

生薬の品質評価に関する研究 (第4報)¹⁾決明子およびその類似生薬中の anthraquinone 量について (その3)²⁾腰岡政二, 池本長司, 西村真弓, 石井康子, 滝野吉雄
静岡薬科大学³⁾Studies on the Evaluation of Crude Drug (IV)¹⁾Quantitative Estimation of Anthraquinone in *Cassia* Seeds (3)²⁾MASAJI KOSHIOKA, CHOJI IKEMOTO, MAYUMI NISHIMURA,
YASUKO ISHII and YOSHIO TAKINO
*Shizuoka College of Pharmacy*³⁾

(Received October 31, 1978)

Quantitative analysis of anthraquinones in Chinese crude drug Juenmingzi, which is the seed of *Cassia obtusifolia* L. or *C. tora* L. (Leguminosae), and also in similar crude drugs, which are the seeds of *C. torosa* CAV., *C. occidentalis* L. and *C. nomame* HONDA, was carried out, and the following results were obtained.

1) In practising quantitative analysis of anthraquinones in Juenmingzi, the drug sample to be analysed should be such as obtained at least one year after the harvest of the seeds, and the powdered drug should be used within three months after pulverization. This also applies to the analysis of other crude drugs similar to Juenmingzi.

2) The amounts of total anthraquinones in the seeds of *C. obtusifolia* L., *C. tora* L., *C. torosa* CAV. and *C. occidentalis* L. were about the same (i.e., 0.85-1.25%), but the amount thereof in *C. nomame* HONDA was considerably less than those in others (about 0.45%).

3) Anthraquinones were detected in all parts (root, stem, leaf, legume and seed) of the original plants of *Cassia* seeds tested. However, the quantity was in the following order: (root > stem > leaf).

生薬決明子の anthraquinone 含量については先に報告^{2,4)}したように 1,8-dihydroxyanthraquinone に換算して 1.0 ~1.3% 含まれることを明らかにしたが, 今回はさらに決明子中 anthraquinone の安定性について検討した。

一方, 生薬決明子の類似生薬として *Cassia torosa* CAV. *C. occidentalis* L. の種子は生薬望江南, *C. nomame* HONDA の種子は生薬山扁豆と称し用いられており, *C. torosa* については, 高橋, 滝戸ら⁵⁾により anthraquinone および anthracene 誘導体の報告が, *C. occidentalis* については, Tiwari, Kudav, Lal ら⁶⁾により, anthraquinone 類に関する報告が, また *C. nomame* については Endo⁷⁾により種子成分の報告がなされているが, これら類似生薬中の anthraquinone 含量については何ら知られていないことから, ここにおいては, これら類似生薬の anthraquinone 量についての定量を行なった。また同時に各生薬の原植物植物体の各部位 (根, 茎, 葉, 莢) における anthraquinone

1) 第3報: 腰岡政二, 堀田典子, 石井康子, 滝野吉雄, 生薬, **32**, 173(1978).

2) その2: 腰岡政二, 堀田典子, 石井康子, 滝野吉雄, 生薬, **32**, 168(1978).

3) Location: 2-1, oshika-1-Chome, Shizuoka-shi, Shizuoka 422, Japan.

4) M. Koshioka and Y. Takino, *Chem. Pharm. Bull. (Tokyo)*, **26**, 1343 (1978).

5) a) S. Takahashi, M. Takido, U. Sankawa and S. Shibata, *Phytochemistry*, **15**, 1295 (1976); b) *Idem, ibid.*, **16**, 999 (1977); c) M. Takido, S. Takahashi, K. Masuda and K. Yasukawa, *Lloydia*, **40**, 191 (1977).

6) a) R.D. Tiwari and J. Singh, *Planta Media*, **32**, 375 (1977); b) N.A. Kudav and A.B. Kulkarni, *Indian J. Chem.*, **12**, 1042 (1974); c) J. Lal and P.C. Gupta, *Experientia*, **29**, 141 (1973); *ibid.*, **30**, 850 (1974).

7) S. Endo, *Tokyo Gakugei-dai Kiyo*, **19**, 116 (1968).

