



## 南洋材レサクに含まれるヤマトシロアリ *Reticulitermes speratus* (Kolbe) に対する摂食阻害物質

福本 浩美\*・森本 正則\*・福田 祐介\*\*・北山 隆\*\*\*・駒井 功一郎\*

\*近畿大学大学院農学研究科応用生命化学専攻

\*\*近畿大学農学部応用生命化学科

\*\*\*近畿大学大学院農学研究科バイオサイエンス専攻

### Antifeedants in tropical Asian species, resak, against a subterranean termite, *Reticulitermes speratus* (Kolbe).

Hiromi FUKUMOTO\*, Masanori MORIMOTO\*, Yusuke FUKUDA\*\*,

Takashi KITAYAMA\*\*\*, Koichiro KOMAI\*

\* Department of Applied Biological Chemistry, Graduate School of Agriculture, Kinki University 3327-204 Nakamachi Nara  
631-8505, Japan

\*\* Department of Applied Biological Chemistry, School of Agriculture, Kinki University 3327-204 Nakamachi Nara  
631-8505, Japan

\*\*\* Department of Bioscience, Graduate School of Agriculture, Kinki University 3327-204 Nakamachi Nara 631-8505,  
Japan

### Synopsis

Methanol extracts were prepared from 18 woody plants. These extracts were evaluated by a choice paper disk bioassay for antifeedant activity by choice paper disk bioassay against subterranean termite workers, *Reticulitermes speratus* (Kolbe). The methanol extract of resak showed the strongest antifeedant activity against the termites of all tested extracts. This extract was chromatographed by silica gel column chromatography. Bioassay-directed fractionation led to the isolation and identification of bridged stilbenoid trimers-vaticanol A (1), vaticanol E (2), vaticanol G (4) and tetramer-vaticanol B (3). All of the isolated compounds showed antifeedant activity against *R. speratus*. From a comparison of their molecular bases, their insect antifeedant activity was similar to their monomer of them, resveratrol.

### I. 緒 言

植物－植食性昆虫間には複雑な共進化プロセスが存在し、植物は長い共進化の過程で、植食性昆虫から身を守る手段を獲得してきた<sup>1,2)</sup>。植物の自己防衛手段には、とげや表皮の硬質化などによる物理的防衛やフラボノイド、テルペノイド、アルカロイド等の二次代謝産物の生産による化学的防衛が挙げられる。これらの生体成分には、植食性昆虫に対して殺虫や摂食阻害活性などの生物活性が報告されている<sup>3-6)</sup>。

近年、環境問題への関心の高まりから、このような植物が元来持っている能力を害虫防除に利用することが試みられている<sup>7)</sup>。日本国内におけるその代表例は、インドセンダン (*Azadirachta indica* A. Juss.) 果実抽出物であるニームの害虫防除剤としての活用である。ニームの有効成分はトリテルペンのアザジラクチン類であり、azadirachtin-A は、ガ類幼虫に対する摂食阻害活性や脱皮変態阻害、ヤマトシロアリに対する忌避効果などが報告されている<sup>8,9)</sup>。また、摂食阻害物質は、高い毒性を持つ既存の合成殺虫剤と

は異なり対象生物に対する忌避活性を有し、感受性個体を殺さない為、昆虫の抵抗性発達を遅延させるという利点がある。著者らは高等植物が生産する二次代謝産物の害虫防除への利用を目的とする一連の研究の中で、温帯地方に比べ多種多様な生態系が存在し、共進化の過程で多様な防御メカニズムが存在することが予想される熱帯植物に着目し、タイ国で建材として利用されるビルマカリ（*Pterocarpus macrocarpus* Kruz.）やジャックフルーツ（*Artocarpus heterophyllus* Lam.）心材のジクロロメタン抽出物よりハスモンヨトウ（*Spodoptera litura* F.）幼虫およびヤマトシロアリに対して高い摂食阻害活性を示す化合物類を単離・同定した<sup>10,11)</sup>。本研究では、これらの研究の一環として、廃材の有効利用という観点から熱帯地方で建材に利用されている南洋材レサクに含まれるヤマトシロアリに対する摂食阻害物質の探索を実施したので、ここにその大要を報告する。

## II. 材料および方法

### 1. 分離・分析装置

本研究で用いた試薬類は特に記述しない限り一般試薬販売業者により購入した試薬をそれ以上精製せずに用いた。また、化合物の単離・同定には、薄層クロマトグラフィー TLC-Plate Silica gel 60 F<sub>254</sub>（メルク）、充填用シリカゲル BW-127ZH, BW-300（富士シリシア化学）、NMR JEOL EX270(270 MHz)、MS Q-ToF Premier（ジャスコインターナショナル）、融点測定器 Yanaco Model MP、旋光度計 Horiba SEPA-300を用いた。NMR分析は、直径4 mmのサンプルチューブを使用し、重アセトンにて内部標準は使用せずに分析した。MS分析は、10% ギ酸ナトリウム溶液（0.1 M 水酸化ナトリウム水溶液：ギ酸：2-プロパノール 0.5 : 0.5 : 9.0）を用いてキャリブレーションし、10% ギ酸ナトリウム溶液を0.5% 含むサンプル溶液（メタノールにて調製）を2.5 kV、ESI ポジティブモードにて分析した。

