

their hearty thanks to Dr. J. N. Kaplanis of Insect Physiology Laboratory, U. S. D. A., who kindly carried out gas chromatographic analyses of sterols.

References

1) W. Bergmann : *J. Biol. Chem.*, 107, 527 (1934).

2) G. Fraenkel and M. Blewett : *J. Exp. Biol.* 22, 156 (1946).
 3) N. Ikekawa, M. Suzuki, M. Kobayashi and K. Tsuda : *Chem. Pharm. Bull.*, 14, 834 (1966).
 4) E. Mitsui : *Jap. J. app. Ent. Zool.*, 9, 132 (1965).
 5) C. H. Shaefer, J. N. Kaplanis and W. E. Robbins : *J. Ins. Physiol.*, 11, 1013 (1965).

Enzymatic Hydrolysis of Monofluoroacetanilides in Insects. Kazuhiko ANDO and Toshiie NAKAMURA (Agricultural Chemicals Research Laboratories, Sankyo Co. Ltd., Yasu-Cho, Shiga-Ken) Received October 22, 1966. *Botyu-Kagaku*, 31, 157. 1966. (with English Summary, 161).

23. Monofluoroacetanilides の昆虫体における酵素的加水分解* 安東和彦・中村利家 (三共株式会社農業研究所) 41. 10. 22 受理

Monofluoroacetanilides の殺虫作用機構について検討した結果、昆虫に対しても温血動物に対すると同様に作用することがわかった。すなわちまず酵素的加水分解によってモノフルオロ酢酸と相当するアニリン類を生じ、生じたモノフルオロ酢酸が中毒の原因となると考えられる。さらにこの加水分解酵素は昆虫と温血動物とはかなりその性質を異にし、殊に昆虫のそれは温血動物のそれよりも Dipterex, triphenylphosphate などの阻害剤の影響を受けにくいということがわかった。

1. 緒 言

Monofluoroacetanilides は強い殺虫作用を持つフッ素化合物であり¹⁾、特に吸汁口を持つ昆虫およびハダニ類に対して優れた効力を有することが知られている²⁾。これら化合物の温血動物体における毒性発現機構については、最近中村らにより一連の研究が行なわれた。すなわち monofluoroacetanilides は温血動物体内ではまず酵素的加水分解を受けてモノフルオロ酢酸と相当するアニリン類を生じ、これが毒性発現の第一段階となると考えられる^{3,10)}。この加水分解酵素は Fluoroacetanilides amidohydrolase (以下 Fluoroacetanilidase と略称する) と仮称され、マウスおよびニワトリ肝臓の酵素についてその諸性質が明らかにされている^{11,12)}。さらに fluoroacetanilidase 阻害剤¹³⁾ をもちいての毒性軽減およびその場合の殺虫効力への影響について興味ある事実が見出された¹⁴⁾。温血動物体内ではかくして生じたモノフルオロ酢酸は、既に Peters らによって明らかにされているように fluoro-citrate に生合成され、これが TCA-cycle 中の aconitase を阻害することにより中毒作用を起こすものであり、その結果中毒した動物体内には多量のクエン酸の蓄積がみられるということが知られている^{6,15,16,17)}。

モノフルオロ酢酸誘導体の昆虫に対する殺虫作用機構についてはこれまでにあまり検討が行なわれてい

* 本研究の内容は1966年3月31日、昭和41年度日本応用動物昆虫学会大会 (京都) において発表された。

いが、Matsumura and O'Brien⁹⁾ は monofluoroacetamide および Na-fluoroacetate で中毒したイエバエ、ワモンゴキブリの体内にはやはり多量のクエン酸の蓄積がみられることを明らかにしており、モノフルオロ酢酸誘導体の殺虫作用は基本的には温血動物に対する作用と変わらないものであることを示唆している。また同時にワモンゴキブリおよびマウスホモジネートの monofluoroacetamide の加水分解活性を比較測定して、選択毒性の観点からの考察も試みている。

