

Table 2. Effectiveness of α -dl-trans allethrin, Ia and Ib to adults of the common house fly, *Musca domestica vicina* Macq. applied topically in acetone solution.

Material	Knock-down (after 30 minutes)		Mortality (after 24 hours)	
	KD-50 (γ /fly)	Relative effectiveness	LD-50 (γ /fly)	Relative effectiveness
α -dl-trans allethrin	0.40	1.000	1.29	1.000
benathrin Ia	0.21	1.904	0.13	9.923
iso-benathrin Ib	384.28	0.001	29.49	0.044

Summary

The relationship between chemical structure and insecticidal activity of chrysanthemates of substituted-benzyl alcohols, -phenols and-cyclohexanols is discussed.

文 献

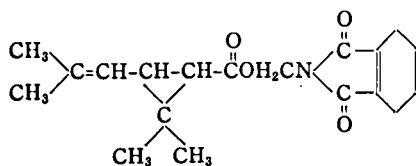
- 1) Katsuda, Y., Ogami, H.: *Botyu-Kagaku*, 31, 30 (1965).
- 2) Elliott, M., Janes, N. F., *et al.*: *Natur*, 207, 938 (1965).
- 3) Katsuda, Y., Chikamoto, T. and Inouye, Y.: *Botyu-Kagaku*, 23, 5 (1958).

Synergistic Effect of Synthetic Synergists on Phthalthrin against Adults of the Common House Fly, *Musca domestica vicina* Macq. Studies on the Biological Assay of Pyrethroids. Rept. 3 Kazuo BUÉI (Osaka Public Health Institute, Osaka) Shiro ASADA, Akeo HASUO, Mineo, ŌMORI and Nobuko FUJIMOTO (Research Laboratory, The Nippon Camphor Co. Ltd., Kobe) Received March 9, 1966. *Botyu-Kagaku* 31, 86 (with English Summary 90)

13. イエバエに対するフタルスリンと合成共力剤の共力効果について ピレスロイドの生物試験に関する研究 第3報 武衛和雄 (大阪府立公衆衛生研究所) 浅田四郎・蓮生明郎・大森嶺男・藤本信子 (日本樟脳株式会社研究所) 41. 3. 9 受理

Phthalthrinに共力剤を混用したときのイエバエに対する共力効果を、微量滴下法と噴霧降下法によって実験した。その結果、phthalthrin に対して safroxan の共力効果が最も大きかった。しかしこれをピレトリンと piperonyl butoxide における共力効果と比較すると劣っていることがみとめられた。

最近わが国で開発された phthalthrin は、昆虫に対し速効的な麻痺作用をもつすぐれた新ピレスロイド^{1,3-5)}で次のような構造式を有する化合物である。



しかし、致死の効力にはとぼしく、致死濃度に達しない場合は蘇生する割合が比較的高いという欠陥をもつことは、ピレトリンやアレスリンなどと同様である。この欠陥を補うためには、共力剤と混用して効力をたかめることが考えられる。従来有効と考えられてきた種々の共力剤も、菊酸エステル類の化学構造によってその共力効果が同一にあらわれないことは、これまで数多くの研究によって明らかにされてきたとおりで

ある。

phthalthrin に対する共力剤の効果については倉本ら⁴⁾の報告があるが、本報では主として methylenedioxyphenyl group をもつ各種の共力剤を phthalthrin と混用した場合、イエバエに対してどのような共力効果があらわれるかについて比較実験を行なったものである。

実験材料および実験方法

実験に供した phthalthrin は、住友化学工業株式会社製造による活性成分88.2%の technical grade のものを、また比較に用いたピレトリンは長岡駆虫剤製造株式会社製造の total pyrethrins 23.57%(I 12.37%, II 11.20%)を含むエキスである。また合成共力剤には piperonyl butoxide, safroxan, sulfoxide, *n*-propyl isome および S-421 のそれぞれ technical grade のものを実験に供した。

実験に用いたイエバエ *Musca domestica vicina* Macq. は高槻系で、当研究室において幼虫期は小麦ふすまと魚粉2:1の混合培地で、成虫期は2%砂糖水とミルクをあたえて累代飼育した系統である。羽化後2~4日の砂糖水だけをあたえて飼育したメスを実験に用いた。

