

- (5) Moore, J. B. : J. Econ. Ent. **43** : 207 (1950).
 (6) 長沢純夫 : 防虫科学 **12**:12 (1949).
 (7) 長沢純夫 : 未発表成績。
 (8) 大沢清・長沢純夫 : 防虫科学 **7**.8.9:1 (1947)
 (9) Piquett, P. G. : J. Econ. Ent. **42**: 841 (1949).
 (10) Stoddard, R. B. & W. E. Dove: Soap Sanit. Chem. **25** (10), 118 (1949).

Résumé

The writer made a laboratory test to compare the toxicity of pyrethrins and allethrin (allyl homologue of cinerin-I) applied in oil solution to pupae of the common house mosquito (*Culex pipiens* var. *pallens* Coquillett) by the petri dish method of Nagasawa.⁹⁾ The oil so-

lution of these toxicants were made under the following formulation : toxicant 1, kerosene 4.5 and petrobace No.1 Grade A 4.5, and the pupae were subjected to tests within 20 hours after pupation. After the dosage-mortality relation was established for each toxicant (Table 1), the equation for each dosage-mortality regression line was computed (Table 2). From the parameters involved in the equation, the absolute and relative effectiveness were computed following the formulation proposed by Ohsawa and Nagasawa⁹⁾ (Table 3 and 4). The results lead to the conclusion that allethrin is ca 0.06 times as toxic as pyrethrins at the LD-50, and is ca 0.12 times as toxic as pyrethrins at the LD-99.87.

Comparison of the Toxicity of Allethrin and Ethythrins to Pupae of the Common House Mosquito (*Culex pipiens* var. *pallens* COQUILLETT), and the Joint Action of these Two Toxicants. Studies on the Biological Assay of Insecticides. Sumio NAGASAWA, Yuzo INOUE and Sadako SHIRATA (Takai Laboratory, Institute for Chemical Research, Kyoto University, Takatsuki, Ohsaka). Received Sep. 7, 1951. *Botyu-Kagaku* **16**: 169, 1951. (with English résumé, 176).

30. アカイエカの蛹にたいする Allethrin と Ethythrins の毒力の比較ならびにこれらふたつの連合作用について。殺虫剤の生物試験にかんする研究。第16報。長沢純夫・井上雄三・柴田砂田子 (京都大学化学研究所武居研究室)。25.9.7 受理

I 緒言

筆者は先報¹³⁾において pyrethrin 型化合物のひとつである allyl-cinerin (allethrin) を、乳剤の形態において使用した場合のアカイエカの蛹にたいする毒力を、天然の pyrethrins に比較実験した結果を報告した。本報においてはこの allethrin の飽和された形である ethyl-cinerin (ethythrins) の毒力を、先報と同一の方法で allethrin のそれに比較し、あわせて両者を 1:2 の割合に混用した場合の連合作用様式を検討した結果をのべる。

本文にはいるにさきだち、終始御懇篤なる御指導と御鞭撻をたまわつた大野稔博士に深甚の謝意を表する次第である。なおこの研究は文部省科学研究費の一部によつておこなつたものである。銘記して謝意を表したい。

II 実験材料

(1) 供試薬剤。本実験にもちいた allethrin および ethythrins は、ともに当研究室において合成し精製したもので、これが合成の過程は井上ら⁹⁾によつて別しるされている。なおこの allethrin および ethy-

thrins の ester 化にもちいた酸は d, l- cis-, d, l- trans-chrysanthemum monocarboxylic acid の混合物である。これらの使用に際しては toxicant 1, kerosene 4.5 および petrobace 4.5 の処方にしたがつて10%の乳剤とした。前報同様 kerosene は硫酸処理、沸点 200~220°C の間の溜分で、petrobace は Pennsylvania Refining Company の製品で No. 1. Grade A に属するものである。なお両者混合の場合は allethrin 1 と ethythrins 2 の割合に混合したものを同一の処方により 10% の乳剤としてもちいた。

(2) 供試昆虫。本実験にもちいたアカイエカの蛹は高槻市内の排水溝において採集した幼虫を実験室にもちかへつて蛹化せしめたものである。実験には実験開始前約20時間以内に蛹化したところの体軀のそろつた健全な個体をもち、この20時間以内に蛹化した個体を採取した後は、全部これを廃棄し、あらたに採集したものの実験室において20時間以内に蛹化したものだけをもちいるようこころがけた。最初の供試虫体をとりのぞいてから、さらにその後の20時間以内に蛹化した個体はかなり小型で抵抗性の弱い個体群がえられる

ためである。なお雄雌の区別はこれをおこなわなかつた。供試昆虫としてアカイエカをもちい、供試虫態として蛹をもちいることの利点についてはすでに長沢¹²⁾によつて詳細にしるされている。

