

| | | | |
|---------|--|-------|------|
| 氏名(本籍) | Walter Soares Leal (ブラジル) | | |
| 学位の種類 | 農学博士 | | |
| 学位記番号 | 博甲第727号 | | |
| 学位授与年月日 | 平成2年3月23日 | | |
| 学位授与の要件 | 学位規則第5条第1項該当 | | |
| 審査研究科 | 農学研究科 | | |
| 学位論文題目 | Chemical Ecology of Astigmatid Mites (無気門亜目コナダニ類の化学生態学) | | |
| 主査 | 筑波大学教授 | 農学博士 | 桑原保正 |
| 副査 | 筑波大学教授 | 農学博士 | 石塚皓造 |
| 副査 | 筑波大学教授 | 農学博士 | 中原忠篤 |
| 副査 | 筑波大学教授 | Ph. D | 藤井宏一 |

論文の要旨

農業害虫や衛生害虫である無気門亜目のコナダニ類15種について化学生態学、主として警報フェロモンと性フェロモン及びアロモンとしての防御物質について検討した。また表皮(クチクラ)成分についても述べ、表皮の化学成分が昆虫以上に種間で変化に富むことを示し、殺ダニ剤や乾燥に対する抵抗性の極端な種間差と関係があると推察した。

警報フェロモンの研究

農業害虫である *Tyrophagus* 属の3種 *Tyrophagus similis* (ホウレンソウケナガコナダニ), *Tyrophagus Pevmiciosus* (オオケナガコナダニ), *Tyrophagus neiswanderi* (オンシツケナガコケダニ) の行動を観察し、警報フェロモンの存在を推測した。活性物質をそれぞれ単離構造決定し、ホウレンソウケナガでは(S)-(+)-イソペリテノン、オオケナガでは2-ヒドロキシ-6-メチルベンズアルデヒド、オンシツケナガでは{(Z)-5-トリデセン, (Z)-6-テトラデセン, (Z)-7-テトラデセン, (Z)-6-ペンタデセンと(Z)-7-ペンタデセン}の混合物と各々種毎に異なることを発見した。貯蔵食品害虫の *Suidasia medanensis* (ネッタイチビコナダニ) から警報フェロモンとしてネラールを同定すると共に、セスキテルペンのファルネサルを無気門亜目コナダニ類で初めて同定した。

化学分類と新規テンペン

形態を指標としたケナガコダニ類の分類は専門家以外には困難であるが、ダニ抽出物のガスクロマトグラムを用いた化学的手法では比較的容易であり、またガスクロマトグラムは2個体からでも得られるので、経済的に重要な害虫であるコナダニ類の同定及び確認に利用できることを立証した。

また *Tyrophagus* 属 4 種のクロマトグラムで観察出来る全成分を同定し、新規モノテルペン 3 種類を含む多数の既知及び新規化合物を同定した。そのうちの 1 化合物はゴミコナダニの一種の性フェロモンであった。新規モノテルペン 2 (S), 3 (S) - epoxy - 3, 7 - dimethyloct - 6 - enal は農業害虫のオオケナガコナダニから微量得られ、機器分析 (PMR, CMR, IR 及び MS) の結果から、構造を 2, 3 - エポキシネラルと推定した。ネロールを不斉エポキシ化後クロム酸酸化して、天然物は 2 (S), 3 (S) - 体と決定した。同じコナダニからさらに、特異なブテンジアル構造の新規モノテルペン 2 (E) - (4 - methyl - 3 - pentenyl) - butenedial を単離し、2 - オキソブタンジオールをテトラヒドロピラニルエーテル化酸、4 - メチル - 3 - ペンテニルマグネシウムブロミドと反応させ、脱水、脱保護し、酸化して合成し α - アカリジアルと命名した。この化合物はよく知られた重要な農業害虫の *Rhizoglyphus robini* (ロビンネダニ) にも存在した。予備的な抗菌活性試験で、 α - アカリジアルはシトラールより数十倍強い活性を示した。この第二次代謝産物が糸状菌に対するダニの防御分泌物の成分であることは応用を考えると興味深い。

最も普遍的に分布し、農業及び衛生害虫である *Tyrophagus putrescentiae* (ケナガコナダニ) の抽出物中に α - アカリジアルの異性体が存在した。単離した化合物は GCFTIR から共役及び非共役カルボニル基の吸収を認め、その他機器分析 (MS, PMR, CMR) の結果から二重結合を β - 位に持つブタンジアル骨格の化学構造と推定した。NMR 分析、及びマススペクトルで α - アカリジアルの場合と異なり、 m/z 69 より m/z 67 が顕著であることの実はこの推定を支持している。4 - メチル - 3 - ペンテニルブロミドのトリフェニルフォスフォニウム塩と 2 - オキソブタンジオールのテトラヒドロピラニルエーテルを Wittig 反応で縮合し、脱水後、酸化して得られる主生成物 (E) - (4 - methyl - 3 - pentenylidene) - butanedial は天然物と完全に一致し、 β - アカリジアルと命名した。 β - アカリジアルも α - アカリジアルと同様の抗菌作用を示し、様々の糸状菌には強い活性を示すが、バクテリアに対しては不活性であった。

性フェロモンの研究

無気門亜目コナダニ類に警報フェロモンや集合フェロモンが存在することは知られているが、性フェロモンの存在は不明であった。本論文ではじめてゴミコナダニの 1 種 *Caloglyphus polyphyllae* に性フェロモンの存在を発見し、活性化合物を β - アカリジアルと同定した。また雄の外前体部毛 (external scapular setae) が性フェロモンの受容器官であることを証明できた。性フェロモンは 0.5 雌等量で雄に活性を示し、探索行動を引き起こした。

体表成分

無気門亜目コナダニ類のワックス層は昆虫のそれが主として炭化水素であることと対照的で、種により非常に異なっていた。*Caloglyphus* spp (ゴミコナダニ類) とネッタイチビコナダニのワックスは低分子量の不飽和炭化水素で主に C_{19} と C_{17} であった。*Tyrophagus* 属 (ケナガコナダニ類) のワックスは hexyl linolate, *Aleuroglyphus ovatus* (ムギコナダニ) のそれは neryl myristate であった。一方、*Lardoglyphus honoi* (コウノホシカダニ) と *Dermatophagoides farinae* (コナヒョウヒダニ) のワックスはコレステロールであるが、これはエサ由来だと考えている。他にスクアレンも同定したが、エサ

にそれが含まれている時はワックスとして利用することが明らかになった。ワックス層は無極性物質で、極性のある殺ダニ剤の透過を妨げる。この化学的な防護壁がダニの種類毎に大いに異なることが判明した。

審 査 の 要 旨

本論文は4種の無気門亜目コナダニ類の警報フェロモンをそれぞれ同定し、ゴミコナダニの一種の性フェロモン (β -アカリジアル) をコナダニ類で初めて同定した。またフェロモン成分を含めて、新規なモノテルペンを3種類同定し、それぞれ α -および β -アカリジアルエポキシネラルと命名した。 α -および β -アカリジアルは強力な抗菌活性を示した。これらのフェロモン成分のガスクロマトグラムのプロフィールが *Tyrophagus* 層コナダニ4種で特徴的にことなり、ガスクロマトグラフィによる化学分類の可能性を提唱した。コナダニ類の体表成分が種により特徴的に異なることを実証し、生物学的意義および殺ダニ剤開発のための基礎的知見を提供している。以上のようにコナダニ類全体の化学生態学を総括的に推進し、独自の研究領域を確立したことは非常に高く評価できるものである。

よって、著者は農学博士の学位を受けるに十分な資格があるものとみとめる。