

positive, Nessler 試薬に対し negative を示し、第3級 alcohol¹ の存在を確認した。

本研究を行うに当り御懇篤な御指導を賜った京都大学化学研究所長武居教授、及び大野教授に深甚の謝意を表す。又発表を許可された大日本除虫菊株式会社上山勘太郎社長に深謝する。

Résumé

(±)-*trans*-Homochrysanthemic acid, mp. 80—80.5°, is obtained by the Arndt-Eistert reaction of (±)-*trans*-chrysanthemoyl chloride with diazomethane and the structure of the resulting homo-acid is confirmed by ozonolysis to give acetone and (±)-*trans*-homocaronic acid. (±)-*cis*-Chrysanthemoyl chloride, when undergoing the same reaction sequence, gives (±)-*cis*-3-*isobutenyl*-2,2-dimethylcyclobutane-1-carboxylic acid, bp. 104—5°/2 mm., which is demonstrated by ozonolysis to give acetone and *cis*-norpinic acid. Both (±)-*trans*-homochrysanthemic and (±)-*cis*-3-*isobutenyl*-2,2-dimethylcyclobutane-1-carboxylic acids are readily converted by boiling with dilute sulphuric acid into the same δ -lactone. This lactone is theoretically deduced to be δ , δ -

dimethyl- γ -*isobutenyl*- δ -valerolactone and is also confirmed by ozonolysis to give acetone and γ -carboxy- δ , δ -dimethyl- δ -valerolactone, mp. 175°.

文 献

- 1) W. A. Gersdorff and N. Milton, J. Was. Acad. Sci., **42**, 313 (1952).
- 2) M. Ohno, Lecture read before the 55th Semiannual Meeting of Inst. Chem. Res., Kyoto Univ. (June 11, 1955).
- 3) Y. Inouye and M. Ohno, Bull. Agr. Chem. Soc. Japan, **20**, 25 (1956).
- 4) P. G. Guha and K. Ganapathi, Ber., **69**, 1185 (1936).
- 5) M. Kerschbaum, Ber., **33**, 891 (1900).
- 6) C. D. Gutsche, Organic Reactions, Vol. VIII, 377 (1954).
- 7) M. Matsui and S. Kitamura, Bull. Agr. Chem. Soc. Japan, **19**, 42 (1955).
- 8) L. Crombie, S. H. Harper and R. A. Thompson, J. Sci. Food Agr., **1951**, 421.
- 9) J. Owen and J. L. Simonsen, J. Chem. Soc., **1933**, 1225.
- 10) W. H. Perkin jun. and J. F. Thorpe, J. Chem. Soc., **1913**, 1760.

The Penetration and Metabolism of *pp'*-DDT in the DDT-Resistant Common Cabbage Worm and the DDT-Susceptible Cabbage Armyworm. Ken'ichi KOJIMA, Yuji NAGAI, Tadayoshi ISHIZUKA, and Akio SHIINO (Institute for Agricultural Chemicals, Toa Noyaku Co., LTD., Odawara, Kanagawa Pref.). Received Jan. 14, 1958. *Bōtyu-Kagaku* **23**, 12, 1958 (with English résumé, 22).

3. DDT の抵抗性から見たモンシロチョウとヨトウガの幼虫における DDT の浸透と代謝

小島建一・永江祐治・石塚忠克・椎野明雄 (東亜農業株式会社 農薬研究所) 33. 1. 14 受理

DDT 抵抗性を見地から、モンシロチョウとヨトウガ幼虫を材料にして *p,p'*-DDT の毒力、虫体内への侵入、代謝について比較検討した。モンシロチョウ幼虫は *p,p'*-DDT にたいして強い抵抗性をしめしたが、*p,p'*-DDT の虫体内への侵入率には差異が認められない。しかし体内における *p,p'*-DDT の解毒作用はヨトウガ幼虫にくらべて著しくつよい。さらに、各種の有機塩素、磷系殺虫剤の殺虫効力を調べたところ、モンシロチョウ幼虫は DDT, heptachlor, chlordan, aldrin, dieldrin, malathion および malaoxon に抵抗する傾向が認められる。

McEwen and Chapman²¹⁾ および Hervey and Swenson⁹⁾ は DDT-抵抗性モンシロチョウ幼虫が Wisconsin および New York 州に出現したことを報告しているが、我が国でも1953年頃から、DDT による本虫の防除が困難となり、従来使用していた薬量では以前ほど有効に駆除できなくなったことが報じられている^{12,24,27)}。しかし、これらの報文は主として

DDT の効力の差異を比較検討したもので、その要因については明瞭にされていない。

DDT-抵抗性モンシロチョウ幼虫の出現は、関東地方を中心として東北地方に多く、筆者らの知る範囲では西日本には抵抗性のモンシロチョウの幼虫が少いようである。

Sternburg *et al*²⁶⁾, Perry and Hoskins³⁰⁾, March

and Metcalf¹⁹⁾ らは、DDT 抵抗性昆虫は体内における DDT の代謝が非抵抗性昆虫のそれと相違することを指摘し、この相違が DDT 抵抗性の主要な要因であるとした。

すなわち、DDT にたいして感受性のたかいイエバエの体内では、吸収された DDT は殆んど変化しないが、DDT 抵抗性系統では DDT をその ethylene 誘導体、DDE に分解解毒することを明らかにしている。そしてこの解毒力は抵抗性の系統ほど大きいことが知られている。この見地から、DDT で防除の困難になった小田原産モンシロチョウの幼虫と、DDT に感受性のヨトウガの幼虫における *p,p'*-DDT の浸透と代謝を比較研究することは、モンシロチョウの幼虫に対する DDT の効力低下の原因を探究するためのひとつの手段として興味がある。

筆者らは、今般この問題の1部を解明することができたので、ここにその結果を報告する。

この研究をなすにあたり、終始御指導を賜った当社研究所所長平塚喜三博士、種々御助言を戴いた農林省農業技術研究所石倉秀次博士、尾崎幸三郎技官ならびに八州化学研究所酒井清六氏、発表にあたり有益な御教示を賜った京都大学内田俊郎教授ならびに長沢純夫博士に謹んで感謝の意を表する。またこの実験は当研究所渡辺智夫氏ならびに研究所各位の熱心な助力に負うところが大きい。ここに記して深謝する。

実 験 材 料

供試したモンシロチョウ *Pieris rapae crucivora* Boisduval の幼虫は、1956年の春に神奈川県小田原市国府津附近のカンラン畑より卵、若令幼虫を採集し、当研究室の25°恒温室内でカンランの緑葉をあたえて飼育した個体である。またヨトウガ *Barathra brassicae* L. の幼虫は、1955年の秋に当研究所内の農場において採集した卵に発する系統で、その幼虫期にはカンランの緑葉をあたえて、25°恒温室内の24時間照明下で累代飼育した個体群である。

