

中国に生育するホソバオケラ *Atractylodes lancea* の 精油成分の変異¹⁾

武田 修己^{*,a}, 三木 栄二^a, 寺林 進^a, 岡田 稔^a
呂 擘^b, 賀 慧生^b, 賀 善安^b

^a(株)ツムラ中央研究所, ^b江蘇省植物研究所

Variation of Essential Oil Components of *Atractylodes lancea* Growing in China

OSAMI TAKEDA,^{*,a} EIJI MIKI,^a SUSUMU TERABAYASHI,^a MINORU OKADA,^a
YE LU,^b HUI-SHEN HE^b and SHAN-AN HE^b

^aTsumura Central Research Laboratories, Tsumura & Co., 3586 Yoshiwara, Ami-machi,
Inashiki-gun, Ibaraki 300-11, Japan

^bJiangsu Institute of Botany, Nanjing, Jiangsu, People's Republic of China

(Received May 10, 1994)

One-hundred and eighty-four plants of *Atractylodes lancea* were collected in Anhui and Hubei provinces at their flowering time and the amounts of the six essential oil components, elemol (1), atractylon (2), hinesol (3), β -eudesmol (4), selina-4(14), 7(11)-dien-8-one (5) and atractylodin (6) contained in their rhizomes were determined by GC. The results were compared with those of the plants of the same species collected in Mt. Maoshan and the outskirts (Maoshan area), Jiangsu province. On the basis of the statistical analysis of essential oil components the species *A. lancea* was found to include three types. The plants of the first type, characterized by the essential oil fraction containing 3 as its main constituent with cotton like crystals deposited are distributed in the eastern area of Hubei province. The plants of the second type, characterized by the essential oil fraction containing 2 or 6 but no crystals are distributed in the Maoshan area, Jiangsu province, and those of the third type, characterized by containing 3 and 4 and substantial crystals in the essential oil fraction are distributed in the western or middle areas of Hubei and the southern area of Anhui province.

Keywords—*Atractylodes lancea*; Sohjutsu; essential oil; variation; growth; sesquiterpene; polyacetylene; atractylon; hinesol; β -eudesmol; atractylodin

ホソバオケラ *Atractylodes lancea* (THUNB.) DC. はキク科 (Compositae) の多年生草本であり、中国長江流域に生育し、「蒼朮」の基原植物の一つである²⁾。「蒼朮」と「白朮」は神農本草経³⁾には「朮」の名で収載され、宋代以来、区別されるようになった⁴⁾。明代には本草品彙精要⁵⁾、本草綱目⁶⁾に薬効と共に別項に記載されている。「蒼朮」と「白朮」は異なる種を基原とし⁷⁾、日本薬局方^{2d)}には精油成分に基づく鑑別法が規定されている。その生薬中の主要な精油成分からは種々の薬理作用、生理活性が報告されている⁸⁾が、中国産「蒼朮」は精油成分の変動が大きく、「白朮」との区別が困難な場合がある⁹⁾。また、国内に植栽されているホソバオケラにも市場品「蒼朮」と同様の精油成分の変異がある¹⁰⁾と報告されている。

我々は蒼朮の基原と品質を明らかにする目的で、古来品質の良い「朮」の産地として著名な江蘇省茅山地域で基原植物を採集した。得られた植物は「蒼朮」の基原植物の一

つであるホソバオケラと同定されたが、精油成分の特徴はこれまでの定説とは異なることを報告した¹¹⁾。また、この調査によって、基原植物と精油成分・品質に関する認識は十分ではなく、これまでの知見を再検討する必要性が明らかになった。したがって、現在の主産地および歴代の本草書に記載されている産地で基原植物を採集、同定し、これに基づいて、品質評価において議論されてきた主要な精油成分の変異を明確にし、比較することが重要である。

湖北省から産出される蒼朮は江蘇省茅山地域と同様にホソバオケラを基原とし、産出量は最も多いと報告されている^{2b,c)}。そこで我々は今回、湖北省に重点を置いて基原植物の自生地調査を行った。この他、安徽省でも調査を行い、得られた植物の精油成分の変異を明らかにした。また、茅山地域での調査結果と比較し、ホソバオケラの変異について検討した。

実験の部

1. 植物材料および標準品

1991年に中国湖北省3地域、安徽省の1地域5地点で野外調査を行った。1地点50個体を目標にオケラ属植物の集団サンプリングを行った。すでに報告した江蘇省茅山地域(茅山地域)¹¹⁾と合わせて調査地域は5地域9地点である(TABLE I)。

調査地点 **Hu** は安徽省南部の皖南低山丘陵に位置する太平区であり、良質な蒼朮の産地である^{2b)}。**Wu** と **Lu** は湖北省西部の鄂西山地に位置し秦嶺に連なる地点である。