III 実験方法

直径 9cm, 深さ 4cm のシャーレに所要の濃度に稀釈した薬液 200cc をとり、これに供試昆虫を10個体いれ、成虫羽化の有無により生死の別を記録した。すなわち、致死を判定するひとつの指標をきめ、この微候のあらわれるまで実験を継続して薬量 (X) と致死率 (Y) との関係をしらべたもので、時間はこの場合考慮されていない。すなわち薬量致死率曲線は $(X-Y)_{Z=\infty}$ の形をとつている。ここで、Z は時間をあらわす。実験は1稀釈溶液について10回をくりかえし、ひとつの薬剤について2組の対数的間隔をもつて数段階の濃度をえらんだ。なお無処理対照区として20区の都合200匹についてあわせてその生死を観察した。本実験は昭和26年7月27日より7月31日にいたる5日間においておこなつたもので、実験時の水温は $26 \pm 1^\circ \text{C}$ であつた。

IV 実験結果

各乳剤の稀釈倍率 (V), $(1/V = X_{(\text{ppm})})$ 薬量と致死率 Y (%) との関係を表示すると第1表のごとくである。なお無処理対照区における致死率は0% であつた。まづ Bliss¹⁾ の、致死率を probit におきかえてす

る薬量-致死率曲線一次変換の計算方法を第1表の結果に適用して回帰方程式

$$y = \bar{y} + b(x - \bar{x}) \quad \dots\dots(1)$$

をもとめ、あわせてこれと観測値との間の適合性にかんする χ^2 試験をおこなつた結果を表示すると、第2表のごとくである。 χ^2 試験の P_r の値はいずれも0.05より大きく、観測値と回帰直線は抽出誤差の範囲内で一致しているとみなしてさしつかえなく、ここに実験材料および方法ともに満足すべきものであつたと思考される。なおここで y は probit におきかえた致死率、 $\bar{y}$ はその加重平均で回帰線の position をあらわす恒数、 x は薬量の対数で、 $\bar{x}$ はその加重平均、 b は回帰線の slope をあらわす恒数である。また subscript letter としてしるしたルビーの a, e および m はそれぞれ allethrin, ethythrins および mixture のそれであることをしめす。

V 考 察

(1) Allethrin と ethythrins の毒力の比較。

Allethrin と ethythrins の毒力を比較するにあつて、大沢・長沢¹⁴⁾の方法をこれに適用するため $p = y - 5$ において第2表にしめした allethrin, ethythrins 両乳剤の薬量致死率曲線一次変換の回帰方程式 (2), (3) を

$$p = \frac{1}{\sigma} (x - m) \quad \dots\dots(5)$$

の形にかきかえると、それぞれ

Tble 1. Dosage X (ppm)-mortality Y (%) table for allethrin, ethythrins and their 1 to 2 combinations applied in water emulsions to pupae of the common house mosquito (*Culex pipiens* var. *pallens* Coquillett) by the petri dish method of Nagasawa.¹²⁾ Average of 10 tests.

Dilution V	Dosage X (ppm)	Number of insects	Mortality, Y (%)		
			Allethrin	Ethythrins	Mixture
1875	5333.3	100	—	100	—
2500	4000.0	100	—	100	—
3750	2666.7	100	—	100	—
5000	2000.0	100	—	98	—
7500	1333.3	100	—	89	—
10000	1000.0	100	—	88	100
15000	666.67	100	—	67	100
20000	500.00	100	—	56	100
30000	333.33	100	—	30	95
40000	250.00	100	—	24	86
60000	166.67	100	100	10	80
80000	125.00	100	89	4	55
120000	83.333	100	79	1	38
160000	62.500	100	67	0	20
240000	41.667	100	39	0	9
320000	31.250	100	25	—	3
480000	20.834	100	8	—	0
640000	15.625	100	4	—	0
960000	10.417	100	1	—	0
1280000	7.8125	100	0	—	0

Table 2. Summary of data of experiments for the toxicity of allethrin, ethythrins and their 1 to 2 combinations applied in water emulsions to pupae of the common house mosquito (*Culex pipiens* var. *pallens* Coquillett) by the petri dish method of Nagasawa.¹²⁾

Toxicant	Number of insects	Regression equation $y = \bar{y} + b(x - \bar{x})$	χ^2
Allethrin	1000	$y_a = 4.042888 + 3.62565(x_a - 1.674631) \dots (2)$	5.05361
Ethythrins	1500	$y_e = 5.056790 + 3.17863(x_e - 2.662865) \dots (3)$	5.01929
Mixture	1500	$y_m = 4.974136 + 3.49934(x_m - 2.023010) \dots (4)$	6.37167

