

On the Effect of Several Adjuvants in Pyrethrins and Allethrins Powder. Studies on the Biological Assay of Insecticides. XXIX. Sumio NAGASAWA & Akira NISHIMURA (Takei Laboratory, Institute for Chemical Research, Kyoto University, Takatsuki, Osaka). Received July 27, 1953. *Botyu-Kagaku* 18. 105-108. 1953. (with English-résumé, 108).

21 Pyrethrins および Allethrins 粉剤における数種補薬の効果について 殺虫剤の生物試験にかんする研究 第29報 長沢純夫・西村昭(京都大学 化学研究所 武居研究室) 28. 7. 27 受理

I. 緒言

医薬と同様、殺虫剤の分野においても、いくつかの薬物を混用することによつて、経済的の負担をすくなくし、より遠確なる駆除予防の効果をえようとする事は、すではやくからおこなわれてきたが、近年、それ自体はさほど毒性をもたないものでありながら、これを併用することによつて、主剤の効力を相当程度助長する性質をもつた薬物の利用がさかんになつてきた。こうした薬物の併用は、理論応用両面においてきわめて興味ある問題であるが、同時にその作用程度をみきわめる手段の究明はこれにともなつてまた必要である。今回、pyrethrins および allethrins 粉剤にたいしてそうした性質を有するいくつかの薬物の作用程度を、撒粉降下装置法により実験究明したが、本文においてはこの方法のこの分野における利用価値をその主題として、これらの実験結果をのべることにする。

本文にはいるにさきだち、供試昆虫の飼育と数値の計算に尽力せられた柴田砂田子嬢にあつく謝意を表したい。なお研究費の一部は昭和27年度文部省科学研究費(総合研究)の助成におつている。銘記して謝意を表する次第である。

II. 実験材料

(1) 供試薬剤 この実験にもちいた pyrethrins は、新容量法<sup>(1)</sup>によつて定量された 15.5% の exis で、allethrins は polarograph 法<sup>(2)</sup>によつて定量された 90.6% の工業製品である。またこれに併

用した MGK-264, n-propyl-isome, piperonyl cyclonon, sulfoxide および piperonyl butoxide の5薬剤は、すべて市販品で、これらの有する物理化学的諸性質の詳細は不明である。粉剤の調製は Whittaker, Clark & Daniels, Inc., U. S. A. の製品である North Carolina 産の #29 pyrophyllite を担体として、benzol を溶媒とする溶解混合法<sup>(3)</sup>によつて、前者は主剤 1%, 併用薬剤 10% の、後者は主剤 0.05%, 併用薬剤 0.5% の粉剤とした。なお単用粉剤としておなじ方法により、pyrethrins 1%, allethrins 0.05% および他の併用薬剤は一様に 10% の粉剤を調製してもちいた。

(2) 供試昆虫 豆腐精培基<sup>(4)</sup>によつて幼虫期を飼育し、小麦粉の糊をあたえてその成虫期を飼養したイエバエ *Musca domestica* L. の羽化後 4 乃至 5 日目の個体群で、筆者がまえまえからもちいている高槻系と称しえられる 1 系統である。

III. 実験装置と方法

実験装置、方法ともに従来記載の撒粉降下装置法<sup>(5)</sup>に準拠し、主剤だけの単用粉剤の効力に比較しながら、併用粉剤の効力をもとめていく方法をとつた。

IV. 実験結果

各粉剤のイエバエの成虫を落下仰転せしめる効力を処理時間  $T$  と致落下仰転虫数率  $Y_K$  の関係にしてしめすと、第 1, 2 表のごとくである。なお併用薬剤だけをもつて調製した粉剤では、所定の実験時間中にはま

Table 1. Time  $T$ (min.)-per cent knock down  $Y_K$  of adults of the common housefly, *Musca domestica* L., for 0.1% pyrethrins powder and that plus ten times of amounts of several adjuvants.

Chemical material	Number of experiments	Number of individuals	Time										
			2	3	4	6	8	12	16	24	32	48	64
Pyrethrins	5	116	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.86	0.86	5.17	6.90	11.21	17.24
+ MGK-264	5	98	0.00	5.10	9.18	10.20	14.29	19.39	25.51	44.90	48.98	77.55	83.67
+ n-Propyl-isome	5	113	0.00	6.20	7.97	10.62	16.81	32.74	44.25	72.57	90.27	100.00	—
+ Piperonyl cyclonon	5	97	0.00	9.28	11.34	17.53	22.68	44.33	70.10	100.00	—	—	—
+ Sulfoxide	5	111	17.12	25.23	33.33	44.14	57.66	81.98	100.00	—	—	—	—
+ Piperonyl butoxide	5	101	35.64	44.56	48.52	70.30	86.14	98.02	100.00	—	—	—	—

Table 2. Time  $T$  (sec.)-per cent knock down  $Y_K$  of adults of the common housefly, *Musca domestica* L., for 0.05% allethrins powder and that plus ten times of amounts of several adjuvants.

