

On the Effectiveness of Pyrethrum Mosquitocide Incense used Piperonyl Butoxide jointly. Studies on the Biological Assay of Insecticides. XX. Sumio NAGASAWA, Minoru OHNO and Toshio KATSUNA. (Takéi Laboratory, Institute for Chemical Research, Kyoto University. Kosohe, Takatsuki, Ohsaka.) Received May 31, 1952. *Botyu-Kagaku* 17, 47-56, 1952. (with English Résumé, 56).

10 Piperonyl butoxide を併用した除虫菊蚊取線香の有効度について。殺虫剤の生物試験にかんする研究。第20報。長沢純夫、大野稔、勝田純郎（京都大学化学研究所武居研究室）27, 5, 31. 受理

I. 緒 言

Piperonyl butoxide が pyrethrins にたいして共力的にはたらくことは、粉剤、液剤乃至煙霧剤などの使用形態においてはすでに確定的な事実として一般にみとめられているところであるが、蚊取線香のような燃焼をともなう場合の共力効果については、未だ両論まちまちである。元来除虫菊粉のみを原料とする単一的な蚊取線香においてさえ、その有効度はいわゆる燃焼に關与する物理的の諸要因に大きく支配されて、有効成分である pyrethrins の含有量とは平行的な関係をしめさないことが普通である^{2,3}。それ故かりに p.butoxide を併用することによって若干の有効度がたかめられたとしても、その結果は本質的に主剤相互の共力効果に生來するものか否かの判定はわづかな実験結果のみをもつてしては容易になしがたい。本論においてのべるところもそうした意味において決定的な解釈をあたえず、ただ單に実験結果を羅列しただけにすぎない。

ただこの小実験が將來においておこなわれる研究に対して、何等かの参考資料となるならば幸であると考えて、あえて不十分なる実験結果をここにかけざる次第である。

本研究は Intercontinental Industries, Inc. (U. S. A.) の F. San Roman 社長が p.butoxide の我國に於ける使用に關する研究を武居教授に依頼されたもの一部であつて、研究費の一部は同社に仰いだものであり、線香の製造は大野、勝田が行い生物試験並びに結果の検討は長沢が行つた。

又実験遂行上いろいろと御援助をいただいた当研究室の各位に深甚の謝意を表したい。

II. 実験材料及び装置方法

供試蚊取線香はいくつかの材料と、ことなつた方法によつて製造し実験にもちいたからそれぞれの実験結果をのべる際に併記することとし、本節においては供試昆虫と実験装置方法の概要のみをしるしておきたい。

(1) アカイエカ *Culex pipiens* var. *pallens*

Coquillett 成虫。高槻市内の排水溝でその蛹を採集し、実験室にもちかへつて羽化せしめたもので、羽化後2日目の個体を実験に供した。雌雄の区別はおこなわず at random に採取して実験容器中に導入したが、集計結果における性比はおおむね 1:1 であつた。

(2) イエバエ *Musca domestica* L. 成虫。豆腐粕と酵母を幼虫の培基とし、小麦粉の糊を成虫の餌として飼育した羽化後4乃至5日目のものをもちいた。この系統はすでに当研究室で数拾世代を経過した形態学的にも生理学的にもほぼ一様の遺伝的性質を有するものとみなされる一系統である。実験容器中に採取する場合の考慮はアカイエカの場合と同様である。

(3) 受験装置・方法。直径 20 cm, 高さ 43 cm (内容積約 13.5 L) のガラス製の円筒で、ゴムパツキングを間にして上下に2個のガラス製円盤をおいた。下方円盤の中央にあけられた直径 5 cm の円孔から供試昆虫を導入し、また点火した線香を線香台にとりつけてゴム栓上にのせそこにおくようにした⁴。燃焼せしめる線香の量は、アカイエカの場合は時間をもつて2分間とし、イエバエの場合は重量によつて 0.5 gr. を燃焼発煙せしめた。そしてこの発煙時より供試昆虫が煙霧の被毒によつて飛翔不能におちいり落下仰転する個体を對数的間隔をもつて観察記録した。観察間隔は実験結果の表にしめしたとおりであるが、いずれにおいても32分乃至33分15秒をもつて一実験を終了した。線香試料の採取はこれを小片にくだき、at random にとり出す方法によつた。

III. 実験結果判定の方法

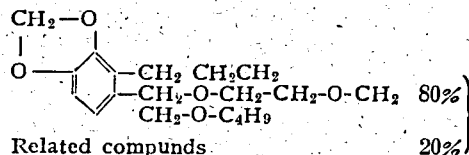
蚊取線香煙霧の被毒によつてひきおこされる、イエバエ乃至アカイエカの落下仰転する累積百分率は、これを Bliss¹⁾ の probit におきかえた場合、被毒時間の対数に対して直線的の關係をしめすことはすでにしるした^{2,3,4)}。この概念は又今回の実験結果にもまた適用されることを前提として Bliss¹⁾ の時間一致死亡率曲線一次変換の計算方法によつてその回歸方程式をもとめ、これより、さきに大沢・長沢⁵⁾ によつてのべら

