

北海道産木香の調製法と化学的品質評価（第3報） 粉碎の容易な木香の調製

青柳 光敏^a, 姉帯 正樹*^a, 柴田 敏郎^b, 畠山 好雄^b

^a 北海道立衛生研究所, ^b 国立医薬品食品衛生研究所北海道薬用植物栽培試験場

Preparation and Chemical Evaluation of *Saussureae Radix* Produced in Hokkaido (Part III) Preparation of Pulverable *Saussureae Radix*

Mitsutoshi Aoyagi^a, Masaki Anetai*^a, Toshiro Shibata^b
and Yoshio Hatakeyama^b

^a *Hokkaido Institute of Public Health,
Kita-19, Nishi-12, Kita-ku, Sapporo 060-0819, Japan*

^b *Hokkaido Experimental Station for Medicinal Plants,
National Institute of Health Sciences,
108 Ohashi, Nayoro 096-0065, Japan*

(Received March 28, 2005)

Saussureae Radix experimentally produced in Hokkaido was hard to pulverize, because the content of dilute ethanol-soluble extract was too high. In order to develop preparation methods for producing *Saussureae Radix* that has a moderate content of dilute ethanol-soluble extract with characteristic odor and is hard and dense in texture, the effects of harvesttime and drying conditions on the content of dilute ethanol-soluble extract, sugars and essential oils and the texture of the dry root were examined using one-year-old taproot of *Saussurea lappa* CLARKE. For the first three weeks after air drying, inulin in the roots could be hydrolyzed enzymatically and the content of fructose and glucose increased, and accordingly dilute ethanol-soluble extract content remarkably increased and the texture changed to oily. The dilute ethanol-soluble extract content of the root split lengthwise into two pieces before drying was significantly lower than that of the whole root, and the texture of split root was similar to marketable quality. The content of costunolide and dehydrocostuslactone of the roots harvested in spring was higher than that of the roots harvested in autumn. From these findings, we consider that in Hokkaido, the best procedure for preparation of pulverable *Saussureae Radix* with the quality required in the market is that the one-year-old taproot of *Saussurea lappa* harvested in spring just after sprouting is dried outdoors for more than three weeks and then dried in hot air at 50°C. In the case of roots which are 2 cm or more in diameter, the root should be split lengthwise before drying.

Keywords: *Saussureae Radix*; *Saussurea lappa*; preparation; dilute ethanol-soluble extract; quality

木香はモッコウ *Saussurea lappa* CLARKE (キク科) の乾燥根で、芳香性健胃薬、薫香料の原料などに使用されるほか、漢方処方にも配合される常用生薬の一つである¹⁾。最近是中国雲南省の栽培品が輸入されているが、国産化を目指して北海道でも試作栽培と調製法の研究が行われている^{2~4)}。

木香は「乾燥が良く、根条が均一で、質が堅く、味と香りが濃く、油気があり、枯れず、空洞がなく、外皮が灰黄色のものが良品」とされている⁵⁾。第十四改正日本薬局方収載の「モッコウ：木香」の項には灰分と共にエキス含量が設定されており、希エタノールエキス 17.0% 以上と規定されている¹⁾。しかし、希エタノールエキス含量が 40% 以上になると粉碎が困難であり、粉末を作ることが非常に困難となることが経験的に知られており⁵⁾、適度なエキス含量を有する木香が求められている。

著者らはこれまでに、収穫直後に温風で強制乾燥した木香は粉碎しやすく、その希エタノールエキス含量は低いが、脆くて折れやすく、折口の油気は乏しい上に内部の空洞が多くて充実していないことを明らかにした³⁾。また、前報では主根を自然乾燥すると内部の充実した良品が得られるものの、太い部分の希エタノールエキス含量は 50% 以上の値を示し、粉碎は困難であることを報告した⁴⁾。このように木香の希エタノールエキス含量をはじめとする品質は、ある程度人為的にコントロールできることが明らかとなっている。

そこで、北海道において適度な希エタノールエキス含量を有し、内部の充実した木香作成のための調製法を明らかにするために、モッコウ主根を用い、自然乾燥下における各種成分含量(希エタノールエキス、糖、costunolide 及び dehydrocostuslactone) の経時変化を検討した。また、温風乾燥、縦割り後の自然乾燥、収穫時期などの違いが成分含量及び乾燥根の性状に及ぼす影響も検討した。