著者らは monofluoroacetanilides の殺虫作用機構を究明する目的でまず昆虫体における fluoroacetanilidase の存在および中毒後のクエン酸蓄積の有無を確認し、monofluoroacetanilides は昆虫体においても酵素的加水分解を受け、温血動物におけると同様に毒作用を発現すると考えられることを明らかにした。さらに特に選択毒性の観点から昆虫の fluoroacetanilidase と温血動物のそれについて若干の比較検討を試み興味ある結果を得たのでここに報告する。

2. 実験材料

(1) 供試化合物

monofluoroacetanilide (FAn) : m. p. 74.0~74.5 °C, 純度 F-値換算99.0%, および monofluoroacetate-p-bromoanilide (FBA) : m. p. 136.5~137.0 °C, 純度 F-値換算99.2%, の2種類を使用した。いずれもダイキン工業 (株) より提供を受けた。酵素阻害剤としてもちいた dimethyl (2,2,2-trichloro-1-hydro-

xyethyl) phosphonate (Dipterex) はメタノール再結晶 (m. p. 78.0~78.5°C) を, triphenylphosphate (TPP) は試薬 (半井化学KK製) をそのままちいた。

(2) 供試昆虫

a. アブラムシ

モモコフキアブラムシ (Mealy plum aphid: *Hyalopterus arundinis* Fabricius) およびムギヒゲナガアブラムシ (Japanese grain aphid: *Macrosiphum avenae akebiae* Shinji) の2種類を供試した。いずれも滋賀県野洲郡野洲町において、前者はモモの葉に、後者はイネの幼穂に寄生している野外集団を採集したものである。

b. クワコナカイガラムシ (Comstock mealybug: *Pseudococcus comstocki* Kuwana)

当研究所内の25°Cの恒温飼育室内でカボチャの果実をもちいて累代飼育している集団より、ふ化後約30日を経過した産卵前の雌成虫を選んで供試した。

c. イエバエ (House fly: *Musca domestica vicina* Macquart)

DKM (伝研) 系、1955年以来当研究所で累代飼育しているもので、幼虫期には実験動物用固型飼料 (オリエンタル酵母KK製) を粉砕したものとふすまと水を2:3:5の割合で混合した培地をもちい、成虫期には2%砂糖水とペプトンを与えて25°C下で飼育したものの羽化後3~4日を経過した雄成虫を供試した。

d. チャバネゴキブリ (German cockroach: *Blattella germanica* Linné)

イエバエ幼虫の培地にもちいた実験動物用固型飼料と水とを与えて25°C下で累代飼育したものの雄成虫のみを供試した。

3. 実験方法

(1) FAn および FBA の接触殺虫性

a. アブラムシ・クワコナカイガラムシ

試験方法は浸漬法による。FAn, FBA はいずれも各25部をクレ-65部、ポリビニールアルコール5部、アルキルベンゼンスルホン酸ソーダ5部と共に乳鉢でよく混合磨砕して25%の水和剤に調整使用した。市販農薬用展着剤 (新グラミン) 0.03%水溶液をもちいて処定濃度に希釈した前記水和水和剤の懸濁液 (液温20°C) 中に、供試虫をその寄主ごと30秒間浸漬し風乾後25°C下に放置、アブラムシは24時間後、クワコナカイガラムシは7日後の死虫率を調べた。

b. イエバエ・チャバネゴキブリ

マイクロシリンジをもちいた局所処理法による。エーテル麻酔した供試虫の胸部背面にFAn およびFBAのアセトン溶液を1頭当り0.001 mlの割合で滴下した後、供試虫は餌と共にガラス容器中に収容、25°C下

に放置していずれも処理3日後の死虫率を調べた。

以上の試験はいずれも2~3回繰返して行ない、得られた死虫率には Abbott¹⁾ の補正を施した後、Finney²⁾ の方法によってLC-50あるいはLD-50を求めてそれにより供試化合物の殺虫力を表わした。