量もあわせて定量した。

実験の部

実験材料

1. 決明子

Cassia obtusifolia L. を基原植物とするもの4種：朝鮮産（大阪市場品，1973年入手），中国産（大阪市場品，1976年入手），日本産（静岡薬科大学栽培品，1976年採種），日本産（大阪大学栽培品，1972年，1973年，1974年，1976年採種）。

C. tora L. を基原植物とするもの3種：ベトナム産（大阪市場品，1973年入手），台湾産（静岡薬科大学栽培品，1976年採種），台湾産（大阪大学標本，1972年採種）。

2. 望江南

C. torosa Cav. を基原植物とするもの3種：日本産（静岡薬科大学栽培品，1976年採種），日本産（京都薬科大学栽培品，1977年採種），日本産（大阪大学栽培品，1973年採種）。

C. occidentalis L. を基原植物とするもの1種：日本産（和歌山県で採種，1977年）。

3. 山扁豆

C. nomame Honda を基原植物とするもの3種：日本産（大阪大学栽培品，1973年採種），日本産（森野薬草園栽培品，1973年採種），日本産（静岡薬科大学栽培品，1976年採種）。

これら実験材料は，採種あるいは入手後40℃以下で乾燥した後，handy millを用いて，日本薬局方32号篩を通過する粉末とし，シリカゲルデシケーター中で恒量となったものを用いた。

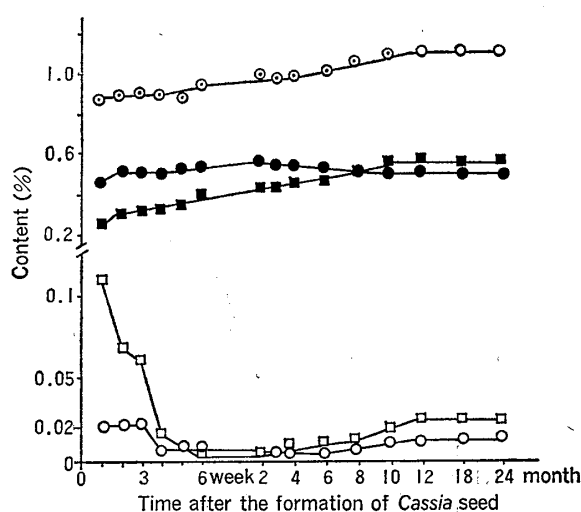


Fig. 1. Change of Anthraquinone Contents in the Seed of *Cassia obtusifolia* L. with Various Grade of Maturity and Ageing

□, free non-rhein-like anthraquinones; ○, free rhein-like anthraquinones;
 ■, bound non-rhein-like anthraquinones; ●, bound rhein-like anthraquinones;
 ⊙, total anthraquinones.

TABLE I. Change of Anthraquinone Contents in the Seeds of *Cassia obtusifolia* L. with Time of Storage (Age)

Age (year)	FR ^{a)} (%)	FNR ^{a)} (%)	BR ^{a)} (%)	BNR ^{a)} (%)	Total (%)	C.V. (%)
1 year'old	0.01	0.02	0.51	0.56	1.10	2.57
2 year'old	0.01	0.01	0.53	0.57	1.12	0.69
3 year'old	0.01	0.01	0.51	1.56	1.09	1.30
5 year'old	0.02	0.01	0.53	0.57	1.12	1.74

^{a)} FR, Free Rhein-like anthraquinones; FNR, Free Non-Rhein-like anthraquinones; BR, Bound Rhein-like anthraquinones; BNR, Bound Non-Rhein-like anthraquinones.

実験材料の保存

1. 種子および全草については紙袋に入れデシケーター中にて暗所で保存した。
2. 粉末試料については、粉末後、密閉容器に入れ、デシケーター中にて暗所で保存した。

実験方法

定量方法は第2報²⁾の方法に準じて行なった。

結果と考察

種子成熟度および保存度による anthraquinone 含量の変化について

決明子に限らず種子類生薬の品質評価においては、その種子の成熟度および保存度による薬効関連成分の変動を知ることが必要である。筆者らはすでに第1報⁴⁾において、決明子種子の anthraquinone 量が成熟度により変化することを報告したが、本報では種子完熟後の anthraquinone 量および保存度による anthraquinone 量の変化についても調べた。Fig. 1. に示すように結合型 non-rhein 様 anthraquinone 含量は種子形成後10カ月目まで増加し(0.24%~0.56%)その後一定(約0.56%)となった。しかしながら、結合型 rhein 様 anthraquinone 含量に関しては種子の成長にはかかわらず、種子形成後からほとんど一定(約0.52%)の値を示した。遊離型 non-rhein 様 anthraquinone 含量は種子形成直後は多く(0.12%)種子成長に伴い次第に減少し6週目にはほとんどなくなる。このような状態が2カ月目まで続き、その後再び増加し、12カ月目以後は、ほぼ一定の値(0.02%)となった。遊離型 Rhein 様 anthraquinone についてもほぼ non-rhein 様 anthraquinone と同じような変動をし、種子形成直後は0.02%であったものが最終的には0.01%で一定となった。以上のことから、種子完熟後も1年目までは遊離型、結合型 anthraquinone がともに増加するということが明らかである。またその増加のほとんどは結合型 non-rhein 様 anthraquinone によるものであった。