実験材料及び方法

北海道薬用植物栽培試験場圃場(名寄市)で採取したモッコウの種子を 1999 年 5 月 25 日に同圃場に播種し、直播栽培した株を用いた。

1. 経時変化用試料(X0~X6)

1 年生株(56 株)を萌芽直後の 2000 年 5 月 8 日に掘上げた。水洗後、地上部、側根及び主根先端部の細い部分を切除し、大きさにより大(根頭径 2.1~2.9 cm, 長さ 15 cm)、中(2.0~2.5 cm, 12.5 cm)、小(1.8~2.8 cm, 5~8 cm)に分類した。大 2 本(a, 約 75 g)、中 2 本(b, 約 55 g)及び小 4 本(c, 約 75 g)をそれぞれネット袋に入れ、a~c 各 1 袋ずつを 1 グループとして、収穫した翌日の 5 月 9 日から以下に示す X0~X6 の処理を行った。なお、温風乾燥は送風定温乾燥器(ヤマト科学(株)製 DN-61 型)中、50℃で 48 時間行った。

X0: a~c 各々を約 5 mm の厚さにスライス後、直ちに温風乾燥した。

Xn: 風乾舎(札幌市北区)に吊し、自然乾燥した。7 日後(X1)、14 日後(X2)、21 日後(X3)、28 日後(X4)、35 日後(X5)及び 42 日後(X6)に、a~c 各々を約 5 mm の厚さにスライスし、温風乾燥した。

2. 春掘試料(A~F)の調製法

上記と同一日に掘上げた 1 年生株(34 株)を用いた。水洗後、地上部及び側根を切除し、主根を根頭部から 10 cm の長さに切り揃え、試験に供した。A 及び D の各処理区には根頭径 1~2 cm のものをそれぞれ 7 本、B, C, E 及び F には根頭径 2~3 cm のものをそれぞれ 5 本供した。

A, B: 原形のまま 50℃の温風を 72 時間当て、強制乾燥した(丸干し)。

C: 縦に二分割後、A と同様に乾燥した(割干し)。

D, E: 原形のまま風乾舎(名寄市)で自然乾燥(5月8日~6月7日)後、50℃の温風を 72 時間当て、強制乾燥した(丸干し)。

F: 縦に二分割後、D と同様に乾燥した(割干し)。

3. 秋掘試料(G~L)の調製法

1 年生株(34 株)を 1999 年 10 月 12 日に掘上げ、春掘試料(A~F)と同様に処理した。すなわち、G 及び J の各処理区には根頭径 1~2 cm の主根をそれぞれ 7 本、H, I, K 及び L には根頭径 2~3 cm の主根をそれぞれ 5 本供した。

G, H: 原形のまま 50℃の温風を 72 時間当て、強制乾燥した(丸干し)。

I: 縦に二分割後、G と同様に乾燥した(割干し)。

J, K: 原形のまま風乾舎(名寄市)で自然乾燥(10月12日~11月11日)後、50℃の温風を 96 時間当て、強制乾燥した(丸干し)。

L: 縦に二分割後、J と同様に乾燥した(割干し)。

4. 分析用試料の調製

各処理によって得られた乾燥根を剪定バサミで適当な大きさに切った後、超遠心粉碎機(Retsch 社製 ZM1, メッシュスクリーン穴径 1.0 mm 使用)で粉碎し、分析用試料 X0~X6 及び A~L とした。なお、X0~X6 はネット袋毎に、A~L は株毎に別々に粉碎した。

5. 希エタノールエキス含量

第十四改正日本薬局方の生薬試験法・希エタノールエキス定量法に従った。

6. 糖の定量

前報⁴⁾に従い、果糖及びブドウ糖を定量した。

7. Costunolide 及び dehydrocostuslactone の定量

前報⁴⁾に従った。

結果及び考察

1. 自然乾燥下における性状及び成分含量の経時変化

自然乾燥下における生根重の減少(乾燥開始時を 100%)、希エタノールエキス含量及び糖(果糖及びブドウ糖の合計値)含量の経時変化を Fig. 1 に、costunolide 及び dehydrocostuslactone 含量の経時変化を Fig. 2 に示した(試料 X0~X6)。