れた有効度の表示法に準拠して各線香の絶対有効度と標準線香にたいする供試線香の相対有効度とを計算し、これらの数値から p.butoxide の pyrethrins に対する共効効果を検討した。なお有効度は大沢・長沢⁵⁾ もしるしたごとく回帰方程式の角係数 b が ($1/b = \sigma$ 抵抗性の標準偏差) 抽出誤差の範囲内でひとしくないときは $M + kb$ の形で (大沢・長沢⁵⁾ は $k=3$ を提唱している) なさるべきであるが、およびその効果を判定しうるにすぎない今回の実験結果に対してはこうした考慮をはらわず、一率に KT-50 の点すなわち中央致落下仰転時間のみをとりあげて有効度の比較をおこない、それより結論をみちびきだすにとどめた。

IV. 実験結果と考察

(1) Pyrethrins と p.butoxide を混合塗附した蚊取線香のアカイエカの成虫を落下仰転せしめる効力について。

(i) 供試試料 塗附にもちいた pyrethrins は除虫菊エキスを nitromethane で抽出し、活性炭素層を通して精製したもので、定量^{6,7)} 結果は pyrethrin I, 35.01 %; pyrethrin II, 63.30 % の混合物である。p.butoxide は U.S. Industrial Chemicals Inc. 製造の工業製品である。そしてその表示有効成分はつぎのごとくである。



Related compounds

標準蚊取線香には市販品のひとつをとりだしてこれにあてたが、有効成分含有量^{6,7)} 0.503 % のものである。塗布の対象となつた素地線香は、市販蚊取線香を製造する際にもちいられるものとおなじ機械と方法によつて混合製造したもので、その組成は木粉53%, タブ粉35%, 水分12% で、1巻の目方は13 gr. 燃焼時間は6時間40分で、普通市販蚊取線香と目方、燃焼時間は大体おなじである。塗附の方法は第1表上段に示すような組成の benzol 溶液にそれぞれ1巻づつ約1秒水平に浸漬してとりあげ、室温に放置して乾燥したもので、1巻の素地に吸収される benzol 溶液の量は大体 2gr. である。なおこの実験は昭和26年10月10日に温度約 30°C の室温でおこなつた。

(ii) 実験結果。各線香燐煙の殺毒によつて落下仰転するアカイエカ成虫の時間的経過を表示すると第1表のごとくである。

(iii) 考察。第1表の結果から各線香の絶対有効度と標準線香に対する供試線香の相対有効度を表示すると、第2及び3表のごとくである。

Table 1. Time $T(\text{sec.})$ -knock down percent $Y(\%)$ table of adults of the common house mosquito (*Culex pipiens* var. *pallens* Coquillett) by the so-called coating mosquito incense changed with pyrethrins and piperonyl butoxide in various concentrations.

Mosquitocide incense		Coating mosquitocide incense tested								Brasis for coating B	Standard mosquitocide incense S
Code sign		1	2	3	4	5	6	7	8		
Content of active ingredient in benzol solution for dipping (%)	Pyrethrins	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	1.0	—	—	0.503 %
	P.butoxide	2.50	3.75	5.00	7.50	10.00	15.00	—	10.0	—	—
No. of experiments		3	3	3	3	3	3	3	3	3	3
No. of insects		64	53	58	54	70	71	65	57	53	63
Class, $t = \log T$	2.1	0.00	0.00	1.70	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	1.59
	2.2	0.00	0.00	1.70	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	4.76
	2.3	0.00	5.66	5.17	0.00	2.86	0.00	0.00	0.00	0.00	9.52
	2.4	4.69	5.66	6.90	3.70	7.14	2.82	3.08	0.00	0.00	20.64
	2.5	15.63	18.87	17.24	11.11	15.71	7.04	10.77	0.00	0.00	41.27
	2.6	42.19	39.62	27.59	29.63	25.71	25.35	32.31	0.00	0.00	61.91
	2.7	62.50	60.38	51.72	48.15	51.43	36.62	49.23	0.00	0.00	84.13
	2.8	81.25	81.13	60.35	68.52	72.86	59.16	73.85	0.00	0.00	93.65
	2.9	90.63	86.79	77.59	87.04	88.57	80.28	89.23	0.00	0.00	98.42
	3.0	93.75	88.68	89.66	98.66	94.29	92.96	96.92	0.00	0.00	100.00
	3.1	96.88	96.23	100.00	100.00	98.57	100.00	98.46	0.00	0.00	100.00
	3.2	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	0.00	0.00	100.00
	3.3	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	0.00	0.00	100.00

Table 2. Absolute effectiveness of the so-called coating mosquitocide incenses and the standard mosquitocide incense tested.

Mosquitocide incense	1	2	3	4	5	6	7	8	B	S
Standard deviation of susceptibility, σ	0.14170	0.14712	0.21881	0.16541	0.18627	0.17432	0.15430	—	—	0.17927
Knock down efficiency, $b=\sigma$	7.05716	6.79717	4.56997	6.04559	5.36855	5.73658	6.48088	—	—	5.57818
Index of median knock down time, t	2.64375	2.65000	2.71207	2.70370	2.69286	2.72308	2.68906	—	—	2.53413
Median knock down time, $T=\log^{-1} t$ (sec.)	440.30	440.90	515.31	505.48	493.01	528.54	488.72	—	—	342.08

Table 3. Relative effectiveness of the so-called coating mosquitocide incenses to the standard mosquitocide incense.