(2) 酵素反応

加水分解酵素活性の測定は、FAnを基質としそれに昆虫体ホモジネートを一定時間作用させて、加水分解によって生ずるアニリンを定量する方法を採った。昆虫体ホモジネートは供試虫全体を10mM トリス緩衝液 (pH 7.5) と共に100 mg/mlの割合でガラス乳鉢中で十分に磨砕して調製した。基質には20mM FAn水溶液を使用した。酵素反応液の組成は基質2ml, 100mM トリス緩衝液 (pH 7.5) 1.5 ml, 酵素液0.5 mlとし、25°Cで反応せしめた。酵素阻害剤の試験に際しては、上述の酵素反応液組成中100mM トリス緩衝液1.5 mlを0.5 mlとし、阻害剤の水溶液を1 ml加わえて全量は同じ4 mlとした。

アニリンの定量法は中村³⁾の行なった *N*-1-naphthylethylenediamine dihydrochloride (NED) をカップリング試薬としてもちいるジアゾ化カップリング法による。定量条件も中村の記述したのと全く同様に行なった。

(3) クエン酸の蓄積

FBAをイエバエに対しては0.8 mg/g, チャバネゴキブリに対しては1.6 mg/gの割合で胸部背面に塗布した場合、供試虫は24時間後に完全に死亡したのでこれをもちいてクエン酸の定量を行なった。試料約1gを5 mlのトリクロロ酢酸水溶液と共にガラス乳鉢中で十分磨砕した後、1,800×gで10分間遠心分離し、その上澄液2.5 mlを分析に供した。クエン酸の定量方法は Pucher *et al*⁴⁾の方法を基準とし、クエン酸を酸化およびブロム化してペンタブロモアセトンを得る反応条件については Hargreaves *et al*⁴⁾の報告に準じ若干の操作上の改良を加わえた。

4. 実験結果

(1) Monofluoroacetanilides の昆虫に対する接触殺虫性

第1表はFAn およびFBAの殺虫試験の結果を示したものである。浸漬を行なった昆虫についてはLC₅₀(%)、局所処理を行なった昆虫についてはLD₅₀(μg/g)で供試化合物の殺虫力を表わした。昆虫によって処理から死虫率調査迄の時間が異なるが、これはいずれも処理後毎日死虫率を記録して、死虫率が安定したと思われる時点の数値を採用したものである。

(2) 昆虫体における monofluoroacetanilides の酵素的加水分解、

Table 1. Insecticidal activity of monofluoroacetanilides

Insect species	FCH ₂ CONH  (FAn)	FCH ₂ CONH  (FBA)
	LD ₅₀ (μg/g) for topical application ¹⁾	
House fly	204	63
German cockroach	229	294
	LC ₅₀ (%) for dipping treatment ¹⁾	
Comstock mealybug	0.039	0.016
Mealy plum aphid	—	0.002
Japanese grain aphid	0.002	—

1). The treated insects were kept at 25°C, and the mortality was observed after 24 hours for aphid, 3 days for house fly and cockroach, and 7 days for mealybug from the treatment.

モモコフキアブラムシ、クワコナカイガラムシ、イエバエ、チャバネゴキブリのホモジネートはいずれも基質としてもちいた FAn を酵素的に加水分解し、反応液中にはアニリンが検出された。第2表は各ホモジネート中の fluoroacetanilidase の活性を示したものである。反応液中に最初に含まれていた FAn の量は 40 μmol であるから、第2表には各測定時間ごとの FAn 加水分解量と共にそれらの最初の FAn 量に対する百分率（加水分解率）もあわせて表示した。さらに本実験の反応時間内ではこの酵素反応はほぼ零次反応に従うと考えられたので、酵素活性は反応速度 (μmol/min) によって表わした。

(3) 昆虫体におけるクエン酸の蓄積

第3表は FBA 処理によって死亡したイエバエおよびチャバネゴキブリ体内のクエン酸量の測定結果を示

したもので、測定したクエン酸は昆虫体 g 当たりの検出量 (μg) で表わしてある。FBA 処理によって供試昆虫の体内にクエン酸の蓄積がみられたことは本結果から明白であり、イエバエでは無処理の約2倍、チャバネゴキブリでは約10倍もの過剰のクエン酸が検出された。このことは逆に供試虫体内にモノフルオロ酢酸が存在したことを示すものであり、従って投与された FBA が受けた酵素的加水分解の間接的な証明になるものと考えられる。