### 2. 供試樹種

タイ国産樹木：Resak（フタバガキ科、レサク赤外皮・内皮、白外皮・内皮）、*Artocarpus heterophyllus*（クワ科、ジャックフルーツ）、*Pterocarpus macrocarpus*（マメ科、ビルマカリ

ン）日本産樹木：*Thujopsis dolabrata*（ヒノキ科、アスナロ）、*Acer japonicum*（カエデ科、オオバカエデ）、*Paulownia tomentosa*（ゴマノハグサ科、キリ）、*Zelkova serrata*（ニレ科、ケヤキ）、*Prunus* sp.（バラ科、サクラ）、*Tilia kiusiana*（シナノキ科、ヘラノキ）、*Betula grossa*（カバノキ科、ミズメ）、*Pinus densiflora*（マツ科、アカマツ）、*Abies sachalinensis*（マツ科、トドマツ）、*Pinus radiata*（マツ科、ラジアタマツ）、*Cryptomeria japonica*（スギ科、スギ）、*Chamaecyparis obtuse*（ヒノキ科、ヒノキ）、*Podocarpus macrophyllus*（マキ科、イヌマキ）、*Sciadopitys verticillata*（コウヤマキ科、コウヤマキ）

### 3. 南洋材レサク

*Vatica* 属、*Cotylelobium* 属および *Upuna* 属の材は、非常によく似ていることから一般にレサク（Resak）という総称で呼ばれることが多い。レサクはフタバガキ科の樹種でインド、スリランカ、タイなどの東南アジアに生育している。木材の特長として、心材は緑色を帯びた黄褐色で、辺材は白色から淡黄褐色である。また、古くから耐久性は非常に高く虫害に強い事が知られており、建築用材として利用されている<sup>12)</sup>。

### 4. レサクメタノール抽出物から有効成分の単離

赤系、白系の色調の異なるレサク内外樹皮を分別・乾燥したレサク樹皮乾燥品（400 g）をメタノールで抽出後、ろ過・減圧濃縮し、4種のメタノール抽出物（147.8 g、収率37.0%）を得た。

そのうちレサク樹幹内皮メタノール抽出物（2.0 g）をクロロホルム：メタノール（8:3）を溶出溶媒とするシリカゲルカラムクロマトグラフィー（BW-127）に供し、Fr. 1～Fr. 4を得た。さらに Fr. 2, 3 をクロロホルム：メタノール混合溶媒（10:2）を溶出溶媒としたシリカゲルカラムクロマトグラフィー（BW-300）に供し、Fr. 2-2 から vaticanol A（1, 35.2 mg、収率1.8%）を、Fr. 2-3 から vaticanol E（2, 66.5 mg、収率3.3%）を、Fr. 3-1 から vaticanol B（3, 60.8 mg、収率3.0%）を、Fr. 3-3 から vaticanol G（4, 210.2 mg、収率10.5%）を単離・同定した（Fig. 1, 2）。単離した天然化合物の同定は、<sup>1</sup>H・<sup>13</sup>C NMRとMSスペクトルを文献情報と照合して行った。

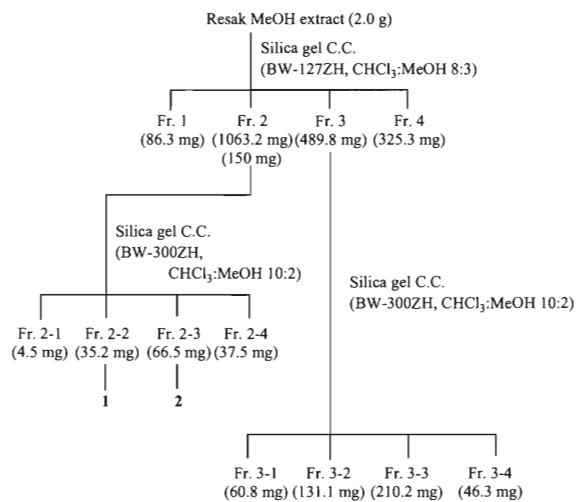


Fig. 1. Fractionation and isolation procedure for methanol extract from resak.