供試化合物は *p,p'*-DDT (mp 107—108.5°) および *p,p'*-DDE ((mp 84—85°) を使用した。

モンシロチョウとヨトウガの幼虫 に対する *p,p'*-DDT の毒力比較

実験方法および結果 両種昆虫に対する *p,p'*-DDT の殺虫力は topical application の方法によって比較した。装置は“AGLA” micrometer syringe を用いてそのアセトン溶液1滴につき 0.001 cc の薬液が滴下しうるようにした。ヨトウガ幼虫の場合はその体表背面に1個体1ヶ所ずつ塗布し、殺虫剤の濃度を変えて所要薬量を与えるようにした。モンシロチョウ幼虫の場合は背線にそつて1定濃度の溶液を数ヶ所に塗布して所要薬量をあたえるようにした。処理した個体は濾紙をしいたシャーレーにそれぞれ5個体を収容し、各シャーレーには飼育に用いたと同じ食草をいれて、25°恒温室内に放置し、72時間後までその生死を観察した。

この方法で求められた結果をしめすと第1表の通りである。

いま第1表にしめした処理後72時間の結果を Bliss²⁰⁾ の方法にもとづいて、その薬量-致死率回帰線を計算し、観測値の直線にたいする適合性を検定した結果第2表のごとくで、薬量-致死率回帰線は、いずれも観測値と抽出誤差の範囲でよく一致している。

ついで大沢・長沢²¹⁾ にもとづいて、第2表にしめした薬量-致死率回帰線から *p,p'*-DDT の両種昆虫にたいする毒力をあらわす諸恒数をもとめ、さらに50%致死薬量を供試個体群の平均体重で除して単位体重当りの50%致死薬量を計算して、モンシロチョウ幼虫のヨトウガ幼虫にたいする相対抵抗性をもとめると第3表のような結果がえられる。

第3表によると、*p,p'*-DDT のヨトウガ幼虫にたいする50%致死薬量は0.15 $\mu\text{g/g}$ 、モンシロチョウ幼虫のそれは353 $\mu\text{g/g}$ となり、モンシロチョウ幼虫の致死薬量は実存しない数値をしめした。また抵抗性

Table 1. Dosage (μg)-mortality (%) of the 4th instar larvae of the common cabbage butterfly and the cabbage moth for *p,p'*-DDT applied topically as acetone solution.

Insect tested	Time after treatment (hour)	Dosage (micrograms per larva)									
		0.08	0.40	0.80	4.00	8.00	15.8	79.2	237.6	396.0	792.0
Common cabbage worm	24							7.3	12.0	10.7	15.3
	48							7.9	13.0	10.9	23.9
	72							9.4	13.0	10.9	23.9
Cabbage armyworm	24	9.0	25.5	42.0	71.0	80.5	84.0				
	48	10.0	32.0	49.0	81.0	88.0	95.0				
	72	11.0	38.5	50.5	88.0	91.0	97.5				

Table 2. Dosage-mortality regression equations at 72 hours after the treatment of the 4th instar larvae of the common cabbage butterfly and the cabbage moth for p,p' -DDT applied topically as acetone solution and χ^2 -test for comparing the results of observations with the computed curves.

Insect tested	Number of individuals	Regression equation $Y=a+b(X-\bar{X})$	Chi square	Degrees of freedom n	Probability in χ^2 -test
Common cabbage worm	600	$Y=3.928+0.647(X-2.513)$	3.193	2	$0.30>Pr>0.20$
Cabbage armyworm	1200	$Y=5.130+1.265(X-2.033)^*$	0.717	4	$0.95>Pr>0.90$

* $X=\text{Dose} \times 10^2$

Table 3. Absolute resistivities of the 4th instar larvae of the common cabbage butterfly and the cabbage moth to p,p' -DDT applied topically as acetone solution, and the resistivity of the former as compared with the latter.

Insect tested	Average body weight (mg)	Median lethal dose (μg)	Standard deviation of M.L.D.	Standard error of M.L.D.	Median lethal dose ($\mu\text{g}/\text{larva}$)	Relative resistivity
Common cabbage worm	65.6	23169.0	1.546	0.231	353.20	2293
Cabbage armyworm	88.7	1.4	0.790	0.001	0.15	1

の標準偏差と 50% 致死量の標準誤差もモンシロチョウ幼虫の方がヨトウガ幼虫よりいじりく大きい値をしめしている。単位体重当りの相対抵抗性をもとめると、モンシロチョウ幼虫はヨトウガ幼虫の略2290倍の抵抗力が認められる。

モンシロチョウとヨトウガの幼虫による p,p' -DDT の分解解毒

p,p' -DDT の浸透と代謝:

実験方法および結果 p,p' -DDT の虫体内への侵入および体内での代謝をしらべるため、前項の方法にしたがつて、既知量の p,p' -DDT アセトン溶液を幼虫の体表面に局所処理した。また一部の個体群にはサンドウィッチ法で経口的に投与した。処理した個体は濾紙をしいた径 12cm、深さ 2.5cm のシャーレー内で飼育した。この場合 1 シャーレー当りモンシロチョウの幼虫は 1 個体ずつ、ヨトウガの幼虫は 5 個体ずつそれぞれ収容し、その他の飼育条件、取扱いは

既述した方法と同じである。

抽出は処理後所定の時間を経過してから、処理幼虫を 15 cc のクロロホルムで 3 回洗滌して体表面の p,p' -DDT を除去し、この洗滌液をあわせて湯煎上でクロロホルムを蒸散させ、その残渣を比色法により測定し、それを体表部の p,p' -DDT 量とした。ついで体表部を洗った幼虫は乳鉢にうつし、少量の無水硫酸ナトリウムを加えてよく磨砕したのち、これにクロロホルムを加えて抽出し、その測定結果を体内部の p,p' -DDT 量とした。抽出は 50cc のクロロホルムを 3 回に分割して実施した。

比色定量は Schechter-Haller³⁴⁾ の方法により島津光電分光光度計 QB-50 型を用いて、 p,p' -DDT は 596 m μ 、 p,p' -DDE は 540 m μ で測定した。なお p,p' -DDT および p,p' -DDE 量は Knudson et al¹⁴⁾ Perry and Hoskins³¹⁾ の方法にもとづいて算出した。

この実験に供試した幼虫の平均体重およびその標準偏差と変異係数を第 4 表にしめた。

Table 4. Body weight of the 5th instar larvae of the common cabbage butterfly and the 4th instar larvae of the cabbage moth used for the analysis of p,p' -DDT and the metabolite p,p' -DDE.

