

<Original article>

길초근(*Valeriana fauriei* Briquet) 및 양강근(*Alpinia galangal* Swartz) 정유의 유제 및 입제제형의 잉어(*Cyprinus carpio*)에 대한 급성독성

전황주 · 김경남 · 김용찬 · 이성은*

경북대학교 응용생명과학부

Acute Toxicities of Emulsifiable Concentrates and Granules of *Valeriana fauriei* Briquet and *Alpinia galangal* Swartz Essential Oils against *Cyprinus carpio*

Hwang-Ju Jeon, Kyeongnam Kim, Yong-Chan Kim and Sung-Eun Lee*

School of Applied Biosciences, Kyungpook National University, Daegu 41566, Republic of Korea

Abstract - In this study, two essential oils (EOs) extracted from *Aleriana fauriei* and *Alpinia galangal* were formulated as an emulsifiable concentrate (EC) and a granule. In the evaluation of their acute toxicity on fishes, *Cyprinus carpio* adults were used and the toxicities were determined in a static condition. The formulations were prepared from the essential oil extracted by three different methods namely steam distillation (SD), solvent extraction (SE) and supercritical fluid extraction (SFE). The acute toxicities were calculated using LC₅₀ values. Among EOs, only the EO extracted by solvent showed acute toxicities on carps. Some of the EC, EOs of *Aleriana fauriei* did not exhibit toxicity, while EOs from *Alpinia galangal* showed potent acute toxicities on carps. Among the granules, granules formulated with *Aleriana fauriei* EO extracted by SD method and *Alpinia galangal* EO extracted by SFE method showed acute toxicities on fishes. Nevertheless, LC₅₀ of ECs and granules formulated with all types of EOs in this study was higher than the fish toxicity level III for pesticides suggested by Korea Rural Development Administration. Furthermore, cytochrome P450 1A and glutathione S-transferase were confirmed as biomarkers in carps in response to the exposure to *Alpinia galangal* EO extracted by SD and SFE method, tracking *Alpinia galangal* EO in the aquatic environment.

Keywords : acute toxicity, *Cyprinus carpio*, emulsifiable concentrate, granules, galangal essential oil

서 론

식물의 잎, 뿌리, 껍질 등 다양한 부분에서 추출한 정유(Es-

sential oils)는 살충 및 살균효과가 탁월한 것으로 알려져 있다(Baratta *et al.* 1998; Carno *et al.* 2008; Jeong *et al.* 2010; Hassan *et al.* 2012). 따라서 이들을 이용한 살충제 개발이 활발히 이루어지고 있다. 정유의 살충효과는 *Pediculus humanus capitis* (Yang *et al.* 2004), *Callosobruchus maculatus* (Jumbo

* Corresponding author: Sung-Eun Lee, Tel. 053-950-7768,
Fax. 053-953-7233, E-mail. selpest@knu.ac.kr

et al. 2018) 등에서 나타난 바와 같이 혼중작용이 주를 이루었으나, 접촉독성 및 기피작용 또한 보고된 바 있다(Gao et al. 2018).

정유 중 살충성분이 우수한 물질로 알려진 것은 주로 탄소가 10개로 이루어진 모노테르펜(monoterpenes)류이며 탄소가 15개 혹은 20개인 테르펜물질도 살충성분으로 보고되고 있다. 최근에 양강근 정유와 양강근 정유의 주요성분 중 하나인 methylcinnamate의 미국선녀벌레(*Metcalfa pruinosa* Say)에 대한 살충 및 기피효과가 보고되었는데, 특히 methylcinnamate 유제는 살충 및 기피효과의 결합으로 인해 이들에 대해 방제효과가 탁월한 것으로 입증되었다(Park et al. 2018). 또한 길초근에서 추출한 정유들의 갈색날개매미충(*Ricania shantungensis*) 살충효과 실험에서는 수증기증류법으로 추출한 정유의 살충효과가 용매추출법 또는 초임계추출법으로 추출한 정유의 살충효과에 비해 우수한 것으로 보고되었다(Lee et al. 2018).