Toxicant	Degrees of freedom n	Probability in χ^2 test Pr	Variance of parameter $\bar{y}$ $V(\bar{y})$	Variance of parameter b $V(b)$
Allethrin	6	0.53734	0.00304	0.03575
Ethythrins	8	0.89971	0.00264	0.02206
Mixture	6	0.42107	0.00280	0.02620

$$p_a = \frac{1}{0.27581}(x_a - 1.69043) \dots (6)$$

$$p_e = \frac{1}{0.31460}(x_e - 2.64499) \dots (7)$$

となる。ここで p は Gaddum,⁷⁾ Hemmingsen⁸⁾ などのいう正規相当偏差 normal equivalent deviation, N. E. D. で、 σ は変換された抵抗性の正規分布曲線の標準偏差、すなわち $1/b$ にあたる。そして m は中央致死薬量指数、すなわち供試昆虫の50%を死にいたらしめる薬量の対数である。つぎに σ にかんする χ^2 試

験を Bliss⁹⁾ の式

$$\chi^2_{\sigma^2} = \frac{(b_a - b_e)^2}{V(b)_a + V(b)_e} \dots (8)$$

によつておこなうと、 $\chi^2_{\sigma^2} = 3.45667 > 3.841 (n=1)$ となり、 P_r の値は 0.06408 で 0.05 よりも大きく、両回帰線は抽出誤差の範囲内で平行とみなしうる。それゆえ普通は回帰線中の誤差の最少である LD-50 の点において比較すればことたりるけれども、 $\chi^2_{\sigma^2}$ の P_r の値はかろうじて 0.05 より大きい程度であるから、大沢・長沢¹⁴⁾ の提案にしたがつてその3次の点の

Table 3. Absolute toxicities of allethrin and ethythrins to pupae of the common house mosquito (*Culex pipiens* var. *pallens* Coquillett) which was computed following the formulation proposed by Ohsawa and Nagasawa.¹⁴⁾

Formulation	Allethrin	Ethythrins
Standard deviation of susceptibility, σ	0.27581	0.31460
Efficiency of lethal action, $b=1/\sigma$	3.62565	3.17863
Index of 0th order lethal dose, $x_0=m$	1.69043	2.64499
Index of 3th order lethal dose, $x_3=m+3\sigma$	2.51780	3.58879
Median lethal dose (LD-50), $X_0(\text{ppm})=\log^{-1}x_0$	49.036	441.56
Effective lethal dose (LD-99.87), $X_3(\text{ppm})=\log^{-1}x_3$	329.50	3879.6
Median degree of dilution, $V_0=1/X_0 \times 10^7$	203931	22646.9
Effective degree of dilution, $V_3=1/X_3 \times 10^7$	3034.9	2577.58

Table 4. Relative toxicities of ethythrins to allethrin which was computed following the formulation proposed by Ohsawa and Nagasawa.¹⁴⁾

Formulation	Ethythrins
Median equivalent, $\epsilon_0 = \bar{X}_0/X_0$	0.11105
Effective equivalent, $\epsilon_3 = \bar{X}_3/X_3$	0.08493
Deviation of effective toxicity, $\Delta_3 = \log^{-1}\epsilon_3$	-1.07033

比較をもあわせおこなうこととする。まづ両者の絶対有効度にかんする諸項の数値を計算してかかげると第3表のごとくである。

つぎに allethrin にたいする ethythrins の相対有効度を計算して表示すると第4表のごとくである。

これより前述の処方をもつてする

乳剤の形において使用した場合のアカイエカの蛹にたいする ethythrln の毒力は、50%致死の点において allethrln の 0.111 倍、すなわち 9.01 分の 1 で、99.87% 致死の点において比較した場合は 0.085 倍、すなわち 11.76 分の 1 の毒力しかもたないといえられる。

(2) Allethrln と ethythrln の連合作用。

前節において ethythrln の毒力は allethrln のそれよりもはるかにおとる結果をえたが、つぎにこれらふたつを混用した場合の連合作用様式を、Finney⁶⁾の方法によつて検討してみたい。実験は allethrln 1 + ethythrln 2 の割合に混合したものを同一の処方によつて 10% 乳剤とし、これを数濃度に稀釈して前節のそれと同時にこなつたが、その結果は第 2 表 4 行目に要約されている。

まづ allethrln と ethythrln をそれぞれ単独の乳剤としてもちいた場合の、結果についてもとめた(2)、(3) 式をさらに、

$$y = a + b \log X \quad \dots(9)$$

の形にかきあらためるとつぎのようになる。

$$y_a = a_a + b_a \log X_a \\ = -1.128918 + 3.62535 \log X_a \quad \dots(10)$$

$$y_e = a_e + b_e \log X_e \\ = -3.407467 + 3.17836 \log X_e \quad \dots(11)$$

前節においてしるした両式の $\sigma = 1/b$ にかんする χ^2 試験の結果より、 b_a, b_e はともに抽出誤差の範囲内でひとしいとみることができるから、 b_a, b_e の両者を

Table 5. Summary of results for 1 to 2 mixture of allethrln and ethythrln oil solution.