Insect tested	Mean (mg.)	Standard deviation	Coefficient of variation (%)
Common cabbage worm	107.0	11.09	10.36
Cabbage armyworm	96.4	10.58	10.97

DDT-感受性 ヨトウガ幼虫と DDT-抵抗性 モンシロチョウ幼虫における p,p' -DDT の虫体内への侵入および体内での代謝を測定した結果は、第5表および第6表に示す通りである。 p,p' -DDT の虫体内への浸透量は両幼虫にたいして topically に処理した薬量とその塗布部の面積が異なるため、透過率による比較はできない。しかし両種とも処理後間もなく、幼虫の体内から p,p' -DDT が検出される。

すなわち、ヨトウガ幼虫では処理後の時間経過にともなつて、体表部の p,p' -DDT は漸次減少をしめし、体内における p,p' -DDT 量の増加が認められる。毒物のヨトウガ幼虫に及ぼす影響は処理後数時間で現れ、この頃から挙動変調ないし運動失調をへる典型的な中毒症状を観察することができる。そして DDT の虫体内への浸透量はこの中毒期以後にやゝ減少するらしく思われる。また DDT 抵抗性のモンシロチョウ幼虫に

においても同様に体表部の p,p' -DDT は減少の傾向をしめし、 p,p' -DDT の体内への侵入が認められる。その透過量はほぼ直線的に増加し、前者よりも長期にわたつて観察される。しかし供試した大部分の幼虫は何ら異常をしめさなかつた。

さて、ヨトウガ幼虫の体内に侵入した p,p' -DDT をその体内組織から抽出して、その検体を S-H 法で比色定量すると、その主要な反応は p,p' -DDT の存在をしめす青色をあらわし、 p,p' -DDE の存在はごく少量が認知されたにすぎなかつた。一方、モンシロチョウ幼虫のそれからは、 p,p' -DDT の反応に混じて DDT 脱塩酸生成物の存在を指示する赤色をくわえた紫色をしめし、この色調は処理後の時間の経過にともなつて、純粋の p,p' -DDE でえた吸光曲線と一致する赤色に移行する。第6表に表示した結果によつてあきらかなごとく、モンシロチョウ幼虫では処理数時間をへて p,p' -DDE が検出されはじめ、体内に侵入した p,p' -DDT はすみやかに分解解毒されることをしめた。その解毒力は顕著であり、サンドウィッチ法による経口投与の例では、投薬 24~72 時間後に投与した p,p' -DDT (7.92 γ) の 20~68% が p,p' -DDE もしくは未知物質に解毒された物質になつた。また経口、経皮的に処理した場合、処理後の 6~48 時間幼虫の体内から検出される物質の 63~90% が p,p' -DDE であつたことは注目される。体内に侵入した p,p' -DDT の p,p' -DDE への変換率の時間的消長をしめすと第2図の通りである。これを比較すると、経口、経皮のいずれの場合にも、その曲線の傾向は大差が認められない。これは毒物の虫体内への侵入経路の相違によつて解毒反応に影響をあたえないことを暗示するものと考えられる。

第5表および第6表の最後の欄には、総検出率として、幼虫に処理した最初の投薬量にたいする p,p' -DDT 量と p,p' -DDE 量とを加算した全回収量の百

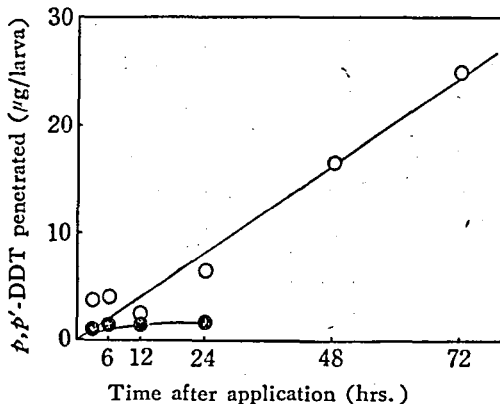


Fig. 1. Penetration of p,p' -DDT in the DDT-resistant common cabbage worm (—○—) and the DDT-susceptible cabbage armyworm (—●—) which were applied topically 396 μ g and 19.8 μ g p,p' -DDT per larva respectively as the acetone solution.

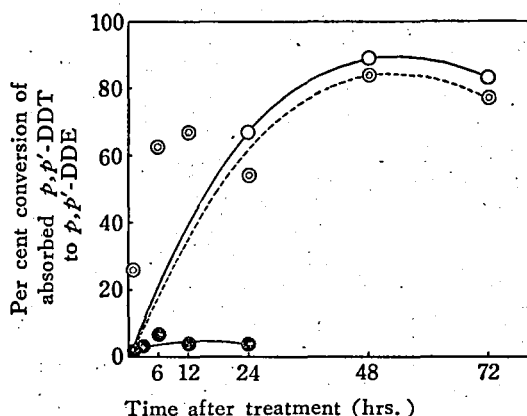
Table 5. Penetration of p,p' -DDT and the conversion of absorbed p,p' -DDT to metabolite p,p' -DDE by DDT-susceptible cabbage armyworms (Odawara strain) which were applied 19.8 γ of p,p' -DDT per larva topically.

Time after treatment (hour)	Condition of larvae at the time of extraction	Number of larvae	External		Internal		Excreta		Total recovery %*	Per cent conversion of absorbed p,p' -DDT to p,p' -DDE
			p,p' -DDT γ	p,p' -DDE γ	p,p' -DDT γ	p,p' -DDE γ	p,p' -DDT γ	p,p' -DDE γ		
0	Normal	50	19.78	0	0.16	0.00	0.61	0.04	104.0	2.4
1	Normal	50	19.59	0	0.67	0.01	1.99	0.00	112.4	1.5
3	Poisoned	50	16.49	0	0.90	0.00	5.93	0.00	117.8	0.0
6	Poisoned	50	13.59	0	1.22	0.05	4.26	0.04	96.7	6.9
12	Poisoned	50	10.01	0	1.40	0.05	6.37	0.00	90.1	3.5
24	Poisoned	50	10.61	0	1.75	0.06	5.45	0.00	90.3	3.3

* Based on molecular weight of p,p' -DDT.

Table 6. Penetration of p,p' -DDT and the conversion of absorbed p,p' -DDT to metabolite p,p' -DDE by the DDT-resistant common cabbage worms (Odawara strain).