種子保存度による anthraquinone 含量の変化については TABLE I に示すように種子採取後5年を経過してもその含量に変化は生じないことが明らかとなった。

以上のことから、種子採取後1年経過すれば anthraquinone 含量は一定となることが明らかであり、生薬決明子の品質評価にあたっては、種子完熟後少なくとも1年以上経過しているものを使用するのが妥当であると考えられる。

決明子粉末後の anthraquinone 含量の変動について

生薬の品質評価を行なうには、生薬調製後の成分変動を知ることが必要であると考え本実験を行なった。Fig. 2 に示すように結合型 anthraquinone に関しては粉末調製後3カ月目まではその anthraquinone 含量は rhein 様 non-rhein 様ともに変化はなかった。(rhein 様約 0.56%, non-rhein 様約 0.50%)が、その後時間とともに急激に減少した。また遊離型 anthraquinone に関しても同様に粉末調製後5カ月目までは安定であるが (rhein 様約 0.02%, non-rhein

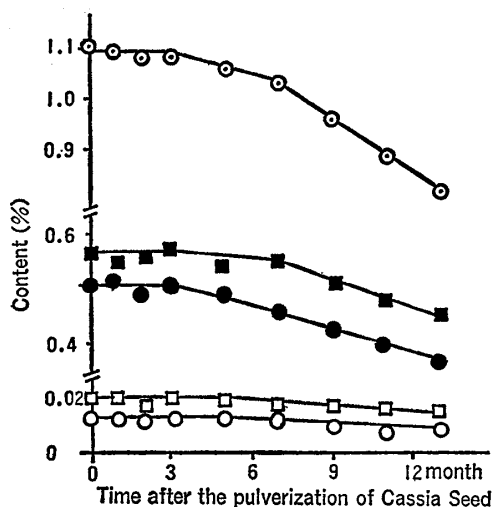


Fig. 2. Change of Anthraquinone Contents in the Powdered Seed of *Cassia obtusifolia* L. with Time

- , free non-rhein-like anthraquinones; ○, free rhein-like anthraquinones;
 ■, bound non-rhein-like anthraquinones; ●, bound rhein-like anthraquinones;
 ◎, total anthraquinones.

様約 0.01%), その後時間とともに減少した。

以上のことより anthraquinone 含量に関しては粉末後3カ月以内では一定であることから、品質評価の上で品質が一定であると考えられる粉末調製後3カ月以内のものを使用すべきであると考ええる。また結合型 anthraquinone の減少に伴い遊離型 anthraquinone の減少も観察されることから、anthraquinone 含量の減少は anthraquinone 自体の変化による減少であると考えられる。

類似生薬における anthraquinone 含量

類似生薬として用いられる望江南、山扁豆について anthraquinone 含量を求め決明子との比較を試みた。なお実験材料としては、先に述べたように、採種または入手後1年以上を経過したものを使用し、粉末として3カ月以内のものを用いた。TABLE II に示すように *Cassia obtusifolia* L., *C. tora* L., *C. torosa* CAV. の種子においては、遊離型 anthraquinone, 結合型 anthraquinone 共に認められたが、*C. occidentalis* L., *C. nomame* HONDA の種子においては遊離型 anthraquinone の存在はほとんど認められなかった。

TABLE II. Contents of Anthraquinones in *Cassia* Seeds

Original Plants	FR ^{a)} (%)	FNR ^{a)} (%)	BR ^{a)} (%)	BNR ^{a)} (%)	Total (%)	C.V.(%)	R ^{b)} /Total	
<i>C. obtusifolia</i> L.	A	0.01	0.02	0.53	0.69	1.25	3.22	0.43
	B	0.01	0.01	0.51	0.57	1.10	1.74	0.47
	C	0.01	0.02	0.49	0.57	1.09	2.73	0.46
<i>C. tora</i> L.	A	trace	0.01	0.47	0.62	1.09	2.37	0.43
	B	trace	0.02	0.43	0.63	1.08	1.41	0.40
	C	trace	0.02	0.45	0.62	1.09	2.07	0.41
<i>C. torosa</i> CAV.	A	trace	0.01	0.38	0.60	0.99	2.47	0.38
	B	trace	0.01	0.38	0.65	1.04	1.59	0.37
	C	trace	0.01	0.42	0.63	1.06	1.63	0.40
<i>C. occidentalis</i> L.	trace	trace	0.38	0.47	0.85	4.31	0.45	
<i>C. nomame</i> HONDA	A	trace	trace	0.30	0.15	0.45	4.19	0.67
	B	trace	trace	0.29	0.16	0.45	0.87	0.64
	C	trace	trace	0.29	0.17	0.46	2.13	0.63

a) See TABLE I.

