

Comparison of the Knock Down Effectiveness of 'Pyrethrins' I and II to Adults of the Common Housefly, *Musca domestica vicina* Macq. Studies on the Biological Assay of Insecticides. XXX. Sumio NAGANAWA (Takei Laboratory, Institute for Chemical Research, Kyoto University, Takatsuki, Ohsaka). Received on Nov. 13, 1953. Botyu-Kagaku, 18, 183-192 (1953). (with English résumé, 191).

29. 'Pyrethrins' I と II のイエバエの成虫を落下仰転せしめる効力の比較。殺虫剤の生物試験にかんする研究。第30報。長沢純夫(京都大学化学研究所武居研究室) 23, 11. 13 受理

'Pyrethrins' I と II のイエバエの成虫を落下仰転せしめる時間的経過を, Campbell の metal turn table を改変した装置によつて記録し, Bliss のプロビット変換法に基づく統計学的処理をこの結果に施して2者のもつ毒力を相対的に算定した。

I. 緒言

LaForge⁽¹⁾ 一派の研究によつて後年、除虫菊の有効成分にはシネリン I と II のふたつがあらたにつけくわえられたけれども、ピレトリン I と II の存在をあきらかにした Staudinger and Kuzicka⁽²⁾ の研究が発表された1924年以來、これらの有する毒力の比較は生物試験の研究にたづさわるもの興味ある対象となり、すでに10数篇にのぼる論文を今日ここに見出すことができる。しかしこれら先学者のすぐれた研究もその多くは致死効力を比較することに主眼がおかれて実験され、除虫菊殺虫剤のもつ速効的な麻痺作用については論及されておらず、なおまた毒力の算定は I, II の相対量を異にじたいくつかの混合物をもちいることによつて推測する方法がとられ、いづれも純粋な試料がもちいられていない。これは生物試験論の見地からも、また実際使用の面においても、少しくものたりない感じがされなくもない。除虫菊および、これが類縁物質の生物試験検定は、その純粋品についてかつその leading factor であるところの、速効的な麻痺作用の程度を有効度判定の指標としておこなわれることも必要であるとかんがえて、筆者は此度ひとつの実験をおこなつた。その結果をここに示す。

本文にはいるにさきだち、この研究をおこなうにあたり終始御懇篤なる御指導と御鞭撻を賜つた武居教授及び大野助教授に感謝の意を表する次第である。なおこの実験と結果の整理は柴田砂田子嬢の助力によつてなされた。銘記して謝意を表したい。

II. 実験材料

(1). 供試薬剤。標準薬剤としては、ピレトリンの近縁化合物であるところのアレスリンの結晶状 I 異性体 α -dl-trans-allothrin (mp 50 (~50.5°C) をこれにあてた。'pyrethrins' I および II は大岩⁽³⁾ らが報告したものとのおなじ試料で、クロマトグラフ法によつて除虫菊エキスから分離精製されたものである。'pyrethrins' I は $\lambda_{max} = 224 \text{ M} \cdot$ $\epsilon_{\lambda_{max}}^{\text{ethanol}} = 34250$ で、

pyrethrin I と cinerin I の混合物であるか、あるいは pyrethrin I か、あるいはまた cinerin I かのいづれかである。同様に 'pyrethrins' II は $\lambda_{max} = 229 \text{ M} \cdot$ $\epsilon_{\lambda_{max}}^{\text{ethanol}} = 35850$ で、pyrethrin II と cinerin II の混合物か、あるいは pyrethrin II か、あるいはまた cinerin II のいづれかである。理論的には pyrethrin I, II ならびに、cinerin I, II の4成分を分離して比較考察すべきであらう。しかし現在までの研究段階はまだそれに到達していない。除虫菊エキスはこの 'pyrethrins' I および II の分離にもちいた原料で、ポーラログラフ法⁽⁴⁾ による全ピレトリン値 11.7%, 'pyrethrins' I 値 6.1% 'pyrethrins' II 値 5.6% である。そして工業製品アレスリンは α -dl-trans-allothrin の単離にもちいた原料で、ポーラログラフ法⁽⁴⁾ によるアレスリン分析値は 90.6% である。なお稀釈にもちいた白燈油は沸点 180~230°C の溜分のものである。

(2). 供試昆虫。標準条件のもとにおいて豆腐粕培基によつてその幼虫期を飼育し、小麦粉の糊で成虫期を飼養したイエバエの、羽化後4乃至5日目の個体群を実験に供した。

III. 実験装置および方法

この実験にもちいた装置は、Campbell and Sullivan⁽⁵⁾ によつて考案された金属製迴転盤装置の構造を模してつくられたものであるが、改変の要所は Sullivan et al.⁽⁶⁾ によつてのべられたそれとほとんどおなじである。すなわち、第1図にしめすように、高さ 43.5cm、外径 22.0cm、厚さ 1.0cm のガラス製円筒(A)を、高さ 30.0cm の木製の架台(D)の上におき、円筒の直下にガラスの滑り蓋(B)を境にして、高さ 15.0cm、外径 15.0cm、厚さ 0.1cm のガラス製ボット(C)をとりつけたものである。同筒の上にかぶせた直径 27.0cm のガラス製円板(E)の中央には、薬液を噴霧するための直径 2.0cm の円孔がある。噴霧時以外はコルク栓(F)をしておく。ゴムバ

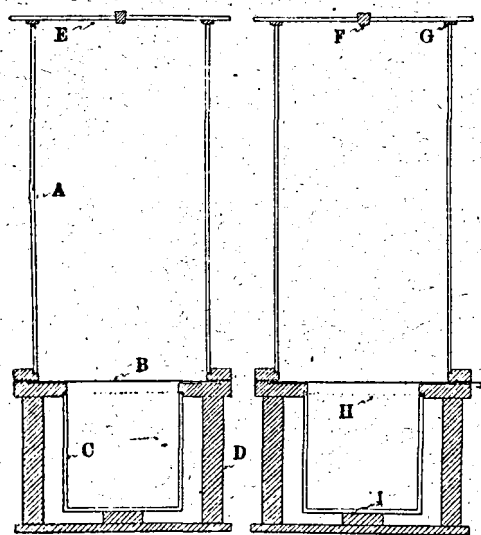


Fig. 1. Experimental apparatus. A, glass cylinder; B, glass slidé; C, glass pot; D, wooden stand; E, glass plate; F, cork plug; G, rubber packing; H, wire gauze; I, supporter of pot. 1 unit of scale=10cm.

