

## 털두꺼비하늘소(*Moechotypa diphysis*)에 대한 18종 식물정유와 주요성분의 혼증효과

김주섭 · 서동규 · 장선아 · 한주환<sup>1</sup> · 김영재<sup>2</sup> · 김길하\*

충북대학교 농업생명환경대학 식물외과, <sup>1</sup>충북산림환경연구소, <sup>2</sup>충남산림환경연구소

## Fumigant Toxicity of 18 Essential oils and Their Major Compounds against Adult Oak Longicorn Beetle, *Moechotypa diphysis* (Coleoptera: Cerambycidae)

Jusub Kim, Dong-Kyu Seo, Sun-Ah Jang, Ju-Hwan Han<sup>1</sup>, Young-Jae Kim<sup>2</sup> and Gil-Hah Kim\*

Department of Plant Medicine, Chungbuk National University, Cheongju 361-763, Korea,

<sup>1</sup>Chungbuk Institute of Forest Environment Research, Cheongweongun, Korea,

<sup>2</sup>Chungnam Institute of Forest Environment Research, Kongju-si, Korea

**ABSTRACT** : Fumigant toxicity of 18 plant essential oils were tested against the adults of oak longicorn beetle, *Moechotypa diphysis*. Among them, eucalyptus, rosemary and pennyroyal oils showed 100% mortality and sage oil showed 85% mortality at 10  $\mu\text{l/l}$  (air) dose. Eucalyptus and rosemary oils showed 100% mortality within 6 hr after treatment at 10  $\mu\text{l/l}$  (air) dose. GC and GC/MS analysis of the four essential oils and bioassay of their components revealed that 1,8-cineole (a major component of eucalyptus, rosemary and sage oils), thujone (a major component of sage oil) and pulegone (a major component of pennyroyal oil) showed higher adulticidal activity than others.

**KEY WORDS** : *Moechotypa diphysis*, Essential oil, Fumigant toxicity, GC, GC/MS

**초 록** : 털두꺼비하늘소(*Moechotypa diphysis*) 성충에 대한 18종 식물정유의 혼증독성을 조사하였다. 그들 중 10  $\mu\text{l/l}$  (공기)의 농도에서 eucalyptus oil, rosemary oil, 그리고 pennyroyal oil은 100%, sage oil은 85%의 살충활성을 나타내었다. 4종 정유의 치사속도를 조사한 결과, eucalyptus oil과 rosemary oil이 처리 후 6시간 이내에 100%의 살충률을 나타내었다. 각 정유에 대한 주요 구성성분을 GC와 GC/MS로 분석한 결과, eucalyptus oil, rosemary oil, sage oil의 주성분인 1,8-cineole과 sage oil의 또 다른 주성분인 thujone과 pennyroyal의 주성분인 pulegone 모두 20  $\mu\text{l/l}$  (공기)의 농도에서 100%의 살충효과를 나타내었다.

**검색어** : 털두꺼비하늘소, 식물정유, 혼증독성, Eucalyptus, Rosemary, Pennyroyal, Sage, GC, GC/MS

### 서 론

표고원목을 가해하는 해충 중에서 가장 문제가 되는 종은 털두꺼비하늘소(*Moechotypa diphysis*)로 표고원목의 내수피를 가해하여 표고의 군사생장을 저해 하고 잡균을

매개하여 표고균이 자라지 못하게 한다(Lee, 1987; Kim and Hwang, 1996). 털두꺼비하늘소 방제약제로 등록된 것은 없으나, 표고재배농가들은 유기염소계인 지오릭스(endosulfan) 분제를 살포하여 방제하고 있다(Pesticide handbook, 2000). 그러나 유기염소계 약제는 잔류나 독성

\*Corresponding author. E-mail: khkim@chungbuk.ac.kr

**Table 1.** Fumigant toxicity against *M. diphysis* adults at 24 h after treated 18 essential oils respectively on a piece of filter paper in 1 ℓ chamber