Dose of mixture (ppm)	Allethrln equivalent dose (ppm)	Number of insects	Number of dead	Mortality (%)
31.25	12.73	100	3	3
41.67	16.98	100	9	9
62.5	25.46	100	20	20
83.3	33.94	100	38	38
125	50.93	100	55	55
166.7	67.92	100	80	80
250	101.86	100	86	86
333	135.67	100	95	95

Observed probit	Expected probit		weight for similar joint action	χ^2 for similar joint action
	Independent joint action	Similar joint action		
3.1192	2.7429	3.0320	13.81	0.01933
3.6592	3.1616	3.4531	25.33	1.07653
4.1584	3.7319	4.0423	45.17	0.60528
4.6681	4.1726	4.4606	57.18	3.12775
5.1257	4.7725	5.0510	63.55	0.35588
5.8416	5.2019	5.4697	58.69	8.11741
6.0503	5.8239	6.0592	41.83	0.02092
6.6440	6.2873	6.4762	27.57	0.78575

combine した b 、すなわち common slope を計算して (10)、(11) 式に代入することとする。

$$b = \frac{[wxy]_a + [wxy]_e}{[wx^2]_a + [wx^2]_e} = 3.34919$$

となり、これを (10)、(11) 式に代入してかきあらめると

$$y_a = a_a + b \log X_a \\ = -0.665936 + 3.34919 \log X_a \quad \dots(12)$$

$$y_e = a_e + b \log X_e \\ = -3.861645 + 3.34919 \log X_e \quad \dots(13)$$

つぎに allethrln にたいする ethythrln の relative potency (相対力価)、すなわち X_a/X_e を記号 ρ であらわすと、 $\log \rho$ ($=M$ ともしるす) はつぎの式をもつてしめしうるはずである。

$$\log \rho = (a_e - a_a) / b \quad \dots(14)$$

これを計算すると。

$$\log \rho = (-3.861645 + 0.665936) / 3.34919 = -0.95417 \\ \therefore \rho = 0.11113$$

なおここで relative potency ρ は前節においてしるした大沢・長沢¹⁴⁾の equivalent 当量 ε とおなじである。ゆえに ethythrln のある薬量は、 $\rho = 0.11113$ をそれにかけることによつて allethrln 相当薬量すなわち allethrln equivalent dose (Martin,¹⁵⁾ 大沢・長沢¹⁴⁾) に転換することができる。すなわち

$$y_e = a_a + b \log (\rho X_e) \quad \dots(15)$$

一方混用乳剤の濃度致死率一次変換の回歸方程式 (4) を、前者同様 (9) 式の形にかきあらめるとつぎ

のようになる。

$$y_m = a_m + b_m \log X_m \\ = -2.106075 + 3.49984 \log X_m \quad \dots (16)$$

つぎにまづ計算の結果を表にしめて、それからその計算過程を説明する方法によつて考察をすすめることとする。

第5表は混合乳剤についてえられた実験結果のprobitと、連合作用が independent joint action (独立連合作用) であると仮定したとき、similar joint action (相同連合作用) であると仮定したとき、理論的に期待される probit とを比較したものである。第1, 3, 4, 5 列は第1表にしるしたものを再記したもので、第6列の observed probit は mortality にたいする probit を表からひいたものである。第7列の連合作用が independent joint action であると仮定したときの expected probit を計算する過程を、第1列の薬量 125 ppm の場合を例にとつてつぎにしめそう。この混合乳剤は allethrin 1 と ethythrins 2 の割合で混合されているゆえ、125 ppm はそれぞれ 41.6667 ppm と 83.3333 ppm の割合になる。この対数はそれぞれ 1.61979 および 1.92082 で、この数値をさきの (12), (13) 式に代入してそれぞれ薬量から期待される probit をえる。すなわち

$$y_a = -0.665936 + 3.34919 \times 1.61979 = 4.75935 \\ y_e = -3.861646 + 3.34919 \times 1.92082 = 2.57155$$

この probit に対応する致死率を probit の表を逆にひいてもとめると、それぞれ 40.5% および 0.8% となる。

ところで混合毒剤を、構成するふたつをいまいかに別々にもちいたとき、それぞれ供試生物にたいして p_1, p_2 の致死率をあたえるものと仮定すると、これらふたつがたがいに independent joint action の関係においてはたらく場合は、混用毒剤によつてえられる致死率 p はつぎの式をもつてあらわしうることが Bliss⁹⁾ によつてのべられている。

$$p = p_1 + p_2 - p_1 p_2 \quad \dots (17)$$

そこで (17) 式へ前にもとめた 40.5%, 0.8% のふたつの数値を代入して p を計算すると

$$p = 0.405 + 0.008 - 0.405 \times 0.008 = 0.40976$$

となり 40.98% の致死率が理論的に期待される。これに対応する probit を表からひくと 4.7725 である。第7列の数値はこうしてもとめたもので、前列の対応する observed probit にくらべて大体においてすくない。よつて両者混用の乳剤は independent joint action の形式をとらないと結論される。

