくして濃度-致死率回歸直線を計算によつて求めるならば、以上の方法による殺虫効力の判定にはかなり信頼がおけるものと考えられる。

#### IV 要 約

防疫用殺虫劑の檢定のために筆者らがこれまで採用してきた、うすい薬液を加えた馬糞のなかでウジを飼育して蛹化の有無によつて生死を判別するという方法を紹介しその 1 つの結果を統計的に吟味した。n 頭のうちの致死個体数  $r$  は理論的に期待せられるように 2 項分布をすることはみなし得ないが、このような実験をかなりの回数繰返して濃度-致死率回歸直線を計算してみると全体としての誤差はそれほど大きくはない。

#### 文 献

FISHER, R. A., 1934, Statistical methods for research workers. 5th ed. Oliver and Boyd.

#### Résumé

The writers gave a brief description about a new method for assaying the household insecticidal emulsions using the larvae of the common housefly, *Musca domestica* L., and examined statistically some of the results obtained.

1. The 3rd instar larvae are put in a glass pot containing horse manure to which a small amount of diluted test emulsion has been added, and reared at a constant temperature until pupation, which serves as a distinct indicator for discriminating the survivors from the dead.

2. It was shown that the distribution of the number of dead individuals in a series of experiments with a given dose is far from being binomial, but that the discrepancy between observations i. e. the mean mortalities and the dosage-mortality regression line computed is rather small.

(Contributions from the Division of Bioassay, Pyrethrum Inspection Bureau of Japan Special Agricultural Product Association No. 5.)

**On the Lethal Effects of the Household Pyrethrum Emulsion to the Pupa of the Common House Mosquito (*Culex pipiens* var. *pallens* Coquillett): Studies on the Biological Assay of Insecticides.** V. Sumio NAGASAWA. Prof. Takai's Laboratory, Institute for Chemical Research, Kyoto University, and Pyrethrum Inspection Bureau of Japan Special Agricultural Product Association. Received April, 1949. *Botyu-Kagaku* 12: 12-18. 1949 (With English Résumé, p. 18).

防疫除虫菊石油乳劑のアカイエカ蛹に對する殺虫効果に就いて\* 殺虫劑の生物試験に關する研究 第5報 長澤 純 夫 (京都大學化學研究所武居研究室・日本特殊農産物協會除蟲菊製品検査所)  
24. 4 - 1 受付

Ⅰ 緒 言

さきに Bliss (1934, 1935 a. b. c, 1938, 1939) は Probit 單位による藥量致死率曲線 (D-M 曲線) 1 次變換の殆んど完全に近い計算方法を統計理論の上に大成して、斯界に大いなる業績を残したが、先年大澤・長澤(1947) はこれを基礎に殺虫劑の効力の表示法に關するひとつの試案を提示した。即ち、回歸方程式の特性を示すふたつの Parameter M 及び  $\sigma$  を結合した  $M+k\sigma$  を用いて藥劑の k 次有効致死量、絶對有効度、有効當量、有効度偏差、有効相當濃度等を定義し、有効當量、有効度偏差による等級の問題にもふれ、その内 3 次のもを常用に選んだのが夫れである。而してこれは既に大岩 (1948)\*\*、大澤・長澤 (1948)、長澤 (1949) 等に依つて實際にも適用されて有効度の比較がなされている。

1948 年夏、筆者は防疫除虫菊石油乳劑數種の生物試験檢定をアカイエカの蛹に就いて行つたが、今回夫れ等の結果をこの提案に基いて吟味検討し、併せて筆者の行つた生物試験方法が本邦に於ける此の種乳劑の暫定的な標準試験法とするの可否に就いても論じ、諸氏の御批判を

仰ぐ事とした。而して本篇は防疫除虫菊石油乳劑の持つ殺虫生理機構に關する考察にはふれず、もつぱらその生物試験法と有効度の表示法に就いて検討し、乳劑の相對的な價值を論じたものである。

本文に入るに先立ち、終始御惠篤なる御指導と御援助をあたえられた京都大學農學部武居三吉教授、内田俊郎教授、理學部大澤濟理學士、化學研究所大野稔博士初め武居研究室の各位、前日本特殊農産物協會除虫菊製品検査所平位省三所長、住田史朝技師並びに渡島信子、漆葉千鶴子の兩嬢に深甚の謝意を表する次第である。尙本研究は、文部省科學研究費の一部によつて行つたものである。此處に記して感謝の意を表したい。

Ⅱ 防疫除虫菊石油乳劑

ここに述べる防疫除虫菊石油乳劑とは、1946 年連合軍最高司令部が、本邦に於ける防疫對策のひとつとして、傳染性疾病媒介昆虫の發生豫防並びに驅除と目的に、その處方を第 1 表の如く規定し、厚生省を通じて本邦の主

第 1 表 防疫除虫菊石油乳劑の規格處方

| 原 料             | 數 量      |
|-----------------|----------|
| 2%ピレトリン含有除虫菊エキス | 3.42 l   |
| 輕 燈 油           | 22.60 l  |
| 1 號 粉 末 石 鹼     | 650.00 g |
| ロ ト 油           | 650.00 g |
| 水               | 11.90 l  |

\* 日本特殊農産物協會除蟲菊製品検査所生物試験部研究業績 6

\*\* 但し、X<sup>2</sup> 試験の結果に依ると、本論文に於ける實驗値とその回歸線とは抽出誤差の範圍を脱しており、此場合 1 次變換の假設は當然棄却しなくてはならない。敢て此の方法を適用してなされた之が有効度の比較算定も又その 1 次變換の計算過程を誤つているため眞の結論が述べられていない。