Chemical material	Number of experiments	Number of individuals	Time $t = \log T$														
			1.7	1.8	1.9	2.0	2.1	2.2	2.3	2.4	2.5	2.6	2.7	2.8	2.9	3.0	3.1
Allethrins	5	93	0.00	0.00	0.00	1.08	8.60	22.58	40.86	53.76	66.67	73.12	80.65	87.10	92.47	96.77	100.00
+MGK-264	5	98	1.02	5.10	10.20	19.39	34.69	54.08	74.49	85.71	94.90	97.96	100.00	—	—	—	—
+n-Propylisome	5	92	3.26	4.35	9.78	26.09	42.39	63.04	79.35	89.13	96.74	98.91	100.00	—	—	—	—
+Piperonyl cyclonene	5	93	3.23	3.23	6.45	23.66	37.63	61.29	74.19	91.40	95.70	98.93	100.00	—	—	—	—
+Sulfoxide	5	98	4.08	9.18	20.41	36.73	60.20	77.55	89.80	94.90	98.98	100.00	—	—	—	—	—
+Piperonyl butoxide	5	91	3.30	6.59	14.29	23.08	42.86	62.64	80.22	87.91	91.21	97.80	100.00	—	—	—	—

つたく落下仰転する個体をみとめることはできなかった。これは1952年10月10日と23日におこなつた実験の結果である。

V. 考 察

ところで今日ひろくいわれている synergism 協力作用, 相乗作用という言葉にたいする定義は, 松原<sup>①</sup>もしているようにこれを個々にもちいたすときの被験生物体がいしめす反応率の総計より, 併用したとき反応率の方が大きいという結果のえられる毒物の連合作用を厳密にはさすべきであろう。

したがつて synergist 協力剤, 相乗剤という言葉は, それぞれを単独にもちいた場合, 多少とも被験生物体をして目的とする刺激反応現象を発現せしめる力をもっているものでなければならない。そうでなければ, あらゆる補助物質の連合作用の結果が殺虫剤の有効度となつて昆虫体に作用するのであるから, どの程度のものまでを synergist とよぶべきであるかが問題になつてくる。Cox<sup>①</sup>はそれ自体目的とする刺激反応現象を発現せしめる力をもたない薬物を除外して, とくにこれらを activator 奏効剤とよんでいるが, これは synergist との区別はついても, さらに他にもちいられている補助剤といかなる限界において区別するべきであるかが問題となつてくる。たとえば bentonite を担体とした DDT 粉剤は, 珪藻土を担体としたそれにくらべて, イエバエを落下仰転せしめる効力ははるかにおとつている。それゆゑ珪藻土の併用によつて若干なりともその効力はたかめえられよう。しかしこの場合われわれは珪藻土にたいしてはたして activator の言葉をあたえてよいかどうかにまようであろう。こうしたことを考えれば, われわれはさらに多くの言葉をもうけてこうした一連の薬物補助物質を分類定義する必要があるであろう。しかしそれほど厳密な区別が必要でないが大凡の意味をとつて, それ自体あきらか

に activator と区別しえられるものであつて, 主剤の毒性をとくに顕著に奏効せしめる薬物をおよまかに synergist とよんでおくのが適當であろう。この点医薬の部門において, 薬剤の効力を助長する意味で, adjuvant 補薬という言葉をもちいているが, これをそのまま殺虫剤の分野にもつてくることもできよう。事実 Kerr<sup>②</sup>, Perry and Hoskins<sup>③</sup> などはずでにこの言葉をもちいており, 筆者が標題にこの言葉をもちいたのも以上の概念にしたがつた結果からである。ところで piperonyl butoxide をはじめ, 筆者が今回もちいた併用薬剤は, すべてこれを石油液, 乳剤などにして単独にもちいたときは, 相当の稀薄溶液においてもそれ自体昆虫にたいしてかなりの毒性を発揮し, 今日一般にもひろく synergist としてとりあつかわれているように, あきらかに上にのべた協力剤の範疇に属している薬物である。しかし粉剤として単用したときはさきにも附言したがその効力はみとめることができない。それ故, こうした薬物は使用形態の相違, 使用濃度の範囲, 使用の対象となる昆虫の相違乃至は目的とする刺激反応現象の段階なぞによつて toxicant, synergist から adjuvant, activator としての働きにも移行することをしらなければならない。