b) Free and Bound Rhein-like anthraquinones. The quantitative analysis of the powdered seed was repeated from four to six times.

TABLE III. Contents of Anthraquinones in Original Plants of *Cassia* Seeds

Parts	Original plants	FR ^{a)} (%)	FNR ^{a)} (%)	BR ^{a)} (%)	BNR ^{a)} (%)	Total (%)
Root	<i>C. obtusifolia</i> L.	trace	trace	0.11	0.52	0.63
	<i>C. torosa</i> CAV.	trace	0.02	0.14	0.56	0.72
	<i>C. nomame</i> HONDA	0.01	0.04	0.10	0.42	0.57
Stem	<i>C. obtusifolia</i> L.	trace	trace	0.14	0.35	0.49
	<i>C. torosa</i> CAV.	trace	trace	0.15	0.53	0.68
	<i>C. nomame</i> HONDA	trace	0.02	0.15	0.40	0.57
Leaf	<i>C. obtusifolia</i> L.	trace	trace	0.21	0.30	0.51
	<i>C. torosa</i> CAV.	trace	0.01	0.09	0.20	0.30
	<i>C. nomame</i> HONDA	trace	trace	0.13	0.10	0.23
Legume	<i>C. obtusifolia</i> L.	trace	trace	0.14	0.29	0.43
	<i>C. torosa</i> CAV.	trace	0.02	0.13	0.53	0.68
	<i>C. nomame</i> HONDA	trace	trace	0.13	0.24	0.37

a) See TABLE I.

望江南の一つとされている *C. torosa* CAV. の種子においては、anthraquinone 量は決明子とほぼ同量程度（平均 1.03%）であり、類似生薬としての応用性は十分認められるが、他方 *C. occidentalis* L. の種子においては 0.85% と若干決明子よりも低い値であった。

山扁豆である *C. nomame* HONDA の種子においては総 anthraquinone 量が 0.45% と決明子にくらべてかなり低く、また rhein 様 anthraquinone の含有比率が他の生薬に比べてかなり高い値であった。

植物体各部位における anthraquinone 含量について (TABLE III)

Cassia 属植物の多くはその種子が生薬として使用されているが、センナのように小葉あるいは種子を含んだ莢が使用されるものもあることから、植物体中における anthraquinone の分布について考察した。なお実験材料は本学で栽培した 3 種 (*C. obtusifolia* L., *C. torosa* CAV., *C. nomame* HONDA) について行なった。ただし、決明子、望江南においては種子の完熟した時点ではほとんどが落葉の状態にあるので、開花時に採集した葉を用いた。TABLE III に示すように共試した植物のすべての部位（根、茎、葉、莢）において anthraquinone 類の存在が認められた。

その含量については、種の違いにもかかわらず、種子、莢を除けば、根に一番多く、次いで茎、葉の順に減少することが認められたが *C. obtusifolia* L. については 0.63~0.51%、*C. torosa* CAV. については 0.72~0.30%、*C. nomame* HONDA については、0.57~0.23% と部位により変異のあることが明らかとなった。さらに *C. nomame* HONDA においては根、茎中の anthraquinone は種子中よりも多量に含まれることが明らかとなった。

以上のことから、生薬決明子の使用にあたっては、採種後少なくとも 1 年以上経過したもので、かつ粉末後 3 カ月以内のものを用いるのが妥当と考えられる。また望江南の類似生薬としての妥当性が認められ、さらにこれら生薬の原植物の植物体各部位においても anthraquinone 類の存在が認められたことは、今後生薬としての使用部位を検討していくうえで興味あるものとする。

謝 辞：本研究を行なうにあたり、貴重なる標本を御恵与された、大阪大学薬学部 米田該典氏、山中雅也氏、ならびに京都薬科大学 今井甚三郎氏に深謝します。また、有益な御助言を賜りました小城忠治商店 林 輝旭氏ならびに京都薬品 K. K. 丸山修三氏に深謝します。