(4) 昆虫の fluoroacetanilidase の性質

a. 安定性

まずモモコフキアブラムシ、クワコナカイガラムシ、イエバエ、チャバネゴキブリの酵素の安定性を調べた。調整したホモジネートは 0~5°C の冷蔵庫中に保存し、一定日数経過後取り出してその活性を測定し、調整直

Table 2. Activity of insect fluoroacetanilidases

Homogenate	Reaction time	Hydrolysed FAn ¹⁾		Activity
	min.	μ mol.	%	10 ³ × μ mol/min.
Mealy plum aphid	10	3.0	7.4	294
	20	5.8	14.6	
	30	8.8	22.0	
Comstock mealybug	10	1.8	4.4	161
	20	3.1	7.8	
	30	4.5	11.3	
House fly	10	1.1	2.8	111
	20	2.2	5.6	
	30	3.2	8.0	
German cockroach	10	1.1	2.7	108
	20	2.2	5.5	
	30	3.3	8.1	

1). The enzymatic reaction mixture consisted of 2 ml of 20 mM FAn, 1.5 ml of 100 mM Tris buffer solution (pH 7.5), and 0.5 ml of homogenate which contained 100 mg of whole insect body per ml of 10 mM Tris buffer solution (pH 7.5). The enzymatic reaction was done at 25°C.

Table 3. Citric acid accumulation in the dead house fly and cockroach poisoned with monofluoroaceto-*p*-bromoanilide (FBA).

Insect species ¹⁾	Found citric acid ($\mu\text{g/g}$) ²⁾	
	FBA	Control
House fly	456	255
German cockroach	740	72

- 1). All of the treated insects were killed within 24 hours after topically applied with FBA, 800 $\mu\text{g/g}$ for house fly and 1600 $\mu\text{g/g}$ for cockroach.
- 2). Analysis was made 24 hours after the FBA treatment.

Table 4. Stability of insect fluoroacetanilidases

Homogenate	Days after ¹⁾ preparation of homogenate	Enzymatic activity ²⁾	
		$\mu\text{mol/min.}$ ($\times 10^3$)	%
Mealy plum aphid	0	294	100
	20	9	3
Comstock mealybug	0	161	100
	20	17	10
House fly	0	111	100
	20	3	2
German cockroach	0	108	100
	20	5	5

- 1). Homogenates were incubated in a refrigerator with approximate temperature range between 5° and 0°C.
- 2). FAn was used as substrate, and composition of the reaction mixture was the same as that in Table 2.

後の活性と比較した。その結果は第4表に示す通りである。

b. 阻害剤の影響

中村ら¹³⁾は温血動物の fluoroacetanilidase に対する選択的阻害剤の検索を行なったが、中でも Dipterex および triphenylphosphate (TPP) が特に阻害作用が強いことを報告している。従って昆虫の fluoroacetanilidase に対してもこれらが同様の阻害を示すかどうかを検討した。両者の水に対する溶解度の関係から、本実験中の Dipterex および TPP の最高濃度はそれぞれ $1 \times 10^{-3}\text{M}$, $1 \times 10^{-6}\text{M}$ が限度であり、これ以上の濃度については検討できなかった。得られた結果からは50%阻害濃度は正確に算出することはできなかったのでおおよそのその範囲を示したのが第5表である。

5. 考 察

第2表に示すように昆虫体内には温血動物における

Table 5. Effects of inhibitors on the activity of insect fluoroacetanilidases

Homogenate	Concentration (M) of inhibitor for 50% inhibition ¹⁾	
	TPP	Dipterex
Mealy plum aphid	$>10^{-5}$	$10^{-3} \sim 10^{-4}$
Comstock mealybug	$10^{-5} \sim 10^{-6}$	$>10^{-3}$
House fly	$>10^{-5}$	$10^{-3} \sim 10^{-4}$
German cockroach	$>10^{-5}$	Ca. 10^{-3}

- 1). The composition of the enzymatic reaction mixture was the same as that in Table 2 except that 1.5 ml of 100 mM Tris buffer solution was replaced by 1 ml of inhibitor solution and 0.5 ml of 100 mM Tris buffer solution. The reaction was done at 25°C.