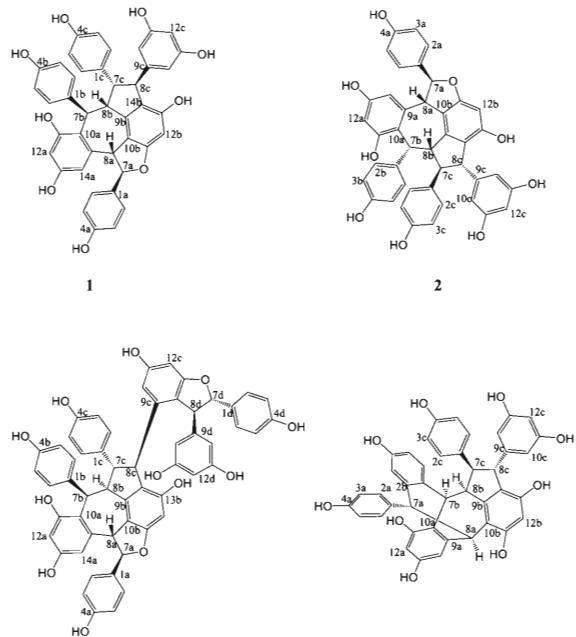


Fig. 2. Isolated vaticanols from resak.

Vaticanol A<sup>13)</sup> (1), 淡茶色パウダー, mp. 244-245°C, Rf=0.42 Chloroform:Methanol 8:3, 50% 硫酸発色茶色,  $[\alpha]_D^{25} = -90^\circ$  (c=0.01, Ethanol), <sup>1</sup>H NMR (CD<sub>3</sub>COCD<sub>3</sub>)  $\delta$  (ppm) : 3.59 (1H, d, J=7.59 Hz, H-7c), 4.12 (1H, br. s, H-8c), 4.41 (1H, d, J=4.53 Hz, H-8a), 4.43 (1H, d, J=7.59 Hz, H-8b), 5.11 (1H, br. s, H-7b), 6.03 (1H, d, J=2.31 Hz, H-12a), 6.12 (1H, br. d, J=4.53 Hz, H-7a), 6.15 (1H, t, J=2.14 Hz H-12c), 6.17 (1H, s, H-12b), 6.21 (2H, d, J=2.14 Hz, H-10c, 14c), 6.31 (2H, d, J=8.58 Hz, H-3c, 5c), 6.42 (1H, d, J=2.31 Hz, H-14a), 6.48

(2H, d, J=8.58 Hz, H-2c, 6c), 6.54 (2H, d, J=8.58 Hz, H-3b, 5b), 6.77 (2H, d, J=8.58 Hz, H-3a, 5a), 7.01 (2H, d, J=8.58 Hz, H-2b, 6b), 7.22 (2H, d, J=8.58 Hz, H-2a, 6a), 7.33 (1H, br s, 11a-OH), 7.90 (1H, br s, 4c-OH), 7.97 (1H, br s, 13a-OH), 8.00 (1H, br s, 13b-OH), 8.02 (1H, br s, 4b-OH), 8.09 (2H, br s, 11c, 13c-OH), 8.46 (1H, br s, 4a-OH); <sup>13</sup>C NMR (CD<sub>3</sub>COCD<sub>3</sub>)  $\delta$  (ppm) : 36.6, 49.2, 50.9, 58.0, 64.9, 87.1, 95.9, 101.8, 101.9, 103.8, 107.2 (overlapped), 115.5 (overlapped), 115.9 (overlapped), 116.6 (overlapped), 119.2, 119.8, 122.8, 128.5 (overlapped), 129.8 (overlapped), 130.2 (overlapped), 134.9, 136.3, 139.2, 145.3, 145.4, 148.1, 156.0, 156.3, 156.9, 157.0, 158.3, 158.5, 159.8 (overlapped), 160.4; ESI-MS [M+Na]<sup>+</sup> ion at m/z (relative intensity) 703.2105 (100%).

