

薬用植物の乾燥方法と生薬の品質 (1) 表面色の数値的評価と商品価値

山口茂治^{*,a}, 川村智子^b, 野呂征男^b, 河村和彦^c, 田中俊弘^a

^a岐阜薬科大学, ^b名城大学薬学部, ^c中部電力(株)電気利用技術研究所

Drying Method of Medicinal Plants for the Quality Control of Crude Drugs (1) Numerical Evaluation of Surface Color and Commercial Value

YAMAGUCHI Shigeharu,^{*,a} KAWAMURA Tomoko,^b NORO Yukio^b

KAWAMURA Kazuhiko^c and TANAKA Toshihiro^a

^aGifu Pharmaceutical University, 5-6-1, Mitahora-higashi, Gifu 502-8585, Japan

^bFaculty of Pharmacy, Meijo University, Yagotoyama 150, Tempaku-ku, Nagoya 468-8503, Japan

^cElectrotechnology Applications Research & Development Center, Chubu Electric Power Co., Inc.
Kitasekiyama 20-1, Ohdaka-cho, Midori-ku, Nagoya 459-8522, Japan

(Received October 13, 2000)

Four medicinal plants, *Houttuynia cordata*, *Geranium thunbergii*, *Prunella vulgaris* var. *lilacina* and *Gardenia jasminoides* were dried under various conditions, and evaluated according to their numerical surface color and the content of each chemical indicator. The leaves of *H. cordata* dried by dehumidifying at 30°C showed the most vivid yellowish green and the highest content of quercitrin. For the leaves of *G. thunbergii*, shade drying in the open was not an appropriate method as the color of the leaves changed to brown and as the geraniin content was decreased by half. The freeze-dried spike of *P. vulgaris* var. *lilacina* showed the highest content of rosmarinic acid. The unsuitable methods for the fruit of *G. jasminoides* were freeze-drying, dehumidifying at 30°C, and through-flow drying at 50°C because the fruits turned black and the content of geniposide was diminished.

Keywords: drying method; surface color; *Houttuynia cordata*; *Geranium thunbergii*; *Prunella vulgaris* var. *lilacina*; *Gardenia jasminoides*; quercitrin; geraniin; rosmarinic acid; geniposide

薬用植物のほとんどは採取後、加工乾燥されて「生薬」という形態で利用される。古く乾燥に関して中国の本草書では、陶弘景¹⁾が「ただ陰影の處に曝して乾かせばよい」とし、馬志²⁾は「草木の根と苗で九月以前に採るものはいずれも日光で乾かすがよく、十月以後に採るものは陰乾でよく行く」としている。また近代において、葯材学³⁾では「通常、日に干す(陽乾)、陰干し(陰乾)、火力乾燥」の3つの方法が示されている。日本においては大和本草⁴⁾に「根も葉も夏秋とる物は日に乾し、冬春とる物は陰乾にすべし」とある。現在では第13改正日本薬局方⁵⁾において「生薬は通常風乾によって乾燥し、通例、60°C以下で行

う」と規定されている。天候に左右されず、また生産効率の面からも、温風乾燥機などによる機械化が進められ、乾燥時間の短縮や品質の安定化が求められている。乾燥方法や条件を変えることで、仕上がった生薬の品質にどのような影響を与えるか、従来、民間で日干しや陰干しにして利用されているドクダミ、ゲンノショウコ、ウツボグサ、および乾燥しにくいと言われるクチナシを用いて、色彩と指標成分の変動から品質を検討した。

実験の部

TABLE I. Influence of Drying Method on the Tone Values L^* of the Surface Color

	<i>Houttuynia cordata</i>	<i>Geranium thunbergii</i>	<i>Prunella vulgaris</i> var. <i>lilacina</i>	<i>Gardenia jasminoides</i>
Solar drying	43.8 ± 2.6	43.0 ± 2.4	44.8 ± 1.4	41.0 ± 6.1
Shade drying				
indoor	40.4 ± 2.2	38.6 ± 5.6	38.4 ± 2.1	41.8 ± 2.5
north outside	39.5 ± 3.6	35.7 ± 3.9	37.4 ± 1.5	43.1 ± 2.1
south outside	34.7 ± 1.1	44.2 ± 2.9	34.7 ± 1.7	42.4 ± 3.5
Air-drying				
through-flow at 50°C	40.3 ± 0.5	39.2 ± 2.9	39.9 ± 2.9	23.8 ± 2.2
dehumidifying at 30°C	41.9 ± 4.1	44.1 ± 4.2	43.7 ± 2.6	37.3 ± 4.5
Freeze-drying	48.5 ± 4.4	48.2 ± 2.7	56.6 ± 3.9	29.4 ± 3.4

Each value represents mean ± S.D. (n = 5).