Mosquitocide incense	1	2	3	4	5	6	7
Median equivalent, $\epsilon_0 = T_0/T$	0.77693	0.77586	0.66383	0.67674	0.69386	0.64721	0.69995
Median pyrethrins equivalent concentration, $[P]_0 = C\epsilon_0$ (%)	0.391	0.390	0.334	0.340	0.349	0.326	0.352

以上の結果をみると素地線香 (B) のみを上述の装置内で2分間燃焼せしめて供試昆虫に処理しても、まったくその効果を見とめることは出来ない。と同時にこれへさらに p. butoxide を 10.0% 含有する benzol 溶液を塗附せしめたもの (第8号) においてもまたその効力はみとめられない。すなわち p. butoxide 単用ではアカイエカを落下仰転せしめることは出来ないものと判断される。ところで pyrethrins と p. butoxide とを混用塗附した蚊取線香 (第1号乃至第6号) は同一濃度の pyrethrins のみを塗附した第7号蚊取線香とほとんど同一程度の有効度しかもたない。以上の結果を総合すると p. butoxide の併用は大むね無効と判断される。また pyrethrins を 1.0% 含有する benzol 溶液をもつて前記の方法により塗附した蚊取線香は標準にもちいた市販品には及ばないものと結論される。

(2) P. butoxide をわりこんだ蚊取線香のイエバエの成虫を落下仰転せしめる効力について。

(i) 供試線香。全 pyrethrins 量 0.8% を含有する除虫菊粉と、0.07% を含有する抽出粕、ならびにタバコ粉を原料とし、これと p. butoxide とを第4表上段にしめした割合で一樣に混合、等量の水をくわえてこね、線香抽出器で抽出して製造したものである。標準にもちいた蚊取線香は市販品の1つである。なをこの実験は1951年10月30日から11月7日にわたる期間において行われた。

(ii) 実験結果。各線香煙煙の被毒によつてイエバエの成虫が落下仰転する時間的経過を累積百分率をもつてしめすと第4表のごとくである。

(iii) 考察。第4表の結果から各線香の絶対有効度と、標準線香に対する供試線香の相対有効度とを計算して表示すると第5, 6表のごとくである。これらの計算結果を総合して比較検討すると除虫菊のみをもちいてつくつた第7号の線香の有効度にくらべて、これにさらに各種の割合で p. butoxide をねりこんだ線香の有効度はまさり、p. butoxide を 1.00 乃至 3.00 程度ねりこんだものは除虫菊単用線香の2倍程度の有効度をしめし、標準線香の有効度にはわずかに及ばない程度である。そしてこの範囲内における p. butoxide の多少はその有効度には関係なく多量を加えてもかならずしもよい結果をしめさないことが結論される。

(3) Pyrethrins と p. butoxide とを混合塗附した蚊取線香のイエバエ成虫を落下仰転せしめる効力。

(i) 供試試料。この実験にもちいた線香は第7表上段にしめすように、浸漬用として調製した pyrethrins と p. butoxide との混合 benzol 溶液の組成が若干ことなるほかは、素地線香の原料、組成、製法、主剤の有効成分含有量及び液浸の方法などすべて第1実験のそれとおなじである。標準線香は市販品の1種をもちいたが、その有効成分含有量は 1951年12月27日に定量^{6,7)}した結果、pyrethrin I, 0.29%, pyrethrin II, 0.30%, Total pyrethrins 0.59% であつた。以下第4.5.6節において標準としてもちいた線香はすべてこれと同一の製品である。なおこの実験は昭和27年1月14, 15日の両日、温度 20° の恒温室中でおこなつた。

(ii) 実験結果。各線香煙煙の被毒によつてイエバエ成虫の落下仰転する時間的経過を表示すると第7

Table 4. Time T (sec.)-knock down percent Y (%) table of adults of the common house fly (*Musca domestica* L.) by the mosquitocide incenses made of pyrethrum mixed with piperonyl butoxide.

Mosquitocide incense		Mosquitocide incense tested							Standard mosquitocide incense
Code sign		1	2	3	4	5	6	7	S
Content of active ingredient, (%)	Pyrethrins	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.20	0.45%
	P.butoxide	0.50	0.75	1.00	1.50	2.00	3.00	—	—
No. of experiments		5	5	5	5	5	5	5	5
No. of insects		131	125	144	106	113	130	127	126
Class, $t = \log T$	2.4	0.00	0.80	2.08	0.94	1.77	2.31	0.00	0.70
	2.5	3.00	5.60	9.03	2.83	11.50	9.23	2.80	6.33
	2.6	20.61	14.40	28.47	20.76	29.20	33.08	10.28	26.74
	2.7	45.80	36.00	54.86	59.43	61.06	60.77	26.17	44.33
	2.8	63.36	53.40	75.00	74.53	74.34	78.46	35.51	57.70
	2.9	79.39	78.40	85.42	84.91	85.84	86.92	42.06	64.74
	3.0	90.08	80.40	95.14	93.40	93.81	93.85	55.14	71.77
	3.1	96.18	93.60	98.61	99.06	100.00	98.46	69.16	75.29
	3.2	100.00	98.40	100.00	100.00	100.00	100.00	72.90	81.62
	3.3	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	81.31	85.85

Table 5. Absolute effectiveness of the mosquitocide incenses made of pyrethrum mixed with piperonyl butoxide and the standard mosquitocide incense tested.