一方生物試験論の見地からいへば, この種薬物の有効程度をしらうとする場合, または一連の薬物のなかから有効な synergist をさがしだそうとする場合こうした薬物自体の毒力を 0 におさえておいて, 併用した場合の有効程度を比較した方が算定がきわめて簡単である。すなわち activator としての働きをなす状態において試験をおこなうのが得策である。併用薬剤の毒力が発揮される場合の joint action の程度を分析することは, 以前その 1 例をのべたが<sup>④</sup> きわめて煩雑で, にわかには synergist としての値をきめかねる場合が多い。この意味において, 併用薬剤だけ

の粉剤において、まったくその効果のあらわれてこない撒粉降下装置法の利用価値はとくに screening test において大きいものと考えられる。

つぎにこれらいくつかの adjuvant を粉剤としてもちいたときの pyrethrins および allethrins に対する adjuvant effect 補強効果を算定比較してみよう。その手段として、まづ Bliss の probit 法によつて第1,2表の結果を整理すると、第3表のような数値をえる。ここでしめした記号はすべていままでの報

告のそれとおなじである。また2部分にわかれた回帰線については probit 5 の点のもともめられるたかい致落下仰転虫数率にわたる回帰線のそれをえらんで計算ししめた。なお第1,2図はこれらの関係を図示したものである。

第1,2図にみるように pyrethrins および allethrins 単用粉剤がしめす回帰線の傾きはきわめてゆるやかであるが、併用粉剤のそれは急である。すなわち adjuvant の併用により致落下仰転虫数率が一樣によくなつてい

Table 3. Characteristics of time-knock down regression isodoses of adults of the common housefly, *Musca domestica* L., for 0.1% pyrethrins and 0.05% allethrins powder and that plus ten times of amounts of several adjuvants.

Chemical material	Regression coefficient $b_0$	Standard deviation $1/\sigma_0$	Log median knock down time $\bar{t}_0$	Median knock down time $T_C$
Pyrethrins	1.94904	0.51282	(2.28571)	(193.07) (min.)
+MGK-264	0.35933	2.78313	1.45078	28.235
+n-Propyl-isome	0.27632	3.61882	1.20234	15.935
+Piperonyl cyclonene	0.23861	4.19095	1.09209	12.362
+Sulfoxide	0.24420	4.09501	0.85589	7.176
+Piperonyl butoxide	0.20437	4.89323	0.67281	4.708
Allethrins	2.74874	0.36377	2.37119	235.06 (sec.)
+MGK-264	5.06524	0.19743	2.16571	146.46
+n-Propyl-isome	4.88953	0.20450	2.13625	136.85
+Piperonyl cyclonene	5.02798	0.19889	2.15353	142.41
+Sulfoxide	5.12261	0.19520	2.05835	114.38
+Piperonyl butoxide	4.25516	0.23502	2.13895	137.70

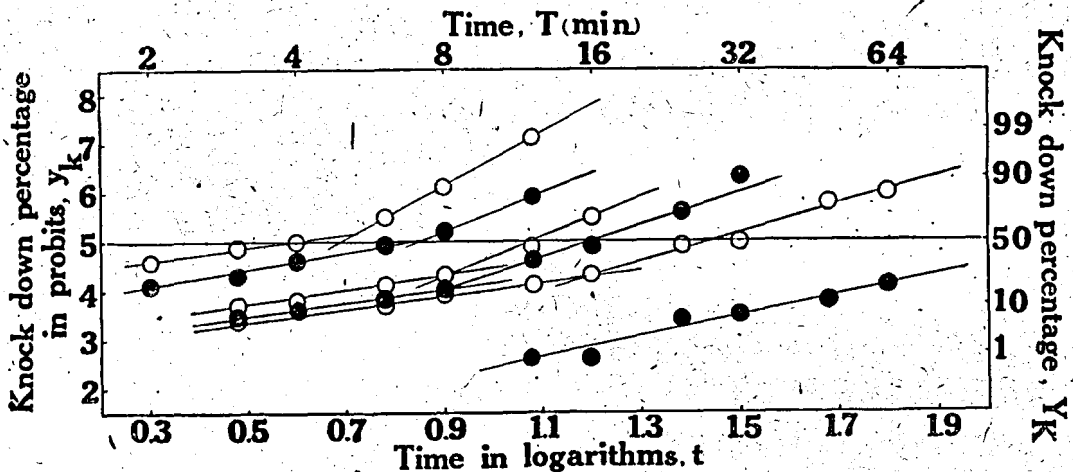


Fig. 1. Time-knock down regression isodoses of adults of the common housefly, *Musca domestica* L., for 0.1% pyrethrins powder and that plus ten times of amounts of several adjuvants. From up to bottom: +piperonyl butoxide, +sulfoxide, +piperonyl cyclonene, +n-propyl-isome, +MGK-264, pyrethrins only.