実験材料

A. ドクダミ *Houttuynia cordata* THUNB. (*Saururaceae*) の花期の地上部, 岐阜薬科大学薬草園 (岐阜市), 1999 年 6 月下旬採取.

B. ゲンノショウコ *Geranium thunbergii* SIEB. et ZUCC. (*Geraniaceae*) の地上部, 岐阜薬科大学薬草園 (岐阜市), 1999 年 8 月上旬採取.

C. ウツボグサ *Prunella vulgaris* L. var. *lilacina* NAKAI (*Labiatae*) の花穂, 岐阜薬科大学薬草園 (岐阜市), 1999 年 8 月上旬採取.

D. クチナシ *Gardenia jasminoides* ELLIS (*Rubiaceae*) の黄変した完熟果実, 名古屋市八事霊園周辺 (名古屋市), 1999 年 12 月上旬採取. 乾燥後, がくを取り除いた.

ドクダミとゲンノショウコは頂端から 3 節目の成葉を供試材料とした.

乾燥方法

天日乾燥では新聞紙に試料を広げ, 葉と花穂は 3~5 日, 果実は約 3 週間直射日光にあてた. 風乾では室内の上部, 屋外北側 1 階と南側 2 階の軒下に 5 本ずつを束にして約 3 週間吊り下げた. 南側 2 階では西日と風雨の影響を多少受けた. 50°C 通風乾燥 (TARAI MFC, Temperature Chamber) では, 葉と花穂は半日, 果実は 2 日間乾燥した. 30°C 除湿乾燥 (TOYO, INCUBATOR IS-1600E) では, 葉と花穂は 1 週間, 果実は約 3 週間乾燥した. 凍結乾燥では試料を凍結後, 凍結乾燥機 (東京理化, FD-5N 型, ドライチャンバー内は 20~30°C) で, 葉と花穂は 1 日, 果実は 3 日間減圧乾燥した. 乾燥後, 試料は除湿して冷暗所に保存した. 各乾燥方法につき 5 検体を供試材料とした.

色彩測定

乾燥させた試料表面の反射光を色彩色差計 (ミノルタ, CR-241) で測定して数値化した. 測定条件は光源: パルスキセノンランプ, 45° 環照明垂直受光方式, 測定径: 1.8

mm で行った. 各試料の測定位置 5 点を決め, その平均値を各個体の数値とした. 葉は向軸面で比較した.

指標成分の定量

ドクダミの quercitrin⁶⁾, ゲンノショウコの geraniin⁷⁾, ウツボグサの rosmarinic acid^{8,9)}, クチナシの geniposide¹⁰⁾ を指標成分として, 既報⁶⁻¹⁰⁾に準じ, HPLC で絶対検量線法により定量した.

結果及び考察

色彩の測定 (明度 L^* と色度 a^*b^*)^{11,12)}

色は色相, 明度, 彩度の要素からなり, これらを客観的な数値で表すには XYZ 表色系, $L^*a^*b^*$ 表色系, UCS 表色系など^{13,14)}があるが, 本研究では色のイメージがつかみやすい $L^*a^*b^*$ 表色系 (CIE 1976)¹⁵⁾を用いた. L^* は明度で, 数値が大きいほど明度は高い. a^* と b^* は色度を表し, a^* の (+) 値が大きいほど彩度の高い赤色, (-) 値が大きいほど彩度の高い緑色, b^* の (+) 値が大きいほど彩度の高い黄色, (-) 値が大きいほど彩度の高い青色を示す. (0) 点から同方向にあるものは同じ色相を示す (Fig. 1, TABLE I).