정유의 뛰어난 살충효과는 아메리칸바퀴벌레(*Periplaneta americana*)를 이용한 살충효과 작용기작 연구에서 밝혀진 바와 같이 시험 정유는 신속하게 공시충의 움직임을 고정화시키며 녹다운(knockdown)상태로 유도하였다(Enan 2001). 더불어 시험 정유는 아메리칸 바퀴벌레의 심장박동수를 빠르게 하고 cAMP의 체내 농도를 상승시켰다(Enan 2001). 흥미로운 것은 [³H]octopamine이 결합하는 수용체에 시험 정유의 성분들이 경쟁적으로 결합하여 수용체의 작동을 저해한다는 것이다. 이런 효과를 나타내는 정유성분으로 eugenol, a-terpineol, 그리고 이들의 혼합물 등이 있다(Enan 2001). 최근에 이르러, *Malaleuca alternifolia* 정유는 미토콘드리아의 NAD⁺/NADH dehydrogenase의 활성을 저해하여 체내 NAD⁺/NADH의 비율을 변화시키는 것으로 확인되었으며, 이는 미토콘드리아의 전자전달계의 원활한 활동을 유지할 수 없도록 한다(Liao et al. 2018). 이러한 작용기작 외에 신경전달물질인 acetylcholine의 가수분해를 돕는 acetylcholinesterase에 대한 활성저해도 보고된 바 있다(Lee et al. 2001).

그러나, 정유를 이용한 살충제의 개발 및 활용에 있어 이들이 환경에 미칠 잠재적 영향 평가가 선행되어 환경안전성에 대한 정보를 확보할 필요성이 있다. 최근에 고수정유(Coriander essential oil)에 tergitol을 계면활성제로 사용한 유제 제형이 잉어에 대한 급성어독성을 나타내지 않았음이 확인되었다(Nam et al. 2016). 또한, 유제 및 입제화로 한 계피 정유에 대해 잉어와 제브라피쉬에 대한 급성독성 및 만성독성을 평가하여 이들 제형의 정유의 살충제로써의 사용 가능성에 대한 연구가 보고되었다(Nam et al. 2018).

이와 같이 본 연구는 살충효과가 뛰어난 것으로 알려진 길초근(Lee et al. 2018) 및 양강근 정유(Park et al. 2018)를 활용

한 살충제 개발을 위하여 국내산 잉어를 활용하여 이들 정유의 수계생물에 대한 급성독성을 평가하고 이들을 제형화 하였을 때 이들 제형이 생태 및 환경에 미칠 영향을 평가하였다.

재료 및 방법

1. 시험물질

시험에 사용된 길초근(*Valeriana fauriei*) 및 양강근(*Alpinia galangal*) 정유는 수증기증류법(Solvent Extraction; SE), hexan을 이용한 용매추출법(Solvent Extraction; SE), 그리고 초임계추출법(Supercritical Fluid Extraction; SFE)을 이용하여 추출한 정유를 전북대학교 생물환경화학학과 응용식품생화학 연구실로부터 제공받아 사용하였다. 사용된 유화제는 tergitol로 비이온계 계면활성제를 Sigma-Aldrich (St Louise, MO)로부터 구입하였다.

2. 시험생물

본 어독성 실험에 사용된 잉어(*Cyprinus carpio*)는 오창양어장(오창, 충북)으로부터 잉어를 구입하여 사용하였으며 경북대학교로 옮겨져 1주일 이상 순화시켜 사용하였다. 순화 조건은 26±1°C, 광주기 16L:8D 시간을 유지하였으며 하루 3번 먹이를 공급하였다. 시험 실시 24시간 전부터 먹이 공급을 중단하고 잉어의 전장이 최소 3~5 cm인 건강한 개체를 선별하여 사용하였다.