Vaticanol E<sup>14)</sup> (2), 淡茶色パウダー, mp. 230-232°C, Rf=0.42 Chloroform:Methanol 8:3, 50% 硫酸発色茶色,  $[\alpha]_D^{25} = +70^\circ$  (c=0.01, Ethanol), <sup>1</sup>H NMR (CD<sub>3</sub>COCD<sub>3</sub>)  $\delta$  (ppm) : 3.54 (1H, d, J=10.54 Hz, H-8c), 4.02 (1H, dd, J=10.54, 8.90 Hz, H-7c), 4.24 (1H, dd, J=8.90, 2.96 Hz, H-8b), 4.77 (1H, d, J=2.96 Hz, H-7b), 5.30 (1H, d, J=9.24 Hz, H-8a), 5.61 (1H, d, J=9.24 Hz, H-7a), 6.02 (2H, d, J=5.94 Hz H-2b, 6b), 6.03 (1H, s, H-12b), 6.05-6.17 (2H, m, H-2a, H-14a, 12c), 6.20 (1H, d, J=2.10 Hz, H-12a), 6.23 (2H, d, J=2.10 Hz, H-10c, 14c), 6.26 (2H, d, J=5.94 Hz, H-3b, 5b), 6.47 (1H, br s, 13b-OH), 6.58 (2H, d, J=8.58 Hz, H-3c, 5c), 6.97 (2H, d, J=8.53 Hz, H-3a, 5a), 7.15 (2H, d, J=8.58 Hz, H-2c, 6c), 7.51 (2H, d, J=8.53 Hz, H-2a, 6a), 7.87 (1H, br s, 4b-OH), 7.92 (1H, br s, 11a-OH), 8.00 (3H, br s, 13a, 11c, 13c-OH), 8.24 (1H, br s, 4c-OH), 8.67 (1H, br s, 4a-OH); <sup>13</sup>C NMR (CD<sub>3</sub>COCD<sub>3</sub>)  $\delta$  (ppm) : 42.9, 51.7 (overlapped), 52.8, 58.6, 96.0, 96.7, 102.1, 102.5, 108.1 (overlapped), 108.4, 114.2 (overlapped), 115.9 (overlapped), 116.4, 117.0 (overlapped), 124.0, 124.2, 130.7, 131.1 (overlapped), 131.8 (overlapped), 133.3, 133.4 (overlapped), 134.0, 140.9, 144.6, 148.6, 156.0, 156.4, 156.8 (overlapped), 158.3, 159.1, 159.8 (overlapped), 160.8; ESI-MS [M+Na]<sup>+</sup> ion at m/z (relative intensity) 703.2259 (100%).

Vaticanol B<sup>13)</sup>(3), 茶色パウダー, mp. 224-226°C, Rf=0.18 Chloroform:Methanol 8:3, 50% 硫酸発色 濃青色, [α]<sub>D</sub><sup>25</sup> = -90° (c=0.01, Ethanol), <sup>1</sup>H NMR (CD<sub>3</sub>COCD<sub>3</sub>) δ (ppm) : 3.06 (1H, dd, J=11.67, 3.63 Hz, H-8b), 4.02 (1H, dd, J=11.67, 10.59 Hz, H-7c), 4.38 (1H, d, J=11.88 Hz, H-8a), 4.49 (1H, d, J=10.59 Hz, H-8c), 4.62 (1H, d, J=4.95 Hz, H-8d), 5.15 (1H, d, J=3.63 Hz, H-7b), 5.31 (1H, d, J=4.95 Hz, H-7d), 5.71 (1H, d, J=11.88 Hz, H-7a), 5.99 (1H, s, H-12b), 6.02-6.08 (2H, m, H-10d, 14d), 6.13 (1H, d, J=1.85 Hz, H-14a), 6.23 (1H, d, J=1.85 Hz, H-12c), 6.29-6.37 (2H, m, H-12a, 12d), 6.46 (2H, d, J=8.58 Hz, H-2c, 6c), 6.48 (2H, d, J=8.58 Hz, H-3c, 5c), 6.49 (1H, d, J=1.85 Hz, H-14c), 6.64 (2H, d, J=8.58 Hz, H-3b, 5b), 6.72 (2H, d, J=8.58 Hz, H-3d, 5d), 6.73 (2H, d, J=8.58 Hz, H-3a, 5a), 7.10 (2H, d, J=8.58 Hz, H-2b, 6b), 7.13 (2H, d, J=8.58 Hz, H-2d, 6d), 7.16 (2H, d, J=8.58 Hz, H-2a, 6a), 7.45 (1H, br s, 13b-OH), 7.88 (1H, br s, 4c-OH), 7.99 (2H, br s, 11d, 13d-OH), 8.02 (1H, br s, 13a), 8.14 (3H, br s, 11a, 4b, 13c-OH), 8.35 (1H, br s, 4d-OH), 8.48 (1H, br s, 4a-OH); <sup>13</sup>C NMR (CD<sub>3</sub>COCD<sub>3</sub>) δ (ppm) : 37.2, 49.0, 49.4, 53.4, 57.8 (overlapped), 90.6, 94.8, 95.8, 96.6, 101.8, 102.4, 105.9, 107.2, 107.7 (overlapped), 115.7 (overlapped), 116.0, 116.1 (overlapped), 116.2 (overlapped), 116.3 (overlapped), 122.4, 123.6, 124.7, 128.4 (overlapped), 129.4 (overlapped), 130.4 (overlapped), 130.9 (overlapped), 131.0, 131.6, 133.7, 134.9, 141.9, 142.2, 143.4, 148.2, 155.1, 155.9, 156.1, 156.6, 157.0, 158.2, 158.8, 159.0 (overlapped), 159.6, 160.0, 161.9; ESI-MS [M+H]<sup>+</sup> ion at m/z (relative intensity) 907.3234 (100%).