Essential oil	Dose ( $\mu\text{l}/\ell$ air)	n <sup>a)</sup>	% Mortality (Mean $\pm$ SD)
Basil	10	20	50.0 $\pm$ 15.8
Cadamone	10	20	25.0 $\pm$ 19.1
Caraway	10	20	5.0 $\pm$ 10.0
Chamomile Roman	10	20	10.0 $\pm$ 5.5
Clove bud	10	20	0.0 $\pm$ 0.0
Eucalyptus	10	20	100.0 $\pm$ 0.0
Gingerbre	10	20	30.0 $\pm$ 47.6
Hyssop	10	20	20.0 $\pm$ 28.3
Lavender	10	20	0.0 $\pm$ 0.0
Litsea cubeba	10	20	5.0 $\pm$ 10.0
Mentha avansis	10	20	20.0 $\pm$ 10.3
Muguet	10	20	0.0 $\pm$ 0.0
Rosemary	10	20	100.0 $\pm$ 0.0
Sage	10	20	85.0 $\pm$ 10.0
Spearmint	10	20	0.0 $\pm$ 0.0
Pennyroyal	10	20	100.0 $\pm$ 0.0
Thyme white	10	20	5.0 $\pm$ 10.0
Ylangylang	10	20	15.0 $\pm$ 19.1
Control	-	20	0.0 $\pm$ 0.0

<sup>a)</sup> Number of insects tested.

문제로 사용이 점차 제한되고 있기 때문에 대체약제 선발이 요구되고 있다. Yoo *et al.* (2001)는 실내와 포장에서 benfuracarb와  $\lambda$ -cyhalothrin의 방제효과를 조사하여 보고한 바 있다.

최근의 해충방제에는 적은 농약사용량에 환경 부담이 적고 인축 독성이 낮은 방제제가 선호되고 있다. 따라서 자연 기원의 물질 중의 하나인 식물정유로부터 해충에 대한 활성물질 탐색과 이용에 관한 많은 연구가 진행되고 있다(Isman, 2000; Choi *et al.*, 2003; Choi and Kim, 2004). 식물정유에 함유되어 있는 성분들은 휘발성물질로 terpenoids (mono-, sesqui-, di-), alkaloids, polyacetylenes, flavonoids, sugars와 같은 다양한 2차 대사산물을 포함하며(Teranishi *et al.*, 1993; Tisserand *et al.*, 1995; Benner, 1993), 이들 화합물들은 여러 곤충의 종에 대해서 유인, 섭식저해, 살충활성을 나타낸다고 알려져 있고, 이러한 특성들을 이용한 해충방제의 가능성이 널리 제시되어 왔다(Rice and Coats, 1994; Alida *et al.*, 2001; Choi *et al.*, 2003). 이에 본 연구에서는 18종의 식물정유를 이용하여 털두꺼비하늘소에 대하여 훈증에 의한 살충효과를 평가하였으며, 그 중 효과있는 식물정유의 구성성분인

terpene화합물을 분석하여 살충력평가를 통해 식물정유의 주요 살충성분을 확인하였다.

## 재료 및 방법

### 시험곤충

털두꺼비하늘소(*Moechotypa diphysis*)는 2004년 5-6월에 충북 청원군 미원면 야산에서 성충을 채집하여 시험에 이용하였다.

### 화합물

식물정유(essential oil)는 시판되고 있는 상품을 구입하여 시험에 이용하였다. Litsea cubeba는 진야향료에서 구입하였고, basil외 17종은 샤라보코리아에서 구입하였다(Table 1). Terpene 화합물인  $\beta$ -myrcene (90%)과  $\beta$ -caryophyllene (90%)은 Sigma에서 구입하였고,  $\alpha$ -pinene (98%),  $\beta$ -pinene (97%),  $\rho$ -cymene (99%), camphene (95%), camphor (96%), 1,8-cineole (99%), linalool (97%)

및 pulegone (85%)은 Aldrich Chemical Co.에서 구입하였다. 그리고 limonene (97%)과 thujone (>55%)은 TCI에서 구입하여 실험에 사용하였다.