3. 유제 및 입제의 제조

길초근 및 양강근 정유 유제는 Tergitol과 에탄올을 유화제 및 용제로 각각 사용하여 최종 제형 비를 5:1:4(정유:유화제:에탄올)로 설정하여 제조되었다(Nam et al. 2016). 입제는 담체로 입자크기 45 μm 미만인 Zeolite (Sigma-Aldrich, St Louise, MO)를 사용하여 유제를 흡유시켜 제조하였으며 최종 제형비를 1:9(유제:Zeolite)가 되도록 제조하였다.

4. 급성어독성 실험

농촌진흥청 환경생물 독성 시험기준과 방법(제5조 제1항 제4호)에 따라 잉어에 대한 급성독성실험을 수행하였다. 모든 급성독성실험은 유리 비커를 이용하였으며 탈염소화 시킨 물 5L에 각각의 물질을 혼합하고 3~5 cm 전장의 잉어 10마리를 넣은 뒤 24시간 주기로 관찰하여 96시간 동안 노출하였으며 3반복 시험하였다. 온도 26±1°C, 광주기 16L:8D 시간을 유지하였으며 시험기간 내에는 먹이를 공급하지 않았

Table 1. Primer list for the determination of mRNA levels of genes in carps tested in this study

Gene name	Direction	Sequence (5'-3')	Accession number
Beta-actin	Forward	CCATGAGACTACCTTCAACTCCA	JQ619774.1
	Reverse	TTCATGGTGGAGGGAGCAAG	
Cytochrome P450 1A	Forward	AGTGGCCTACCTGAGATCC	AB048939.1
	Reverse	GAAGGACGAATGGCGGAAGA	
Cytochrome P450 3A	Forward	GCTCCGGTGGACTATGAAGG	GQ376154.1
	Reverse	GGGATCATCACCACCACGTC	
Catalase	Forward	GCGGAGAAGTGGAAAGTGGAA	GQ376154.1
	Reverse	GCGGCATGTTACTGGGATCA	
Glutathione S-transferase Alpha	Forward	AGCAAAAGGCCAAAGATCGC	LC071500.1
	Reverse	GCCTGGATTTGGGAAAGCG	

다. 길초근 및 양강근에서 세 가지 추출법으로 추출한 정유와 아세톤을 무게비 50:50으로 혼합한 것을 추출법 별 원제로 사용하였다. 잉어급성독성 시험은 길초근 및 양강근 정유의 각 추출법 별로 상이한 농도로 설정하여 수행하였는데, 수증기증류법은 유효성분이 6, 8, 10, 11, 12, 13, 15, 20 mg L⁻¹, 핵산추출법은 6, 8, 10, 12, 15, 20 mg L⁻¹, 초임계 추출법은 6, 8, 10, 15, 20 mg L⁻¹이 되도록 처리하여 급성독성시험을 수행하였다. 유제에 대한 급성독성 실험 시 대조군은 각 유제의 추출법 별로 가장 많은 양의 유효제가 첨가된 유제를 기준으로 유효성분을 제외하고 동일한 비율로 용액을 제조하여 사용하였다.

5. 분자생물학적 분석

양강근의 수증기증류법과 초임계추출법 두 가지 추출법에 따라 획득한 원제에 대하여 잉어의 분자수준에서의 반응을 확인하기 위해 96시간 급성독성 시험 종료 후 살아있는 잉어 시료를 수거하였다. 확보한 시료는 DEPC water (바이오세상, 성남)를 사용하여 2회 세척하고, 액체질소로 급속 냉동한 뒤 막자사발과 막자를 이용하여 갈아주었다. 이를 Trizol (Sigma-Aldrich, St Louise, MO)를 이용하여 total RNA를 추출해 내었다. 추출한 RNA로부터 cDNA를 합성하기 위하여 Maxima First Strand cDNA Synthesis Kit (Sigma-Aldrich, St Louise, MO)를 사용하였으며 합성한 cDNA를 주형으로 하여 RT-qPCR을 실시하였다. mRNA의 발현량 변화를 확인하는데 사용한 프라이머는 National Center for Biotechnology Information (NCBI)에서 제공하는 Primer-BLAST를 이용하여 제작하였으며 beta-actin을 housekeeping gene으로 사용하였다. 제작한 프라이머의 시퀀스는 Table 1과 같다.