Vaticanol G<sup>15)</sup> (4), 茶色パウダー, mp. 219-220°C, Rf=0.13 Chloroform:Methanol 8:3, 50% 硫酸発色 茶色, [α]<sub>D</sub><sup>25</sup> = +90° (c=0.01, Ethanol), <sup>1</sup>H NMR (CD<sub>3</sub>COCD<sub>3</sub>) δ (ppm) : 3.52 (1H, d, J=7.25 Hz, H-7c), 3.84 (1H, dd, J=7.25, 2.31 Hz, H-8b), 4.08 (1H, s, H-8c), 4.53 (1H, d, J=3.36 Hz, H-7a), 4.61 (1H, d, J=3.36 Hz, H-8a), 4.88 (1H, d, J=2.64 Hz, H-14a), 5.65 (1H, br s, H-2c), 5.65 (1H, d, J=2.31 Hz, H-7b), 5.54 (1H, dd, J=8.49, 2.59 Hz H-5b), 5.95 (1H, br s, H-3c), 5.95 (2H, d, J=2.23 Hz, H-10c, 14c), 5.97 (1H, d, J=8.49 Hz, H-6b), 6.01

(1H, d, J=2.59 Hz, H-3b), 6.05 (1H, t, J=2.23 Hz, H-12c), 6.18 (1H, d, J=2.64 Hz, H-12a), 6.43 (2H, br s, H-2a, 6a), 6.45 (2H, br s, H-3a, 5a), 6.68 (1H, s, H-12b), 7.06 (1H, br s, H-5c), 7.46 (1H, br s, H-6c), 7.64 (1H, br s, 4b-OH), 7.91 (2H, br s, 13a, 13b-OH), 8.01 (2H, br s, 4a, 4c-OH), 8.06 (2H, br s, 11c, 13c-OH), 8.08 (1H, br s, 11a-OH), 8.54 (1H, br s, 11b-OH); <sup>13</sup>C NMR (CD<sub>3</sub>COCD<sub>3</sub>) δ (ppm) : 43.3, 50.9, 54.5, 57.6, 57.8, 63.6, 101.6, 102.3, 102.6, 107.0 (overlapped), 112.0, 113.4 (overlapped), 115.2, 115.3 (overlapped), 118.2, 120.0, 122.5, 126.6, 129.8 (overlapped), 130.7, 130.8 (overlapped), 135.6, 137.7, 140.6, 142.4, 142.5, 147.6, 148.3, 153.6, 153.8, 155.5, 155.6, 156.2, 156.5, 157.2, 159.7 (overlapped); ESI-MS [M+H]<sup>+</sup> ion at m/z (relative intensity) 681.2615 (100%).

## 5. ヤマトシロアリ (*Reticulitermes speratus* (Kolbe))

本種はミゾガシラシロアリ科 (Rhinotermitidae) に属し、北海道から沖縄まで日本全国に生息する。コロニーの個体数は1～3万程度と比較的少なく、乾燥耐性に乏しく、自ら水を運ぶ能力がないため、常に湿った木材中で生活する。日本での建材加害種は本種の他に、イエシロアリ (*Coptotermes formosanus* Shiraki)、ダイコクシロアリ (*Cryptotermes domesticus* Haviland) である。本研究で用いたヤマトシロアリは、和歌山県御坊市美浜町煙樹海岸の松林にて採取し、26.5°Cの飼育室で、各コロニーごとにプラスチック製飼育箱に入れ、餌として湿らせた濾紙や木片を入れ飼育した<sup>16)</sup>。

## 6. 選択的ペーパーディスク試験<sup>17)</sup>

濾紙（東洋濾紙 No.1）を直径7 mm のパンチでディスク状に切り抜きペーパーディスクとした。ペーパーディスクには、アセトンをキャリア溶媒として、規定量の供試試料を含浸させた。キャリア溶媒であるアセトンは室内で完全に風乾した後、湿らせたバーミキュライト（ヒルコン）を高さ5 mm 程度になるように入れた直径5 cm シャーレ中に、供試試料を処理したペーパーディスクとコントロールの各2枚を対角となる様に十字に配置し、同じコロニーより採取したヤマトシロアリ職蟻20匹を放ち、蓋をして自由に摂食させた。このシャーレを26.5°C、暗条