つぎに similar joint action であると仮定した場合を考察してみよう。いま混合乳剤を構成する alle-

thrin, ethythrins 2 毒剤の混合比を π_a, π_e とすると、さきののべた allethrin equivalent dose としてあらわされる混合毒剤のある薬量には、 $(\pi_a + \rho \pi_e) X_m$ の形をあたえることができる。この場合両者の混合比は 1:2 であるから π_a, π_e はそれぞれ 0.33333, 0.66667 である。第2列の equivalent allethrin はこの式をもちいて計算される。計算例を mixture の 125 ppm にとつてしめすと

$$(\pi_a + \rho \pi_e) X_m = (0.33333 + 0.11113 \times 0.66667) \\ \times 125 = (0.33333 + 0.07409) \times 125 = 0.40742 \times 125 \\ = 50.92750 \text{ ppm}$$

そして混合毒剤の毒力がこの equivalent dose の毒力とひとしければ、ふたつの毒剤は similarly にはたらいたということが可能である。すなわち混合毒剤からえられる probit がつぎの equation によつて満足されるならば、両者は、similarly にはたらいたということができる。

$$y_m = a_m + b \log \{ (\pi_a + \rho \pi_e) X_m \} \quad \dots (18)$$

a_m, b はすでにもとめられているから (18) 式は

$$y_m = -0.665936 + 3.34919 \log \{ (\pi_a + \rho \pi_e) X_m \} \quad \dots (19)$$

となる。(19) 式に第2列の数値を代入して、第8列目の similar joint action であると仮定する場合の expected probit がえられる。薬量 125 ppm の場合について計算をおこなつてみると

$$y_m = -0.665936 + 3.34919 \times \log 50.93 = -0.665936 \\ + 3.34919 \times 1.70696 = 5.05100$$

そしてこれらの数値を満足する回帰方程式は

$$y'_m = -1.972068 + 3.34919 \log X_m \quad \dots (20)$$

で、さきの (16) 式とほとんどひとしく、大体 allethrin と ethythrins は similar joint action の関係にあるということができるようである。

この仮説と観測値との間の適合性にかんする χ^2 試験の方法は Finney⁶⁾ によつてつぎのようにしるされている。すなわち

$$\chi^2_{(n)} = \sum \{ (\text{Observed probit} - \text{Expected probit})^2 \times w \} \quad \dots (21)$$

ここで w は重み weight で、これは expected probit に対応する重みの係数を Bliss⁹⁾ 乃至 Fisher & Yates⁵⁾ の表からよみとつて、これに致死率をもとめるにあたつてもちいた昆虫の数をかければもとめられる。薬量 125 ppm の場合について計算例をしめすと、薬量 125 ppm のときの expected probit に対応する weighting coefficient を表によつてもとめると 0.6355 である。供試虫数は 100 匹であるから $0.6355 \times 100 = 63.55$ 、これがもとむる w である。第9列目の数値はこうしてもとめられる。 n は自由度で生

存虫数乃至死虫数が1頭以上になるようにしたときの観測点数，すなわち合計した各個の χ^2 の数をしめす。しかし n は0%乃至100%の致死率がえられる minimum または maximum working probit をも考慮にいれて χ^2 試験をおこない，これを総計した場合はその数だけ多くしなければならない。

藥量 125ppm のときの observed probit と expected probit との間の deviation にかんする χ^2 試験をおこなう計算例をしめす，

$$\chi^2 = (5.1257 - 5.0510)^2 \times 63.55 = 0.0747^2 \times 63.55 \\ = 0.00558 \times 63.55 = 0.35588$$

第10列目の数値はこうしてもとめられる。これを総計した

$$\chi^2_{(8)} = 14.10885 \quad \dots (22)$$

がもとむる χ^2 試験の値で， $n=8$ は総計しただけの数である。 $P_r=0.07892$ で，これは chance deviation の結果としておこりうる範囲にはいるところの値で，similar joint action であるとする仮説の肯定は可能である。一方 independent joint action であると仮定したとき，その結果について同様の test をおこなつてみると $\chi^2_{(8)}=65.69402$ となり，その値はきわめて大きくあきらかにその差に有意性がみとめられ independent joint action とは考えることができない。observed mortalities と similar joint action の形式をとると仮定した場合の predicted mortality

ties と比較すると，前者は後者より若干高い，すなわち synergism があるようであるが，両者の差にかんする χ^2 試験の結果よりそれは意義のある数値でなく，allethrin と ethythrins が similarly にはたらくとする仮説はすてなくてもよいといえることができる。この関係を図示したものが第1図である。