と同様明らかに monofluoroacetanilides をモノフルオロ酢酸と相当するアニリン類に加水分解する酵素が存在すると考えられる。さらに第3表に示されたFBA処理によって死亡した昆虫体に過剰のクエン酸の蓄積がみられるという事実は昆虫体内におけるフルオロクエン酸の存在を意味しよう。フルオロクエン酸の生体内合成は fluoroacetyl-C₆A の存在を前提とするものであり、従ってそれは昆虫体における monofluoroacetanilides を加水分解してモノフルオロ酢酸を生ずる機能の存在の裏付けになるものである。

このように monofluoroacetanilides が中毒作用を現わすためにはまづ生体内で酵素的加水分解を受けてモノフルオロ酢酸を生ずることが第一段階であり、この加水分解酵素は温血動物にも昆虫にも広く存在することが明らかになった。もし本酵素が温血動物と昆虫とでその性質に何らかの相違が見出されれば選択毒性の見地から興味深いと考えられるので、これらの酵素の性質の比較を試みた。まず活性を比較してみると、中村ら¹⁴⁾はラッテ肝臓の fluoroacetanilidase 活性を測定しているが、それを本実験条件における値に換算してみるとおおよそ $114 \times 10^3 \mu\text{Mol/min}$ に相当すると考えられ、第2表に示したイエバエ、チャバネゴキブリの酵素の活性と大差ない。しかしながら温血動物では本酵素は主として肝臓に分布しており^{9,10)}、本実験では昆虫はその全体を磨碎してホモジネートを調製したことを考慮すれば、昆虫体における本酵素の活性は非常に強いと云えそうである。またその活性には昆虫種間でも差の認められる傾向があり、第2表ではモモコフキアブラムシにおける活性はイエバエ、チャバネゴキブリの約3倍、クワコナカイガラムシの約2倍である。これは昆虫種間の monofluoroacetanilides に対する感受性の差の原因になるものかも知れない。この推定

は本実験結果の限りでは矛盾するところがなく、今後の研究課題として興味ある問題と思われる。

次に第3表によって本酵素の安定性をみてみるといずれも20日後にはその活性は著減している。中村⁹⁾によればマウス肝臓の本酵素は本実験と同一条件下に保存された場合13日後でも66%の活性があるが、モモコフキアブラムシでは7日後で既に40%に低下していた¹⁰⁾。これらのことから昆虫の本酵素は温血動物のそれに比較してかなり不安定なものかも知れない。

温血動物の本酵素に対する選択的阻害剤であるところの Dipterex および TPP の昆虫の本酵素に対する阻害作用は第5表に示すとおりである。中村ら¹³⁾によれば本実験と同一条件では、ニワトリ肝臓中の本酵素に対する Dipterex および TPP の50%阻害濃度はそれぞれ $2.5 \times 10^{-8}M$, $1.4 \times 10^{-8}M$ であって、昆虫の本酵素のこれら阻害剤に対する感受性は非常に小さいといわなくてはならない。中村ら¹⁴⁾は TPP 等の選択的阻害剤が温血動物の場合は FBA に対し毒性低減効果を示すにもかかわらず、FBA の殺虫効力にはほとんど影響をおよぼさないことを示したが、これは上記の結果からもうなずけることである。

以上のべたことから、fluoroacetanilidaseの性質は温血動物と昆虫とはかなり異なると考えられ、殊に選択的阻害剤である TPP 等に対する感受性の著しい差異は選択毒性の観点から非常に興味深いといえる。