Mosquitocide incense	1	2	3	4	5	6	7	S
Standard deiration of susceptibility, σ	0.16615	0.14568	0.13229	0.08019	0.10200	0.10187	0.26053	0.05748
Knock down efficiency, $b=1/\sigma$	6.01685	6.86436	7.55858	12.4704	9.80392	9.81354	3.83877	17.39740
Index of median knock down, time, t	2.75488	2.75640	2.67986	2.63396	2.64646	2.64461	2.96589	2.61190
Median knock time, $T = \log^{-1} t$ (sec.)	568.30	570.69	478.47	430.49	443.06	441.17	924.46	409.17

Table 6. Relative effectiveness of the mosquitocide incenses made of pyrethrum mixed with piperonyl butoxide to the standard mosquitocide incense.

Mosquitocide incense	1	2	3	4	5	6	7
Median effective equivalent, $\epsilon_0 = T_0/T_0$	0.71998	0.71697	0.95047	0.95047	0.92351	0.92747	0.44201
Median effective pyrethrins equivalent concentration, $[P]_0 = C\epsilon_0$ (%)	0.32	0.32	0.43	0.43	0.42	0.42	0.20

表後半のごとくである。第7表にみるようにいずれの線香においても所定の32分以内では全供試虫の落下仰転をみることはできなかった。又試験容器からとり出して後の蘇生割合は、除虫菊単用の線香においてはほとんど100%に近い蘇生率をしめしたが、p. butoxide 併用のそれにおいては24時間後における調査の結果はその大半が死滅していた。この傾向はつぎの第4-6 実験乃至第8節における諸実験においても同様で、

石油液又乳剤などにおいて先学者のみとめたところほとんど平行した結果がえられた。なお素地線香(B)のみでは第7表のごとくほとんど落下仰転する個体はみられなかった。

(iii) 考 察。第7表の実験結果からその絶対有効度と標準線香にたいする供試線香の相対有効度とを計算すると第8,9表のごとくである。まず最初に素地線香に p. butoxide のみを塗附した線香の有効度を

一べつすると、第5,6,7号ともに実験を終了した32分目位でようやくその半数を落下仰転せしめており、効力は三者ともひとしいが第8号にいたつて若干の有効度はたかまつている。故に p. butoxide のみを塗附した線香でもこの場合大量用いるならば若干の有効度をみとめることは可能である。つぎに第9号の pyrethrins の 1.00% 溶液を塗附した線香の有効度は

指数にして 1.10485 中央致落下仰転時間に換算して 12.731分である。この pyrethrins 1.00% 溶液に p. butoxide を第5,6,7,8号の単用した場合とおなじだけの量を混入し、これを塗附した第1,2,3,4号の線香の有効度が第9号のそれより少しでも高められるならば、pyrethrins に対して p. butoxide は共力的にはたらくものと判断することが可能である。しかし

Table 7. The Time T (sec.)-per cent knock down T_K (%) table of adults of the common house fly (*Musca domestica* L.) by the so-called coating mosquitoicide incenses charged with pyrethrins and piperonyl butoxide in various concentrations.

Mosquitoicide incense		Coating mosquitoicide incense tested									Basis for coating	Standard mosquitoicide incenses
Code sign		1	2	3	4	5	6	7	8	9	B	S
Content of active ingredient in benzol solution for dipping (%)	Pyrethrins	1.00	1.00	1.00	1.00	—	—	—	—	1.00	—	0.59%
	P. butoxide	1.25	2.50	5.00	10.00	1.25	2.50	5.00	10.00	—	—	—
No. of experiments		7	7	7	7	7	7	7	7	7	7	7
No. of insects		160	196	157	179	172	160	179	195	159	147	161
Time, T	6	8.13	6.12	14.65	7.26	0.58	0.68	0.56	0.51	3.77	0.68	45.96
	8	21.88	25.00	29.30	38.55	2.33	4.38	3.35	14.36	15.72	1.37	64.60
	12	46.25	49.49	42.68	14.54	10.63	10.63	17.32	32.31	44.03	7.51	77.64
	16	53.13	59.69	48.41	20.93	25.00	25.00	26.26	44.62	56.60	20.48	81.37
	24	57.50	67.35	58.60	78.21	37.79	36.88	38.55	67.95	57.93	28.68	87.58
	32	65.63	70.92	75.80	90.50	51.74	46.88	51.96	66.15	72.96	33.46	91.30

Table 8. Absolute effectiveness of the so-called coating mosquitoicide incenses and the standard mosquitoicide incense tested.

Mosquitoicide incense	1	2	3	4	5	6	7	8	9	S	B
Standard deviation of susceptibility, σ	0.59559	0.76628	0.53362	0.40717	0.37679	0.50582	0.52083	0.54466	0.19062	—	0.15635
Knock down efficiency, $b=1/\sigma$	1.67877	1.30477	1.87424	2.45574	2.65384	1.97708	1.91984	1.83587	5.24633	—	6.39604
Index of median knock down time, t	1.16243	1.05597	1.20098	1.02611	1.49501	1.54650	1.48165	1.27546	1.10485	—	0.79263
Median knock down time, $T = \log^{-1} t$ (min.)	14.536	11.376	15.885	10.620	31.262	35.197	30.315	18.857	12.731	—	6.203

Table 9. Relative effectiveness of the so-called coating mosquitoicide incenses to the standard mosquitoicide incense.