A. ドクダミ 南側陰干しや 50°C 通風乾燥では緑色の葉が褐色に変化し, a^* は最大の (+) 値を示した. 北側陰干しや室内乾燥では緑色を示し, a^* は (-) の最大値を示した. 天日乾燥では緑色のものや褐色のものがあ, a^* 値にばらつきが見られた. 30°C 除湿乾燥が最も鮮やかな黄緑色で彩度が高く, b^* 値が最大であった. 凍結乾燥では他より白っぽい仕上がりとなり明度 L^* は最大値を示したが, a^*b^* の絶対値は小さく, 彩度は低い値であった. 南側陰干しは L^* 値が最小で暗褐色であった.

B. ゲンノショウコ 南側陰干しでは緑色の葉が赤褐色となり, a^* の最大 (+) 値を示した. 北側陰干しでは暗褐色を示し, L^* は最小であった. 凍結乾燥や 30°C 除湿乾燥や

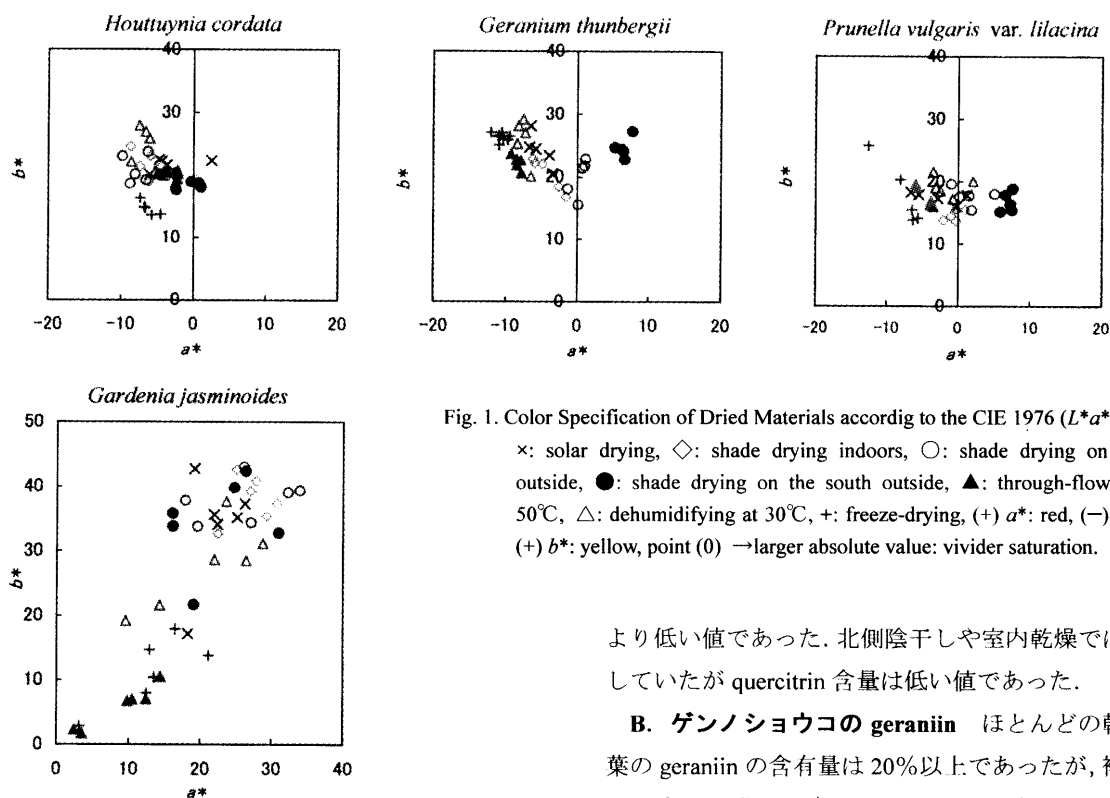


Fig. 1. Color Specification of Dried Materials according to the CIE 1976 ($L^*a^*b^*$) Space
 ×: solar drying, ◇: shade drying indoors, ○: shade drying on the north outside, ●: shade drying on the south outside, ▲: through-flow drying at 50°C, △: dehumidifying at 30°C, +: freeze-drying, (+) a^* : red, (-) a^* : green, (+) b^* : yellow, point (0) → larger absolute value: vivid saturation.