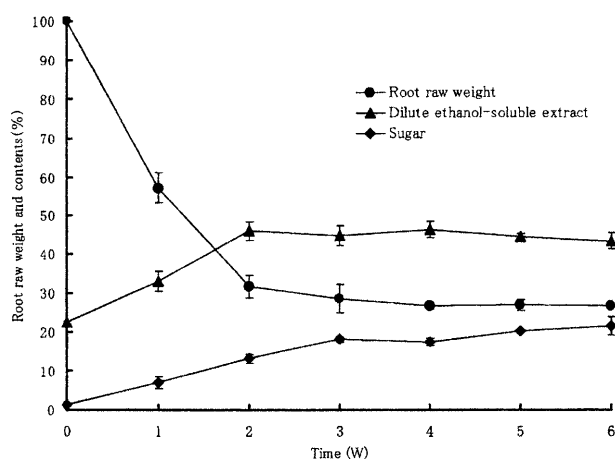


Fig. 1. Time-course Study of Dilute Ethanol-soluble Extract and Sugar Contents and Root Raw Weight of Saussureae Radix.

Saussurea lappa cultivated in Nayoro for one year was harvested on May 8, 2000. The taproot was dried in the open air from May 8 for 1, 2, 3, 4, 5 and 6 weeks and finally dried by hot air at 50°C for 48 hr. Values are averages $\pm$ SD ($n=3$).

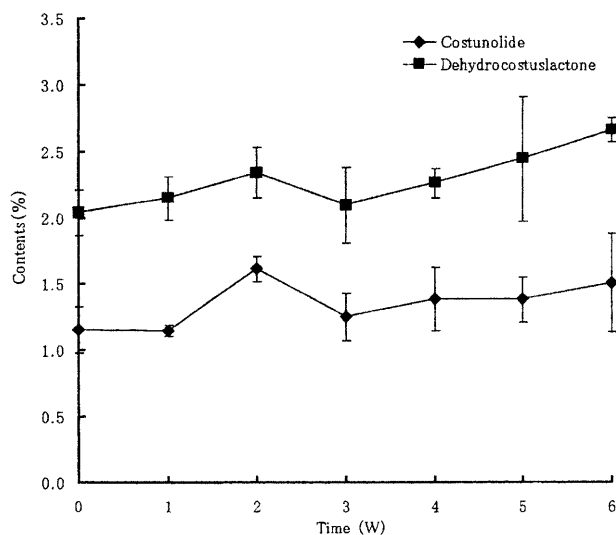


Fig. 2. Time-course Study of Costunolide and Dehydrocostuslactone Contents in Saussureae Radix.

Notes are the same as Fig. 1.

自然乾燥条件下における生根重は、3週目以降27~29%に減少し、ほぼ一定となった。また、温風乾燥後の乾燥歩留はいずれも20%台前半(22.3~24.6%)となり、各個体間で大きな差は認められなかった。3週目以降、切口は油気を帯び、4週目以降は押すと油がにじみ出るような感じになった。

希エタノールエキスの含量は全ての試料で局方値(17.0%)を上回った。自然乾燥期間が2週間までは時間と共に増加するが、それ以降では大きな変化は認められなかった。糖含量も時間と共に増加する傾向にあった。ただし、自然乾

燥開始3週間目までは急激に増加するのに対し、それ以降の増加は非常に緩やかであった。希エタノールエキス含量と糖含量間には、正の相関($r=0.896$, $n=7$)が認められた。

精油成分であるcostunolide及びdehydrocostuslactoneは、経時変化に伴う明確な含量変化は認められなかった。

これまでに筆者らは、セリ科のトウキ類⁶⁾、センキュウ⁷⁾の生根について、自然乾燥中に糖含量が経時的に増加し、それに伴って希エタノールエキス含量も増加することを明らかにしている。また、ヨロイグサを用いた実験で自然乾燥の速度に依存して両含量の増加速度も変化することを報告した⁸⁾。今回のモッコウの生根についても同様な現象が生じていることが明らかになった。根重が減少するに伴い希エタノールエキス及び糖含量が増加しており、その変化の割合は、根重の減少が大きいと希エタノールエキス及び糖含量の増加も大きく、根重に変化がなくなると両含量もほぼ一定値となった。そこで根重と希エタノールエキス含量及び糖含量間の相関係数を求めたところ、各々 $r=-0.983$, -0.931 ($n=7$)と高い負の値を示した。

植物は水分を浸透圧によって根から吸収していることは良く知られている。また、糖は水に溶けやすく細胞内浸透圧を高めるが、デンプンは浸透圧に大きな影響を与えず、浸透圧を高めるためにデンプンを糖に分解することが知られている⁹⁾。モッコウはキク科植物であるため、その根はデンプンではなくイヌリンを貯蔵しているが、自然乾燥下では乾燥を防ぐために浸透圧を上げようとする生理機能が働き、イヌリンが分解されて果糖とブドウ糖が合成されるものと考えられる。一方、costunolide及びdehydrocostuslactoneは糖と異なり、自然乾燥中に経時的に含量が変化する可能性は少ないことが示唆された。