ツキング (G) は霧滴の漏洩をふせぐためにこの間におかれたものである。またポットの上には真鍮製の金網 (H) が供試昆虫の上部への逸脱をふせぐためにおかれ、下部には支え (I) がポットを円筒の直下に密着保持せしめられるようおかれている。ところで、ピレトリンおよびその類縁化合物のいくつかは、きわめて速効的な麻痺作用を有し、その程度を時間的に記録するためには、できるだけ微量な薬液を均一に噴霧して、その被毒によっておこる麻痺の経過を遅延せしめる方向にこれをもつてゆく必要がある。一方こうした微量の薬液を噴霧することを主眼に、スプレーガンが作られることは、製作上のわずかな違いが霧滴の状態をかなり左右するから、一連の実験をおこなう場合、操作上の誤差を最少限にいとめる見地から、終始一貫しておなじものをもちて実験することがのぞましい。そのために容易にこれを洗滌することができ、ただちにつぎの薬液を噴霧できるような構造をもつたものであることものぞまれる。そうした必要をみたすために筆者は、第2図にしめすような atomizer を試作してもちいた。およそその説明をくわえるならば、atomizer の長頸部 (A) は 13.5cm の長さを有し、ちようど前記装置のガラス蓋 (E) の半径にひとしく、開口部 (G) を装置内にいれた場合、そのままガラス蓋の上これを置くことができるようにした。(D) はゴム管をもつてトランスフォーマーを間においてコンプレッサーに連結する。(B) は薬液をいれる小試験管で目盛をこれにきざみ、上部は空気および薬液の漏洩を

ふせぐためにゴム栓 (F) をする。(E) は直径 0.1cm の小孔で、ここから空気が小試験管の中に入り薬液を下端の穴から毛細管 (C) の中におくりこむようにしてある。毛細管の直径は 0.1cm で、この中に入った薬液は先端部で一部分れてその外側をでてきた空気によって霧滴となる構造である。

Sullivan et al.¹⁰⁾ のそれと異なる点は、イエバエが薬液の被毒によつて落下仰転する時間的経過を詳細に観察できるよう、円筒の下におかれたボットの深さを一段深くしたことと、薬液を噴霧するために上にのべたような atomizer を試作してもちいたことである。

試験方法としては、まづボット (C) に供試昆虫 10 匹内外を入れて金網蓋 (H) をかぶせ、架台の下部に密着保持せしめる。溝孔に滑蓋 (B) を入れて、その上にシリンダー (A) をおき、パツキング (G) をはさんで上蓋 (E) をのせる。つぎに薬液を 0.5cc 正確に小試験管 (B) にとり atomizer の後端が正確に小試験管の底につくように保持する。噴霧圧力を 1.5 kg/cm² にしてトランスフォーマーの栓をひらき、薬液を円筒内に噴霧する。噴霧時間約 3 秒、噴霧開始と

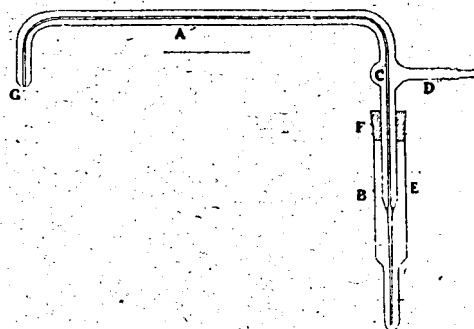


Fig. 2. Atomizer. A, air pipe; B, calibrated tube; C, capillary; D, neck for connect to compressor; E, pin hole; F, rubber plug; G, nozzle. 1 unit of scale=1.0cm.

同時に秒測時計をもつて時間をはかり、およそ大きな霧滴を沈着せしめた 10 秒後に滑蓋をひいて、こまかい霧だけを供試昆虫の上に降下せしめる。そしてイエバエが薬液の被毒によつて麻痺をおこし、器底に落下仰転する数を秒の対数値にして 0.1 の間隔をもつて記録する方法をとつた。供試昆虫の数は、ピレトリンのような速効的な麻痺作用を有するものにおいては、10 匹内外が適当で、それ以上の個体では正確な記録が困難である。

なお、ある濃度以下のピレトリンあるいはこの類縁化合物の被毒によつて落下仰転したイエバエは、ふたたびそれらの麻痺からさめて正常の状態にもどるものが多く、ために低濃度における実験では供試昆虫の全

部が落下仰転しないうちに、はやくも蘇生する個体があらわれて落下仰転を有効度判定の指標とすることが不可能な場合が多い。同時にまたある濃度をこえたと噴霧しうる最少量の霧滴によつても、すみやかな麻痺

作用のためにその時間的の経過を記録することが不可能となつてくる。それでこの種の実験をおこなうにあつては、実験記録の可能なごくせまい範囲の濃度をさがす必要がある。上記の方法により薬液 0.5 cc を

Table 1. Time T (sec.)-per cent knock down Y_K of adults of the common housefly, *Musca domestica vicina* Macq., for α -dl-trans-allethrin and 'pyrethrins' I kerosene solution in the range of concentration C from 15.625 to 250 mg per 10cc.