50°C通風乾燥では緑色を示し、 a^* の(-)値は大きな値であった。凍結乾燥と30°C除湿乾燥では a^*b^* の絶対値が大きく彩度の高い黄緑色を示した。

C. ウツボグサ 陰干し(南側, 北側)では花穂は茶褐色となり, 南側陰干しでの a^* の(+)値が最大, L^* は最小値で暗褐色であった。凍結乾燥と50°C通風乾燥では緑色を示し, a^* の(-)値は大きな値であった。凍結乾燥では白っぽく, L^* 値が最大であった。天日乾燥では緑色から褐色までばらつきがあり, a^* 値は大きな変動を示した。

D. クチナシ クチナシの完熟果は油脂質で乾き難く黒変することが知られている¹⁶⁾。今回の実験でも凍結乾燥と30°C除湿乾燥では乾燥が不十分で内部まで黒変したため a^*b^* の絶対値が小さく, 彩度の低いくすんだ色であった。50°C通風乾燥では果皮表面が黒褐色に変化し $L^*a^*b^*$ ともに最小値であった。室内乾燥や北側陰干しでは a^*b^* の絶対値が大きく, b^* 値が大きいものは濃い黄赤色を示した。天日や南側陰干しでは a^*b^* の絶対値にばらつきがあり, 色相だけでなく彩度にも大きなばらつきが見られた。

指標成分の含有量 (TABLE II)

A. ドクダミの quercitrin Quercitrin 含有量が最も高いのは30°C除湿乾燥と天日乾燥の場合であった。葉が暗褐色に変化した南側陰干しは最小値を示した。50°C通風乾燥でも茶褐色に変化し, quercitrin の含有量は30°C除湿乾燥

より低い値であった。北側陰干しや室内乾燥では緑色を示していたが quercitrin 含量は低い値であった。

B. ゲンノショウコの geraniin ほとんどの乾燥方法で葉の geraniin の含有量は20%以上であったが, 褐色に変化した陰干し(北側, 南側)では約1/2に減少した。室内乾燥と南側陰干しでは含有量のばらつきが大きく, 乾燥状態が均質でないと考えられる。他の乾燥方法では比較的ばらつきが少なかった。

C. ウツボグサの rosmarinic acid 凍結乾燥した花穂で rosmarinic acid の含有量が最も高く, 茶褐色に変化した陰干し(北側, 南側)では含有量は僅かであった。30°C除湿乾燥, 天日乾燥, 室内乾燥ではほとんど同じ含有量で, 凍結乾燥の約1/2であった。新鮮な花穂の方が rosmarinic acid の含有量が高いことが報告⁸⁾され, 乾燥過程での分解が推測されているが, 凍結乾燥では分解が少ないことが示された。

D. クチナシの geniposide Geniposide の含有量は50°C通風乾燥で最も高い値であり, 内部まで黒変した凍結乾燥と30°C除湿乾燥では低い値となった。内部の種子塊の方が果皮より geniposide の含有量が高いことが布目ら¹⁷⁾により報告されており, 凍結乾燥や30°C除湿乾燥では内部が乾燥されにくく, geniposide が分解されて低い値になったものと考えられる。

結 論

通常の風乾と比べ, 仕上がりの変色が少なく見え栄えが良く, 含有成分の極端な減少のないものは品質が良く, 商

TABLE II. Influence of Drying Method on the Contents of Chemical Indicators

		<i>Houttuynia cordata</i>	<i>Geranium thunbergii</i>	<i>Prunella vulgaris</i> var. <i>lilacina</i>	<i>Gardenia jasminoides</i>
		Quercitrin	Geraniin	Rosmarinic acid	Geniposide
Solar drying		1.95 ± 0.15	22.2 ± 2.4	3.07 ± 1.04	4.51 ± 0.42
Shade drying	indoor	1.13 ± 0.20	21.1 ± 9.9	2.76 ± 0.67	4.16 ± 0.62
	north outside	1.38 ± 0.50	10.8 ± 2.4	0.23 ± 0.09	4.02 ± 0.40
	south outside	0.79 ± 0.18	7.7 ± 5.0	0.12 ± 0.03	4.31 ± 0.23
Air-drying	through-flow at 50°C	1.15 ± 0.21	22.3 ± 4.4	3.92 ± 1.11	4.72 ± 0.24
	dehumidifying at 30°C	2.02 ± 0.62	22.4 ± 4.2	3.00 ± 1.04	3.54 ± 0.69
Freeze-drying		1.33 ± 0.43	21.6 ± 3.5	6.52 ± 0.93	3.44 ± 0.61

Each value represents mean (%) ± S.D. (n = 5).