6. 통계분석

실험에서 얻어진 결과 값은 통계프로그램 (SPSS)을 사용

Table 2. Acute toxicity of essential oils extracted from *Valeriana fauriei* and *Alpinia galangal* to carps (*Cyprinus carpio*)

Technical products	48h LC ₅₀ (mg L ⁻¹) (95% fiducial limits)	96h LC ₅₀ (mg L ⁻¹) (95% fiducial limits)
Valeriana (SD) ¹	— ^a	—
Valeriana (SE) ²	12.0 (7.86–15.3)	9.85 (4.23–66.0)
Valeriana (SFE) ³	—	—
Alpinia (SD) ¹	—	—
Alpinia (SE) ²	17.2 (14.7–24.2)	14.0 (12.5–16.3)
Alpinia (SFE) ³	—	—

^aLC₅₀ values were greater than 10 mgL⁻¹. ¹Steam distillation, ²Solvent extraction with hexane, ³Supercritical Fluid Extraction.

하였으며 프로빗 (Probit) 분석을 통해 95% 신뢰한계에서 반수치사농도 (LC₅₀)를 구하였다. 실험군 간의 유의성을 비교하기 위하여 *t*-test (*p* < 0.05)를 수행하였다.

결과 및 토의

잉어에 대한 길초근 (*Valeriana fauriei*) 및 양강근 (*Alpinia galangal*) 정유 원제의 급성독성은 Table 2에 나타나 있다. 수증기증류법 (SD)으로 추출된 길초근 정유 원제에서는 48시간 동안 치사개체가 나타나지 않았으나 용매추출법 (SE)으로 추출한 정유 원제에서는 48h-LC₅₀ 값은 12.0 mg L⁻¹, 96h-LC₅₀ 값은 9.85 mg L⁻¹으로 나타났다.

수증기증류법 (SD)으로 추출한 정유 또는 초임계 추출법 (SFE)으로 추출한 양강근 정유 원제는 독성이 관찰되지 않았으나, SE로 추출한 양강근 정유 원제의 경우 48h-LC₅₀ 값이 17.2 mg L⁻¹, 96h-LC₅₀ 값은 14.0 mg L⁻¹으로 나타났다. 이러한 결과는 길초근 및 양강근 정유를 용매추출법 (SE)으로 얻은 경우 수증기증류법 (SD)나 초임계 추출법 (SFE)으로 추출한 정유보다 잉어에 대한 독성이 있음을 확인할 수 있었다. 이러한 급성 어독성의 차이는 각 추출법에 따라서 추출되는

Table 3. Acute toxicity of emulsifiable concentrates of essential oils extracted from *Valeriana fauriei* and *Alpinia galangal* to carps (*Cyprinus carpio*)

Technical products	48h LC ₅₀ (mg L ⁻¹) (95% fiducial limits)	96h LC ₅₀ (mg L ⁻¹) (95% fiducial limits)
Valeriana (SD) ¹	— ^a	—
Valeriana (SE) ²	—	—
Valeriana (SFE) ³	—	—
Alpinia (SD) ¹	12.0 (10.1–14.0)	11.9 (10.2–13.6)
Alpinia (SE) ²	6.47 (6.05–6.88)	6.47 (6.05–6.88)
Alpinia (SFE) ³	7.29 (6.32–8.13)	6.78 (5.86–7.58)

^aLC₅₀ values were greater than 10 mgL⁻¹. ¹Steam distillation, ²Solvent extraction with hexane, ³Supercritical Fluid Extraction.