| Concentration | α -dl-trans-allethrin | | | | | 'Pyrethrins' I | | | | | |
|-----------------------|------------------------------|-------|--------|--------|--------|----------------|--------|--------|--------|--------|--------|
| | 15.625 | 31.25 | 62.5 | 125 | 250 | 15.625 | 31.25 | 62.5 | 125 | 250 | |
| Number of individuals | 85 | 48 | 51 | 51 | 54 | 41 | 26 | 73 | 74 | 69 | |
| Time $t = \log T$ | 1.8 | | | | 1.96 | 7.41 | | | 13.70 | 20.27 | 42.03 |
| | 1.9 | | | | 11.77 | 25.93 | | 7.69 | 24.66 | 40.54 | 66.67 |
| | 2.0 | | | 1.96 | 23.53 | 57.41 | | 15.39 | 42.47 | 63.51 | 84.06 |
| | 2.1 | | 2.08 | 13.73 | 52.94 | 83.33 | 9.76 | 30.76 | 58.90 | 71.62 | 94.20 |
| | 2.2 | 2.35 | 14.58 | 33.33 | 74.51 | 98.15 | 21.95 | 50.00 | 76.71 | 79.73 | 98.55 |
| | 2.3 | 8.24 | 35.42 | 58.82 | 90.20 | 100.00 | 36.59 | 65.39 | 84.93 | 81.08 | 100.00 |
| | 2.4 | 20.00 | 60.42 | 80.39 | 100.00 | | 56.10 | 84.62 | 89.04 | 87.84 | |
| | 2.5 | 47.06 | 85.42 | 90.20 | | | 70.73 | 92.31 | 91.78 | 91.89 | |
| | 2.6 | 69.41 | 100.00 | 100.00 | | | 78.05 | 92.31 | 93.15 | 93.24 | |
| | 2.7 | 70.59 | | | | | 85.37 | 96.15 | 95.89 | 94.60 | |
| | 2.8 | 96.47 | | | | | 100.00 | 100.00 | 100.00 | 100.00 | |
| 2.9 | 100.00 | | | | | | | | | | |

Table 2. Time T (sec.)-per cent knock down Y_K of adults of the common housefly, *Musca domestica vicina* Macq., for α -dl-trans-allethrin and 'pyrethrins' II kerosene solution in the range of concentration C from 15.625 to 250mg per 10cc.

| Concentration | α -dl-trans-allethrin | | | | | 'Pyrethrins' II | | | | | |
|-----------------------|------------------------------|--------|--------|-------|--------|-----------------|-------|--------|--------|--------|--------|
| | 15.625 | 31.25 | 62.5 | 125 | 250 | 15.625 | 31.25 | 62.5 | 125 | 250 | |
| Number of individuals | 76 | 76 | 69 | 75 | 75 | 40 | 35 | 49 | 46 | 77 | |
| Time $t = \log T$ | 1.5 | | | | | | | | | 2.60 | |
| | 1.6 | | | | | | | | 8.70 | 11.69 | |
| | 1.7 | | | | | | | 5.00 | 17.39 | 35.07 | |
| | 1.8 | | | | | 1.33 | | 5.71 | 12.50 | 36.96 | 63.64 |
| | 1.9 | | | 1.49 | 4.00 | 5.33 | 5.00 | 11.43 | 35.00 | 56.52 | 75.33 |
| | 2.0 | | 1.33 | 2.90 | 10.67 | 21.33 | 12.50 | 31.43 | 57.50 | 78.26 | 84.42 |
| | 2.1 | 1.32 | 3.95 | 7.25 | 29.33 | 52.00 | 30.00 | 48.57 | 80.00 | 91.30 | 92.21 |
| | 2.2 | 3.95 | 10.53 | 24.64 | 52.00 | 82.67 | 50.00 | 71.43 | 87.50 | 93.48 | 96.10 |
| | 2.3 | 9.21 | 26.32 | 46.38 | 77.33 | 90.67 | 67.50 | 88.57 | 92.50 | 95.65 | 98.70 |
| | 2.4 | 23.69 | 51.32 | 65.22 | 94.67 | 94.67 | 80.00 | 91.43 | 100.00 | 100.00 | 100.00 |
| | 2.5 | 40.79 | 69.74 | 85.51 | 97.33 | 96.00 | 87.50 | 94.29 | | | |
| | 2.6 | 56.58 | 89.47 | 94.20 | 100.00 | 98.67 | 92.50 | 100.00 | | | |
| | 2.7 | 80.26 | 93.42 | 97.10 | | 98.67 | 97.50 | | | | |
| 2.8 | 90.79 | 98.68 | 98.55 | | 100.00 | 100.00 | | | | | |
| 2.9 | 97.37 | 100.00 | 100.00 | | | | | | | | |
| 3.0 | 100.00 | | | | | | | | | | |

Table 3. Time T (sec.)-per cent knock down Y_k of adults of the common housefly, *Musca domestica vicina* Macq., for α -dl-trans-allethrin and pyrethrum extracts kerosene solution in the range of concentration C from 15.625 to 250mg per 10cc.

| | | α -dl-trans-allethrin | | | | | Pyrethrum extracts | | | | |
|-----------------------|--------|------------------------------|--------|--------|--------|--------|--------------------|--------|--------|--------|--------|
| Concentration | | 15.625 | 31.25 | 62.5 | 125 | 250 | 15.625 | 31.25 | 62.5 | 125 | 250 |
| Number of individuals | | 40 | 33 | 36 | 36 | 41 | 33 | 32 | 28 | 34 | 32 |
| Time $t = \log T$ | 1.6 | | | | | | | | | | 9.38 |
| | 1.7 | | | | | | | | | 14.71 | 28.13 |
| | 1.8 | | | | | 7.32 | | | 3.57 | 17.65 | 46.88 |
| | 1.9 | | | | | 7.32 | | 6.25 | 14.29 | 38.24 | 71.88 |
| | 2.0 | | | 5.56 | 2.78 | 21.95 | 3.03 | 21.88 | 32.15 | 55.88 | 84.38 |
| | 2.1 | | 3.03 | 11.11 | 11.11 | 48.78 | 15.15 | 28.13 | 53.57 | 76.47 | 87.50 |
| | 2.2 | | 12.12 | 25.00 | 33.33 | 78.05 | 18.18 | 43.75 | 60.71 | 79.41 | 100.00 |
| | 2.3 | 7.50 | 21.21 | 38.89 | 63.89 | 100.00 | 39.39 | 62.50 | 67.86 | 85.29 | |
| | 2.4 | 20.00 | 36.36 | 58.33 | 83.33 | | 54.55 | 71.88 | 75.00 | 100.00 | |
| | 2.5 | 32.50 | 57.58 | 72.22 | 97.22 | | 57.58 | 84.38 | 85.71 | | |
| | 2.6 | 52.50 | 81.82 | 86.11 | 100.00 | | 66.67 | 84.38 | 85.71 | | |
| | 2.7 | 75.00 | 90.91 | 97.22 | | | 66.67 | 87.50 | 92.86 | | |
| | 2.8 | 87.50 | 100.00 | 100.00 | | | 72.73 | 100.00 | 100.00 | | |
| 2.9 | 95.00 | | | | | 100.00 | | | | | |
| 3.0 | 100.00 | | | | | | | | | | |