Finney⁶⁾によつてしめされた他のひとつの方法は，混合乳剤についておこなわれた実験値より算出した中央致死薬量と，理論的に期待される中央致死薬量とを比較する方法である。もつともこれは similar joint action であると仮定した場合にのみ適用しうる方法で，できうるかぎり正確な評価をおこなうために allethrin, ethythrins および両者混用の3つのものについてえられた回帰線に共通の regression coefficient, b_0 をもつて，これをもちいて以後の考察をおこなうことが肝要である。 b_0 をもちいると公式 (18) は， $y'_m = a_a + b_0 \log (\pi_a + \rho \pi_e) + b_0 \log X_m \dots (23)$ とかきなおすことができる。一方混合乳剤の実験値について b_0 をもちいる回帰方程式はつぎのようになる。

$$y_m = a_m + b_0 \log X_m \quad \dots (24)$$

すなわち Finney⁶⁾の方法は，この(23)式からもとめた LD-50 と，後の(24)式からもとめた LD-50 との差を検定する方法である。両者の間の log LD-50 の差を，いま M_m であらわすと，(23)，(24)式から M_m はつぎのようにかきあらわすことができる。

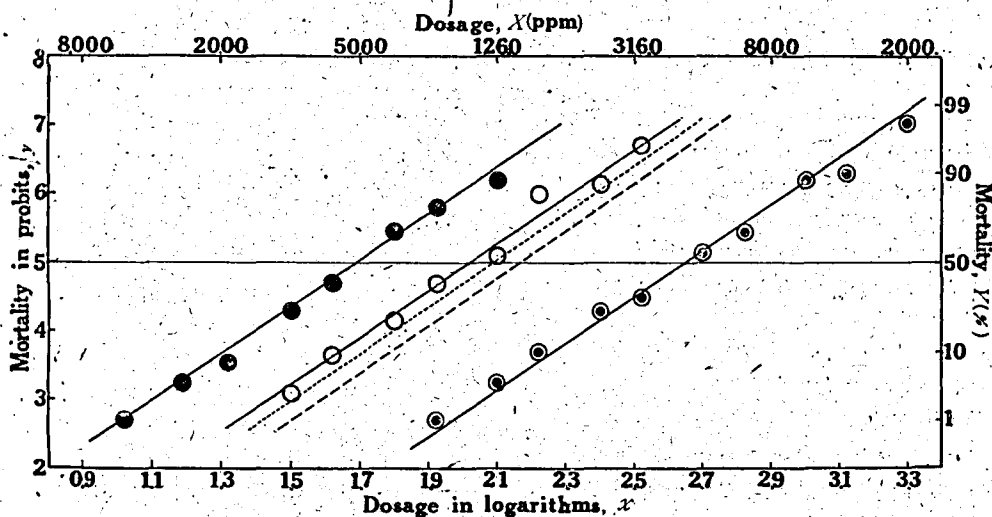


Fig. 1. Dosage-mortality curves for allethrin, ethythrins and their 1 to 2 combinations applied in water emulsions to pupae of common house mosquito (*Culex pipiens* var. *pallens* Coquillett) by the petri dish method of Nagasawa¹²⁾. Solid circles and solid line, allethrin; double circles and solid line, ethythrins; empty circles and solid line, 1 to 2 mixture. Dotted line, similar joint action prediction for mixture; broken line, independent joint action prediction for mixture.

$$M_m = (a_a - a_m) / b_a + \log (\pi_a + \rho \pi_e) \quad \dots (25)$$

またここで M_m の variance は Finney⁶⁾ によつてつぎのようにあたえられている。

$$V(M_m) = \left[\frac{\pi_a^2}{\Sigma w_a} + \frac{\rho^2 \pi_e^2}{\Sigma w_e} + \frac{(\pi_a + \rho \pi_e)^2}{\Sigma w_m} \right. \\ \left. + \{ \pi_a \bar{y}_a + \rho \pi_e \bar{y}_e - (\pi_a + \rho \pi_e) \bar{y}_m \} \frac{V(b_e)}{b_e^2} \right] \\ \left/ \frac{b_e^2 (\pi_a + \rho \pi_e)^2}{\Sigma w_a, \Sigma w_e, \Sigma w_m} \right. \quad \dots (26)$$

ここで $\Sigma w_a, \Sigma w_e, \Sigma w_m$ は 3 回帰線それぞれの weight の総計で、 $\bar{y}_a, \bar{y}_e, \bar{y}_m$ は probit の加重平均である。 M_m が 0 からどれくらいはなれているか、すなわち観測値と期待値との間の log LD-50 の差に統計学的の意義があるかどうかは公式 (26) によつてもとめられた M_m の variance を t-test にかけて検定すればおおよそ充分である。