6. 摘 要

Monofluoroacetanilides は温血動物体中では酵素的にモノフルオロ酢酸と相当するアニリン類に加水分解され、生じたモノフルオロ酢酸が中毒の原因になることが知られている。Monofluoroacetanilides が殺虫作用を有する所から、昆虫体における酵素的加水分解の有無を検討したところ非常に高い活性が見出され、また monofluoroaceto-*p*-bromoanilide を処理した昆虫体には明らかにクエン酸の蓄積が認められた。即ち昆虫における monofluoroacetanilides の毒性発現機構は温血動物の場合と同様と考えることができる。

しかし昆虫の加水分解酵素は温血動物のそれとは異なった性質を有する傾向がみられやや不安定な酵素でかつ Dipterex, TPP 等の阻害剤の影響を受けにくいことがわかった。これはモノフルオロ酢酸誘導体中にも温血動物、昆虫間に選択毒性を有する化合物の存在する可能性を示唆するものとして興味深い。

7. 文 献

- 1) Abbott, W. S. : *J. Econ. Ent.*, 18, 265 (1925).
- 2) Bergmann, E. D., Moses, P., and Neeman, M. : *J. Sci. Food Agric.*, 8, 400 (1957).

- 3) Finney, D. J. : *Probit Analysis 2nd ed.* (1962).
- 4) Hargreaves, C. A., II, Abrahams, M. D., and Vickery, H. B. : *Anal. Chem.*, 23, 467 (1951).
- 5) Matsumura, F., and O'Brien, R. D. : *Biochem. Pharmacol.*, 12, 1201 (1963).
- 6) Morrison, J. F., and Peters, R. A. : *Biochem. J.*, 58, 473 (1954).
- 7) 中村利家, 伊集院忠正 : 農化, 38, 401 (1964).
- 8) 中村利家 : *ibid.*, 39, 227 (1965b).
- 9) 中村利家 : *ibid.*, 39, 232 (1965c).
- 10) 中村利家 : *ibid.*, 40, 20 (1966b).
- 11) 中村利家, 上田隆之, 伊藤達郎 : *ibid.*, 40, 80 (1966c).
- 12) 中村利家, 上田隆之, 田中久一, 浜本義夫 : *ibid.*, 40, 87 (1966d).
- 13) 中村利家, 上田隆之 : 投稿中.
- 14) 中村利家, 堀内信生, 浜本義夫 : 投稿中.
- 15) Peters, R. A. : *Proc. Roy. Soc. London, B.*, 139, 143 (1952).
- 16) Peters, R. A., Wakelein, R. W., Buffa, P., and Thomas, L. C. : *ibid.*, 140, 497 (1953).
- 17) Peters, R. A. : *Discussions Faraday Soc.*, 20, 189 (1955).
- 18) Pucher, G. W., Sherman, C. C., and Vickery, H. B. : *J. Biol. Chem.*, 113, 235 (1936).

Summary

Monofluoroacetanilides are known as insecticides, especially effective to hemipterous insects and mites. It has recently been known that they are hydrolyzed by an enzyme in warm blooded animals, yielding the corresponding anilines and monofluoroacetic acid, which causes the poisoning of monofluoroacetanilides. Their enzymatic hydrolysis in insects was studied in order to ascertain the mode of the insecticidal action of monofluoroacetanilides.

Monofluoroacetanilide was strongly hydrolyzed by homogenates of the mealy plum aphid (*Hyalopterus arundinis*), Comstock mealybug (*Pseudococcus comstocki*), german cockroach (*Blattella germanica*), and house fly (*Musca domestica vicina*), and the excessive citrate accumulation was observed in the cockroach and the house fly poisoned with monofluoroaceto-*p*-bromoanilide. These led to the conclusion that the mechanism of monofluoroacetanilides poisoning to the insects is fundamentally the same as that of warm

blooded animals.

However, the hydrolyzing enzyme (fluoroacetanilidase) of insect has fairly different properties compared with that of warm blooded animal. The insect enzymes are not so readily inhibited by Dipterox and triphenylphosphate which are

known to be specific inhibitors of the enzyme in warm blooded animals. This suggests some compounds with the selective toxicity to insects may be found among monofluoroacetic acid derivatives.