Method utilized	p,p' -DDT applied (γ /larva)	Time after treatment (hour)	Condition of larvae at the time of extraction	Number of larvae	External		Internal		Excreta		Total recovery %*	Per cent conversion of absorbed p,p' -DDT to p,p' -DDE
					p,p' -DDT γ	p,p' -DDE γ	p,p' -DDT γ	p,p' -DDE γ	p,p' -DDT γ	p,p' -DDE γ		
Sandwich	7.92	24	Normal	12	0.0	0.0	0.33	3.06	2.30	0.65	80.1	66.8
		48	Normal	18	0.0	0.0	0.15	1.08	0.89	0.35	31.9	88.9
		72	Normal	14	0.0	0.0	0.12	1.05	1.21	0.77	41.3	83.2
Topical	396	3	Normal	5	329.6	0.0	2.82	1.02			83.9	26.6
		6	Normal	5	320.7	0.0	1.49	2.51			81.4	62.8
		12	Normal	5	325.5	0.0	0.90	1.82			82.4	66.9
		24	Normal	5	330.1	0.0	2.14	2.45	0.69	0.80	84.1	53.4
		48	Normal	5	316.7	0.0	1.68	8.73	5.27	1.17	81.7	83.9
		72	Normal	5	303.3	0.0	2.27	7.60	13.34	1.81	80.5	77.0

 * Based on molecular weight of p,p' -DDT.

 Fig. 2. Per cent of p,p' -DDT metabolized to p,p' -DDE in the DDT-resistant common cabbage worm which were administered 7.92 μ g of p,p' -DDT per larva by sandwich method (—○—) or applied 396 μ g of p,p' -DDT per larva topically (.....○.....) and the DDT-susceptible cabbage armyworm applied 19.8 μ g of p,p' -DDT per larva topically (—●—) as the acetone solution.

分率を掲げた。この結果をみると、ヨトウガ幼虫の総検出率はつねにたかく、終始投薬量と等しい量が回収されたにもかかわらず、モンシロチョウ幼虫の総検出率はひくく、処理後の時間経過によってもなつて総検出量の低下が認められる。このように総検出量の低下の傾向は経口投与の場合に明瞭に認められ、投与後 24, 48 および 72 時間の総検出率はそれぞれ 80, 31 および 41% であつた。こうした総検出率の減退は体内における DDT の解毒過程に第 2 次的の生理的代謝の存在することをしめし、 p,p' -DDT の分解産物 p,p' -

DDE はさらに未知物質へ分解されることを暗示している。これはつぎの実験によつてもあきらかである。

p,p' -DDE の浸透と代謝：

実験方法および結果 薬剤の処理方法、その後の飼育管理、抽出および微量定量法はさきに述べた方法と同じである。第 7 表に表示した。実験の結果によれば、topically に処理した p,p' -DDE の体内への侵入は両種昆虫ともほぼ同じ割合で透過するようで、両種の間に大きな差異は認められなかつた。つぎに総検出率からみた体内における p,p' -DDE の代謝の消長を推察すれば、両種昆虫とも、処理 12 時間以後に p,p' -DDE 検出量の減退が認められる (第 3 図)。し

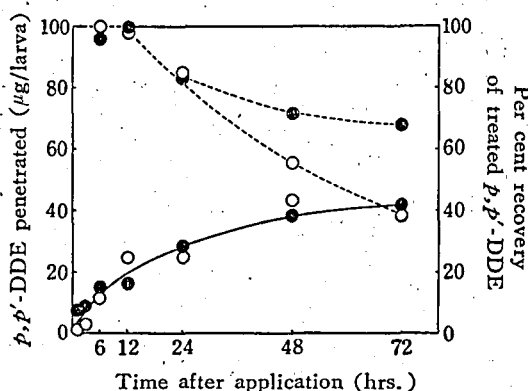

 Fig. 3. Penetration (solid line) and metabolism (dotted line) of p,p' -DDE in the DDT-resistant common cabbage worm (○) and the DDT-susceptible cabbage armyworm (●) after the topical application of p,p' -DDE acetone solution at the dosage of 15.8 μ g per larva.

Table 7. Penetration and metabolism of *p,p'*-DDE in the DDT-resistant common cabbage worm and the DDT-susceptible cabbage armyworm which were applied 15.8 γ of *p,p'*-DDT per larva topically.

Insect tested	Time after treatment in hour	Number of larvae	External	Internal	In container		Total recovery %
			<i>p,p'</i> -DDE γ	<i>p,p'</i> -DDE γ	Excreta <i>p,p'</i> -DDE γ	Filter paper <i>p,p'</i> -DDE γ	
Common cabbage worm	1	10	15.3	0.2	0.0	0.6	100.0
	3	10	15.0	0.5	0.0	0.5	98.6
	6	10	16.1	2.6	0.0	0.8	121.6
	12	10	11.0	3.6	0.4	0.9	98.3
	24	10	8.6	3.5	0.5	1.1	84.9
	48	10	1.4	5.4	1.5	0.7	55.6
	72	10	0.6	2.8	1.6	1.2	38.5
Cabbage armyworm	1	10	11.8	1.2	0.0	2.0	100.0
	3	10	12.0	1.4	0.0	2.2	104.3
	6	10	10.3	2.0	0.4	1.6	95.6
	12	10	9.4	2.1	0.5	2.6	98.8
	24	10	5.3	3.7	0.8	2.7	84.2
	48	10	1.0	4.2	1.9	2.3	71.2
	72	10	0.2	4.8	1.8	3.4	68.3

かし、その減少の傾向はやゝことなることがしめされ、モンシロチョウ幼虫における *p,p'*-DDE 総検出率の減少はヨトウガ幼虫のそれよりたかかった。

DDT-抵抗性モンシロチョウの幼虫に對する有機塩素、燐系殺虫剤の殺虫効力

実験方法および結果 この実験に供試した乳剤は 2, 3 の薬剤を除いて、下記の市販品を使用した。

		乳 剤
Aldrin	24.0%	〃
BHC (A)	20.0%	〃
BHC (B)	20.0%	〃
DDT (A)	20.0%	〃
DDT (B)	20.0%	〃
Dieldrin	18.5%	〃
Endrin	19.5%	〃
Heptachlor	20.0%	〃
Isodrin	20.0%	〃
EPN	45.0%	〃
DDVP	50.0%	〃
Diazinon	17.0%	〃
Dipterex	50.0%	〃
Guthion	20.0%	〃
Malathion	50.0%	〃
Malaoxon	50.0%	〃
PM	50.0%*	〃
Lead arsenate	As ₂ O ₅ 32% 以上	PbO 62% 以上

乳剤は水で稀釈して有効成分濃度 0.05% にした。また砒酸鉛は水 1 l に約 4.2 g を溶解した。対象作

* Parathion 25% plus malathion 25%.