件下で 2 週間放置した。乾燥防止のため 4 日に一度、霧吹きで水を与えた。生物検定終了後、食害されたペーパーディスクを黒台紙に貼付し、これをコンピュータ処理のためにスキャナーでデジタルデータに変換し、画像解析ソフト Scion Image (<http://www.scioncorp.com/>) を用いてピクセル (pixel) 単位で数値化、ディスクの食害面積の比較処理を行った。各台紙には標準面積を算出するために無傷のペーパーディスクを貼付し、同処理で比較し、処理区、無処理区それぞれの食害率を算出し、下記に示す計算式を用いて摂食阻害指数 (Antifeedant index: AFI) を算出した。

$$AFI = \{ T\% / (T\% + C\%) \} \times 100$$

(T% : 処理区の食害率、C% : 無処理区の食害率)  
本式では、処理区の食害率と無処理区の食害率が同等となるときに指数 50 を与える。摂食阻害指数が 0 に近づくほど摂食阻害活性が高いといえ、逆に 50 以上なら、摂食促進効果を示す。そしてその摂食阻害指数 (AFI) より以下に示す計算式を用いて、摂食阻害活性値 (Feeding Inhibitory rate: FI, 0 ~ 100%) を算出した。

$$FI (\%) = (50-AFI) \times 2$$

### III. 結果および考察

#### 1. 樹木抽出物のヤマトシロアリに対する摂食阻害活性スクリーニング試験

木材の製材時に廃材として廃棄されることが予想される樹皮などの樹木抽出物を用いて、ヤマトシロアリに対する摂食阻害活性スクリーニング試験を実施した。樹木メタノール抽出物 18 種と、これまでにハスモンヨトウ幼虫およびヤマトシロアリに対する摂食阻害物質が単離・同定されているジャックフルーツ、ビルマカリンジクロロメタン抽出物を既知標準活性抽出物として加えた 20 種の抽出物を 100  $\mu\text{g}/\text{disk}$  の処理量で、選択的ペーパーディスク試験を行った結果、レサクメタノール抽出物 4 種にヤマトシロアリに対する高い摂食阻害活性が認められた。その摂食阻害活性は、天然防蟻剤として利用されているヒノキから調製したメタノール抽出物よりも高い結果であった (Table 1)。また、既知標準活性抽出物であるジャックフルーツやビルマカリンジクロロメタン抽出物の摂食阻害活性と比較しても有意に高活性を示すことから、ヤマトシロアリに対する新たな

摂食阻害物質の存在が示唆された。また、これらレサクメタノール抽出物 4 種の TLC 分析からは、それぞれの抽出物の含有成分に差異が認められなかつたため、レサク白内皮部を抽出材料とした。

#### 2. レサク由来化合物のヤマトシロアリに対する摂食阻害活性

シリカゲルカラムクロマトグラフィーにより分画し得られた画分 Fr. 1 ~ Fr. 4 をヤマトシロアリに対する摂食阻害活性試験に供した結果、100  $\mu\text{g}/\text{disk}$  の処理量で、それぞれ摂食阻害活性 26.9, 91.8, 78.9, 51.9% を示した (Table 2)。

高い摂食阻害活性の認められた Fr. 2, 3 を再分画し、単離・同定したスチルベン 3 量体 3 種 (1, 2, 4)、4 量体 1 種 (3) は、抗菌活性<sup>18)</sup>、細胞毒性<sup>19)</sup> 等の生理活性が報告されている化合物であった。単離・同定した化合物を用いてヤマトシロアリに対する摂食阻害活性を評価したところ、vaticanol A (1), vaticanol E (2), vaticanol B (3), vaticanol G (4) は、それぞれ 50  $\mu\text{g}/\text{disk}$  の処理量で、80.3, 79.8, 55.9, 48.4% という摂食阻害活性が認められた (Table 3)。スチルベン 3 量体の中で 4 以外の化合物は、フラン構造を持っており、その存在がヤマトシロアリに対する摂食阻害活性を向上させている可能性が示唆された。また、スチルベン単量体である resveratrol にもヤマトシロアリに対する摂食阻害活性が報告されており、その活性は 50  $\mu\text{g}/\text{disk}$  の処理量で 97.8% であった<sup>10)</sup>。vaticanol 類が resveratrol と比べて 3 ~ 4 倍の分子量を持つことから、分子量あたりの活性評価では活性が同程度となり、高分子構造よりもスチルベンやフェノール構造が活性発現に寄与していると考えられた。合成や化学構造的に類似の植物成分であるフラボノイドなどのフェノール性化合物も、同様にシロアリ類に対して摂食阻害活性を持つことが報告されている<sup>20)</sup>。また、レサクと呼ばれる *Cotylelobium* 属の木材成分として、スチルベン多量体である cotylephenol 類や cotylelosides 類の単離報告<sup>21)</sup> があり、*Vatica* 属からは、vaticanol, vaticaside, pauciflorol 類などが単離・同定されている<sup>22,23)</sup>。本研究で用いたレサクは、単離した化合物がすべて vaticanol 類であったことから *Cotylelobium* 属ではなく *Vatica* 属由来の材であると考えられた。更なるフィールドでの研究の必要性があるが、レ