On the Utilization of Constituents of Pepper as an Insecticide and Pyrethrins or Allethrin Synergist. Studies on Synergist for Insecticides. XXIV. Hiromichi MATSUBARA and Ryuji TANIMURA (Department of Agricultural Chemistry, Faculty of Agriculture, Gifu University) Received October 26, 1966. *Botyu-Kagaku*, 31, 162. 1966. (with English Summary, 166).

24. 胡椒成分の殺虫剤ならびにピレトリン, アレスリン共力剤としての利用について 農薬の共力剤に関する研究 (第24報) 松原弘道・谷村龍児 (岐阜大学農学部農芸化学教室) 41, 10, 26 受理

イエバエ成虫およびアカイエカ幼虫に対する致死効果によって胡椒から分離した piperine, chavicine および oleoresin の毒力およびそれらのピレスロイドに対する共力効果を研究した。3成分単剤はいずれも両昆虫に対してある程度の毒性を示し、またピレトリンおよびアレスリンに対しても piperonyl butoxide に近い共力効果を有することから、胡椒の成分は殺虫剤ならびにピレスロイド共力剤として利用可能であることを明らかにした。

ブラジルにおいて邦人によって経営されている香辛料工業で副産する低品位の胡椒エキスあるいは piperine の結晶は、その色調あるいは辛味性その他の原因から食料品としては利用が困難で、その適当な利用法の開発が要望されている。

胡椒 *Piper nigrum* L. の中には piperine, chavicine および piperettine のような methy lenedioxyphenyl 基を有する化合物が含有されていることが知られている。このうち piperine については Harvill *et al.*¹⁾ がピレトリンの共力剤として研究し、それがピレトリンに対して優れた共力効果を示し、また Peet-Grady 法ではそれがイエバエに対しピレトリンよりも大きい毒性を示すと報告した。さらに胡椒の第2成分として Spring *et al.*²⁾ によって新しく分離された piperettine については Gersdorff *et al.*³⁾ がイエバエを用いてピレトリンおよびアレスリンに対する共力効果を turn table 法で研究し、それがピレトリンに対しては極めて高い共力効果を示すが、アレスリンに対してはその共力度が極めて低いことを認め、また単剤はイエバエに対してノックダウンならびに致死効果を示さないと述べている。胡椒の辛味成分である chavicine また辛味エキスである oleoresin のピレスロイドに対する共力効果については報告がなく、さらに Harvill *et al.*¹⁾ のいう piperine がイエバエに対しピレトリン以上の毒力を有するという報告も再検討が必要と思われるので、著者らはこれらの点を明らかにし、これら胡椒成分を殺虫剤ならびにピレスロイド共力剤として利用可

能であるか否かを検討するため、イエバエ成虫ならびにアカイエカ幼虫を供試昆虫として piperine, chavicine および oleoresin 単剤の毒力ならびにそれらのピレトリンおよびアレスリンに対する共力効果、さらにそれらと市販の piperonyl butoxide ならびに safrozan のような共力剤との比較研究を行ない若干の知見を得たのでここに報告する。

実 験

I. 実験材料および方法

1. 供試薬剤: 除虫菊エキスはピレトリン-I 7.38%, ピレトリン-II 7.74%, 全ピレトリン15.12%の市販品, アレスリンは住友化学製の90%品, piperonyl butoxide (以下 pip. but. と略記), safrozan は共に85%品, piperine は mp 127.5~128.5° で純度99%以上のもの, chavicine は 38.4%品, oleoresin は黒胡椒から抽出した piperine+chavicine 53.4% (chavicine の含量は piperine の1/2) の工業製品で、いずれも高砂香料工業株式会社の製品である。なお chavicine および oleoresin を配剤する場合は原体中の純成分量で表示した。

2. 供試昆虫: イエバエ *Musca domestica vicina* Macq. の成虫は第6報⁴⁾に記載したと同様の高槻系のイエバエで、羽化後4~5日のものである。アカイエカ *Culex pipiens pallens* Coqui. の幼虫は第11報⁵⁾に記載したと同様のもので、採集した卵塊を水槽中で孵化せしめ、薬用酵母を餌として飼育した終令虫である。