実験は微量滴下法および噴霧降下法によって行なった。

微量滴下法: エーテルでかるく麻酔したメス成虫の胸背部に、microsyringe を用いて供試薬剤のアセトン溶液を0.6 μ l ずつ滴下する。こうして処理したハエは、餌をいれた直径9 cm、深さ6 cmの腰高シャーレにそれぞれ20匹ずつつうつしいれ、25°で約24時間経過後に生死を判別して記録した。実験は1濃度について6回くりかえした。

噴霧降下法: 実験の装置、方法については前報¹⁾に報告した試験法と全く同様である。1回の実験には15匹のイエバエを供試し、観察はノックダウン効果および致死効果とをあわせて行なった。実験は1濃度について5回くり返し、実験中の温度はすべて25°前後の恒温下で行なった。

実験結果と考察

1. 微量滴下法による各種共力剤の効力比較

実験の最初に、供試したこれら共力剤のそれぞれが単独において殺虫力をもたないものかどうかを確かめるため、0.0625%より1%まで各種濃度段階の synergist-acetone 溶液をつくり、これをイエバエに滴下処理したその結果は第1表に示すとおりで、methylenedioxyphenyl group の各共力剤はいずれも単独としては殺虫力をもたないことが確かめられた。塩素化脂肪族エーテルである S-421 においてはかなり高い致死作用がみとめられ、この結果より LD₅₀ を求めてみると 2.0326 μ g/fly となった。

それぞれの濃度の phthalthrin に対し、共力剤を5倍量加え各濃度ごとの平均死亡率を求めた。この死亡率をプロビットに変換し、濃度を対数にとってプロットし、それらの点を満足する予備回帰直線をもとめて

Table 1. The toxicity of synergist alone applied topically to house flies.

Synergist	0.0625%	0.125%	0.25%	0.5%	1.0%
Safroxan	—	0	0	0	0
Sulfoxide	—	1.7	0	0	0
Piperonyl butoxide	0	1.7	1.7	0	1.7
n-Propyl isome	—	0	3.3	0	0
S-421	—	1.7	20.0	88.1	100.0

図示したのが第1図である。さらに Finney の図解法にもとずいて LD₅₀ を求めた。それぞれの値は第2表の左欄に示すとおりである。

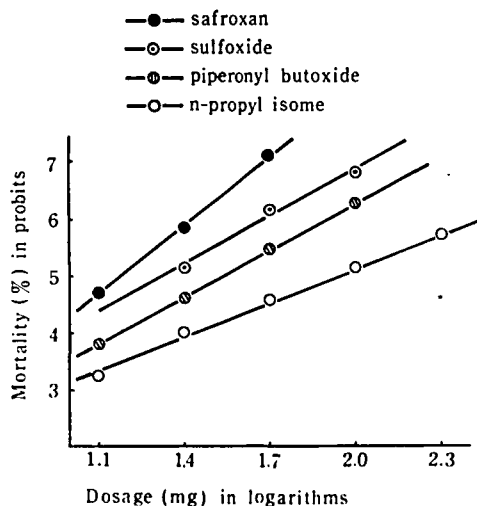


Fig. 1. The relation between dosage and mortality of house flies treated with phthalthrin combined with various synergists at a ratio of 1:5 by topical application.

Table 2. The factors of synergism and LD₅₀ values of phthalthrin combined with various synergists at a ratio of 1:5 applied topically to female house flies.

Toxicant	Phthalthrin		Pyrethrins	
	LD ₅₀ (μ g/fly)	Factor of synergism	LD ₅₀ (μ g/fly)	Factor of synergism
—	0.8221	1.00	1.0718	1.00
Safroxan	0.0923	8.91	—	—
Sulfoxide	0.1288	6.38	—	—
Piperonyl butoxide	0.2114	3.89	0.0785	13.65
n-Propyl isome	0.5496	1.50	—	—

データを比較するために、対 phthalthrin との比、LD₅₀ phthalthrin / (LD₅₀ phthalthrin + synergist) から効力増強度* を求め、それぞれの共力剤について比較すると、safroxan は 8.91 倍となって他のいずれの共力剤よりも効果が大きかった。ついで sulfoxide