Mosquitoicide incense	1	2	3	4	5	6	7	8	9
Median effective equivalent, $\epsilon_0 = T_0/T$	0.42676	0.54531	0.39052	0.58412	0.19843	0.17625	0.20463	0.32897	0.48727
Median effective pyrethrins equivalent concentration, $(P)_0 = C\epsilon_0$ (%)	0.25	0.32	0.23	0.35	0.12	0.10	0.12	0.19	0.29

事實はこれに反してほとんど相ひとしい結果乃至は反対に若干劣る結果しかしめていない。これより p. butoxide はこれを塗附した場合、pyrethrins に対して共力的にははたらないものであると結論される。なおまた pyrethrins 1% 溶液を塗附した線香は標準にもちいた pyrethrins 含有量 0.59% の市販品にもまたはるかに及ばないものであるといえられる。

(4) P. butoxide をねりこんだ蚊取線香のイエバエ成虫を落下仰転せしめる効力。

(i) 供試線香。Pyrethrins 0.8% を含有する除虫菊粉と、0.07% を含有する抽出粕、ならびにタブ粉を原料としこれに p. butoxide をくわえて第10表上半にしめすような計算量の有効成分を含有する線香を

つくつた。その製法はまず除虫菊粉、抽出粕及びタブ粉を規定量混合し、そこへ p. butoxide の ether 溶液を加えてよくしみわたらせてからまぜあわせ、ether を揮散せしめて後に等量の水をくわえてねりあわせこれを線香抽出器にかけて作製したものである。この実験は昭和27年2月15日温度 20°C の恒温室中でおこなつた。

(ii) 実験結果。各線香煙霧の被害によつてイエバエの成虫が落下仰転する時間的経過を累積百分率をもつて表示すると第10表後半にしめすとおりである。

(iii) 考 察。第10表の結果より各線香の絶対有効度と標準線香にたいする供試線香の相対有効度を表示すると第11, 12表のごとくである。第10表を見れば

Table 10. The Time T (min.) -per cent knock down Y_K (%) table of adults of the common house fly (*Musca domestica* L.) by the pyrethrum mosquitocide incenses mixed with piperonyl butoxide in various concentrations.

Mosquitocide incense		Mosquitocide incense tested								Standard mosquitocide incense
Code sign		1	2	3	4	5	6	7	8	S
Content of active ingredient (%)	Pyrethrins	0.2	0.2	0.2	—	—	—	0.2	—	0.59%
	P.butoxide	0.5	1.0	2.0	0.5	1.0	2.0	—	—	—
No. of experiments		3	3	3	3	3	3	3	3	3
No. of insects		136	139	141	123	138	176	151	129	151
Time, T	4	1.47	1.44	0.71	1.63	0.00	0.57	1.99	0.78	3.31
	6	21.32	22.30	24.82	13.82	4.35	3.98	12.58	10.85	29.80
	8	57.35	54.68	58.87	30.08	33.33	17.61	33.78	16.28	53.64
	12	78.68	78.42	80.85	36.59	52.90	42.61	54.31	20.93	72.85
	16	81.62	84.89	87.94	38.21	63.04	46.59	60.27	25.58	83.44
	24	91.91	88.49	95.75	42.28	71.74	56.25	63.58	27.91	92.72
	32	95.59	93.53	97.87	54.47	78.26	68.75	66.23	31.78	94.04

Table 11. Absolute effectiveness of the mosquitocide incenses made of pyrethrum mixed with piperonyl butoxide and the standard mosquitocide incense tested.

Mosquitocide incense	1	2	3	4	5	6	7	8	S
Standard deviation of susceptibility, σ	0.12595	0.13504	0.12325	1.08307	0.60168	0.20198	0.18149	—	0.16258
Knock down efficiency, $b = 1/\sigma$	7.94028	7.40498	8.11379	0.92334	1.66162	4.95076	5.51001	—	6.15071
Index of median knock down time, t	0.88079	0.88464	0.87073	1.48231	1.02449	1.10916	0.98096	—	0.87996
Median knock down time, $T = \log^{-1} t$ (min.)	7.599	7.667	7.426	30.361	10.580	12.858	9.571	—	7.585

Table 12. Relative effectiveness of the mosquitocide incenses made of pyrethrum mixed with piperonyl butoxide to the standard mosquitocide incense.

Mosquitocide incense	1	2	3	4	5	6	7
Median effective equivalent, $\epsilon_o = T_o/T_o$	0.99809	0.98928	1.02148	0.24983	0.71692	0.58991	0.79250
Median effective pyrethrins equivalent concentration, $(P)_o = C\epsilon_o$ (%)	0.59	0.58	0.60	0.15	0.42	0.35	0.47

わかるようにほとんど pyrethrins を含有せずまた p.butoxide をもねりこんでいない蚊取線香(R)においては32分間では供試昆虫の半数を落下仰転せしめる効力は期待できないが、これへ p.butoxide を 0.5, 1.0, 2.0% の割合にねりこんだものはその有効度は若干たかまつている。すなわち p.butoxide のみでも 50% 致落下仰転の効力は期待できる。しかし pyrethrins を 0.2% 含有する線香(第7号)には及ばないことがわかる。反対に pyrethrin 0.2% を含有する線香にさらに p.butoxide を 0.5, 1.0, 2.0% 加えたものは pyrethrins 0.2% 単用のものより若干有効度はたかまつている。すなわち p.butoxide を混入することによって共力効果を期待することができ、この割合で混入したものは標準線香とほぼひとしい有効度をしめすことがしられる。しかしこの共力効果は p.butoxide の多少は 0.5 から 2.0 の範囲では変りないことがわかる。

(5) Pyrethrins と p. bntoxide を混合塗附

Table 13. The Time T (min.)-per cent knock down $Y_K(\%)$ table of adults of the common house fly (*Musca domestica* L.) by the so-called coating mosquitocide incenses charged with pyrethrins and piperonyl butoxide in various concentrations.