### 혼증독성 시험

털두꺼비하늘소에 대한 혼증독성은 자른 후 4 개월 정도된 참나무토막(평균  $\Phi 1.5 \sim 2.0 \times 13$  cm)을 투명한 원통형아크릴용기( $\Phi 9 \times 15$  cm)에 넣고, 성충을 다섯 마리씩 집중하였다. 시험에 사용한 essential oil과 monoterpenoid는 액상으로 filter paper( $\Phi 5.5$  cm)에 일정량(5, 10, 20  $\mu\text{l/l}$  air)의 원액을 처리하여 원통형아크릴용기 벽면에 붙이고 용기밖으로 휘발되는 것을 막기 위해 패트리디쉬( $\Phi 9$  cm)로 덮어 parafilm으로 밀봉하였다. 처리 3, 6, 12, 24시간 후에 사충수를 조사하였으며, 모든 시험은 4반복으로 수행하였다. 시험 조건은 온도 25-28°C, 광주기 16L:8D, 상대습도 50-60%로 하였다.

### 화학분석

시험에 사용된 식물정유는 gas chromatography (GC, Agilent Technologies 6890N)와 gas chromatography-mass spectrometry (GC-MS, Hewlett Packard 5890)를 이용하여 분석하였다. 분석에 이용된 column은 DB-WAX (0.25 mm $\times$ 30mm)를 이용하였고 carrier gas는 N<sub>2</sub> gas를 사용하였으며, oven온도는 35-180°C의 조건하에서 flame ionization detector로 검출하였으며, 이온화는 70 eV에서 수행하였다. 식물정유의 구성성분은 GC-MS로부터 시료의 total ion chromatogram을 얻은 후, WILEY138 library의 자료(Hewlett Packard)와 비교하여 성분을 동정하였다.

## 결과 및 고찰

### 혼증독성 및 살충속도

털두꺼비하늘소 성충에 대한 혼증독성은 실내에서 수행하였다(Table 1). 각 정유에 대한 혼증활성은 확연한 차이를 나타내었다. 20  $\mu\text{l/l}$  (공기)의 농도에서 대부분의 식물정유는 24시간까지 살충률이 0-50%를 나타내었으나 Eucalyptus oil, rosemary oil, pennyroyal oil은 100%, sage oil은 85% 살충효과를 나타내었다. 이 4개의 식물정유를 이용하여 10, 5, 1  $\mu\text{l/l}$  (공기)의 농도로 처리하여, 각각 3, 6, 12, 24시간째에 혼증독성으로 인한 살충

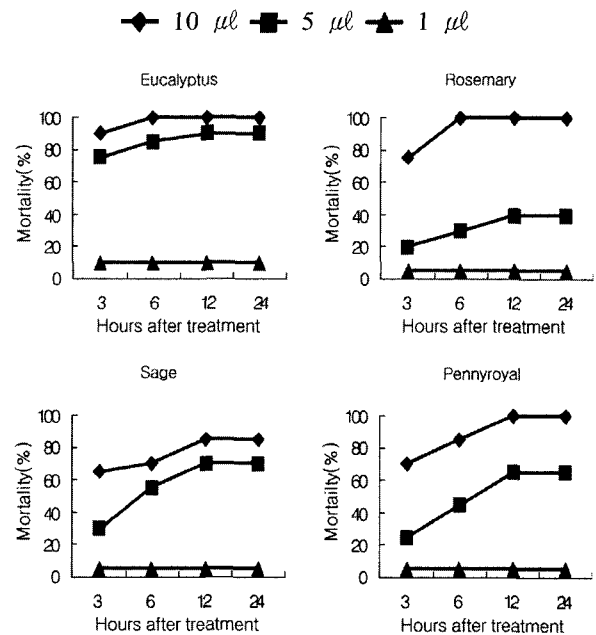


Fig. 1. Fumigant toxicity of lethal time against *M. diphyis* adults after treated with each essential oils on a piece of filter paper in 1 l chamber.