Table 1. Antifeedant activity against *R. speratus* of bark methanol extracts

Plant name		AFI	SD	FI (%)	CDC (%)
Resak	(red, exodermis)	12.2	6.5	75.5	100.0
	(red, endodermis)	23.4	9.5	53.2	79.3
	(white, exodermis)	16.9	6.9	66.3	84.0
	(white, endodermis)	14.3	12.9	71.4	100.0
<i>Thujopsis dolabrata</i>		26.5	9.5	47.1	87.8
<i>Acer japonicum</i>		32.1	7.5	35.8	73.9
<i>Paulownia tomentosa</i>		25.5	10.3	49.1	67.0
<i>Zeikova serrata</i>			inactive		48.7
<i>Prunus sp.</i>			inactive		100.0
<i>Tilia kiusiana</i>			inactive		22.7
<i>Betula grossa</i>			inactive		47.0
<i>Pinus densiflora</i>		37.6	3.6	64.9	89.7
<i>Abies sachalinensis</i>		26.7	4.8	46.6	81.7
<i>Pinus radiate</i>		29.6	10.2	57.2	40.9
<i>Cryptomeria japonica</i>		17.5	14.5	65.0	96.6
<i>Chamaecyparis obtus</i>		40.0	3.2	20.1	97.3
<i>Podocarpus macrophyllus</i>			inactive		58.4
<i>Sciadopitys verticillata</i>		24.9	4.2	50.3	83.1
<i>Artocarpus heterophyllus</i>		35.0	7.3	30.0	63.5
<i>Pterocarpus macrocarpus</i>		18.8	7.4	62.3	67.0

Data show the mean of 2-3 replicates, AFI; AntiFeedant Index, FI; Feeding Inhibitory rate, CDC; Control Disk Consumption, Applied dose is 100 µg/disk, respectively (7 mm diameter). Inactive; AFI value > 50.

Table 2. Antifeedant activity against *R. speratus* of Fr. 1 ~ Fr. 4 from resak methanol extract

Fraction	AFI	SD	FI (%)	CDC (%)
Fr. 1	36.5	1.6	26.9	100.0
Fr. 2	4.1	1.3	91.8	100.0
Fr. 3	10.6	3.3	78.9	100.0
Fr. 4	24.0	2.3	51.9	61.7

Data show the mean of 2-3 replicates, AFI; AntiFeedant Index, FI; Feeding Inhibitory rate, CDC; Control Disk Consumption, Applied dose is 100 µg/disk, respectively (7 mm diameter).

Table 3. Antifeedant activity against *R. speratus* of tested compounds from resak methanol extract

Compound	Dose (µg/disk)	AFI	SD	FI (%)	CDC (%)
1	100	4.9	2.0	90.3	100.0
	50	9.9	0.5	80.3	100.0
	10	34.5	2.9	31.0	100.0
2	100	7.0	0.7	86.0	100.0
	50	10.1	2.9	79.8	100.0
	10	36.9	3.4	26.1	100.0
3	100	5.4	3.0	89.2	100.0
	50	22.1	2.3	55.9	100.0
	10	38.3	2.5	23.3	100.0
4	100	11.4	1.7	77.3	100.0
	50	25.6	3.2	48.8	100.0
	10	32.8	3.0	28.7	100.0
resveratrol	50	1.1	0.5	97.8	75.7
(+)-catechin*	100	42.2	2.3	15.6	80.2
	50	46.2	3.4	7.4	83.4

\*Negative control for termite antifeedant test, Data show the mean of 2-3 replicates, AFI: AntiFeedant Index, FI: Feeding Inhibitory rate, CDC: Control Disk Consumption, Disk: 7 mm diameter.