物には圃場のカシランをえらび、ビニールで覆った框を 1 株ずつカンランにかぶせ、上方からエアコンプレッサーに連結した IHS スプレーガン S-1 型を挿入し、圧力 25 lb/cm² で 1 株に 50 cc の薬液をていねいに散布した。当時、カンランは結球直前の成長期であつた。殺虫試験は散布後薬液が乾燥してから、カンラン葉を採集し、直径 80 mm (5024 mm²) のリーフパンチで同一面積にぬきとり、この葉を 3 枚と小田原産 DDT-抵抗性モンシロチョウの第 4 令幼虫 10 頭を濾紙をしいた直径 12 cm、深さ 2.5 cm のシャーレーに収容し、25° 恒温室で飼育した。供試虫の生死は 24 時間ごとに 72 時間後まで観察し、供試虫の中毒症状によつて死虫、瀕死虫、異常虫、および生虫に類別したが、殺虫率の算出は瀕死虫を死虫に加算してもとめた。また、摂食量は実験終了後に厚手の感光紙に供試葉の食害残葉を現像し、その面積をプランメーターで測定した。

実験の結果は第 4 図にしめす通りで、DDT-抵抗性モンシロチョウの幼虫にたいする有機塩素系殺虫剤の殺虫効果を比較すると、endrin および BHC の 2 種の効力が最もたかく、dieldrin の効果はややおとる。DDT の 2 種の効力は極めてひくく、heptachlor, aldrin および chlordan はほとんど効果がなかつた。いま、これらの殺虫率の分散分析を行い、それぞれの薬剤間の差異が有意であるかどうかを検定すると、endrin, BHC の 2 種および dieldrin のしめした殺虫率は DDT の 2 種、heptachlor, aldrin, chlordan

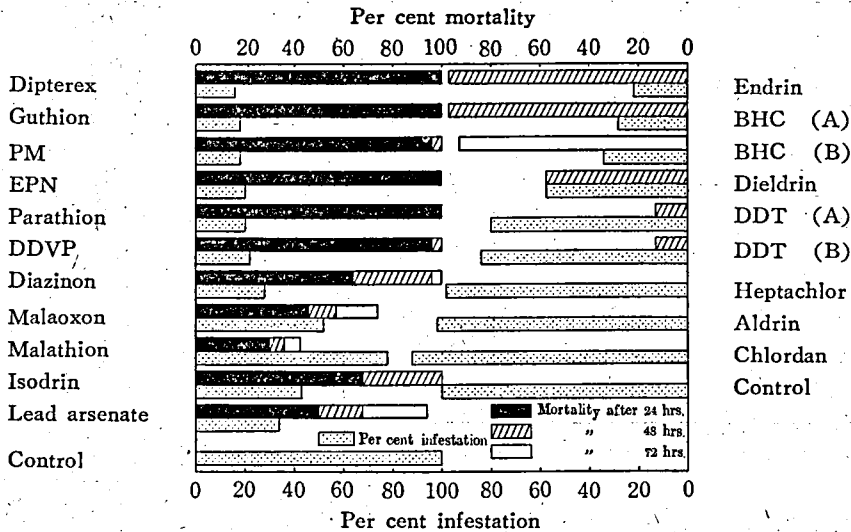


Fig. 4. Relative effectiveness of various insecticide emulsions which are sold as commercially to the DDT-resistant common cabbage worm. Insecticides were applied at the concentration of 0.05 % to the cabbage of the field condition, and then the cabbage leaves were given to worms at the laboratory condition.

$$* F_0=120.3 > F_{11,32}^* (0.01)$$

$$* F_0=34.8 > F_{36}^* (0.01)$$

$$** F_0=18.3 > F_{11,32}^* (0.01)$$

$$** F_0=12.7 > F_{36}^* (0.01)$$

および無撒布区の殺虫率よりも $\alpha=0.01$ の有意水準で効力がたかかった。しかし, endrin および BHC の 2 種の相互の間, DDT の 2 種, heptachlor, aldrin, chlordan および 無撒布区の相互の間には統計的に有意な差異が認められなかった。ただし, dieldrin の殺虫力は endrin および BHC の 2 種薬剤とくらべて同じ危険率でおとると推論できるようなのである。また, 前記の方法でもとめた各薬剤の摂食率の無撒布区にたいする比率は, $\alpha=0.01$ の有意水準で endrin, BHC の 2 種および dieldrin が少なかったが, DDT の 2 種, heptachlor, aldrin, chlordan は無撒布区と差がなかった。なお, dieldrin の摂食率は殺虫効果の場合と同様に同じ危険率で endrin および BHC にくらべて有意差が認められた。

また, 有機燐系殺虫剤群では malathion および malaoxon をのぞいて EPN, DDVP, Diazinon, Dipterex, Guthion, parathion および PM の殺虫効果がたかく, これらの薬剤による 72 時間後の殺虫率には有意水準 $\alpha=0.01$ において大差が認められなかった。malathion および malaoxon の効力は上述の薬剤にくらべていちじるしくおとり, とくに malathion の殺虫効果はひくかった。燐系殺虫剤の摂食率の無撒布区にたいする比率は, malathion をのぞく他のいずれの薬剤も無撒布区に比較して顕著な減少をしめし, これらの薬剤の相互の間には malaoxon をの

ぞいて有意な差が認められなかった。

追加実験した isodrin および砒酸鉛は DDT-抵抗性モンシロチョウ幼虫にたいして有効であった。

考 察

モンシロチョウおよびヨトウガ幼虫にたいする DDT の殺虫力の年次変動を考察するための資料とはばしいが, 湯浅¹⁰⁾ はモンシロチョウおよびヨトウガ幼虫の DDT にたいする抵抗力は非常によく, その上食害防止効果は一層大きいことを報告している。同様な傾向は他の研究者によつても認められ^{13,25,26)}, 石倉¹⁰⁾ はヨトウガ幼虫には BHC より DDT の方が有効であるとし, また DDT はモンシロチョウ幼虫にたいして砒酸鉛や BHC より効果があることを確認している。しかしその後, モンシロチョウの幼虫にたいする DDT の効力低下が認められ, 野村²⁷⁾, 本橋²⁸⁾ は本種の防除に DDT を慣行の濃度で使用してもほとんど効果がなく, 薬量を増加してもやはり期待しうる効果がなかったことから, DDT 抵抗性の品種が蔓延してきたものと解釈せざるをえないと推論した。McEwen and Chapman²⁹⁾ によれば, DDT-抵抗性系統のモンシロチョウ幼虫は非抵抗性系統の 200 倍の DDT を使用してもなお株当たり 1.3 匹の生き残りがでるといふ。こうした過去の事例からみて, DDT が使用されはじめた 1948 年から 1953 年頃まで, DDT