률을 조사하였다(Fig. 1). 약량이 감소할수록 살충률이 현저하게 감소하는 것을 알 수 있었다. 그 중 eucalyptus oil과 sage oil은 5  $\mu\text{l/l}$  (공기)의 농도에서도 각각 90.0%, 70.0%의 살충효과를 나타내었다. 발현속도비교에서 eucalyptus oil과 rosemary oil은 10  $\mu\text{l/l}$  (공기)의 농도에서 처리후 6시간째에, pennyroyal oil은 12시간째에 100%의 살충률을 나타내어 식물정유의 종류에 따라 발현속도에 차이가 있음을 알 수 있었다. Lee et al. (2004)은 42종의 식물정유를 대상으로 3종 저곡해충에 대하여 혼증효과를 조사하였는데, *Eucalyptus codonocarpa* oil은 쌀바구미, *Melaleuca armillaris* oil은 권련벌레, 그리고 *Melaleuca fulgens* oil은 밤빛쌀도둑에서 혼증활성이 높았으며, 또한 Tunc and Sahinkaya (1998)는 시설해충인 목화진딧물과 접박이응애붙이에 대해서 cumin, anise, oregano, eucalyptus oil이 혼증활성이 높았다고 보고하였다. 국내의 연구결과로 Choi et al. (2003)은 53종의 식물정유를 대상으로 온실가루이의 알, 약충, 성충에 대한 혼증독성을 조사하였는데 bay, caraway seed, clove leaf, lemon, eucalyptus, lime, pennyroyal, peppermint, rosewood, spearmint, tea tree oil이 활성이 높았고, Choi and Kim (2004)은 spearmint oil이 온실가루이는 물론 담배가루이에, 그리고 Han et al. (2006)은 pennyroyal oil과 spearmint oil이 꽃노랑총채벌레에 대해서 혼증효과를 보고하였다. 이와 같이 식물

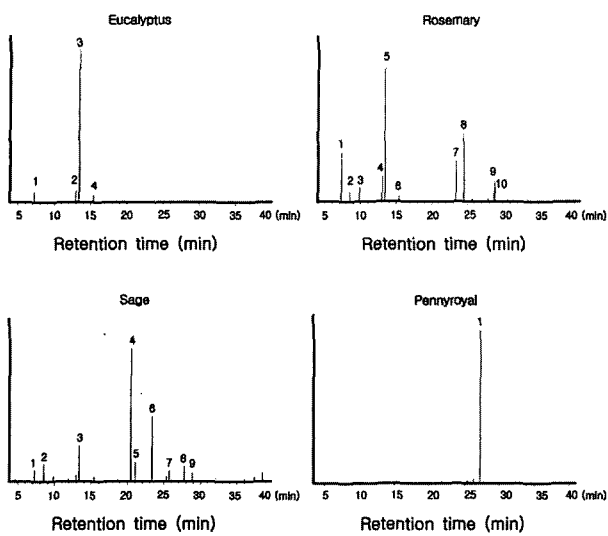


Fig. 2. Capillary gas chromatogram of four essential oils. DB-WAX capillary column (I.D. 0.25 mm, 30 m long, 0.25  $\mu$ m film thickness), Temp., 35°C to 180°C at 4°C/min.

정유의 종류에 따라 해충에 선택적이며, 다양한 곤충에 대해서 살충활성을 나타내는 것으로 알려져 있기 때문에 새로운 유형의 방제제 개발이 가능할 것으로 생각된다.

