

天然精油に含まれるゴキブリ忌避物質と関連化合物の忌避性

大澤 貫 寿*

Cockroach (*Blattella germanica* L.) Repellents in Essential Oils
and Repellency of Their Related Compounds

Kanju OHSAWA

都市衛生害虫として衛生面から問題となっているチャバネゴキブリの防除は大きな課題である。その駆除には有機合成薬剤の噴霧やトラップによる方法に頼っており、より安全に効果的に防除するのは難しい現状にある。これに対し、生活環境内に積極的にゴキブリを寄せつけない物質、すなわち忌避物質を用いて駆除する研究も行われてきている。ゴキブリの忌避物質として、Deet(N, N-diethyl-*m*-toluamide)¹⁻⁴⁾など多くの合成薬剤が報告されているが、実用性及び安全性の面から問題もある。稲塚⁵⁻⁷⁾はハッカやスペアミントの精油に含まれるテルペン化合物に臭覚的忌避効果のあることを報告している。

著者らはインドネシア産の数種植物の精油に忌避活性を見だし、それらに含まれる忌避成分の精製と単離を試みた。さらにそれらの関連化合物の忌避性についても検定した。

1. 供試虫

国立予防衛生研究所で累代飼育していたチャバネゴキブリ (*Blattella Germanica* L.) を当研究室で飼育した成虫を用いた。

2. 供試植物

インドネシア産ウイキョウ (*Foeniculum vulgare* G.) の果実、マレーシア産ウインターグリーン (*Gaultheria fragrantissima* W.) の全草、サキシマスオウ (*Heritiera littoralis* Dry) およびアフリカンマリーゴールド (*Tagetes erecta* L.) の茎葉を用いた。

3. 分析法

1) ガスクロマトグラフィー

島津製作所製 GC-7AG を用いて次の条件で分析した。

a) カラム：ガラスカラム径3.2mm, 長さ2m, 充填剤 PEG-HT, 10% Uniport HP (60~80 mesh), キャリアーガス：窒素, 流速50ml/min.

温度：60~220℃, 昇温4℃/min.

b) カラム：ガラスカラム径3.2mm, 長さ2m, 充填剤 Silicon OV-17, 10% Chromosorb W-AW DMCS (60~80mesh), キャリアーガス：窒素, 流速50ml/min. 温度：60~220℃, 昇温8℃/min.

2) GC-MS 分析

島津製作所製 Auto GC-MS-6020型を用いて次の条件で分析した。

カラム：ガラスカラム径3.2mm, 長さ2m, 充填剤 PEG-HT, 10% Uniport HP (60~80mesh), キャリアーガス：ヘリウム, 流速30ml/min. 温度：60~220℃, 昇温4℃/min. イオン化エネルギー：70eV, 加速電圧：3.5kV

3) NMR 分析

日本電子社製 JNM Fx-200で重クロロフォルム中で測定した。

4. 忌避試験法

稲塚の方法⁶⁾を改良して用いた。試験管 (径1.5cm, 長さ20cm) の一端に綿栓を挿入し、つ

* 東京農業大学総合研究所

表1 忌避性の評価基準

試験管の対照側にチャバネ ゴキブリが位置した試験管の数	評価
$n \geq 18$	++
$18 > n > 12$	+
$12 \geq n > 0$	-

4連（一連4本の試験管）で5回計20本の試験管内での反応

いで薬方紙で覆ったゴム栓をした。もう一方の端からチャバネゴキブリ1頭を入れた後、他端と同様に綿栓とゴム栓で蓋をした。そのガラス管を水平に置き、一方の端から5cmまで黒い厚紙で覆いをして、シェルター効果をつくり、照明下1時間放置する。その後覆いを反対の側に変えて、更に1時間放置する。試料側とするゴム栓を外し、試料を施用した濾紙ディスク（東洋濾紙製、径1.0cm、厚さ0.1mm）を試験管内に静置した。もう一方の端にはアセトンのみを施用した濾紙ディスクを静置し対照側とした。処理した試験管を水平に横倒しにした状態にし、試料側のガラス管の側5cmを黒い厚紙で覆い照明下に静置した。3および8時間後のガラス管内のゴキブリの位置を記録し、表1に従い、一濃度4連制で行い、5回繰り返しの値から忌避効果を判定した。