Mosquitocide incense		Coating mosquitocide incense tested							Basis for coating	Standard mosquitocide incense
Code sign		1	2	4	4	5	6	7	B	S
Contents of active ingredients in benzol solution for dipping(%)	Pyrethrins	0.2	0.2	0.2	—	—	—	0.2	—	0.59%
	P. butoxide	0.5	1.0	2.0	0.5	1.0	2.0	—	—	—
No. of experiments		3	3	3	3	3	3	3	3	3
No. of insects		128	107	135	111	131	132	144	138	135
Time, T	4	3.13	4.67	3.70	1.80	0.00	0.00	5.56	0.73	5.19
	6	15.63	17.76	39.26	9.01	9.16	6.82	20.14	15.22	28.89
	8	48.44	50.46	60.00	19.82	33.59	35.61	46.53	28.26	43.70
	12	64.06	74.77	74.82	20.72	41.22	40.15	61.11	36.23	60.74
	16	67.19	83.18	84.44	25.23	42.75	47.73	64.58	37.68	68.89
	24	76.56	87.85	89.63	31.53	50.38	50.76	72.92	39.13	80.00
	32	85.16	91.59	96.30	36.94	61.07	62.88	75.00	43.48	92.59

Table 14. Absolute effectiveness of the so-called coating mosquitocide incenses and the standard mosquitocide incense tested.

Mosquitocide incense	1	2	3	4	5	6	7	B	S
Standard deviation of susceptibility, σ	0.16327	0.37594	0.11750	—	0.92166	0.92937	0.19543	—	0.42283
Knock down efficiency, $b=1/\sigma$	6.12472	2.65099	8.51082	—	1.08446	1.07558	5.11656	—	2.36525
Index of median knock down time, t	0.91194	0.96525	0.80940	—	1.31414	1.27377	0.92763	—	0.97761
Median knock down time, $T = \log^{-1} t$ (min.)	8.165	9.231	6.448	—	20.613	18.783	8.465	—	9.497

Table 15. Relative effectiveness of the so-called mosquitocide incenses to the standard mosquitocide incense.

Mosquitocide-incense	1	2	3	4	5	6	7	B
Median effective equivalent, $\epsilon_0 = T_0/T_0$	1.16323	1.02886	1.47301	—	0.46075	0.50564	1.12196	—
Median effective pyrethrins equivalent concentration $[P]_0 = C\epsilon_0$ (%)	0.69	0.61	0.87	—	0.27	0.30	0.66	—

いない素地線香(B)とほとんどおなじ程度の効力しか有せず、塗附した場合の p. butoxide の効力は燃焼によつて全く消滅するかのごとき結果をしめしている。一方 pyrethrins を0.2程度塗附した線香第7号の有効度とさらに p. butoxide を0.5, 1.0, 2.0%の割合で併用塗附した線香(第1, 2, 3号)の有効度とはほとんどひとしい。これから pyrethrins に対する p. butoxide の共力効果はの場合然期待しえないものと結論される。

(6) P. butoxide をねりこんだ蚊取線香のイエバエ成虫を落下仰転せしめる効力。

(i) 供試線香。除虫菊及び抽出粕中に含有される pyrethrins の量は、前記第4節のそれとおなじであ

るが、これをもちいて線香に製造する際の方法において若干こととなる。すなわち除虫菊粉と抽出粕とを規定量混合し、これに p. butoxide を加えてからタブ粉を投入して等量の水を加えてねり、線香におしだしたものである。この実験はこうした製造法の相違が pyrethrins に対して p. butoxide が共力効果を發揮するか否かを検討する目的で、昭和26年2月26日温度20°Cの恒温室中でおこなつたものである。

(ii) 実験結果。各線香燃焼の被害によつてイエバエの成虫が落下仰転する時間的経過を表示する第16表のごとくである。

(iii) 考察。第16表から各線香の絶対有効度と標準線香に対する供試線香の相対有効度を計算して素

Table 16. T (min.)-per cent knock down Y_K (%) table of adults of the common house fly (*Musca domestica* L.) by the pyrethrum mosquitocide incenses mixed with piperonyl butoxide in various concentrations.

Mosquitocide incense		Mosquitocide incense tested								Standard mosquitocide incense
Code sign		1	2	3	4	5	6	7	8	S
Content of active ingredient (%)	Pyrethrins	1.5	1.5	1.5	—	—	—	1.5	—	0.59%
	P. butoxide	3.75	7.5	15.0	3.75	7.5	15.0	—	—	—
No. of experiments		3	3	3	3	3	3	3	3	3
No. of insects		106	112	90	116	121	100	91	99	100
Time, T	4	0.00	0.00	2.22	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	5.00
	6	16.98	11.61	26.67	3.45	0.83	5.00	13.19	2.02	23.00
	8	41.51	41.07	56.67	5.17	8.27	16.00	36.26	14.14	52.00
	12	64.15	57.14	67.78	17.24	14.03	27.00	61.54	20.20	76.00
	16	66.04	61.61	74.44	35.35	21.49	36.00	70.33	26.26	86.00
	24	69.81	69.64	85.56	51.72	42.98	57.00	76.92	26.26	87.00
	32	80.19	81.25	93.33	79.31	54.55	69.00	82.42	33.33	94.00

Table 17. Absolute effectiveness of the mosquitocide incenses made of pyrethrum mixed with piperonyl butoxide and the standard mosquitocide incense tested.