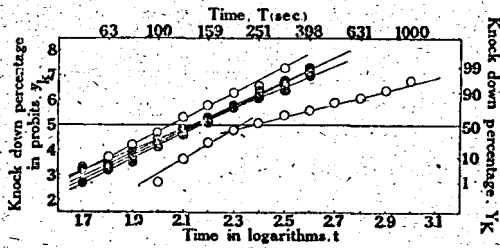


Fig. 2. Time-knock down regression isodoses of adults of the common housefly, *Musca domestica* L., for 0.05% allethrin powder and that plus ten times of amounts of several adjuvants. From top to bottom: + sulfoxide, + n-propyl-isome, + piperonyl butoxide, + piperonyl cyclonene, + MGK-264, allethrin only.

ることをまづ指摘することができよう。そしてそれぞれの adjuvant の作用様式はすべておなじ傾向をしめし、各回屈線はほとんど平行で、 $b_1$  の値には大きなひらきがみとめられない。つぎに補薬効果の程度を、中央致落下仰転時間にもついで算定してみよう。すなわち、主剤単用の粉剤にたいする併用粉剤の相対数値として算定評価すると、その結果は第4表のごとくである。補薬効果の順位は pyrethrins においては piperonyl butoxide が一番で、sulfoxide がこれにつき、MGK-264 においてもつともおとつている。一方 allethrin においては sulfoxide が一番よく、MGK-264 がつともかんばしくない。従来 piperonyl butoxide が pyrethrins にたいしていちぢるしい補薬効果を有することがいわれているが、致落下仰転の遅速を補薬効果判定の指標としても同じような結果をしめている。以上、その程度にはかなりの差がみられるが、いづれも adjuvant としての効果はみとめられ、粉剤の形態においてもこうした薬物の利用は有益であると決論される。しかし、どのような比率における併用が最高の補助効果をあげうるかは、今後の研究にまたなければならぬ問題である。

Table 4. Relative adjuvant effect of several adjuvants for pyrethrins and allethrin computed based on the median knock down time of table 3.

Chemical material	Pyrethrins	Allethrin
MGK-264	6.83797	1.60494
n-Propyl-isome	12.11610	1.71765
Piperonyl cyclonene	15.61802	1.65059
Sulfoxide	26.90496	2.05508
Piperonyl butoxide	41.00892	1.70704

VI. 摘 要

粉剤としてもちいたときの pyrethrins および

allethrin にたいする MGK-264, n-propyl-isome, piperonyl cyclonene, sulfoxide および piperonyl butoxide 5 薬物の補薬効果を、撒粉降下装置によつて実験比較算定した、その結果は第4表にしめすごとくであるが、補助薬物自体の毒力を0におさえておいてこれを併用した場合に発現される補薬効果の程度を見きわめ、それによつておのれ有効価値を判定しうる撒粉降下装置の利用は、とくに screening test においてきわめて便利なものとかんがえられる。

VII. 引用文献

- (1) Cox, A. J. - Jour. Econ. Ent. 36: 813 (1943)
- (2) Kerr, R. W. - Commonwealth Sci. Indust. Res. Organ. Australia. Bnll. 261: 1 (1951)
- (3) 松原弘道 - 科学 20: 4 (1950)
- (4) 長沢純夫・高野武之助 - 防虫科学 15: 46 (1950)
- (5) 長沢純夫・井上雄三・柴田砂田子 - 防虫科学 16: 169 (1951)
- (6) 長沢純夫 - 京都大学化学研究所報告 24: 32 (1951)
- (7) 長沢純夫 - 植物防疫 6: 393 (1952)
- (8) 大岩俊彦・井上雄三・植田穰三・大野稔 - 防虫科学 17: 106 (1952)
- (9) Perry, A. E. and W. M. Hoskins - Jour. Econ. Ent. 44: 839 (1951)
- (10) 若園潔 - 除虫菊の殺虫成分に関する研究 神戸 (1948)

Résumé

In this paper, the writer described the result of an experiment which was carried out to know the rate of adjuvant effect of several chemical materials, MGK-264, n-propyl-isome, piperonyl cyclonene, sulfoxide and piperonyl butoxide, for the knock down effect of pyrethrins and allethrin powder to adults of the common housefly, *Musca domestica* L., using the settling dust apparatus. The adjuvant effects to pyrethrins and allethrin powder were recognized clearly in all chemical materials, and the rate of these effect are shown in table 4. The use of the settling dust apparatus is very convenient for know the rate of adjuvant effect of various chemical materials as the toxicity of powder of adjuvant only is not revealed itself mostly.