5. 結果と考察

1) ウィキョウ精油中の忌避物質

ウィキョウの新鮮な果実を水蒸気蒸留して得た精油を用いた。忌避活性成分の単離精製は、まず精油3.0gをヘキサン/クロロフォルム系溶媒系により、シリカゲルカラムクロマトグラフィー（SCC, ワコーゲル120g, カラムサイズ: 2×25cm）で忌避成分を分画した。カラム分画により50%クロロフォルムを含有ヘキサン溶出部（1.8g）に強い忌避活性が認められた。さらにヘキサンとクロロフォルム溶媒系を用いてSCCで再分画した。強い忌避活性の認められたクロロフォルム溶出部分（1.0g）をガスクロマトグラフィー（GC）で分画し、忌避活性物質を分取した。忌避活性成分の図1に示したGC-MSのスペクトラムの解裂様式とGC上の保持時間から

活性成分を *trans*-anethole と同定した。

2) マレーシアウインターグリーン精油中の忌避物質

マレーシアウインターグリーン全茎葉を水蒸気蒸留して得た精油0.9gをヘキサンとクロロフォルム溶媒系を用いてSCCで分画した。その後、各画分を薄層クロマトグラフィー（TLC, 展開溶媒: ヘキサン/クロロフォルム=1:1）で展開し、同じようなRf値を示したフラクションどうしを混ぜ合わせた後、忌避試験に供した。忌避活性はヘキサンのみで溶出した画分に認められた。この画分をGC（条件a）分取単離した。忌避活性物質はGC-MSの分析から methyl salicylate と同定した。

3) サキシマスオー精油中の忌避物質

サキシマスオーの全葉の水蒸気蒸留物3.2gをヘキサン/クロロフォルム系溶媒系を用いてSCCで40画分に分画した。それら各画分をTLC（展開溶媒: ヘキサン/クロロフォルム=1:1）で展開し、同じようなRf値を示したフラクションを混ぜ合わせ5画分として忌避活性を調べた。忌避活性はヘキサンのみで溶出した画分（0.6g）に認められた。この画分をGCで分取し、忌避物質を単離した。図1に示した単離した物質のマススペクトラムから、忌避活性物質を safrole と同定した。

4) アフリカンマリーゴールド精油中の忌避物質

アフリカンマリーゴールドの全葉の水蒸気蒸留物2.6gをヘキサン/エーテル系溶媒系を用いてSCCで54画分に分画した。それら各画分をTLC（展開溶媒: ヘキサン/エーテル=1:1）で展開し、同じようなRf値を示したフラクションを混ぜ合わせ、12画分として忌避活性を調べた。忌避活性は10%エーテル含有ヘキサン溶出画分（1.7g）に認められた。さらに、この画分をヘキサンとエーテル溶媒系を用いてSCCで18画分に分画した。忌避活性は5%エーテル含有ヘキサン部に認められた。この画分をTLC（ヘキサン/アセトン=3:1）で展開し、精製した。単離精製物をGC-MSにかけ図1に示したマススペクトラムの解裂様式と保持時間より、忌避活性物質を piperitone と同定した。