Table 4. Acute toxicity of granules of essential oils extracted from *Valeriana fauriei* and *Alpinia galangal* to carps (*Cyprinus carpio*)

Technical products	48h LC ₅₀ (mg L ⁻¹) (95% fiducial limits)	96h LC ₅₀ (mg L ⁻¹) (95% fiducial limits)
Valeriana (SD) ¹	— ^a	—
Valeriana (SE) ²	14.8 (8.04–19.2)	12.2 (2.39–16.7)
Valeriana (SFE) ³	—	—
Alpinia (SD) ¹	—	—
Alpinia (SE) ²	—	—
Alpinia (SFE) ³	21.8 (14.9–50.3)	20.3 (14.4–33.0)

^aLC₅₀ values were greater than 10 mgL⁻¹. ¹Steam distillation, ²Solvent extraction with hexane, ³Supercritical Fluid Extraction.

정유 성분의 차이에 기인하는 것으로 판단되며, 용매추출법(SE)으로 추출한 정유의 경우 독성을 일으키는 성분이 가장 많이 추출된 것으로 사료된다.

잉어에 대한 길초근 및 양강근 정유 유제의 급성어독성은 Table 3에 나타나 있다. 모든 추출법에서 얻은 길초근 정유로 제조된 유제에서 독성이 관측되지 않았는데 이는 유제 제조 시 반으로 감소된 정유의 절대량 때문인 것으로 판단된다. 반면에 양강근 정유 원제의 경우, 모든 추출법에서 얻은 정유로 제조된 유제에서 모두 독성이 나타났다. 그 중에서도 용매추출법(SE)으로 추출한 정유로 제조된 유제에서는 48h-LC₅₀과 96h-LC₅₀ 모두 6.47 mg L⁻¹로 동일하였다. 수증기증류법(SD)으로 추출한 정유로 제조된 유제에서는 48h-LC₅₀과 96h-LC₅₀ 값은 12.0 mg L⁻¹로 산출되었고, 초임계추출법(SFE)으로 추출한 정유로 제조된 유제에서는 48h-LC₅₀값은 7.29 mg L⁻¹, 96h-LC₅₀값은 6.78 mg L⁻¹이었다. 산출된 모든 독성 값들이 2 mg L⁻¹ 이상이므로 어독성 3급에 속하는 농약으로 구분된다. 이러한 결과는 향후 또 다른 정유 원제를 제제화하여 친환경농자재로 개발 시 환경 중 수생태계에 미치는 영향을 평가가 수행되어야 함을 보여준다.

잉어에 대한 길초근 정유 입제의 급성어독성 결과는 Table

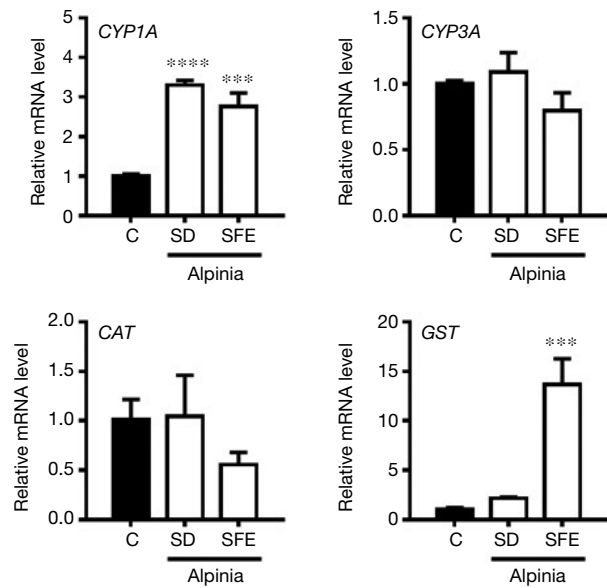


Fig. 1. mRNA levels for the genes expressed in the carps (*Cyprinus carpio*) exposed to the *Alpinia galangal* essential oils extracted by steam distillation and supercritical fluid extraction. CYP1A, Cytochrome P450 1A; CYP3A, Cytochrome P450 3A; CAT, Catalase; GST, Glutathione S-transferase Alpha; C, Control; SD, Steam distillation; SFE, Supercritical fluid extraction.