* あるピレスロイドの効力と、それに共力剤を加用したときの効力とを比較したときに表現される効力増強度は factor of synergism とよび、ある共力剤を加用したピレスロイドの効力と、他の共力剤を加用したときの効力とを比較した場合は relative potency とよぶことが Chadwick²⁾ によって示されている。

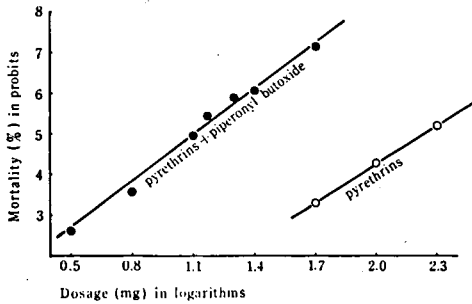


Fig. 2. The relation between dosage and mortality of house flies treated with pyrethrins plus piperonyl butoxide at a ratio of 1:5 by topical application.

6.38倍, p. butoxide 3.89倍となり, p. isome は1.50倍で最も小さかった。

一方, ピレトリンに p. butoxide を混用したときの効力について, 同様な方法で求めた結果をまとめ, 第2図および第2表の右欄に示した。ピレトリンに対する p. butoxide の効力増強度は13.7倍であり, これを phthalthrin において最もすぐれた共力効果をもたらした phthal. + safroxan と比較しても, py. + p. butoxide の方がはるかにすぐれていることがわかる。

つぎに同じ濃度の phthalthrin に対し, 共力剤の混合比率をふやしてゆくと, どの程度まで死虫率がたかまるものかについて検討した。共力剤として p. butoxide を用いた。すなわち各種濃度の phthalthrin に対し, p. butoxide を最低1.25倍, 最高20倍量まで増量してゆき薬量-死虫率の関係を p. butoxide の混合倍数別にプロットして回帰直線をひいてみると, 第3図のようになった。すなわち, p. butoxide の混合倍数が大きくなるにしたがい, ほぼ平行してより高い

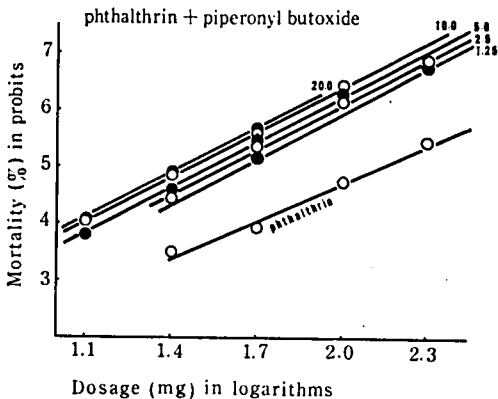


Fig. 3. The relation between dosage and mortality of house flies treated with mixtures of phthalthrin plus piperonyl butoxide at different ratio by topical application.

死虫率の方へと移動した。それぞれの回帰直線から LC_{50} を計算したところ phthalthrin に対し p. butoxide を1.25, 2.5, 5, 10, 20倍混合したときにそれぞれ0.0447, 0.0389, 0.0343, 0.0292, 0.0275%となった。これを phthalthrin 単独のときの LC_{50} (0.1333%) と比較して効力増強度を求め, 図示したのが第4図aである。この曲線からみると, p. butoxide を添加する倍率をたかめるのにもない, 増強度も急激に上昇し, その量が10倍をこえると緩徐になり, 20倍あたりではほぼ限界に達している。

ここにおいて, ひとしい殺虫効果が期待されたとしても, その効力まで到達したある formulation の価格は共力剤の混合割合によって変わってくる。Chadwick²⁾ はこのような関係を次式によって表現できることを示した。すなわち,

$$\text{単価} = \frac{\text{phthalthrin の単価} + \text{p. butoxide の単価} \times \text{添加倍率}}{\text{効力増強度}}$$