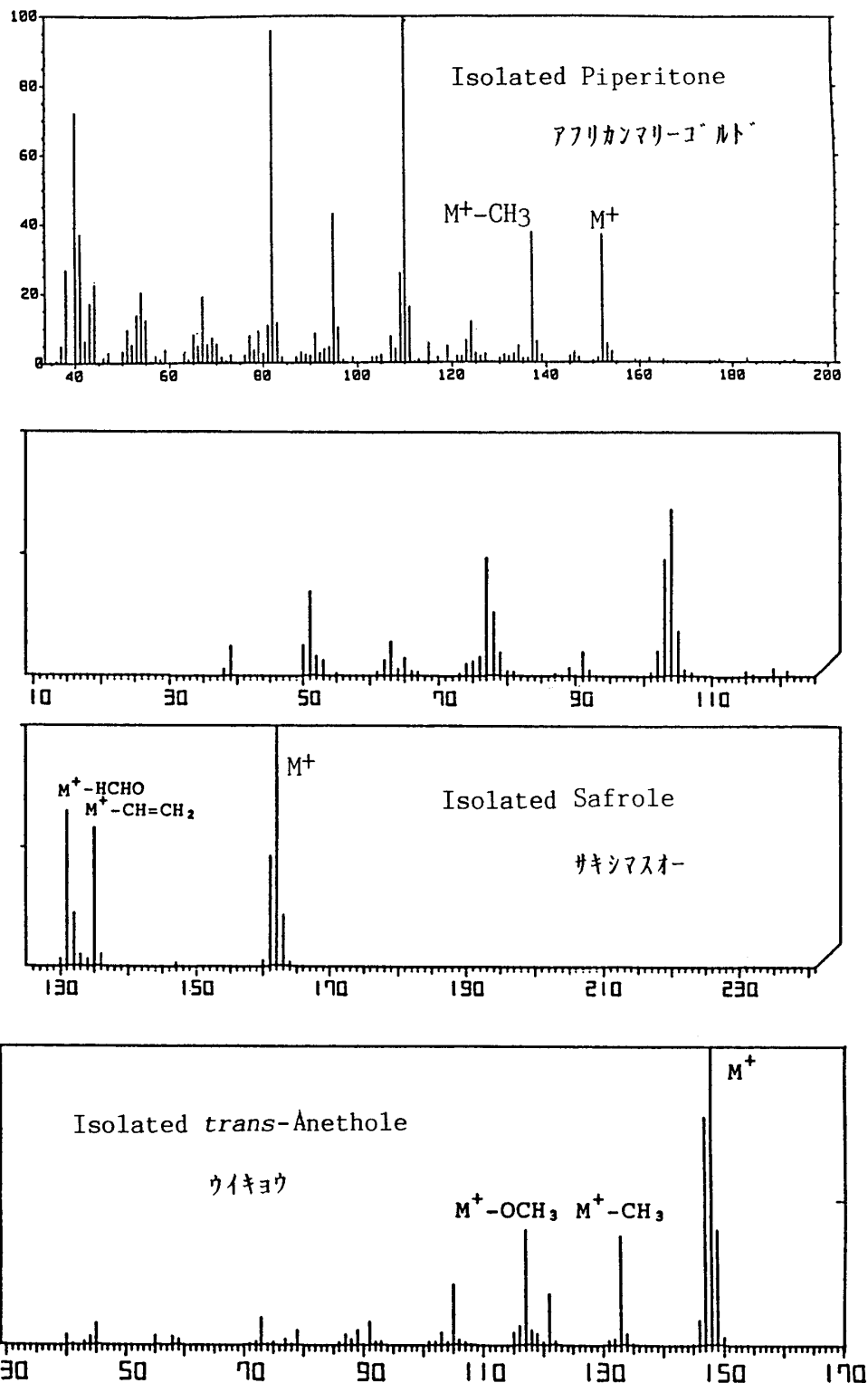


図1 アフリカンマリーゴールド, サキシマスオウおよびウイキョウの水蒸気留出物から単離した物質のマススペクトラム

5) *Trans*-anethole, safrole, methyl salicylate
 および piperitone の忌避性
 各精油から同定した各化合物のチャバネゴキブリに対する忌避性を表2, 化合物を図2に示した。

まず *trans*-anethole は500, 250 μ g で8時間の間強い忌避効果を示した。また methyl salicylate も同様に500, 250 μ g で10時間忌避効果を示した。safrole は200, 100 μ g で強い忌避性を示し50 μ g

表2 ウイキョウ, サキシマスオー, マレーシアウインターグリーンおよびアフリカンマリーゴールドに含まれるチャバネゴキブリ忌避物質の忌避性

化 合 物	用 量 ($\mu\text{g}/\text{Disc}$)			
	500	250	100	50
<i>trans</i> -Anethole	++	++	+	-
Methyl salicylate	++	++	-	-
Safrole	++	++	++	+
Piperitone	++	++	+	-