Table 4. Time T (sec.)-per cent knock down Y_k of adults of the common housefly, *Musca domestica vicina* Macq., for α -dl-trans-allethrin and technical allethrins kerosene solution in the range of concentration C from 15.625 to 250mg per 10cc.

| | | α -dl-trans-allethrin | | | | | Technical allethrins | | | | |
|-----------------------|--------|------------------------------|-------|--------|--------|--------|----------------------|--------|--------|--------|--------|
| Concentration | | 15.625 | 31.25 | 62.5 | 125 | 250 | 15.625 | 31.25 | 62.5 | 125 | 250 |
| Number of individuals | | 30 | 28 | 32 | 28 | 31 | 24 | 25 | 27 | 28 | 28 |
| Time $t = \log T$ | 1.8 | | | | | 3.23 | | | | | 10.71 |
| | 1.9 | | | | | 6.45 | | | 11.11 | 10.71 | 25.00 |
| | 2.0 | | | | 7.14 | 19.36 | | | 14.82 | 25.00 | 57.14 |
| | 2.1 | | | 6.25 | 17.86 | 45.16 | | 8.00 | 22.22 | 50.00 | 82.14 |
| | 2.2 | | 3.57 | 18.75 | 35.71 | 67.74 | 8.33 | 20.00 | 44.44 | 67.86 | 100.00 |
| | 2.3 | | 10.71 | 34.38 | 60.72 | 87.10 | 16.67 | 40.00 | 70.37 | 89.29 | |
| | 2.4 | 3.30 | 28.57 | 59.38 | 82.14 | 100.00 | 37.50 | 60.00 | 88.89 | 100.00 | |
| | 2.5 | 10.00 | 46.43 | 68.75 | 100.00 | | 53.33 | 84.00 | 96.36 | | |
| | 2.6 | 30.00 | 71.43 | 93.75 | | | 79.17 | 100.00 | 100.00 | | |
| | 2.7 | 56.67 | 85.71 | 100.00 | | | 91.67 | | | | |
| | 2.8 | 83.33 | 92.86 | | | | 100.00 | | | | |
| 2.9 | 96.67 | 100.00 | | | | | | | | | |
| 3.0 | 100.00 | | | | | | | | | | |

噴霧した場合、10cc 中 15.625, 31.25, 62.5, 125 および 250mg が容易に記録ができる範囲であつた。もつともこれらはすべてポーラログラフ法によつて定量された数値にもとづいて稀釈したものである。なお供試

薬剤は α -dl trans-allethrin を標準薬剤として各々別個に比較実験する方法をとつた。

IV. 実験結果

上述の方法によつてえられた実験の結果を表示する

と、第 1~4 表のごとくであるが、これは 1953 年 8 月 14 日から 9 月 14 日にいたる期間におこなつたものの結果で、1 濃度について 3~5 回の実験をくりかえしてえられた数値を集計したものである。

V. 考 察

第 1~4 表の結果を Bliss のプロビット法によつて整理すると第 5 表にしめすような数値をえるが、第

3~6 図はこの関係を図示したものである。この結果からこの範囲の濃度の製品、たとえば今日われわれが市場でみる 180mg/100cc 程度のピレトリンを含有する殺虫液は、もしなかに速効的な麻痺作用をさらに助長するような、特別な併用薬剤がふくまれていない場合には、おゝむねこの装置と方法によつて有効度の検定をおこなうことは可能であらう。

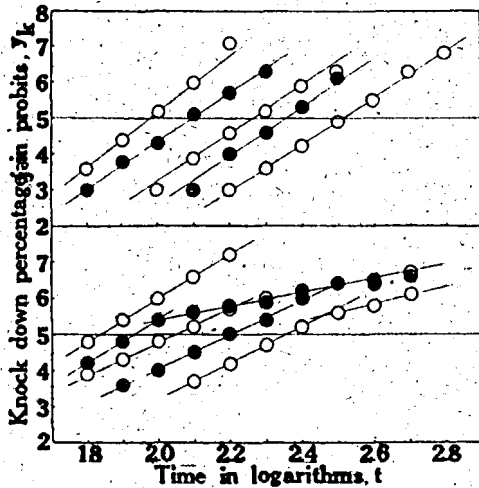


Fig. 3. Time-knock down regression isodoses of adults of the common housefly, *Musca domestica vicina* Macq., for α -dl-trans-allethrin and 'pyrethrins' I kerosene solution in the range of concentration C from 15.625 to 250mg. per 10cc (from right to left). Above figure, α -dl-trans-allethrin; bottom figure, 'pyrethrins' I.

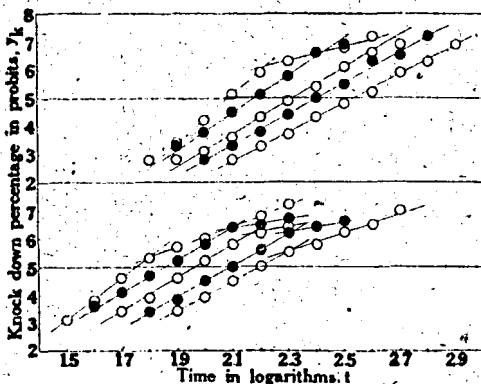


Fig. 4. Time-knock down regression isodoses of adults of the common housefly, *Musca domestica vicina* Macq., for α -dl-trans-allethrin and 'pyrethrins' II kerosene solution in the range of concentration C from 15.625 to 250mg. per 10cc (from light to left). Above figure, α -dl-trans-allethrin; bottom figure, 'pyrethrins' II.