上式にあてはめて単価 (g) を算出すれば, 第4図bのグラフが画かれる (かりに phthalthrin 30.00

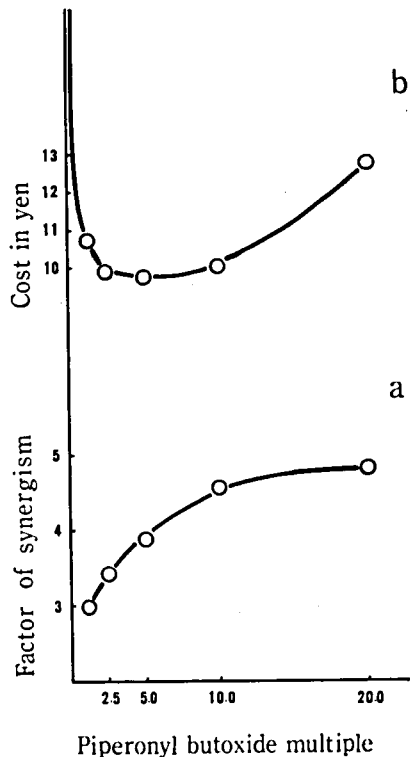


Fig. 4. a. The relation between the factor of synergism of piperonyl butoxide to phthalthrin and multiple of piperonyl butoxide. b. The cost of mixture at different proportions of piperonyl butoxide yen per gram.

Table 3. The rates of knockdown and mortalities of house flies treated with phthalthrin or pyrethrins combined with synergist at a ratio of 1 : 10 by the settling mist apparatus.

Toxicant	0.1% Phthalthrin			0.1% Pyrethrins	0.1% Synergist	
	Synergist	KT ₅₀ (min.)	Factor of synergism	Mortality %	Mortality (%)	
—	—	2.63	—	28.5	4.9	—
Piperonyl butoxide	—	2.42	1.09	88.8	98.7	1.4
Safroxan	—	2.47	1.06	82.0	94.5	41.5
n-Propyl isome	—	2.48	1.06	85.0	81.3	6.8
Sulfoxide	—	2.57	1.02	87.1	100.0	10.3
S-421	—	2.57	1.02	93.2	89.2	94.7

yen per gram, p. butoxide 1.60 yen per gram とおいた)。このような表現法を用いると、効力の増強度をただでなく、それに付随した経済的な効率をもあわせてすることができよう。

2. 噴霧降下法による効力比較

phthalthrin に10倍量の共力剤を混用した石油液の効力を噴霧降下法によって実験した。ノックダウン効果について観察の結果より KT₅₀ を計算し、その相対有効度で比較した(第3表)。

phthalthrin 単独の場合の KT₅₀ は2.63分を示したのに対し、共力剤を混用した場合でもいずれもほとんど変らなかった。S-421 は、単独に用いてもノックダウン効果は大きくあらわれ、KT₅₀ は3.49分という値がえられた。

一方死虫率をみると、共力剤との混用によって死虫率は高くなり、共力効果が認められたが、微量滴下法の場合のように共力剤によって増強度に優劣の差異はほとんどあらわれなかった。比較のためにピレトリンと p. butoxide について実験した(第3表)、これを phthalthrin での成績と比較すると、ピレトリン単独の死虫率ももっと低いにもかかわらず、共力剤を添加することによって死虫率は前者よりも全般的に高くなっている。この傾向はすでに述べた微量滴下法における成績と同じ傾向であった。

ここで特異性を示したのは、共力剤単独処理でみられるように、噴霧法によるイエバエの死虫率が safroxan においてかなり高くあらわれたことである。薬剤の処理方法のちがいが大きく差を示した一例であり、この場合は溶媒のちがいが虫体への浸透性に差をもたらしたのが一因と考えられる。微量滴下法によると、アセトンの蒸発によって結晶性の safroxan (mp. 45~48°) が充分虫体に吸収されないため死虫率があらわれないのに反し、噴霧法の場合は比較的蒸発しがたい kerosene を溶媒に使用して浸透を容易ならしめた結果、死虫率が高まったものと推察される。

S-421 による死虫率がきわめて高いことは微量滴下法の場合と同様で、この実験のように1%も添加すると phthalthrin との共力効果は認められず、またピレトリンではかえって効力が減退する傾向があらわれている。