++ : 強忌避性 + : 弱忌避性 - : 忌避性なし

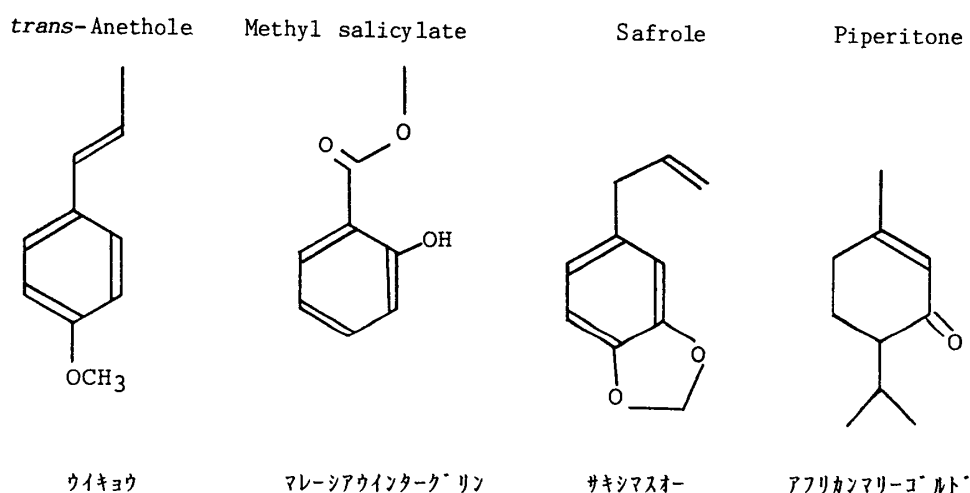


図2 ウイキョウ, マレーシアウインターグリーン, サキシマスオーおよびアフリカンマリーゴールドの水蒸気留出物に含まれるチャバネゴキブリ忌避物質

でも忌避効果が認められた。piperitone は200 μg で強い忌避性を100 μg でも忌避性が認められた。これら化合物のゴキブリに対する忌避性の強さは, safrole, piperitone, *trans*-anethole, methyl salicylate の順位であった。

6) *Trans*-anethole, safrole, methyl salicylate および piperitone 関連化合物の忌避性

同定した化合物と関連化合物についての構造と忌避活性について相関性を調べた。表3に精油から同定した化合物と類縁体, *trans*-anethole 関連6種, methyl salicylate 関連5種, safrole 関連7種および piperitone 関連3種について忌避性を調べた。*Trans*-anethole 関連化合物では p-Allylanethole に125 μg で忌避性が認められ, この外の化合物にはほとんど忌避性は認められなかった。Methyl salicylate 関連化合物では ethyl salicylate に250 μg で忌避性が認められた。外の

化合物には忌避性は認められなかった。Safrole 関連化合物では *cis*- および *trans*-isosafole 共に125 μg で共に忌避性が認められたが, 1,2-methylenedioxybenzene では忌避性は全く認められなかった。Piperitone 関連化合物では L-(-)carbone が125 μg で piperitone と同程度の忌避性を示した。

稲塚⁷⁾は日本産ハッカやスペアミント精油から同定した忌避性を示すテルペン化合物の忌避活性を示すための条件は, シクロヘキサン環の4位のイソプロピル基, イソプロパニル基と環内2重結合の立体配置とその位置が大きく関与していると考えしている。忌避活性の強かった safrole 関連化合物7種から, メチレンジオキシとアリル基の必要性が, さらに側鎖プロパニル基の二重結合は忌避活性の発現に必要なが, その位置は忌避性に影響を与えないことが示唆された。*Trans*-

表3 *trans*-Anethole、Safrole、methyl salicylate および Piperitone 関連化合物のチャバネゴキブリに対する忌避性

化 合 物	用 量 ($\mu\text{g}/\text{Disc}$)			
	500	250	125	50
Anisole	—	—	—	—
<i>p</i> -Propylanisole	+	+	—	—
<i>p</i> -Allylanisole	++	+	—	—
<i>cis</i> -Anethole	++	+	—	—
<i>m-cis</i> -Propenylanisole	+	+	—	—
<i>p</i> -Isobutenylanisole	+	—	—	—
Methyl benzoate	—	—	—	—
Ethyl salicylate	++	+	—	—
<i>n</i> -Propyl salicylate	+	—	—	—
<i>n</i> -Butyl salicylate	—	—	—	—
Isobutyl salicylate	++	+	—	—
Allylbenzene	—	—	—	—
1, 2-Methylenedioxybenzene	—	—	—	—
3, 4-Methylenedioxy-1-propylbenzene	+	+	—	—
<i>cis</i> -Isosafrole	++	++	++	—
<i>trans</i> -Isosafrole	++	++	++	—
Eugenol	—	—	—	—
Methyleugenol	—	—	—	—
(+)-Pulegone	++	++	+	—
L(-)-Carvone	++	++	++	—
(+)-Dihydrocarvone	++	++	—	—

++：強忌避性 +：弱忌避性 —：忌避性なし

-anethole 関連化合物と safrole 関連化合物での *p*-位プロペニル基の構造と忌避性との関係が似ていることから、これらはゴキブリの触覚の化学受容器に対し同一受容部位に作用し、忌避活性が発現していると推察される。

参考文献

1) L. D. Goodbue and C. Linaard : J. Econ. Entomol. **45**, 133(1952)

2) L. D. Goodbue : J. Econ. Entomol. **53**, 805(1960)

3) G. S. Burden and J. L. Eastin : Pest Control **6**, 14(1960)

4) 池田安之助・近藤泉子：防虫科学 **26**, 112(1962)

5) 稲塚新一：農薬誌 **7**, 133(1982)

6) 稲塚新一：農薬誌 **7**, 145(1982)

7) 稲塚新一：農薬誌 **8**, 293(1983)