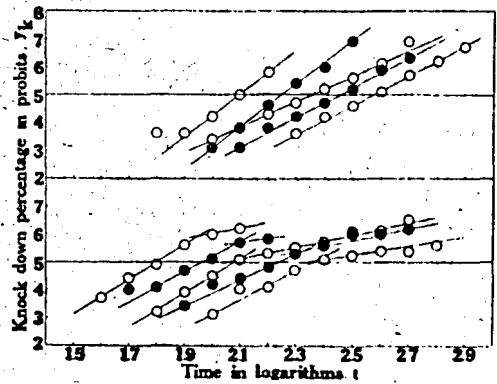


Fig. 5. Time-knock down regression isodoses of adult of the common housefly, *Musca domestica vicina* Macq., for α -dl-trans-allethrin and pyrethrum extracts kerosene solution in the range of concentration C from 15.625 to 250mg per 10cc (from light to left). Above figure, α -dl-trans-allethrin; bottom figure, pyrethrum extracts.

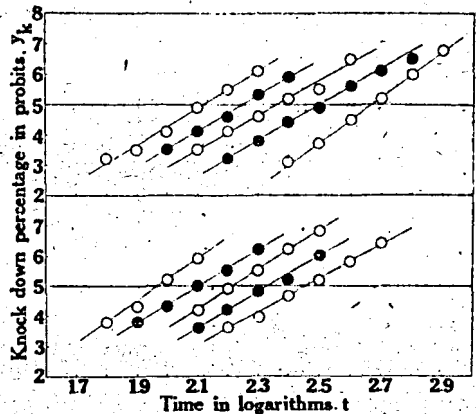


Fig. 6. Time-knock down regression isodoses of adults of the common housefly, *Musca domestica vicina* Macq., for α -dl-trans-allethrin and technical allethrins kerosene solution in the range of concentration C from 15.625 to 250mg. per 10cc (from right to left). Above figure, α -dl-trans-allethrin; bottom figure, technical allethrins.

Table 5. Characteristics of time-knock down regression isodoses of adults of the common housefly, *Musca domestica vicina* Macq., for α -dl-trans-allethrin, 'pyrethrins' I, 'pyrethrins' II, pyrethrum extracts and technical allethrins kerosene solution in the range of concentration C from 15.625 to 250 mg per 10cc. Summary of table 1-4.

| Concentration of sample C | Regression coefficient b_c | Standard deviation σ_c | Log median knock down time \bar{t}_c | Median knock down time \bar{T}_C | |
|------------------------------|---------------------------------|----------------------------------|---|---------------------------------------|--------|
| α -dl-trans-allethrin | 15.625 | 6.77719 | 0.14756 | 2.52253 | 333.07 |
| | 31.25 | 7.16925 | 0.13949 | 2.35633 | 243.41 |
| | 62.5 | 6.37553 | 0.15684 | 2.24102 | 174.19 |
| | 125 | 6.50614 | 0.15370 | 2.09755 | 125.18 |
| | 250 | 8.37848 | 0.11935 | 1.97693 | 94.825 |
| 'Pyrethrins' I | 15.625 | 5.50357 | 0.18169 | 2.34169 | 219.63 |
| | 31.25 | 5.13223 | 0.19486 | 2.19614 | 157.09 |
| | 62.5 | 4.55714 | 0.21944 | 2.04488 | 110.89 |
| | 125 | 6.12126 | 0.16337 | 1.94200 | 87.499 |
| | 250 | 5.91359 | 0.16909 | 1.83104 | 67.770 |
| α -dl-trans-allethrin | 15.625 | 5.15446 | 0.19399 | 2.54641 | 351.89 |
| | 31.25 | 5.60449 | 0.17841 | 2.41236 | 258.44 |
| | 62.5 | 6.05926 | 0.16504 | 2.35331 | 225.58 |
| | 125 | 6.53959 | 0.15291 | 2.18410 | 152.79 |
| | 250 | 8.33114 | 0.12003 | 2.09224 | 123.66 |
| 'Pyrethrins' II | 15.625 | 5.30846 | 0.18836 | 2.20692 | 161.03 |
| | 31.25 | 5.63756 | 0.17737 | 2.09664 | 124.92 |
| | 62.5 | 6.34870 | 0.15751 | 1.96793 | 92.881 |
| | 125 | 5.49543 | 0.18198 | 1.86125 | 72.652 |
| | 250 | 7.65678 | 0.13060 | 1.75301 | 56.625 |
| α -dl-trans-allethrin | 15.625 | 5.13099 | 0.19489 | 2.59350 | 392.15 |
| | 31.25 | 5.24254 | 0.19073 | 2.44918 | 281.31 |
| | 62.5 | 4.89463 | 0.20429 | 2.35557 | 226.76 |
| | 125 | 7.47788 | 0.13373 | 2.25844 | 181.32 |
| | 250 | 7.45312 | 0.13417 | 2.10044 | 126.00 |
| Pyrethrum extracts | 15.625 | 4.43363 | 0.22553 | 2.37137 | 235.16 |
| | 31.25 | 4.13533 | 0.24184 | 2.22677 | 168.56 |
| | 62.5 | 6.09396 | 0.16410 | 2.08090 | 120.47 |
| | 125 | 4.64837 | 0.21515 | 1.97085 | 93.508 |
| | 250 | 6.11299 | 0.16359 | 1.80627 | 64.013 |
| α -dl-trans-allethrin | 15.625 | 7.37185 | 0.13565 | 2.66978 | 467.50 |
| | 31.25 | 5.55419 | 0.18005 | 2.51216 | 325.21 |
| | 62.5 | 5.55881 | 0.17989 | 2.37030 | 234.53 |
| | 125 | 6.00974 | 0.16639 | 2.25325 | 179.16 |
| | 250 | 6.27501 | 0.15936 | 2.12446 | 133.19 |
| Technical allethrins | 15.625 | 6.46323 | 0.15473 | 2.45697 | 286.40 |
| | 31.25 | 5.89438 | 0.16966 | 2.34454 | 221.08 |
| | 62.5 | 5.95694 | 0.16787 | 2.22605 | 168.29 |
| | 125 | 6.05575 | 0.16513 | 2.10790 | 128.20 |
| | 250 | 7.40305 | 0.13508 | 1.97844 | 95.157 |