サクメタノール抽出物は、天然防蟻剤として利用できる可能性を持つと考えられる。

### 引用文献

- 1) Ehrlich, P. R. & Raven, P. H. : Butterflies and plants: A study in coevolution. *Evolution* **18**, 586-608 (1964).
- 2) Frazier, J. L. & Chyb, S. Regulatory mechanisms in insect feeding (eds. Chapman, R. F. & Boer, G. D.) 364-377 (New York, Tokyo, 1995).
- 3) Messchendorp, L., van Loon, J. J. A. & Gols, G. J. Z. : Behavioral and sensory responses to drimane antifeedants in *Pieris brassicae* larvae. *Entomol. Exp. Appl.* **79**, 195-202 (1996).
- 4) Tiziana, S., Marinella, D. L., Ammar, B., Nunziatina, D. T., Klaas, V., Alessandra, B., Ivano, M. & Tiziana, S. : Pyrrolizidine alkaloids from *Anchusa strigosa* and their antifeedant activity. *Phytochemistry* **66**, 1593-1600 (2005).
- 5) Morimoto, M., Fujii, Y. & Komai, K. : Antifeedants in Cyperaceae: coumaran and quinones from *Cyperus* spp. *Phytochemistry* **51**, 605-608 (1999).
- 6) Morimoto, M., Kumeda, S. & Komai, K. : Insect antifeedant flavonoids from *Gnaphalium affine* D. Don. *J. Agric. Food Chem.* **48**, 1888-1891 (2000).
- 7) Jermy, T. : Prospects of antifeedant approach to pest control - a critical review. *J. Chem. Ecol.* **16**, 3151-3166 (1990).
- 8) Bryan, R. Y. & James, A. K. : Structure-bioactivity relationships of azadirachtin, a potential insect control agent. *J. Agric. Food Chem.* **35**, 467-471 (1987).
- 9) Mitchell, M. J., Smith, S. L., Johnson, S. & Morgan, E. D. : Effects of the neem tree compounds azadirachtin, salannin, nimbin, and 6-desacetylnimbin on ecdysone 20-monoxygenase activity. *Arch. Insect Biochem. Physiol.* **35**, 199 - 209 (1997).
- 10) Morimoto, M., Ohta, Y., Ihara, T., Arima, K., Fukumoto, H., Warinthorn, C. & Komai, K. : Insect antifeedants in thailand plant extracts against the common cutworm, *Spodoptera litura*, and a subterranean termite, *Reticulitermes speratus*. *Jpn. J. Environ. Entomol. Zool.* **17**, 1-7 (2006).
- 11) Morimoto, M., Fukumoto, H., Hiratani, M., Warinthorn, C. & Komai, K. : Insect antifeedants, pterocarpans and pterocarpol, in heartwood of *Pterocarpus macrocarpus* Kruz. *Biosci. Biotechnol. Biochem.* **70**, 1864-1868 (2006).
- 12) 热帯の有用樹種、热帯農業技術叢書 第16号、82-87 (農林省热帯農業研究センター、1978)
- 13) Tanaka, T., Ito, T., Nakaya, K., Iinuma, M. & Riswan, S. : Oligostilbenoids in atem bark of *Vatica rassak*. *Phytochemistry* **54**, 63-69 (2000).
- 14) Ito, T., Tanaka, T., Ido, Y., Nakaya, K., Iinuma, M., Takahashi, Y., Naganawa, H. & Riswan, S. : Five new oligostilbenes with one or two dihydrofurans from the stem bark of *Vatica rassak*. *Heterocycles* **55**(3), 557-567 (2001).
- 15) Ito, T., Tanaka, T., Nakaya, K., Iinuma, M., Takahashi, Y., Naganawa, H., Ohyama, M., Nakanishi, Y., Bastow, K. F. & Lee, K. H. : A novel bridged stilbenoid trimer and four highly condensed stilbenoid oligomers in *Vatica rassak*. *Tetrahedron* **57**, 7309-7321 (2001).
- 16) 安富和男：衛生害虫と衣食住の害虫、118-129 (全国農村教育協会、2000).
- 17) Escoubas, P., Lajide, L. & Mitzutani, J. : An improved leaf-disk antifeedant bioassay and its application for the screening of Hokkaido plants. *Entomol. Exp. Appl.* **66**, 99-103 (1993).
- 18) Sotheeswaran, S. & Pasupathy, V. : Distribution of resveratrol oligomers in plants. *Phytochemistry* **32**, 1083-1092 (1993).
- 19) Jang, M., Cai, L., Udeani, G. O., Slowing, K. V., Thomas, C. F., Beecher, C. W. W., Fong,

- H. H. S., Farnsworth, N. R., Kinghorn, A. D., Mehta, R. G., Moon, R. C. & Pezzuto, J. M. : Cancer chemopreventive activity of resveratrol, a natural product derived from grapes. *Science* **275**, 218-220 (1997).
- 20) Ohmura, W., Ohara, S., Doi, S. & Aoyama, M. : Antifeedant activity of flavonoids and related compounds against the subterranean termite *Coptotermes formosanus* Shiraki. *J. Wood Sci.* **46**, 149-153 (2003).
- 21) Ito, T., Ali, Z., Furusawa, M., Iliya, I., Tanaka, T., Nakaya, K., Murata, J., Darnaedi, D. & Iinuma, M. : Resveratrol oligomers and their glucosides from *Cotylelobium lanceolatum*. *Chem. Pharm. Bull.* **54**(3), 363-367 (2006).
- 22) Ito, T., Tanaka, T., Iinuma, M., Iliya, I., Nakaya, K., Ali, Z., Takahashi, Y., Sawa, R., Shirataki, Y., Murata, J. & Darnaedi, D. : New resveratrol oligomers in the stem bark of *Vatica pauciflora*. *Tetrahedron* **59**, 5347-5363 (2003).
- 23) Ito, T., Tanaka, T., Iinuma, M., Nakaya, K., Takahashi, Y., Sawa, R., Murata, J. & Darnaedi, D. : Three new resveratrol oligomers from the stem bark of *Vatica pauciflora*. *J. Nat. Prod.* **67**, 932-937 (2003).