Mosquitocide incense	1	2	3	4	5	6	7	8	S
Standard deviation of susceptibility, σ	0.17522	0.12938	0.14296	0.24426	0.34880	0.37092	0.16311	—	0.17575
Knock down efficiency, $b = 1/\sigma$	5.70674	7.72935	6.99497	4.09397	2.86692	2.69555	6.13052	—	5.68975
Index of median knock down time, t	0.93525	0.93234	0.87517	1.31837	1.45771	1.31857	0.96038	—	0.89866
Median knock down time, $T = \log^{-1} t$ (min.)	8.615	8.557	7.502	20.815	28.689	20.824	9.128	—	7.919

Table 18. Relative effectiveness of the mosquitocide incenses made of pyrethrum mixed with piperonyl butoxide to the standard misquitocide incense.

Mosquitocide incense	1	2	3	4	5	6	7	8
Median effectivalent, $\epsilon_0 = T_0/T_1$	0.91920	0.92538	1.05557	0.38044	0.27602	0.38027	0.86752	—
Median effective pyrethrins equivalent concentration, $(P)_0 = C\epsilon_0$ (%)	0.54	0.55	0.62	0.23	0.16	0.22	0.51	—

示すると第17, 18表のごとくである。pyrethrins をも殆んど含有せず p. butoxide をも混じない第8号における有効度はきわめてわずかで、一実験を終了した32分間ではわずかに33%あまりを落下仰転せしめたにすぎない。これに p. butoxide を3.75, 7.5, 15.0% 程度混入したもの（第4, 5, 6号）は若干有効度が高まつているが、その程度は三者ともおなじで p. butoxide の量には関係しない。しかしその効力は標準線香のそれにはるか及ぶべくもない。

つぎに pyrethrins を1.5%程度含有する線香（第7号）は、標準線香の有効度には若干及ばない。ところでこれへ更に p. butoxide を3.75, 7.5, 15.0% 程度混入した線香（第1, 2, 3号）が第8号線香の有効度を凌駕するものならば pyrethrins に対する p. butoxide の共力作用はあるものといいうるが、事実はこれに反して全くその共力効果はみとめられない。しいていうならば第3号の線香に若干の共力効果がみとめられるようである。

(7) 各製造業者依頼の p. butoxide 混入蚊取線香の検定結果。

筆者は昭和25年12月1日以降今日迄、本邦の線香製造業者数社から p. butoxide を混入した線香10数種の有効度検定を依頼され、イエバエ又はアカイエカの成虫をもちいてその有効度を検定したが、その結果は共力効果の有無相半ばした。これらの試料はその製造した原料の品質がまちまちで、又製造乃至その組成もつまびらかでないものが多く、詳細な実験結果をここにかかげることはむしろ無意味にひとしいことおもわれたから一切を省略してしめさないが、概括的に考察して粗鬆な製法をたどつたものには効果がみとめられ、終末製品において硬質のものに於ては有効度は一般に芳しいものではなかつた。そしてその有効度はそこにもちいられた p. butoxide 乃至 pyrethrins の量との間には明瞭な関係を見とめることはできなかつた。

V. 結 論

以上にいくつかの試料についておこなつた試験結果を掲げ、それぞれについて簡単な考察をしるしてきたが、これらの結果を総合して結論するならば、蚊取線香のような燃焼をともなう使用形態において pyrethrins に対する p. butoxide の共力効果を期待することはむしろ悲観的観測の域に属するものといひえよ

う、先にのべたように蚊取線香の有効度は、そこに含有される有効成分の量よりもむしろ燃焼に関与するいわゆる物理的の諸要因に支配されることが大きく、そのため共力剤の効果を、総合結果としてあらわれた有効度の中に見極めることは容易でない。又たとえ燃焼を助成し有効度をたかめる物理的の要因をさがしえたとしても、果してそれを工業製品に具現せしめうるか否かもまた技術的に疑問である。工業的に若干大量の試製品を作製し、一般使用者の輿論に問うて有効価値を評価してみることも必要である。また一方本実験結果の考察はすべて供試線香における有効成分含有量が、製造当初の理論値を含有しているものと考えてこれをおこない、製造後における化学的の定量結果を参考とする方法によつていないことは、本論文の実験結果がきわめて不整一である点において再考を要する事柄として指摘される。また某地線香の原料をかせ、乃至は混入線香を製造する際にその原料を投入する順序をかえていることが、終末製品の燃焼乃至有効成分含有に関する諸条件をどの程度相違せしめているかを、物理乃至化学的方法によつて検討せられていない点、これらの事項を比較考察する上において不充分であるというそしりをまぬがれない。

VI. 摘 要

除虫菊蚊取線香に piperonyl butoxide を併せ用いることの価値を検討する目的で、混合乃至塗附の方法によつて製造した数10種の蚊取線香について、いくとおりかの実験をおこなつたところ、その効果は良否相半ばした。しかし概括的にみて併用の価値は、むしろ悲観的観測の域に属するものである。蚊取線香の有効度はいわゆる燃焼に関与する物理的の諸性質に支配されて変動するため、p. butoxide の共力効果を生物学的方法によつてのみ見きわめることは困難である。