以上の概念を筆者がえた実験結果に適用して、つぎに考察をおこなつてみたい。

combined b すなわち b_e をもとめると

$$b_e = \frac{[wxy]_a + [wxy]_e + [wxy]_m}{[wx^2]_a + [wx^2]_e + [wx^2]_m} = 3.40077$$

でその variance $V(b_e)$ は

$$V(b_e) = \frac{1}{[wx^2]_a + [wx^2]_e + [wx^2]_m} = 0.089698$$

である。 b_e をもちいた allethrin, ethythrins および mixture にかんする 3 つの回帰方程式は、それぞれつぎようになる。

$$y_a = -0.752317 + 3.40077 \log X_a \quad \dots (27)$$

$$y_e = -3.998995 + 3.40077 \log X_e \quad \dots (28)$$

$$y_m = -1.935656 + 3.40077 \log X_m \quad \dots (29)$$

allethrin にたいする ethythrins の relative potency M をさきの (14) 式により計算すると

$$M = \log \rho = (-3.998995 + 0.752317) / 3.40077 \\ = -3.246678 / 3.40077 = -0.954686$$

M の standard error S_M は Cockran⁴⁾ によつてつぎのような式があたえられている。

$$S_M = \sqrt{V(M)} = \frac{1}{b_e N} \sqrt{1 / \Sigma w_a + 1 / \Sigma w_e} \\ + \frac{(\bar{y}_a - \bar{y}_e)^2}{b_e^2} V(b_e) \quad \dots (30)$$

なおこれは Gaddum⁷⁾ の公式 (10), Bliss²⁾ の公式 (33) 乃至 Knudsen & Curtis¹⁰⁾ によつてもしるされている。

公式 (30) によつて S_M をもとめると $S_M = 0.02236$ となる。ゆえに、

$$M = -0.954686 \pm 0.02236 \quad \dots (31)$$

または

$$\rho = \log^{-1} M = 0.11100 \pm 0.00371 \quad \dots (32)$$

なおこの relative potency ρ の standard error は $\log_e 10 \times \log^{-1} M \times S_M = 2.3026 \times 0.11100 \times 0.022$

$$36 = 0.00571$$

としてもとめる。

さきに示した回帰方程式 (27), (28), (29) からそれぞれの中央致死薬量をもとめると

allethrin	49.145 ppm
ethythrins	442.76 ppm
mixture	107.31 ppm

一方 $\pi_a + \rho \pi_e = 0.33333 + 0.11100 \times 0.66667 = 0.40733$ をさきの (23) 式に代入すると

$$y_m' = -2.078787 + 3.40077 \log X_m \quad \dots (33)$$

(33) 式より中央致死薬量をもとめると 120.65 ppm となる。実験値より算出された混合乳剤の中央致死薬量は、両者の毒剤が相同的にはたらくものと仮定して算出された理論的の中央致死薬量よりもすくなく、実験値は予想値よりも $(120.65 - 107.31) / 107.31 = 0.1243$, すなわち 12.43% だけ toxic であるといふことができる。ところで、ここでみとめられた 12.43% という synergistic action は、はたして統計学的に意義のある数値であるかどうかをさきの (25), (26) 式によつて検定すると、

$$M_m = -0.05001 \pm 0.02062$$

となり、similar joint action であるとみとめることが可能である。

VI 摘 要

アカイエカの蛹にたいする allethrin と ethythrins の効力を長沢¹³⁾ の方法によつて実験検討した結果、allethrin にくらべて ethythrins は約 10 分の 1 の効力しかもたないことをしつた。なお両者を混用した場合の連合作用様式を Finney⁶⁾ の方法によつて統計学的に解析した結果、similar joint action の形をとることをしつた。

VII 引用文献

- (1) Bliss, C. I. (1935 a). Ann. appl. Biol. 22, 134.
- (2) (1935 b). Ann. appl. Biol. 22, 307.
- (3) (1939). Ann. appl. Biol. 26, 535.
- (4) Cockran, W. G. (1938). Appendix to Tattersfield, F. & Martin, J. T. Ann. appl. Biol. 25, 426.
- (5) Fisher, R. A. & Yates, F. (1949). Statistical tables for biological, agricultural and medical research. Edinburgh: Oliver and Boyd.
- (6) Finney, D. J. (1942). Ann. appl. Biol. 29, 82.
- (7) Gaddum, J. H. (1933). Spec. Rep. Ser., Med. Res. Coun., Lond., no. 183. His Majesty's Stationary Office.
- (8) Hemmingsen, A. M. (1933). Quart. J. Pharm. Pharmacol. 6, 39 & 187.