による本種の防除は実用上問題がなかつたものと考えられる、

この実験において、さきに第1表から第3表に表示したごとく、モンシロチョウの幼虫は p,p' -DDT にたいして強い抵抗性をしめし、グラム単位体重当りの中央致死薬量の比をもつて比較するとヨトウガ幼虫の略2290倍の抵抗性が認められる、そしてこの傾向は圃場試験の防除効果と並行している^{11,21,27}。しかしこゝで指摘したいことは、殺虫剤の効力はいろいろの生物検定法によつて致死薬量、または致死時間の推定が行われるわけであるが、一般に殺虫剤にたいする抵抗性の評価は、いわゆる薬量-致死率曲線から導かれる中央致死薬量（主として topical LD₅₀）が広く用いられている。topical LD₅₀ の測定は生理的に感受性ないしは抵抗性があるかどうかをはつきり表現できるが、多くの研究者^{30,32,38} がしばしば指摘しているように、薬剤の虫体内への侵入量は処理した薬量に比例しない場合もあり、また、殺虫剤を溶解するために用いる溶剤の種類によつても殺虫力や体内への侵入量に差異がある^{3,9} などの点から、体内に侵入した薬剤の毒作用にたいする生体内の生理的抵抗性の直接の指標にはならないことも多々ある。それゆゑ、単に致死薬量の比較だけから、DDT に対するモンシロチョウ幼虫の抵抗性を推論することはできないと考える。

DDT 抵抗性の機構については、多くの業績があり、Sternburg *et al*³⁸ は最初にイエバエによる DDT の解毒現象を観察した。同時に Perry and Hoskins^{30,31} も同様な見解を明らかにした。この解毒現象はイエバエ、ゴキブリおよび他の昆虫についてくわしく研究され^{1,2,6,8,15-18}、DDT は虫体内で脱塩酸されて DDE、DDA、または他の未知物質に変えられることが知られている。さらにこの解毒作用は DDT-dyhydrochlorinase によるものであることが認められている^{22,23,35,39}。

ところで、DDT の体内への侵入は、イエバエの成虫、幼虫および蛹の抵抗性系統と非抵抗性系統との間にいちじるしい差がしめされないようである^{36,42,43}。こゝで、モンシロチョウ幼虫とヨトウガ幼虫を照合して取扱うのは必ずしも適切ではないかもしれないが、 p,p' -DDT の表皮浸透は両種の間にもあまりいちじるしい差異がないように思われる。そこで両種による解毒力を比較して見ると、モンシロチョウ幼虫はヨトウガの幼虫に比べていちじるしく強いことがしめされた。すなわちモンシロチョウ幼虫に p,p' -DDT を経口投与した場合、投薬後 24~72 時間以内に投与した 4.92 γ の p,p' -DDT 中、その 20~68% が p,p' -DDE または未知物質に分解解毒された。同様な傾向

は topical application の場合にも認められる、また経口、経皮のいずれの場合にも、処理 6~48 時間後の幼虫の体内から検出される物質の 63~90% が p,p' -DDE であることは注目すべきであらう。しかるにヨトウガ幼虫による p,p' -DDT の解毒力はきわめてよい。したがつて、 p,p' -DDT にたいするモンシロチョウ幼虫の抵抗性は強い解毒力が主要な要因の 1 つであらうと考える。

イエバエでは感受性系統でも DDT を分解解毒する能力をもつが、それは抵抗性の系統にくらべてはなはだよいのか、あるいは全く解毒力がないとも報告されており、解毒力のちがいは昆虫の種類、系統、個性、発育段階、化期などによつて殺虫剤の効力が異なる要因の 1 つであらうと考えられている^{19,29,43,45}。また昆虫の体内における DDT の解毒部位についても詳細に研究され、体内のクチクラ、あるいは消化管内に多量の DDE が存在することから、これらの臓器が DDT の主要な解毒器官であつて、DDT は体内の作用点に達するまでに分解されてしまうのであらうと推察されている^{7,15,18,33,37,40,41}。いま兩種昆虫について行つた解毒の結果を再確認するため検討すると、すでに述べたごとく p,p' -DDT、また p,p' -DDE を経口ないし経皮的に処理した場合、モンシロチョウ幼虫は p,p' -DDT $\rightarrow$ p,p' -DDE $\rightarrow$ 未知物質への強い解毒が明瞭にしめされるが、ヨトウガ幼虫による p,p' -DDT の分解解毒はほとんど認められなかつた。しかし、 p,p' -DDE を処理した場合には、ヨトウガ幼虫でもモンシロチョウ幼虫にくらべればやや低い、比較的高い割合で未知物質への分解消失が認められた。この数値は DDT 感受性イエバエの否定的な結果に比較してかなり高い割合をしめしている。勿論昆虫の種類差ということも考慮しなければならないが、この点については、解毒機構の解折を行うにあつて、なお詳細に研究する必要があると考えている。すなわち、山崎・石井⁴⁴ によれば、DDT の作用点は神経、特に neurone soma であり、1 次的作用は反復興奮性の増大であつて、DDT 中毒昆虫の呼吸量の変化や、種々の代謝の変化はむしろ神経機能の攪乱の 2 次的変化であると論じている。それゆゑ、ヨトウガ幼虫による p,p' -DDT の解毒は神経機能障害の必然的結果として、解毒器官の機能の低下により p,p' -DDT の解毒が進行せずに死へと移行するものと推察されるが、 p,p' -DDE の処理による分解消失は無毒なるがため、その毒作用が解毒器官に関与せずによく働くからであらうと考える。これは解毒の進行をしめす p,p' -DDE、あるいは未知物質の現れ方が多少おくれることから推測される。したがつて、解毒力の大小は昆虫の作用

点感受性の大小によつても相違する可能性が問題となるであろう。この点を兩種昆虫について既述した資料から間接的に考察すると、モンシロチョウ幼虫の体内に残存する解毒されない p,p' -DDT 量はヨトウガの幼虫を殺すに充分な量 (topical LD_{50} は $1.5 \gamma/\text{匹}$) であるから、モンシロチョウ幼虫の作用点感受性はやはりヨトウガ幼虫のそれより抵抗性が大であると予測される。

つぎに p,p' -DDT の体外排泄についてみると、分解解毒されない一部の p,p' -DDT、また p,p' -DDE は消化管を通じて体外に排泄される。これは経口投与したモンシロチョウ幼虫の実験例に明瞭に示められる。しかし、 p,p' -DDT を処理したヨトウガ幼虫の排泄物中にしめされる p,p' -DDT 量は、実験中該虫がモンシロチョウ幼虫にくらべて、正常時に活潑な運動をすることや、中毒期の異常により虫体の表面から剥脱した薬量を含むため確かでない。この傾向は兩種昆虫に p,p' -DDE を処理したときの比較資料にあきらかに認められる。