### 식물정유의 화학분석 및 살충력

털두꺼비하늘소에 높은 혼중독성을 나타내었던 eucalyptus, rosemary, sage, pennyroyal oil의 성분을 분석하기 위하여 GC와 GC/MS를 이용하였다(Fig. 2). 이들 oil을 분석한 결과는 Table 2에 나타났다. Eucalyptus는 1,8-cineole (86.2%)이, rosemary는  $\alpha$ -pinene (11.2%), 1,8-cineole (35.6%), camphor (11.6%), linalool (16.6%)이, sage는 1,8-cineole (10.0%), thujone (36.9%), camphor (19.0%)가, 그리고 pennyroyal은 pulegone (88.6%)이 주요 구성성분으로 분석되었다. 이 성분들의 살충활성을 시험한 결과, eucalyptus oil, rosemary oil, sage oil의 주성분인 1,8-cineole과 sage oil의 또 다른 주성분인 thujone과 penn-

Table 2. Relative content (%) of major component of four essential oil analyzed by GC and GC-MS

GC peak no.	Retention time (min)	Compound name	m/z	Relative content (%)
<b>Eucalyptus</b>				
1	7.22	$\alpha$ -Pinene	136(M <sup>+</sup> ), 121, 93, 77, 41	4.6
2	12.95	Limonene	136(M <sup>+</sup> ), 107, 93, 79, 68	5.5
3	13.40	1,8-Cineole	154(M <sup>+</sup> ), 108, 81, 71, 43	86.2
4	15.41	$\rho$ -Cymene	134(M <sup>+</sup> ), 119, 91, 77, 65	3.4
<b>Rosemary</b>				
1	7.24	$\alpha$ -Pinene	136(M <sup>+</sup> ), 121, 105, 93, 77	11.2
2	8.53	Camphene	136(M <sup>+</sup> ), 121, 93, 79, 41	2.4
3	9.84	$\beta$ -Pinene	136(M <sup>+</sup> ), 93, 79, 69, 41	3.5
4	12.96	Limonene	136(M <sup>+</sup> ), 107, 93, 79, 68	6.1
5	13.39	1,8-Cineole	154(M <sup>+</sup> ), 108, 81, 71, 43	35.6
6	15.43	$\rho$ -Cymene	134(M <sup>+</sup> ), 119, 91, 77, 65	1.5
7	23.35	Camphor	152(M <sup>+</sup> ), 108, 95, 81, 41	11.6
8	24.48	Linalool	154(M <sup>+</sup> ), 93, 71, 55, 43	16.5
9	28.75	Unknown	156(M <sup>+</sup> )	4.9
10	28.87	Unknown	204(M <sup>+</sup> )	3.7
<b>Sage</b>				
1	7.24	$\alpha$ -Pinene	136(M <sup>+</sup> ), 121, 105, 93, 77	2.9
2	8.53	Camphene	136(M <sup>+</sup> ), 121, 93, 79, 41	4.6
3	13.37	1,8-Cineole	154(M <sup>+</sup> ), 108, 81, 71, 43	10.0
4	20.45	Thujone	152(M <sup>+</sup> ), 110, 81, 68, 41	36.9
5	21.04	$\alpha$ -Thujone	152(M <sup>+</sup> ), 110, 95, 81, 41	5.1
6	23.35	Camphor	152(M <sup>+</sup> ), 108, 95, 81, 41	19.0
7	25.69	$\beta$ -Caryophyllene	204(M <sup>+</sup> ), 133, 93, 69, 41	3.4
8	27.76	Unknown	204(M <sup>+</sup> )	4.6
9	28.87	Unknown	204(M <sup>+</sup> )	2.4
<b>Pennyroyal</b>				
1	27.32	Pulegone	152(M <sup>+</sup> ), 109, 81, 67, 41	88.6