4에 나타내었다. 수증기증류법(SE)으로 추출된 정유와 초임계추출법(SFE)으로 추출한 정유의 입제는 독성이 관측되지 않았으나 용매추출법(SE)으로 추출한 정유의 입제만 독성을 나타내었고 48h-LC₅₀ 값은 14.8 mg L⁻¹, 96h-LC₅₀ 값은 12.2 mg L⁻¹로 나타났다. Table 4의 결과는 용매추출법(SE)으로 추출한 길초근 정유가 입제화 되었을 때 다른 추출법으로 추출한 정유를 입제화한 것보다 어독성이 더 높음을 보여주었다. 그럼에도 불구하고 이 정유 입제는 어독성 3급에 속하는 농약으로 구분된다. 비슷하게 양강근 정유의 경우, 초임계추출법(SFE)으로 추출한 정유의 입제만이 독성을 나타내었고 48h-LC₅₀ 값이 21.8 mg L⁻¹ 수준으로 나타났다. 동일한 시료에 대한 96h-LC₅₀ 값은 20.3 mg L⁻¹으로 나타났다. 이 정유 또한 어독성 3급에 속하는 농약으로 구분된다.

양강근 정유 원제 중 수증기증류법(SD) 및 초임계추출법(SFE)으로 추출한 정유 원제에 노출된 잉어의 분자수준에서 반응을 확인하여 Fig. 1에 나타나 있다. Fig. 1에서 나타난 것과 같이, 두 가지 방법으로 추출된 양강근 정유의 원제 노출된 잉어 모두에서 cytochrome P450 1A 유전자의 양이 약 3 배 정도 증가되었고 반면에 cytochrome P450 3A 유전자는 변화가 없었다. 또한, catalase 유전자의 변화는 관측되지 않았고 glutathione S-transferase 효소를 발현시키는 유전자는 초임계

추출법(SFE)으로 추출한 정유 원제에 노출된 잉어에서 15배 증가되는 유의성 있는 발현량 변화가 확인되었다. 향후, 양강근 정유의 수계환경 노출 시 잉어 내 반응 바이오마커로서 cytochrome P450 1A 또는 glutathione S-transferase를 활용 가능할 것으로 보여진다.

식물로부터 추출한 정유를 살충제로서 개발하기 위해서는 이들이 지닌 살충효과를 검증하는 것 외에 환경 중 동태와 비표적 대상 생물에 대한 독성유무를 확인하여 환경영향평가를 실시하여야 한다. 따라서, 본 연구에서는 길초근 및 양강근 정유를 유제와 입제로 제형화 한 후 잉어에 대하여 나타난 급성어독성 값을 구하였다.

길초근과 양강근정유 원제는 잉어에 대하여 48시간 급성어독성 실험결과를 토대로 어류에 대한 독성정도에 따른 농약 구분에서 어독성 3급에 속하며 가장 낮은 독성정도를 나타내었다. 길초근정유 유제는 잉어에 대한 어독성이 10 mg L^{-1} 이상으로 나타났으며 양강근정유 유제의 경우도 약한 급성어독성이 관찰되었으나 반수치사농도 값이 2 mg L^{-1} 이상으로서 이 모든 결과는 어류에 대한 독성정도에 따른 농약 구분에서 어독성 3급에 속하며 가장 낮은 독성정도를 나타내었다. 길초근과 양강근정유의 입제도 유제와 유사한 독성결과를 나타내어 환경 중 어독성이 매우 낮은 것으로 판명되었다. 그러나, 급성어독성 값이 낮더라도 다른 수생생물을 이용한 실험에서 높은 독성값을 나타낼 수 있으므로 다른 시험생물에 이용한 독성실험이 필요하다.