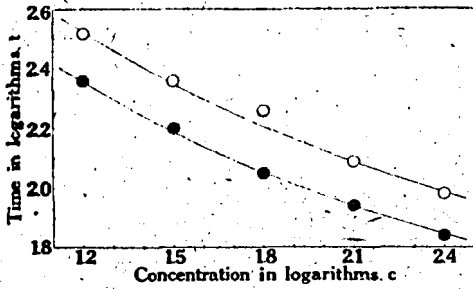


Fig. 7. Relations between log time t and log concentration c at the 50 per cent knock down of adults of the common housefly, *Musca domestica vicina* Macq., for α -dl-trans-allethrin (solid line with circles) and 'pyrethrins' I (solid line with solid circles) kerosene solution in the range of concentration C from 15.625 to 250mg per 10cc.

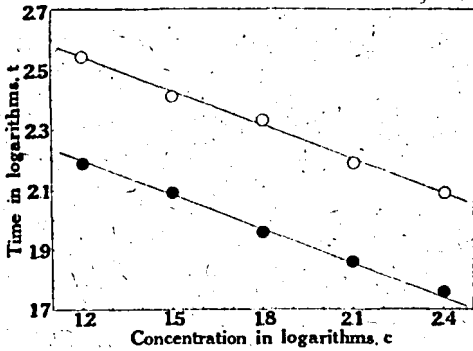


Fig. 8. Relations between log time t and log concentration c at the 50 per cent knock down of adults of the common housefly, *Musca domestica vicina* Macq., for α -dl-trans-allethrin (solid line with circles) and 'pyrethrins' II (solid line with solid circles) kerosene solution in the range of concentration C from 15.625 to 250mg per 10cc.

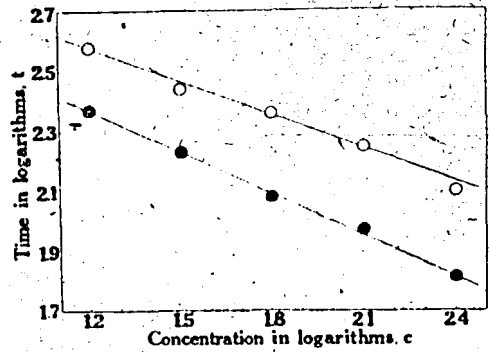


Fig. 9. Relations between log time t and log concentration c at the 50 per cent knock down of adults of the common housefly, *Musca domestica vicina* Macq., for α -dl-trans-allethrin (solid line with circles) and pyrethrum extracts (solid line with solid circles) kerosene solution in the range of concentration C from 15.625 to 250mg per 10cc.

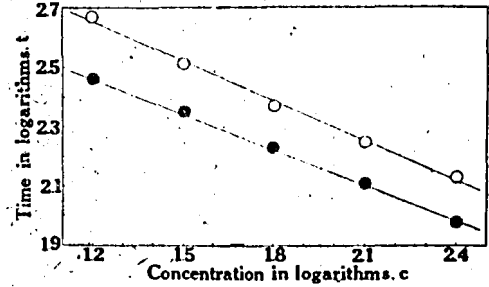


Fig. 10. Relations between log time t and log concentration c at the 50 per cent knock down of adults of the common housefly, *Musca domestica vicina* Macq., for α -dl-trans-allethrin (solid line with circles) and technical allethrins (solid line with solid circles) kerosene solution in the range of concentration C from 15.625 to 250mg per 10cc.

つぎに標準の α -dl-trans-allethrin にたいする供試薬剤の相対有効度をもとめるためにまづ第 5 表の結果をもとにして、時間と濃度との関係を図にえがき、そこにひかれた線分の方程式をもとめてみよう。第 7~10 図および第 6, 7 表がそれで、 α -dl-trans-allethrin と除虫菊エキスとを比較した場合をのぞけば、標準、供試薬剤の有する時間-濃度中央致落仰転虫率曲線 ($T-C$) $YK=50$ はほとんど平行とみなすことが可能である。しかしここでは除虫菊エキスの場合もひとまづ平行関係にあるものと考えて、標準、供試薬剤共通の角係数をもとめて第 6, 7 表にしめた方程式をかきなおすと、それぞれつぎのようになる。すなわち

$$\begin{aligned} \alpha\text{-dl-trans-allethrin} (C-6.0)^{0.376} t &= 774.47 \\ \text{'Pyrethrins' I} (C-6.0)^{0.376} t &= 526.23 \\ \alpha\text{-dl-trans-allethrin} C^{0.379} t &= 994.72 \\ \text{'Pyrethrins' II} C^{0.379} t &= 454.12 \\ \alpha\text{-dl-trans-allethrin} C^{0.426} t &= 1305.9 \\ \text{Pyrethrum extracts} C^{0.426} t &= 717.34 \\ \alpha\text{-dl-trans-allethrin} C^{0.422} t &= 1395.1 \\ \text{Technical allethrins} C^{0.422} t &= 958.07 \end{aligned}$$

これから一定の濃度において 50% を落下仰転せしめるに要する時間の比をもつて、標準薬剤にたいする供試薬剤の相対有効度を中央当量数にして表示すると、第 8 表のごとくである。

Table 6. Relations between log time t and log concentration c at the 50 per cent knock down of adults of the common housefly, *Musca domestica vicina* Macq., for α -dl-trans-allethrin and 'pyrethrins' I kerosene solution in the range of concentration C from 15.625 to 250mg per 10cc.