**Table 3.** Fumigant toxicity against *M. diphyis* adults at 24 h after filter application of terpenes in 1 ℓ chamber

Essential oil	GC peak no.	Component	n <sup>a)</sup>	Dose ( $\mu\text{l}/\ell$ air)	% Mortality (Mean $\pm$ SD)
Eucalyptus	1	$\alpha$ -Pinene	20	20	0.0 $\pm$ 0.0
	2	Limonene	20	20	40.0 $\pm$ 16.3
	3	1,8-Cineole	20	20	100.0 $\pm$ 0.0
			20	10	33.3 $\pm$ 11.5
			20	5	0.0 $\pm$ 0.0
Rosemary	4	$\rho$ -Cymene	20	20	25.0 $\pm$ 10.0
	1	$\alpha$ -Pinene	20	20	0.0 $\pm$ 0.0
	2	Camphene	20	20	0.0 $\pm$ 0.0
	3	$\beta$ -Pinene	20	20	13.3 $\pm$ 11.5
	4	Limonene	20	20	40.0 $\pm$ 16.3
	5	1,8-Cineole	20	20	100.0 $\pm$ 0.0
			20	10	33.3 $\pm$ 11.5
			20	5	0.0 $\pm$ 0.0
	6	$\rho$ -Cymene	20	20	25.0 $\pm$ 10.0
	7	Camphor	20	20	0.0 $\pm$ 0.0
Sage	8	Linalool	20	20	0.0 $\pm$ 0.0
	9	$\beta$ -Caryophyllene	20	20	0.0 $\pm$ 0.0
	1	$\alpha$ -Pinene	20	20	0.0 $\pm$ 0.0
	2	Camphene	20	20	0.0 $\pm$ 0.0
	3	1,8-Cineole	20	20	100.0 $\pm$ 0.0
			20	10	33.3 $\pm$ 11.5
			20	5	0.0 $\pm$ 0.0
	4	Thujone	20	20	100.0 $\pm$ 0.0
			20	10	66.7 $\pm$ 11.5
			20	5	0.0 $\pm$ 0.0
Pennyroyal	5	$\alpha$ -Thujone	-	-	n.t. <sup>b)</sup>
	6	Camphor	20	20	0.0 $\pm$ 0.0
	7	$\beta$ -Caryophyllene	20	20	0.0 $\pm$ 0.0
	1	Pulegone	20	20	100.0 $\pm$ 0.0
			20	10	100.0 $\pm$ 0.0
			20	5	95.0 $\pm$ 8.7
	Control	-	-	20	-

<sup>a)</sup> Number of insects tested.

<sup>b)</sup> Not tested

yroyal의 주성분인 pulegone 모두 20  $\mu\text{l}/\ell$  (공기)의 농도에서 각각 100%의 혼증효과를 나타내어 이들 oil의 주요 성분임을 확인하였다(Table 3). Yoo *et al.* (2002)은 털두꺼비하늘소 성충에 대해 25종의 monoterpenoid 중 1,8-cineole, fenchone, pulegone,  $\gamma$ -terpinene이 혼증효과를 나타내었는데, 그 중에서 pulegone이 가장 높은 활성을 보고하였다. 본 연구에서 높은 혼증효과를 나타내었던 pulegone은 꽃노랑총채벌레(Han *et al.*, 2006), 거릿쌀도

독거저리(Rice and Coats, 1994)에 대해서도 높은 혼증효과가 확인되었다. 또한 1,8-cineole은 쌀바구미뿐만 아니라(Lee *et al.*, 2001), 가루개나무좀에 대해서도 혼증효과가 있음을 보고하고 있으나(Prates *et al.*, 1998), 식물정유를 이용한 대부분의 연구는 저곡해충 및 농업해충을 대상으로 하고 있다. 따라서 본 연구는 산림해충에 대한 혼증살충력 자료로서 유기합성살충제 대체를 위한 식물정유 연구에 기초자료가 될 것이라 생각된다. 향후 야외실험을

통하여 식물정유와 terpene 화합물의 살충력을 재확인하고 최적의 제형이 검토되어야 할 것이다.

## 감사의 글

본 연구는 농림부 농림기술관리센터의 소나무재선충 기획연구과제와 교육인적자원부의 제2단계 두뇌한국 21 사업으로 수행한 결과이다.