つぎに昆虫がある種の殺虫剤にたいして抵抗性を増大した場合、この抵抗性昆虫が他の殺虫剤にたいしてどのような反応をしめすか、これは抵抗性昆虫の防除法を確立するため重要である。Metcalf²⁰⁾ は他の多くの研究者が行つたイエバエの実験結果から、イエバエである殺虫剤にたいして抵抗性を増大した場合、この抵抗性系統のイエバエは他の殺虫剤にたいしても抵抗性を同時に増大する傾向が認められ、この傾向は構造の類似した化合物間において強くあらわれる。しかし、これらの抵抗性系統でも作用機構の異なる殺虫剤にたいしては概して感受性であり、かりに抵抗性が増大してもその度合はきわめて弱いことをあきらかにしている。McEwen and Chapman²¹⁾ は DDT-抵抗性モンシロチョウ幼虫は DDT, perthane, TDE および methoxychlor にたいして強い抵抗性をしめし、これらの殺虫剤では防除が困難であるが、parathion, Metacide, malathion および CS-708 ではよく防除できると報じている。この実験において小田原産の DDT-抵抗性モンシロチョウ幼虫は、有機塩素系殺虫剤群の heptachlor, chlordane および aldrin にたいして DDT と同等以上の強い抵抗性をしめし、また dieldrin には上記の薬剤はど強くないが、多少抵抗する傾向が認められた。しかし、BHC, endrin および isodrin は顕著な効力をしめし有効であつた。こゝで End, End 型の立体構造をもつ endrin と isodrin が有効であつたのにたいし、End, Exo 型構造の dieldrin と aldrin にたいして抵抗性をしめたことは興味深い。一般に有機磷系殺虫剤の Dipterex, Guthion, PM, EPN, parathion, DDVP および Diazinon は

DDT-抵抗性モンシロチョウ幼虫にたいして有効であつた。しかし malathion および malaosxon はやゝその効力がおとる傾向が認められた。なお砒酸鉛は防除効果が認められた。

摘 要

筆者らは、1956年に DDT による防除の困難になつた小田原産モンシロチョウ幼虫と DDT 感受性ヨトウガの幼虫にたいする p,p' -DDT の殺虫力、虫体内への侵入および代謝について比較検討した。

1) Topical application による兩種昆虫の第4令幼虫にたいする p,p' -DDT の LD_{50} は、グラム単位体重当りモンシロチョウ幼虫では $353 \mu\text{g}$ 、ヨトウガ幼虫では $0.15 \mu\text{g}$ であつて、前者の致死薬量は実存しない数値をしめた。兩種の間の相対抵抗性をもとめると、前者は後者にくらべて略2290倍の抵抗性が認められた。

2) 兩種昆虫ともに topically に処理してから、間もなく p,p' -DDT の虫体内への侵入が認められる。その侵入は DDT 感受性ヨトウガ幼虫では中毒期以後やゝ減少する傾向をしめすが、DDT-抵抗性モンシロチョウ幼虫ではヨトウガの幼虫より長期にわたつて p,p' -DDT の吸収増加がみられる。したがつて、モンシロチョウにたいする p,p' -DDT の効みにくい要因は兩昆虫の形態学的ないしその他の差異による p,p' -DDT の表皮透過の相違によるためでない。

3) 昆虫の体内に侵入した p,p' -DDT の代謝を比較すると、抵抗性モンシロチョウ幼虫は感受性のヨトウガ幼虫にくらべていちじるしく解毒力が強く、経口投与した場合、投薬後 24~72 時間以内に投与した 7.92γ の p,p' -DDT 中、その 20~68% が p,p' -DDE または未知物質に分解解毒される。また経口、経皮的に処理した場合、処理 6~48 時間後の幼虫の体内から検出される物質の 63~90% が p,p' -DDE であることは注目すべきであり、 p,p' -DDT にたいするモンシロチョウ幼虫の抵抗性は体内における強い解毒作用が主要な要因の1つであろう。しかし、モンシロチョウ幼虫の体内に残留する解毒されない p,p' -DDT 量はヨトウガ幼虫の致死量より遙かに多く存在し、しかも幼虫は何らの中毒症状もあらわさないことから、モンシロチョウ幼虫の作用点感受性はヨトウガ幼虫のそれより抵抗力が大であると推察される。なお DDT 感受性ヨトウガ幼虫による p,p' -DDT の解毒能力はほとんど認められないが、 p,p' -DDE の処理による分解消失は比較的高かつた。

4) DDT-抵抗性モンシロチョウ幼虫は有機塩素系殺虫剤の heptachlor, chlordane, aldrin および dieldrin にたいして DDT 同様に強い抵抗性をしめ

した。しかし BHC, endrin および isodrin には抵抗性をしめさなかつた。一般に有機燐系殺虫剤の Dipterex, Guthion, PM, EPN, parathion, DDPV および Diazinon は有効であつたが, malathion および malaoxon は若干無効であるという傾向が認められた。なお砒酸鉛は有効であつた。