品価値があると判断され、以下が各々の薬用植物の最適な乾燥方法である。

1. ドクダミでは 30°C 除湿乾燥が最適である。北側陰干しも適している。天日乾燥では quercitrin 含量は高いが、色のばらつきが大きい。

2. ゲンノショウコでは凍結乾燥、50°C 通風乾燥、30°C 除湿乾燥、天日乾燥が適している。室内乾燥は geraniin 含量、色ともにばらつきが大きい。

3. ウツボグサでは rosmarinic acid 含量の面からは凍結乾燥が最適である。天日乾燥、50°C 通風乾燥、30°C 除湿乾燥、室内乾燥も適していると言える。

4. クチナシでは色および geniposide 含量から、陰干し（室内、北側、南側）および天日乾燥が適している。

今回の実験では色の仕上がりの良さは、緑色の葉では a^* の (−) 値で、黄赤色のクチナシでは b^* の (+) 値で評価できる。温風機械乾燥では 60°C 以下とされているが、イリドイド配糖体を多く含むクチナシでは 50°C でも黒変して、凍結乾燥や 30°C 除湿乾燥といった低い恒温での長時間処理も適さないことが明らかになり、従来の陰干しが最適であった。一般に機械乾燥では変動の少ない均質な仕上がりとなるが、各植物によって、また薬用部によって最適条件を選択する必要がある。

文献および注

- Kimura K., Rev. ed., "Shintyu-kotei-kokuyaku-honzokomoku (新註校定國譯本草綱目)," Vol. 1, Shunyodo, Tokyo, 1979, p.76.
- ibid*, p.77.
- Department of Pharmacognosy, Nanjing College of Pharmacy, ed., "Yao-cai-xue (葯材学)," The people's Health Pub. House, Beijing, 1961, p.257.
- Shirai M., Rev. ed., "Yamato-honzo (大和本草)," Vol. 1, Ariake-shobo, Tokyo, 1975, pp.33-34.
- The committee of Japanese Pharmacopoeia Guide Book, ed., "The Guide Book of Japanese Pharmacopoeia 13th Edition," Hirokawa Pub., Tokyo, 1996, p. D-ii.
- Kawamura T., Hisata Y., Okuda K., Noro Y., Tanaka T., Yoshida M., Sakai E., *Nat. Med.*, **48**, 208-212 (1994).
- Kawamura T., Hisata Y., Okuda K., Mori T., Noro Y., Tanaka T., Sakai E., Kan S., Nishibe S., *Nat. Med.*, **51**, 298-303 (1997).
- Okuda T., Hatano T., Agata I., Nishibe S., *Yakugaku Zasshi*, **106**, 1108-1111 (1986).
- Lamaison J. L., Petitjean-Freytet C., Carnat A., *PHARM. ACTA HELV*, **66**, 185-188 (1991).
- Takahashi S., Ishizaki K., Iwashima Z., Kawai T., Shimada Y., Yamamoto Y., Yoshikawa S., The Abstract Paper of the 28th Symposium on Natural Drug Analysis, Kobe, November 1999, pp. 13-18.
- Noro Y., Hisata Y., Okuda K., Kawamura T., The abstract of the 11th Symposium on Natural Drug Analysis, 1982, pp. 19-22.
- Mikage M., Takeda A., Tsuda Y., *Nat. Med.*, **46**, 1-8 (1992).
- Kawakami G., "JIS Iro-no-Johshiki (色の常識), The second revised and enlarged edition," Japanese Standards Association, Tokyo, 1982, pp. 4-7; 16-45; 127-155.
- Japanese Standards Association, ed., "JIS Hand book Color (色彩)," Japanese Standards Association, Tokyo, 1982, pp. 155-182.
- ibid*, specification of color of materials according to the CIE 1976, CIE=Commission Internationale de l'Eclairage.
- The committee of Japanese Pharmacopoeia Guide Book, ed., "The Guide Book of Japanese Pharmacopoeia 13th Edition," Hirokawa Pub., Tokyo, 1996, pp. D-426-430.
- Nunome S., Okada M., Xie Z., Mitsuhashi H., *J. Jpn. Bot.*, **65**, 129-140 (1990).