## Literature Cited

- Alida, F.J., W.J. Kogel and E.J. Woltering. 2001. Enhanced fumigant toxicity of  $\rho$ -cymene against *Frankliniella occidentalis* by simultaneous application of elevated levels of carbon dioxide. *Pest. Manag. Sci.* 58: 167-173.
- Benner, J.P. 1993. Pesticidal compounds from higher plants. *Pestic. Sci.* 39: 95-102.
- Choi, W.I., E.H. Lee, B.R. Choi, H.M. Park and Y.J. Ahn. 2003. Toxicity of plant essential oils to *Trialeurodes vaporariorum* (Homoptera: Aleyrodidae). *J. Econ. Entomol.* 96: 1479-1484.
- Choi, Y.M. and G.H. Kim. 2004. Insecticidal activity of spearmint oil against *Trialeurodes vaporariorum* and *Bemisia tabaci* Adults. *Korean J. Appl. Entomol.* 43: 323-328.
- Han J.B., K.S. Ahn, C.K. Lee and G.H. Kim. 2006. Fumigant toxicity of pennroyal and spearmint oils against western flower thrips, *Frankliniella occidentalis*. *Korean J. Appl. Entomol.* 45: 45-49.
- Isman, M.B. 2000. Plant essential oils for pest and disease management. *Crop Prot.* 19: 603-608.
- Kim, K.C. and C.Y. Hwang. 1996. An investigation of insect pest on the mushroom (*Lentinus edodes*, *Pleurotus ostreatus*) in south region of Korea. *Korean J. Appl. Entomol.* 35: 45-51.
- Lee, B.Y. 1987. Bionomics of oak longicorn, *Moechotypa diphysis* Pascoe (Coleoptera: Cerambycidae), infesting the oak mushroom bed logs to commercial insecticides. *Res. Rep. For. Inst. Korea.* 35: 139-145.
- Lee, B.H., W.S. Choi, S.E. Lee and B.S. Park. 2001. Fumigant toxicity of essential oils and their constituent compounds towards the rice weevil, *Sitophilus oryzae* (L.). *Crop Prot.* 20: 317-320.
- Lee, B.H., P.C. Annis, F. Tumaalii and W.S. Choi. 2004. Fumigant toxicity of essential oils from the Myrtaceae family and 1,8-cineol against 3 major stored-grain insects. *J. Stored Prod. Research.* 40: 553-564.
- Pesticide handbook. 2000. Korea Agri. Chem. Indu. Assoc. 222pp.
- Prates, H.T., J.P. Stantos, J.W. Waquil, J.D. Fabris, A.B. Oliveira and J.E. Foster. 1998. Insecticidal activity of monoterpenes against *Rhyzopertha dominica* (F.) and *Tribolium castaneum* (Herbst). *J. Stored Prod. Res.* 34: 243-249.
- Rice, P.J. and J.R. Coats. 1994. Insecticidal properties of several monoterpenoids to the house fly (Diptera: Muscidae), red flour beetle (Coleoptera: Tenebrionidae), and southern corn rootworm (Coleoptera: Chrysomelidae). *J. Econ. Entomol.* 87: 1172-1179.
- Teranishi, R., R.G. Buttery and H. Sugisawa. 1993. Bioactive volatile compounds from plants. American Chemical Society, Washington. DC. 309pp.
- Tisserand R., T. Blancs and J. Caldwell. 1995. Essential oil safety. A guide for health care professionals. Churchill Livingstone. 279pp.
- Tunc, I. and S. Sahinkaya. 1998. Sensitivity of two greenhouse pests to vapours of essential oils. *Entomol. Exp. Appl.* 86: 183-187.
- Yoo, J.S., G.H. Kim, S.G. Lee and J.D. Park. 2001. Control effects of benfuracarb and  $\lambda$ -cyhalothrin to oak longicorn beetle, *Moechotypa diphysis* Pascoe, infesting the oak mushroom bed logs. *J. Pestic. Sci.* 47-49
- Yoo, J.S., G.H. Kim, S.G. Lee, S.C. Shin, J.D. Park and S.C. Park. 2002. Insecticidal activity and ovipositional repellency of monoterpenoids against *Moechotypa diphysis* adults (Coleoptera: Cerambycidae). *Korean J. Appl. Entomol.* 41: 285-292.

(Received for publication 12 June 2006;  
accepted 23 June 2006)