文 献

- 1) Babers, F. H. and J. J. Pratt : J. Econ. Entomol. 46, 977 (1953).
- 2) Babers, F. H. and C. C. Roan : J. Econ. Entomol. 46, 1105 (1953).
- 3) Barker, R. J. and A. E. R. Rawhy : J. Econ. Entomol. 50, 105 (1957).
- 4) Bliss, C. I. : Ann. Appl. Biol. 22, 134 (1935).
- 5) Busvine, J. R. : Nature 168, 193 (1951). *
- 6) Butts, J. S., S. C. Chang, B. E. Christensen and C. H. Wang : Science 117, 699 (1953).
- 7) Cochran, D. C. : J. Econ. Entomol. 49, 43 (1956).
- 8) Ferguson, W. C. and C. W. Kearns : J. Econ. Entomol. 42, 810 (1949).
- 9) Hervey, G. E. R. and K. G. Swenson : J. Econ. Entomol. 47, 564 (1954).
- 10) 石倉秀次 : 中国・四国農事試験場報告 1, 83 (1952).
- 11) 岩手農試 : 病害虫に関する試験成績 昭和30年度.
- 12) 上遠 章 : 農薬 1, 16 (1954).
- 13) 加藤陸奥雄 : 農薬 2, 10 (1948).
- 14) Knudson, H. W., W. V. Meloche and C. Juday : Indus. Engineer. Chem. Analyt. Ed. 12, 715 (1940).
- 15) LeRoux, E. J. and F. O. Morrison : J. Econ. Entomol. 47, 1058 (1954).
- 16) Lindquist, D. A. and P. A. Dahm : J. Econ. Entomol. 49, 579 (1956).
- 17) Lindquist, A. W., A. R. Roth and R. A. Hoffman : J. Econ. Entomol. 44, 931 (1951).
- 18) Lindquist, A. W., A. R. Roth, W. W. Yates and R. A. Hoffman : J. Econ. Entomol. 44, 167 (1951).
- 19) March, R. B. and R. L. Metcalf : Calif. Mosquito Control Assoc. Proc. and Papers 18, 17 (1950). *
- 20) Metcalf, R. L. : Organic Insecticides. Intersci. Pub., N. Y. (1955).
- 21) McEwen, F. L. and R. K. Chapman : J. Econ. Entomol. 45, 717 (1952).
- 22) Moorefield, H. H. : Contris. Boyce Thomp. Inst. 18, 303 (1956).
- 23) Moorefield, H. H. and C. W. Kearns : J. Econ. Entomol. 50, 11 (1957).
- 24) 本橋精一 : 農薬時代 15, 18 (1956).
- 25) 村田寿太郎 : 農薬 1, 21 (1947).
- 26) 駒松市郎兵衛 : 農薬 1, 32 (1947).
- 27) 野村健一 : 農薬及園芸 30, 235 (1955).
- 28) 大沢 済・長沢純夫 : 防虫科学 7, 8, 9, 1 (1947).
- 29) Perry, A. S., R. W. Fay and A. J. Buckner : J. Econ. Entomol. 46, 972 (1953).
- 30) Perry, A. S. and W. M. Hoskins : Science 111, 600 (1950).
- 31) Perry, A. S. and W. M. Hoskins : J. Econ. Entomol. 44, 839 (1951).
- 32) Perry, A. S. and W. M. Hoskins : J. Econ. Entomol. 44, 850 (1951).
- 33) Robbins, W. E. and P. A. Dahm : J. Agr. Food Chem. 3, 500 (1955).
- 34) Schechter, M. S., S. B. Soloway, R. A. Hayes and H. L. Haller : J. Indus. Engineer. Chem., Analyt. Ed. 17, 704 (1945).
- 35) Sternburg, J., E. B. Vinson and C. W. Kearns : J. Econ. Entomol. 46, 513 (1953).
- 36) Sternburg, J. and C. W. Kearns : Ann. Ent. Soc. Amer. 43, 444 (1950).
- 37) Sternburg, J. and C. W. Kearns : J. Econ. Entomol. 45, 497 (1952).
- 38) Sternburg, J., C. W. Kearns and W. N. Bruce : J. Econ. Entomol. 43, 214 (1950).
- 39) Sternburg, J., C. W. Kearns and H. H. Moorefield : J. Agr. Food Chem. 2, 1125 (1954).
- 40) Tahori, A. S. and W. M. Hoskins : J. Econ. Entomol. 46, 302 (1953).
- 41) Tahori, A. S. and W. M. Hoskins : J. Econ. Entomol. 46, 829 (1953).
- 42) Winteringham, F. : Bull. Natl. Research Council, Pub. 219, 61 (1952). *
- 43) Winteringham, F., A. Harrison, P. Loveday and R. Bridges : Dept. Sci. Ind. Research (Brit.), Pest Infestation Research, 36 (1952). *
- 44) 山崎輝男・石井敏夫 : 応用昆虫 9, 87 (1953)

45) 山崎輝男・石井敏男：応用昆虫 11, 167(1955).

46) 湯浅啓温：農薬 1, 9 (1947).

* 間接引用

Résumé

Since 1948, DDT has been extensively applied to the control of the Lepidopterous pests of cabbage in Japan and it indicated the excellent control of both the common cabbage worm, *Pieris rapae crucivora* (Boisduval), and the cabbage armyworm, *Barathra brassicae* L. However, it has been found that the common cabbage worms in Kantō and Tōhoku area were growing resistant to DDT in 1953.

The present investigation intends to demonstrate the relative resistivity of the DDT-resistant common cabbage worm and the DDT-susceptible cabbage armyworm to various insecticides, the penetration and the metabolism of *p,p'*-DDT in them.

1) The LD-50 values in microgram per gram of body weight of the 4th instar larvae obtained by the topical application of *p,p'*-DDT in acetone solution were 353 for the common cabbage worm and 0.15 for the cabbage armyworm. The common cabbage worm showed more resistance to *p,p'*-DDT than the cabbage armyworm.

2) When *p,p'*-DDT was applied topically as the acetone solution, it readily penetrated through the cuticle of both DDT-resistant and DDT-susceptible species. The difference in the rate of penetration of *p,p'*-DDT between both species was not significant. Thus, resistivity of the common cabbage worm to *p,p'*-DDT is not related to the difference of penetration of *p,p'*-DDT into the body through the cuticle. The amounts of *p,p'*-DDT penetrated are shown in Fig. 1.

3) The DDT-resistant species are able to metabolize *p,p'*-DDT rapidly to a nontoxic *p,p'*-DDE and other unknown metabolites, whereas

as shown in Fig. 2 the DDT-susceptible species have no such an ability. It will be noted that the DDT-resistant species are able to metabolize 20—68% of the 7.92 γ dose of *p,p'*-DDT to *p,p'*-DDE within one to three days after the oral administration and that when *p,p'*-DDT was applied topically or orally, about 63—90% of the recovered material in the larval body at 6 to 48 hours after the treatment is *p,p'*-DDE. Therefore, it follows that resistivity of the common cabbage worm to *p,p'*-DDT is due to the detoxication of *p,p'*-DDT to *p,p'*-DDE in the body before it reaches its site of action.

The amounts of unchanged *p,p'*-DDT remained in the body of the DDT-resistant species were sufficient to kill the DDT-susceptible species, at the topical LD-50 1.4 γ per larva. The susceptibility of action point to *p,p'*-DDT in the DDT-resistant species may be more lower than in the DDT-susceptible species. The rates of penetration of *p,p'*-DDE through the cuticle after the topical application were almostly same in both species. Though *p,p'*-DDE is metabolized slowly to the unknown metabolites in the both species, this rate of metabolism in the DDT-susceptible species is slightly lower than that of the DDT-resistant species (Fig. 3).

4) The relative effectiveness of some emulsifiable concentrates which were sold commercially to the DDT-resistant common cabbage worm of several chlorinated hydrocarbon and organophosphorous insecticide emulsions were evaluated.

As shown in Fig. 4, DDT, heptachlor, aldrin and chlordan were not so effective to the DDT-resistant common cabbage worm, but endrin, isodrin, BHC, Dipterex, Guthion, EPN, parathion, DDVP, Diazinon and a mixture of parathion and malathion showed the high effectiveness to it, and also dieldrin, malaoxon and malathion were not so effective to it.