- (9) 井上雄三・勝田純郎・西村昭・北川洗太郎・大野稔(1951)防虫科学 16, 111.
 (10) Knudsen, L. F. & Curtis, J. M. (1947). Jour. Amer. Stat. Assoc. 42, 282.
 (11) Martin, J. T. (1940). Ann. Appl. Biol. 27, 69.
 (12) 長沢純夫(1949), 防虫科学 12, 12.
 (13) 長沢純夫・井上雄三, 柴田砂田子(1951). 防虫科学 16, 166.
 (14) 大沢清・長沢純夫(1947). 防虫科学 7.8.9, 1.

Résumé

The toxicity of allethrin (Allyl homologue of cinerin I) to pupae of the common house mosquito (*Culex pipiens* var. *pallens* Coquillett) when applied in water emulsion was proved approximately 10 times as toxic as ethythrins (ethyl homologue of cinerin I). From the test results of 1 to 2 mixture of allethrin and ethythrins it was concluded that these two toxicants act similarly to mosquito pupa.

On the Knock Down Effect of So-called Pyrethrins and Allethrin Coating Mosquitoicide Incense to Adults of the Common House Mosquito (*Culex pipiens* var. *pallens* Coquillett). Studies on the Biological Assay of Insecticides. XVII. Sumio NAGASAWA, Yoshio KATSUDA, Akira OKAMOTO, and Minoru OHONO (Takei Laboratory, Institute for Chemical Research, Kyoto University, Takatsuki, Ohsaka). Received Sep. 13, 1951. *Botyu-Kagaku* 16, 170, 1951. (with English résumé, 181).

31. Pyrethrins と Allethrin を塗布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。殺虫剤の生物試験にかんする研究。第17報。長沢純夫・勝田純郎・岡本晶・大野稔。(京都大学化学研究所武居研究室)。26. 9. 13. 受理。

I 緒 言

Pyrethrins 10mg/10g 内外を含有する素地に 350 mg/10g 程度の pyrethrins 石油液を塗布することによって 35mg/10g 内外に達せしめた線香は、よく 55mg/10g 程度の普通の蚊取線香製品に匹敵せしめうるということはまあえらいわれてきているが、この事実をうらづける報告の類はいまだこれをみない。この報告は、こうした事実をたしかめることをもふくめたつぎのことからを検討する目的に実験し考察した結果をのべたものである。すなわち (1) pyrethrins 塗布線香の有効程度 (2) allethrin 塗布線香との有効度の比較。 (3) 生物試験用昆虫としてカをもちいることの適否。

なおこの研究は、その研究費の一部を文部省科学研究費ならびに試験研究費におおいだ。allethrin を合成された井上雄三氏ら、試験試料の化学分析を担当された福田義雄氏、ならびに数値の計算に盡力された柴田砂田子嬢にあつく謝意を表する次第である。

II 実験材料

(1) Pyrethrins ここにもちいた pyrethrins は除虫菊エキスを nitromethane で抽出し、活性炭層を通して精製したもので benzol 法⁶⁾ (昭和18年11月、日本除虫菊協会において制定された除虫菊分析第3法) により定量した結果は、pyrethrins I, 35.01%, pyrethrins II, 63.30% の混合物である。

(2) Allethrin (allyl-cinerin)。当研究室におい

て合成した dl-cis, trans; 混合物で、その純度は 90~97% である。

(3) 素地線香。普通の市販蚊取線香とおなじ機械ならびに方法によつて混合製造せられたもので、その組成は木粉53%, たぶ粉35%, 水分12%である。1巻の重量は約 26.0g, 燃焼時間は6時間40分で、およそ市販品のそれとおなじ条件をそなえている。

(4) 塗布の方法。pyrethrins, allethrin とともにこれを benzol で約 9%, 7%, 5% および 3% の溶液とし、これに素地を1個づつ約1秒間水平に浸漬してとりあげ室温において乾燥したものである。1巻の素地に吸収される benzol 溶液の量は、大体 2g であつた。塗布線香に吸着された有効成分含有量は第1表第4行にしめしたとおりである。しかしこの数値はすべて従来の benzol 法による分析値をかかげたものであるが本法は allethrin にたいしては適當ではない。これについては別に報告するはづである。

(5) アカイエカ成虫。供試昆虫としてもちいたアカイエカの成虫は、高槻市内の排水溝でその蛹を採集し、実験室内で羽化せしめたもので、羽化後1乃至2日間をへたものである。

III 実験装置および方法

(1) 実験装置。上下に2個のガラス製の円盤をもつ直径 20cm, 高さ 43cm (内容積約 13.5 L) の肉厚ガラス製円筒で、円盤との間にはゴムパッキングをはさんで気密にした。下方の円盤の中央に直径 5cm の孔