0.01%から0.2%まで5段階の濃度の phthalthrin に対し、それぞれ p. butoxide の混合倍率をかえることにより、種々の組み合わせ濃度の石油液をつくり、これを噴霧降下法によってイエバエに処理せしめ、死虫率の変動を観察した。結果は第5図に示すとおりである。phthalthrin に対し p. butoxide を増量してゆくと、それにともない死虫率も上昇したが濃度の低い

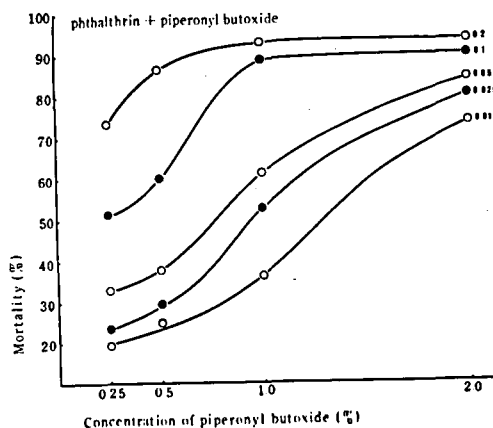


Fig. 5. The relation between dosage and mortality of house flies treated with mixtures of phthalthrin plus piperonyl butoxide at different ratio by the settling mist apparatus.

phthalthrin でも p. butoxide の量をふやすことにより死虫率はかなり高くなった。最終的には死虫率が90%をこえるような濃度は、0.1%の phthalthrin に対し、約10倍量の p. butoxide を使用したときにえられ、実用的にもこのあたりが限界ではないかと考えられる。

ま と め

phthalthrin の殺虫効力をたかめる目的で、共力剤を混用したときにその共力効果がどのように期待されるかについて、イエバエを用いて実験した。微量滴下法と噴霧降下法とにより検討した結果、その効力は方法のちがいで差はあらわれたが、safroxan が最も大きい共力効果を示した。しかし、ピレトリンにおける p. butoxide の効力と比較してみると、phthalthrin+safroxan の共力効果の方がなお劣っていた。

phthalthrin に対し p. butoxide の添加量をふやしてゆくとイエバエの死虫率はかなり増大する傾向が認められた。

文 献

- 1) 武術和雄・浅田四郎・児玉昌克・蓮生明郎・大森嶺男：防虫科学 30, 37 (1965).
- 2) Chadwick, P. R.: Pyrethrum Post 7, 25(1963).
- 3) Kato, T., Ueda, K. and Fujimoto, K.: *Agr. Biol. Chem.* 28, 914 (1965).
- 4) 倉本佐一郎・加藤武明・服部準之助・大井尚文：住友化学 特集号II, 18 (1965).
- 5) 特公 昭39-11890 (1964).

Summary

1. The synergistic effects of synthetic synergists combined with new pyrethroid "phthalthrin" on house flies were compared with those of pyrethrins by using topical application method and settling mist apparatus.

2. The experimental results obtained by the topical application method were as follows. The

factors of synergism of phthalthrin combined with various synergists at a ratio of 1:5 were as follows: safroxan 8.91, sulfoxide 6.41, piperonyl butoxide 3.89, *n*-propyl isome 1.51, showing the greatest lethal effect of phthalthrin plus safroxan. While the factor of synergism of p. butoxide to pyrethrins was 13.69. It shows that the synergism of phthalthrin plus safroxan was still inferior to that of pyrethrins plus p. butoxide.

The mortality of house flies increased in proportion with increasing in the multiple of synergist added between 1:1.25 and 1:10, but it did not increase when synergist exceeded 1:20.

3. The effects of phthalthrin combined with 10 times of each synergist (p. butoxide, *n*-propyl isome, sulfoxide, safroxan and S-421) using settling mist apparatus were as follows.

The mortality of house flies increased by mixing synergist having 3, 4-methylenedioxyphenyl group. However, the difference in mortalities among those synergists used was negligible.

It was not recognized that the knock-down effect of phthalthrin plus synergist was higher than that of phthalthrin alone.

As for the lethal effect, it was suggested that 0.1% phthalthrin combined with 10 times of p. butoxide was practically suitable.

4. The lethal effect of S-421 alone was unexpectedly high, but when this was mixed with phthalthrin or pyrethrins, the antagonism was observed.