2. 割干しの検討

春及び秋に掘上げた根径別、乾燥法別(丸干し・割干し)試料の成分定量結果をTable 1に示した。

春掘試料の希エタノールエキス含量は、50°Cで温風乾燥した場合(A~C)20.7~22.7%であり、根径及び丸干し・割干しの違いによる差は認められなかった。一方、自然乾燥した試料では根径2~3 cmの丸干し試料Eが50%近い値を示した。丸干し(D, E)では、根径の太い方が含量も高く、また、割干し(F)することで有意に含量の低下が認められた($p<0.001$)。

糖含量も希エタノールエキス含量と同様な傾向が認められた。すなわち、温風乾燥試料A~Cは全て2%台であったが、自然乾燥した丸干し試料D, Eは20%前後の高い値を示した。割干し試料Fは、丸干し試料Eに比べ有意に含量が低かった($p<0.001$)。これは、縦割りにしたことで乾燥時間が短縮され、イヌリンから糖への変換が十分でなかったためと考えられた。希エタノールエキス含量と糖含量の間には高い正の相関が認められた($r=0.957$, $n=34$)。

秋掘試料においても、春掘試料と同様な傾向が認められ

Table 1. Analytical Results of Saussureae Radix Prepared from Taproot of *Saussurea lappa*.

Harvesttime	Sample	Diameter (raw, cm)	Preparation method		Dil. EtOH (%)	Sugar ³⁾ (%)	Essential oil (%)		
			Drying outdoors	→ Hot-air (50°C)			Cos	DeC	
May 8, 2000	A	Maruboshi ^{#1}	1~2	—	72 h	22.7±2.1	2.4±0.6	1.12±0.20	2.29±0.57
	B	Maruboshi	2~3	—	72 h	20.7±1.5	2.4±0.4	1.20±0.34	1.80±0.23
	C	Wariboshi ^{#2}	2~3	—	72 h	22.2±1.7	2.2±0.6	1.01±0.23	1.70±0.32
	D	Maruboshi	1~2	31 days	72 h	40.4±3.9	19.4±3.6	1.41±0.31	2.42±0.42
	E	Maruboshi	2~3	31 days	72 h	49.2±1.2	22.7±1.0	1.13±0.33	1.96±0.61
	F	Wariboshi	2~3	31 days	72 h	34.0±3.7	15.8±2.4	1.26±0.26	1.94±0.34
Oct. 12, 1999	G	Maruboshi	1~2	—	72 h	17.1±1.2	2.5±0.4	0.71±0.20	0.83±0.23
	H	Maruboshi	2~3	—	72 h	17.3±1.8	2.1±0.8	0.74±0.25	0.78±0.18
	I	Wariboshi	2~3	—	72 h	17.5±1.1	2.4±0.2	0.69±0.16	1.00±0.26
	J	Maruboshi	1~2	31 days	96 h	47.3±5.8	28.9±2.2	0.67±0.19	0.99±0.31
	K	Maruboshi	2~3	31 days	96 h	52.5±6.6	32.1±5.0	0.59±0.14	0.78±0.11
	L	Wariboshi	2~3	31 days	96 h	38.2±5.5	23.5±3.0	0.67±0.23	0.96±0.25
Statistical analysis by <i>t</i> -test.									
Comparison between spring and autumn harvests									
				A×G	***	ns			
				B×H	*	ns			
				C×I	**	ns			
				D×J	*	***			
				E×K	ns	*			
				F×L	ns	*			
				A-F×G-L		*	**		
Comparison between maruboshi and wariboshi									
				D×F	*	ns			
				D×E	***	ns			
				E×F	***	***			
				J×K	ns	ns			
				J×L	*	**			
				K×L	*	*			

Saussurea lappa cultivated in Nayoro, Hokkaido for one year was harvested on October 12, 1999 (samples G-L) or on May 8, 2000 (samples A-F).

The root was dried in the open air from October 12 to November 11 (D-F) or from May 8 to June 7 (J-L).

Values are averages±SD (A, D, G and J: *n*=7, B, C, E, F, H, I, K and L: *n*=5).

^{#1} The taproot was cut to 10cm long and was subjected to drying.

^{#2} The taproot was cut to 10cm long then split lengthways into two pieces before drying.