VII. 引用文献

- (1) Bliss, C. I.: Ann. app. Biol. 24: 815 (1937).
- (2) 長沢純夫・漆葉千鶴子: 防虫科学・14: 31 (1949)
- (3) 長沢純夫・住田史朗・平位省三: 防虫科学 15: 206 (1950)
- (4) 長沢純夫・勝田純郎・岡本 晶・大野 稔: 防虫科学 16: 176 (1951)

- (5) 大沢 済・長沢純夫：防虫科学 7・8・9：1 (1947)
 (6) 若岡 潔・平岡敬造・武居三吉：日本農藝化学会誌 18：229 (1942)
 (7) 若岡 潔：除虫菊の殺虫成分にかんする研究，神戸 (1948)

Résumé

The writer, in the present paper, discussed

on the effectiveness of pyrethrum mosquitocidal incense used piperonyl butoxide jointly. It is considered that the synergistic action of piperonyl butoxide to pyrethrins is not expected in the mosquitocidal incense. And also, it is very necessary for increasing the effectiveness of these kinds of incenses that the various characteristics of incense are investigated at the chemical and physical points of view.

On the Relation between Temperature of Hydrolysis and Toxicity of Tetraethyl Pyrophosphate. Tetuo Saito (Tokai-kinki Agricultural Experimental Station, Tea Division) Received June 5, 1952, *Botyu-Kagaku* 17, 56, 1952 (with English résumé 60)

11 TEPP 製剤の加水分解の温度と殺虫力との関係 斎藤哲夫 (農林省東海近畿農業試験場茶業部) 27. 6. 5 受理

1. 緒言

近年 DDT, BHC 等の塩素系有機合成殺虫剤について有機燐化合物が殺虫剤として使用されるようになった。有機燐化合物の殺虫剤の一つである TEPP を有効成分とする殺虫剤は既に我国に於ても農業用薬剤として実際に使用され始めた。TEPP は昆虫に対して非常に強い殺虫力を持つているが高等動物に対しても又強い毒性を有している。しかし有効成分の TEPP 並びに若干の殺虫力を有する副成分の HETP は共に水に稀釈すれば比較的速かに加水分解を起して毒性をうしなうと言われている。此の加水分解の速さを知る事は圃場において撒布した薬剤の毒成分の残存、薬剤取扱い並びに残効殺虫力等の多くの重要な問題を知る上に重要なことである。H. COATES 並びに S. H. HALL and Martin JACOBSON¹⁾ は稀釈した TEPP の分解を化学的に測定した。筆者は上に述べた目的をもつてショウジョウバエ *Drosophila melanogaster* MEIGEN の野生型成虫を用いて殺虫試験を行いその殺虫力から分解の速度を推定せんとしてこの小実験を行った。

始めに御懇篤な御指導をたまわつた加藤部長を始め南川技官並びに鳥井技官に心から御礼申し上げると共に計算の労をとられた刑部勝氏に厚く感謝する次第である。なお御校閲をかたじけなくした京都大学内田教授並びに河野講師に感謝する次第である。

II. 実験材料

(1) 供試薬剤 本実験に使用した TEPP 製剤は TEPP (Tetraethyl pyrophosphate) を 36.58% (昭和26年3月10日分析) 含有する日本化学工業株式会社製造の市販品である。本剤の供試昆虫に対する有効度決定にあつては 1 l の定量フラスコを用いて pH 6.8 の蒸溜水により正確に 1000, 2000, 4000, 8000, 16000, 並びに 32000 倍に稀釈して直ちに試験に供し

た。加水分解後の有効度決定には同様の蒸溜水を用い同じ方法で、1000 倍に稀釈し 15, 25 並びに 35°C の 3 種類の恒温器に密栓をして保存し暗黒下で、12, 24, 48, 72 並びに 96 時間放置した後に試験に供した。

(2) 供試昆虫

當場附近で採取したショウジョウバエ *Drosophila melanogaster* MEIGEN の野生型のもを次に述べる方法で累代飼育を行い雌雄の別なく羽化後24時間以内の成虫を 1 回の試験に約30頭宛用いた。供試昆虫の飼育は剥皮した馬鈴薯 400g を 500cc の水で30分間煮沸しこれを濾別して煎汁に砂糖 40g, 寒天 60g を加えこれに水を加えて全体を 1 l にして寒天をよくとかし、500cc の三角フラスコに 200cc 宛分注し、綿栓を施して殺菌釜で7ポンドで20分間殺菌し、これに 1 白金耳の酵母を接種し 25°C で24時間繁殖させた後に乾熱殺菌した藥半紙を4つ切りにして入れる、次に雌雄20対の羽化24時間内の成虫をエーテル麻酔して入れ、25°C の恒温器内で飼育し、5日間産卵させてから成虫をフラスコよりとり出し次の世代の成虫を羽化させた。

III. 実験装置と方法

第1図の如き装置に前記の供試昆虫を入れ下方のゴム栓を脱してこれからガラス製の小型噴霧器で 2cc の薬液を 5.8 lbs/in² の圧力で噴霧し再びゴム栓をして落下仰臥虫数を一定時間毎に数えた。なお殺虫試験は 30°C 内外の実験室内で行つた。

IV. 実験結果

供試薬剤を前述の濃度に稀釈後直ちに殺虫試験を行つた結果は第1表にかゝげた如くである。1000倍液について前述の一定条件下に保つた後に行つた殺虫試験成績は第2表の如くである。

V. 考察と結論

BLISS⁽⁴⁾⁽⁵⁾ は昆虫の薬剤に対する抵抗性の分布は