| Sample | Regression equation $\log T + b_2 \log (C - C_0) = a_2$ or in original units $(C - C_0)^n t = k$ | Precision of equation | | | |
|------------------------------|---|-----------------------|---|-----------|-----------|
| | | S^2 | $V(a_2)$ | $V(b_2)$ | $V(C_0)$ |
| α -dl-trans-allethrin | $t + 0.38622 (C - 6.0) = 2.90605$ or $(C - 6.0)^{0.336} t = 805.47$ | 0.0002811 | 0.0000562 \bar{c} being 1.7274520 | 0.0150948 | 0.0013173 |
| 'Pyrethrins' I | $t + 0.36637 (C - 6.0) = 2.70407$ or $(C - 6.0)^{0.366} t = 505.86$ | 0.0000274 | 0.0000055 \bar{c} being 1.7274520 | 0.0014734 | 0.0000129 |

Table 7. Relations between log time t and log concentration c at the 50 per cent knock down of adults of the common housefly, *Musca domestica vicina* Macq., for α -dl-trans-allethrin, 'pyrethrins' II, pyrethrum extracts and technical allethrins kerosene solution in the range of concentration C from 15.625 to 250mg per 10cc.

| Sample | Regression equation $\log T + b_2 \log C = a_2$ or in original units $C^n t = k$ | Precision of parameter a_2 and b_2 (\bar{c} being 1.79588) | | |
|------------------------------|---|--|-----------|-----------|
| | | S^2 | $V(a_2)$ | $V(b_2)$ |
| α -dl-trans-allethrin | $t + 0.37756 c = 2.99573$ or $C^{0.378} t = 990.22$ | 0.0006792 | 0.0001358 | 0.0007495 |
| 'Pyrethrins' II | $t + 0.37976 c = 2.65915$ or $C^{0.380} t = 456.19$ | 0.0000465 | 0.0000093 | 0.0000513 |
| α -dl-trans-allethrin | $t + 0.39094 c = 3.05351$ or $C^{0.391} t = 1131.1$ | 0.0043723 | 0.0008745 | 0.0048249 |
| Pyrethrum extracts | $t + 0.46044 c = 2.91813$ or $C^{0.460} t = 828.19$ | 0.0001817 | 0.0000363 | 0.0002005 |
| α -dl-trans-allethrin | $t + 0.44831 c = 3.19110$ or $C^{0.448} t = 1552.4$ | 0.0001994 | 0.0000399 | 0.0002200 |
| Technical allethrins | $t + 0.39652 c = 2.93489$ or $C^{0.398} t = 860.77$ | 0.0000313 | 0.0000063 | 0.0000345 |

Table 8. Relative knock down effectiveness of 'pyrethrins' I, 'pyrethrins' II, pyrethrum extracts and technical allethrins kerosene solution compared with the effectiveness of the standard to adults of the common housefly, *Musca domestica vicina* Macq.

| Sample | Median equivalent |
|------------------------------|-------------------|
| α -dl-trans-allethrin | 1.00 |
| 'Pyrethrins' I | 1.47 |
| 'Pyrethrins' II | 2.19 |
| Pyrethrum extracts | 1.82 |
| Technical allethrins | 1.46 |

まづ 'pyrethrins' I と II の致落下仰転効力を比較してみると、II が I よりかなりまさっていることがわかる。これは α -dl-trans-allethrin を I とした場合であるが、かりに 'pyrethrins' I を I とした場合の II の有する相対有効度をもとめてみると 1.48 となり、II は I より約 1.5 倍の致落下仰転効力をもっているといえることができる。こうした α -dl-trans-allethrin を標準として 'pyrethrins' I および II を別々に実験し、その結果から相対的の数値をもとめるのは別に、'pyrethrins' I および II を相互におなじ方法によつて比較してみたが、ここにはしめさな

いとその結果もまた約1.5倍という相対数値であった。さきにものべたように、先学者によつておこなわれたピレトリン I と II の比較はほとんどその致死効力を比較したものであるが、致落下仰転の効力を比較したものとしてただひとつ Sullivan et al.⁹⁾による報告をここにあげることができる。しかしこれにもちいられた試料はI及びIIを含む不純物であり、その定量は最近不適當であるとされた¹⁰⁾ところの Seil の發法によつたものであり、また供試個体群が落下仰転していく時間的終過を詳細に記録した結果ではない。なお Sullivan et al.⁹⁾ はなかでピレトリン I には致落下仰転の効力はないのではないかという推測をしているが、筆者の実験結果からは 'pyrethrins' I にもすくなくからずこの効力の存することがいえる。

つきはこの 'pyrethrins' I と II の分離にもちいた除虫菊エキスの致落下仰転効力をみると、これはちよとそれと同一濃度の 'pyrethrins' I と II の効力の和の半分にひとしい結果をしめしている。この結果については、あるいは深く考えるならば I と II はまつたく similar joint action の関係にあつて、2者は互に相乘的にもまた拮抗的にもはたらいしていないといふことができる。もしそうであるならば、ポーラログラフ法によつて定量された総ピレトリン量は、そのまま生物学的に評価された有効度と一致し、エキスなどの検定には都合のよいことである。しかしそのように結論するためには、こうして分離された I と II をふたたびいろいろな割合に混合して、それがもとのエキスのそれと同じ濃度において同じ有効度数値をしめすか否か実験してみることが必要であろう。

最後に工業製品アレスリンの致落下仰転効力をみると、 α -dl-trans-allethrin の1.46倍となつている。これは結晶アレスリンが、アレスリンの異性体中、効力の点においては一番おととのべられた Gersdorff のらの実験結果を裏づける一事実と考えられる。

VJ. 摘 要

クロマトグラフ法によつて分離された 'pyrethrins' I および II, ならびにこれらの分離の原料とした除虫菊エキスのイェバエの成虫を落下仰転せしめる効力を α -dl-trans-allethrin を標準薬剤として Campbell and Sullivan⁹⁾ の金属製回転装置を改良した装置と方法により比較検討した。その結果は第7表のごとくで 'Pyrethrins' II は I よりイェバエを落下仰転せしめる効力においてかなりまさり、約1.5倍である。なおこれには α -dl-trans-allethrin の単離にもちいた工業製品アレスリンの効力をもあわせしめた。

VII. 引用文献

(1) Campbell, F. L. and W. N. Sullivan: Soap

Sanit. Chem. 14 (6), 119-125, 194(1938).