^{#3} Total amounts of fructose and glucose.

Dil EtOH: Dilute ethanol-soluble extract contents, Cos: costunolide, DeC: dehydrocostuslactone.

*, ***, *** and ns represent significantly different each other at the 5%, 1%, 0.1% levels and not significant, respectively.

Table 2. Temperatures from Oct. 12, 1999 to Nov. 11, 1999 and from May 8, 2000 to June 7, 2000 in Nayoro, Hokkaido, Japan.

Period	Average	Maximum	Minimum
1999			
Oct. 12-Oct. 22	7.1	12.9	0.8
Oct. 23-Oct. 31	8.0	12.2	4.0
Nov. 1-Nov. 11	3.6	7.7	-0.4
Average of Oct. 12 to Nov. 11	6.1	10.9	1.4
2000			
May 8-May 19	11.3	17.9	5.8
May 20-May 31	15.0	21.2	9.1
June 1-June 7	12.0	16.7	7.4
Average of May 8 to June 7	12.9	18.9	7.5

Data refer to Asahikawa Chiho Kishodai, Kamikawa Rumoi Chiho Nogyo Kisho Sokuho, **21**, 20-22 (1999) and **22**, 7-10 (2000).

Values are shown as an average during each period.

た。すなわち、温風乾燥試料 G~I の希エタノールエキス及び糖含量は共に低く、各試料間に差は認められなかったが、自然乾燥試料では割干し試料 L の両含量は丸干し試料 K に対し有意に低かった (各々 $p < 0.05$)。また、両含量間には、高い正の相関が認められた ($r = 0.974$, $n = 26$)。

春掘試料と秋掘試料を比較すると、温風乾燥品では希エタノールエキス含量は春掘試料が有意に高く、一方、糖含量には大きな差は認められなかった。自然乾燥品は、希エタノールエキスの平均値を比べると秋掘試料の方が高含量であるが、直径 1~2 cm の D, J 間に有意差が認められたものの、秋掘試料のばらつきが大きく、差は明確ではなかった。糖含量は、秋掘試料 (J, K, L) がいずれも春掘試料に比べて有意に高い結果となった。春は発芽に備え、呼吸が活発になって糖が消費されることが一因と考えられる。また、ヨロイグサ (セリ科) において、より低温で時間をかけて乾燥した場合にデンプンからショ糖への酵素的変換が促進することが報告されている¹⁰⁾。春掘試料と秋掘試料の自然乾燥期間中の気温を比較すると、春掘試料が 7.5~18.9°C (平均値 12.9°C) であるのに対し、秋掘試料では 1.4~10.9°C (6.1°C) と秋掘試料の方が 6~8°C 低い温度で乾燥されていたことになり (Table 2)¹¹⁾、このことも、春掘試料に比べて有意に高い結果となった一因と考えられる。なお、糖含量が高い値を示した秋掘自然乾燥試料 J~L は他の試料より乾燥しやすく、仕上げ乾燥に時間を要した。

Costunolide 及び dehydrocostuslactone 含量は、温風乾燥と自然乾燥の違いによる差は認められなかった。さらに、根径及び丸干し・割干しの違いによる差も認められなかった。また、側根を用いた実験では季節による含量差は明確ではなかった³⁾が、主根を用いた今回の結果では、秋掘試料より春掘試料の方が有意 (costunolide: $p < 0.05$,

dehydrocostuslactone: $p < 0.01$) に高く、これは米田らの結果¹²⁾と一致していた。

温風乾燥試料の希エタノールエキス含量は春掘、秋掘試料共に局方値の 17% を上回っているが、内部は油気がなく、隙間がある上に脆く、国内市場で好まれる木香とは大きく異なっていた。一方、自然乾燥した丸干し試料の内部は油気に富み充実していた。割干し試料は、丸干し試料に比べ油気がやや劣るものの、内部は充実していた。

3. 粉碎の容易さ

粉碎を超遠心粉碎機を使用して行う際、あらかじめ 5 mm 角以下に細切した木香であっても、希エタノールエキス含量が 50% を超える場合は焦げ臭い黒煙を上げ、メッシュスクリーンの穴は塞がり、その粉碎は困難であることを著者らは経験している⁴⁾。今回の試料の希エタノールエキス含量は 3 週目以降でも 50% には達しておらず、焦げ臭い黒煙を上げることもなく、1 mm の篩を通過する大きさの粉末が比較的容易に得られた。