본 연구에서 사용한 길초근 및 양강근 정유의 유제 혹은 입제의 어독성 외에, 계피정유의 경우 물벼룩, 송사리, 꿀벌, 지렁이 등을 이용하여 생태독성평가 결과를 보고하였다(You *et al.* 2011). 이중 계피정유의 송사리에 대한 급성독성은 LC_{50} 값이 7.5 mg L^{-1} 으로 나타났고 이 값은 다른 연구 결과 값과 크게 다르지 않았다(Nam *et al.* 2018). 본 연구와 비슷하게 배추좀나방을 방제하기 위하여 개발된 계피정유의 유제는 생태독성평가를 실시하여 잉어에 대한 급성독성이 1.9 mg L^{-1} 로 나타났고 이는 어독성 II급에 해당되는 독성으로 판명되었다(You *et al.* 2013).

향후 길초근과 양강근정유 유제 및 입제의 경우 환경에 대한 안전성을 확보하기 위하여 잉어와 송사리 등을 이용한 만성어독성실험과 꿀벌에 대한 알파파 염상잔류독성 실험 등을 실시하고 살충제로 사용될 정유의 만성 어독성정도와 육상생태계 중 시험생물에 대한 독성정도를 평가하는 것이 필요하다고 보여 진다.

적 요

길초근 및 양강근정유를 유제 및 입제로 제형화한 후 이들

의 급성어독성을 측정하였다. 잉어를 이용한 급성독성에 사용된 길초근 및 양강근 정유는 수증기증류법, 헥산을 이용한 용매추출법 및 초임계추출법을 이용하여 추출하였고 이들의 유제 및 입제의 급성어독성은 반수치사농도(LC_{50})를 구하여 평가하였다. 길초근 및 양강근 원제 중 용매추출법으로 추출한 정유만이 어독성을 나타내었다. 길초근 및 양강근 추출법 별 정유 이용한 유제의 급성어독성 평가한 결과 길초근의 경우 모든 추출법 대하여 독성을 나타내지 않은 반면에 양강근 정유는 추출법에 관계없이 모두 잉어에 대한 어독성이 관측되었다. 입제의 경우 길초근은 용매로 추출한 정유에서 독성이 나타났고, 양강근 정유의 경우 초임계추출법으로 추출한 정유 입제에서만 어독성이 관측되었다. 이러한 결과는 3급 어독성에 해당되는 것으로 환경 중 사용에는 문제가 없다고 사료된다. 살충효과가 뛰어난 양강근 정유의 경우 수증기증류법 및 초임계추출법으로 추출한 정유의 10 mg L^{-1} 수준에서 노출된 잉어의 분자적 반응을 확인하여 cytochrome P450 1A 효소 및 glutathione S-transferase의 발현이 급격히 증가하였음을 확인하였고 이들은 수계환경 중 양강근 정유의 동태를 관찰하는 바이오마커로서 사용 가능하다고 사료된다.

사 사

본 연구는 농촌진흥청 공동연구사업(세부과제명: 고수, 길초근 등 유래 기능성 물질 이용 주요 농작물 해충 방제제 개발, 과제번호: PJ011983032016)의 지원으로 이루어진 것이며, 이에 감사드립니다.

REFERENCES

- Baratta MT, HJD Dorman, SG Deans, AC Figueiredo, JG Barroso and G Ruberto. 1998. Antimicrobial and antioxidant properties of some commercial essential oils. *Flavour Frag. J.* 13:235-244.
- Carmo ES, EDO Lima, EL De Souza and FB De Sousa. 2008. Effect of cinnamomum zeylanicum blume essential oil on the growth and morphogenesis of some potentially pathogenic aspergillus species. *Braz. J. Microbiol.* 39:91-97.
- Enan E. 2001. Insecticidal activity of essential oils: octopamine sites of action. *Comp. Biochem. Physiol. C Toxicol. Pharmacol.* 130:325-337.
- Gao Q, L Song, J Sun, HQ Cao, L Wang, H Lin and F Tang. 2018. Repellent action and contact toxicity mechanisms of the essential oil extracted from Chinese chive against