- (2) 例えば井上雄三: 京都大学化学研究所報告, 25, 1-17 (1951) 参照。
- (3) 長沢純夫: 植物防疫 6 (11), 393-395(1952).
- (4) 長沢純夫: 日本農芸化学会關西支部列会第 103 回講演会において発表, 昭和28年10月17日。
- (5) 大岩俊彦・井上雄三・植田稷三・大野 稔: 防虫科学 17(3), 106-122 (1952)
- (6) 大岩俊彦・篠原照己・竹下康彦・大野 稔: 防虫科学 18(4), 142-169 (1953).
- (7) Schechter, M. S., F. B. LaForge, Z. Zimmerli and J. M. Thomas: J. A. Chem. Soc. 73, 3541 (1951).
- (8) Staudinger, H. and L. Ruzicka: Helv. Chim. Acta 7, 177-201 (1924).
- (9) Sullivan, W. N., H. L. Haller, E. R. McGovran and G. L. Phillips: Soap Sanit. Chem. 14 (9), 101, 103, 105(1938).

Résumé

Since the investigation of Staudinger and Ruzicka⁸⁾ that the active ingredients of pyrethrum are formed of pyrethrin I and II, though in that later LaForge et al.⁹⁾ found newly cinerin I and II as the active ingredients of pyrethrum, the comparison of the toxicities of pyrethrin I and II began to an interesting object of the study for those connected with biological assay of insecticides. And we can now find already over the ten papers on this problem. However, these studies were done with an eye to compare the lethal effect and were not discussed so many on the fast knock down effect which is the leading factor in fly spray. These papers are felt somewhat wanting viewed from the biological assay of insecticides and practical uses. And also, the all samples used by these seniors were mixtures of these components, and the pure samples were not used for comparison.

The biological assay of pyrethrins and pyrethrins type compounds is also necessary to carry out at the point of comparing the knock down effectiveness, and the pure samples should be used for fundamental study. In this paper, the writer described the results of an experiment which was carried out at those points of view.

As the standard insecticides, α -dl-trans-

allethrin (mp. 50~50.5° C) which is a chry-stalline isomer of allethrins was used for biological assay. 'pyrethrins' I ($\lambda_{max}=224M\mu$, $\epsilon\lambda_{max}=34250$) and II ($\lambda_{max}=229M\mu$, $\epsilon\lambda_{max}=35850$) used for comparison were the same samples separated from the pyrethrum extracts by Oiwa et al.⁽⁶⁾ through application of column partition chromatography. Pyrethrins contents of the pyrethrum extract used for separation of 'pyrethrins' I and II were 'pyrethrins' I -6.1%, 'pyrethrins' II- 5.6%, total pyrethrins value 11.7%. These contents were determined by polarographic method. And the allethrins contents of technical allethrins used for separation of α -dl-trans-allethrin were 90.6%. This quantity was also determined by the polarographic method.

The common housefly, *Musca domestica vicina* Macq., used as the test insect was reared with the culture medium using by-products of 'tofu' making. Paste of wheat was given as the food of adults. And the 4 or 5 days individuals after emergence were used.

The settling mist apparatus modified the Campbell's metal turn table⁽¹⁾ was used as the experimental apparatus. This is almostly same with the apparatus described by Sullivan et al.⁽⁶⁾, except, as shown in figure 1, the somewhat deeper pot than that of the apparatus of Sullivan et al. was used and the special atomizer, as shown in figure 2, was used for spray a little quantity of insecticidal kerosene solution. The samples were diluted with kerosene (bp 180~230° C) to 15, 62.5, 31.25, 62.5, 125 and 250 mg per 10 cc. About ten individuals of the common housefly were used at an experiment, and 0.5 cc of insecticidal solution were sprayed into cylinder under the pressure of 20 lb/in². After ten seconds the glass slide intercepting between the upper cylinder and lower pot was pull out, and the mist of insecticide was settled on the houseflies in the lower pot.

The number of knock down individuals after spraying were counted at the logarithmic scale of time. Three or five experiments were repeated at each concentration of all insecticides and the results of these experiments were totalled. The results are shown in the tables 1-4. And the summary of tables 1-4 calculated by the Bliss' probit transformation method on time-mortality curve are shown in the table 5 and the figures 3-5. Then, based on the numerical values of table 5 the relations between log time t and log concentration c of all samples at the 50 per cent knock down of adults of the common housefly were calculated. The results are shown in the tables 6 and 7.

From these results, the relative knock down effectivenesses of 'pyrethrins' I, II, pyrethrum extracts and technical allethrins compared with the effectiveness of α -dl-trans-allethrin were calculated. The results are shown in the table 8. The glances of result of the table 8 are as follows: The knock down effectiveness to adults of the common housefly of 'pyrethrins' II is ca 1.5 times as that of 'pyrethrins' I, and the knock down effectiveness is also recognized clearly in 'pyrethrins' II. The knock down effectiveness of pyrethrum extracts used for separation 'pyrethrins' I and II was the half of sum of the effectiveness of 'pyrethrins' I and II. Namely, 'pyrethrins' I and II is joint acting similarly. If this is invariable fact in all pyrethrum extracts, this is very convenient for evaluation of pyrethrum extracts as the result of quantitative determination of total pyrethrins value by polarographic method corresponds with the result of biological assay. Technical allethrins is ca 1.46 times as toxic as α -dl-trans-allethrin. This is seemed a fact to affirm that the toxicity of α -dl-trans-allethrin is lowest among the other isomer of allethrins.⁽⁷⁾