木香を工業的にスタンプミルあるいは実験室内でコーヒミルを用いて粉碎¹³⁾する場合、希エタノールエキス含量が 40% 以上になると粉末を作ることが困難になると言われている⁵⁾。しかし、超遠心粉碎機を使用すると、今回のように希エタノールエキス含量 40% 台のものでも粉碎は比較的容易であった。粉碎の容易さは粉碎機の種類によって異なると推察される。

以上の結果より、粉碎しやすいように希エタノールエキス含量を適度に減じた市場性の高い木香を得るには、主根を縦割りにして乾燥させる調製法が有効であると考えられた。また、精油成分の含量や、先の側根での報告³⁾でも述べているように、北海道の気候条件も考慮すると、春に収穫し調製加工するのが適当と考えられる。

ま と め

希エタノールエキス含量が高い木香は粉碎が困難であることが経験的に知られており、適度な希エタノールエキス含量を有する市場性の高い木香が求められている。そこで、モッコウ主根を用い自然乾燥における各種成分含量の経時変化を調べ、さらに温風乾燥、縦割り後の自然乾燥などが成分含量及び乾燥根の性状に及ぼす影響を検討した。

その結果、自然乾燥中に根の乾燥に従って果糖とブドウ糖が経時的に増加し、それに伴って希エタノールエキス含量が増加すると共に内部が充実することが明らかとなった。しかし、costunolide 及び dehydrocostuslactone 含量は、乾燥に伴う明確な変化は認められなかった。

主根を縦割りした後に自然乾燥することで、希エタノールエキス含量は丸干し試料に比べ有意に低下したが、costunolide 及び dehydrocostuslactone 含量に変化は認められなかった。割干し試料は丸干し試料と比較しやや油気が劣るものの、内部は充実していた。春掘試料は秋掘試料に比較して costunolide 及び dehydrocostuslactone 含量が高い値を示した。

今回の試料の超遠心粉碎機による粉碎は、容易であった。

以上の結果より、北海道においては春の萌芽直後に掘上げ、根頭部 2 cm 以下の主根では原形のまま、2 cm 以上の主根は縦に割いてから 3 週間以上自然乾燥することにより、精油成分の含量が高く内部の充実した粉碎しやすい木香が調製できることが明らかになった。

REFERENCES AND NOTES

- 1) Nihon Yakkyokuhou Kaisetsusho Henshuuinkai, "The 14th Japanese Pharmacopoeia Kaisetsusho", Hirokawa Publishing, Tokyo, 2001, pp. D-1136-D-1139.
- 2) Hatakeyama Y., Kumagai T., Yoneda K., *Shoyakugaku Zasshi*, **43**, 246-249 (1989).
- 3) Anetai M., Kanetoshi A., Hayashi T., Aoyagi M., Iida O., Hatakeyama Y., *Natural Medicines*, **50**, 284-288 (1996).
- 4) Aoyagi M., Anetai M., Hatakeyama Y., *Rep. Hokkaido Inst. Pub. Health*, in press.
- 5) Shimada Y., Togawa Y., Hosoido S., Furuki M., Shirai Y., Hatakeyama Y., Abstract Papers of the 25th Symposium on Natural Drug Analysis, 1996, pp. 42-57.
- 6) Anetai M., Aoyagi M., Hayashi T., Hatakeyama Y., *Rep. Hokkaido Inst. Pub. Health*, **50**, 6-10 (2000).
- 7) Anetai M., Hatakeyama Y., *Rep. Hokkaido Inst. Pub. Health*, **51**, 13-17 (2001).
- 8) Sato M., Aoyagi M., Anetai M., *Rep. Hokkaido Inst. Pub. Health*, **52**, 83-85 (2002).
- 9) Anetai M., Shibata T., Hishida A., Hatakeyama Y., *Rep. Hokkaido Inst. Pub. Health*, **52**, 78-80 (2002).
- 10) Anetai M., Kumagai T., Shibata T., *Rep. Hokkaido Inst. Pub. Health*, **52**, 86-88 (2002).
- 11) Asahikawa Chiho Kishodai, *Kamikawa Rumoi Chiho Nogyo Kisho Sokuho*, **21**, 20-22 (1999) ; *ibid.*, **22**, 7-10 (2000).
- 12) Yoneda K., Nishi A., Maehira Y., Hatakeyama Y., Iida O., *Natural Medicines*, **48**, 28-31 (1994).
- 13) Private communication from Dr. Yasuo Shimada of Mitsuboshi Pharmaceutical Co.