- Plutella xylostella* larvae. Arch. Insect Biochem. Physiol. 2018:e21509.
- Hassan SA, R Barthwal, MS Nair and SS Haque. 2012. Aqueous bark extract of *Cinnamomum zeylanicum*: a potential therapeutic agent for streptozotocin-induced type 1 diabetes mellitus (T1DM) rats. Trop. J. Pharm. Res. 11:429–435.
- Jeong M, MJ Kwon, SJ Park, SS Hong, KH Park, JE Park and SH Yeon. 2010. Evaluation of acute toxicity of plant extracts, lavender, lemon eucalyptus and cassia essential oil. Korean J. Pestic. Sci. 14:339–346.
- Jumbo LOV, K Haddi, LRD Faroni, FF Heleno, FG Pinto and EE Oliveira. 2018. Toxicity to, oviposition and population growth impairments of *Callosobruchus maculatus* exposed to clove and cinnamon essential oils. PLoS One 13: e0207618.
- Lee BH, WS Choi, SE Lee and BS Park. 2001. Fumigant toxicity of essential oils and their constituent compounds towards the rice weevil, *Sitophilus oryzae* (L.). Crop Prot. 20:317–320.
- Lee SK, SW Jeon, IH Jeong, SK Park, SB Lee, HS Lee and B Park. 2018. Insecticidal activity of *Valeriana fauriei* oils extracted by three different methods against *Ricania shantungensis*. J. Appl. Biol. Chem. 61:47–50.
- Liao M, QQ Yang, JJ Xiao, Y Huang, LJ Zhou, RM Hua and HQ Cao. 2018. Toxicity of *Melaleuca alternifolia* essential oil to the mitochondrion and NAD⁺/NADH dehydrogenase in *Tribolium confusum*. PeerJ 6:e5693.
- Nam TH, HJ Jeon, K Kim, Y Choi and SE Lee. 2016. Acute toxicity of emulsifiable concentrate of coriander essential oils against *Cyprinus carpio*. Korean J. Environ. Biol. 34: 208–211.
- Nam TH, HJ Jeon, K Kim, HM Kim, YC Kim and SE Lee. 2018. Ecotoxicities of emulsifiable concentrate and granules of cinnamon (*Cinnamomum zeylanicum*) essential oil against *Cyprinus carpio* and *Danio rerio*. J. Appl. Biol. Chem. 61: 151–155.
- Park B, SK Lee, IH Jeong, SK Park and SB Lee. 2018. Insecticidal activities and repellent effects of methylcinnamate and essential oils from *Alpinia galangal* against nymphs and adults of *Metcalfa pruinosa*. J. Appl. Biol. Chem. 61:291–295.
- Yang YC, HS Lee, JM Clark and YJ Ahn. 2004. Insecticidal activity of plant essential oils against *Pediculus humanus capitis* (Anoplura: Pediculidae). J. Med. Entomol. 41:699–704.
- You AS, YW Choi, MH Jeong, SS Hong, YK Park, HS Jang, JY Park and KH Park. 2011. Acute ecotoxicity evaluation of thyme white, clove bud, cassia, lavender, lemon eucalyptus essential oil of plant extracts. Korean J. Pestic. Sci. 15:350–356.
- You AS, MH Jeong, SS Hong, HS Chang, JB Lee, KH Park, YM Lee and Y Ihm. 2013. Acute ecotoxicity of environmental-friendly organic agro-materials containing pepper extract, cassia oil, lavender oil for control of diamondback-moth. Korean J. Pestic. Sci. 17:343–349.

Received: 12 December 2018

Revised: 16 December 2018

Revision accepted: 17 December 2018