Ca と **Ta** は鄂東北低山丘陵地帯にあり、**Ca** は湖北省中部の桐柏山に属し、桐柏山は河南省と隔てる山脈である¹²⁾。

Ta は湖北省東部の大別山にあり、今回の調査地点で最も標高が高く1,000 mであった。これらの地域からは「蒼朮」が産出される^{2b)}。各調査地点は海拔高度60~1,000 mの広い範囲に及び、年平均気温は11.1~16.0℃、年間降水量は850~1,560 mmであった¹³⁾。

調査は開花期または開花の終期にあたる9月から10月にかけて行った。得られた材料は地上部の外部形態的特徴に基づいてすべてホソバオケラ *Atractylodes lancea* (THUNB.) DC. と同定された¹⁴⁾。地下部は30℃通風乾燥後、根を除き根茎の一定の部位¹¹⁾を取り精油成分の個体分析を行った。GC分析における標準品は市販の生薬分析用標準品および生薬から単離されたものを用いた¹⁰⁾。

2. 精油成分のGC定量と統計解析

分析を行った精油成分はsesquiterpeneとしてelemol (1), atractylon (2), hinesol (3), β -eudesmol (4), selina-4(14), 7(11)-dien-8-one (5), polyacetyleneがatractylodin (6)である。phenanthrene (IS)を内部標準品として前報¹¹⁾と同様に試料を調製しGCにより定量を行った。各地点で得られたホソバオケラの代表的なクロマトグラムはFig. 1に示した。

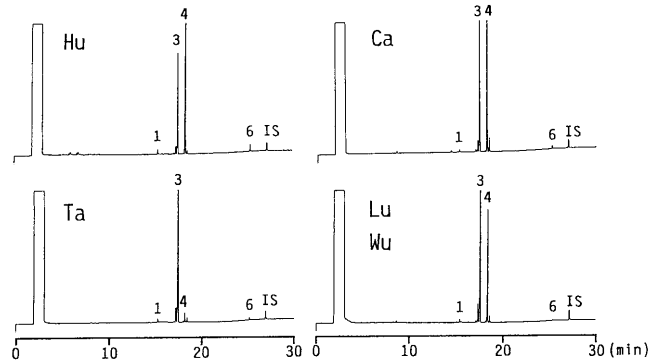


Fig. 1. Gas Chromatograms of the Hexane Extracts of Rhizomes of *Atractylodes lancea* Growing in Anhui (**Hu**) and Hubei (**Ta**, **Ca**, **Wu**, **Lu**) Provinces

1: elemol, 3: hinesol, 4: β -eudesmol, 6: atractylodin, IS: internal standard (phenanthrene).

GC分析は前報¹¹⁾と同一装置を用いた。蒼朮からしばしば析出する白色綿状の結晶を肉眼で観察した。個体分析の結果は前報と同様に多変量解析法の一つである主成分分析を行い、精油成分の特徴と調査地点との関連について解析した。

結 果

湖北省と安徽省での調査で得られたホソバオケラの精油成分の個体分析結果をTABLE IIに示した。茅山地域で調査した4地点の植物の精油成分の特徴は調査地点間の差異が認められなかったため¹¹⁾、茅山地域としてまとめ、今回の結果と比較した。総計328個体ホソバオケラを分析した。

安徽省南部の**Hu**、湖北省西部の**Wu**、**Lu**、および中部の**Ca**の植物は**3**と**4**が主成分であり高含量を示した(Fig. 1, TABLE II)。湖北省東部の**Ta**の植物は**3**が主成分であり高含量を示し、**4**は0.3%と低く茅山地域(0.29%)のものと同程度であった。**1**は、今回調査した湖北省と安徽省の植物では茅山地域と比較して高い含量を示した

TABLE I. Locality and Number of Individuals Examined

Locality	Abbreviation of locality	Collecting date	No. of ind. examined
Taohuachong, Yinshanxian, Hubei prov. (湖北省英山県桃花冲)	Ta	Oct. 4, 1991	28
Caodianzhen, Suizhou city, Hubei prov. (湖北省随州市草店镇)	Ca	Oct. 1, 1991	30
Wudangshanzhen, Danjiangkou city, Hubei prov. (湖北省丹江口市武当山镇)	Wu	Sep. 29, 1991	22
Ludianxiang, Danjiangkou city, Hubei prov. (湖北省丹江口市羅店郷)	Lu	Sep. 28, 1991	55
Xinhua, Huangshan city, Taipingqu, Anhui prov. (安徽省太平区黄山市新華)	Hu	Oct. 13, 1991	49
Xuebu, Jintanxian, Jiangsu prov.	Xu	Oct. 15, 1991	45
Huangjinshan, Houzhouxiang, Liyangxian, Jiangsu prov.	Li	Oct. 27, 1990	42
Yazitou, Baohuashan, Jurongxian, Jiangsu prov.	Ya	Oct. 25, 1990	12
Foshan, Tangshanzhen, Nanjing city, Jiangsu prov.	Fo	Oct. 24, 1990	45

TABLE II. Contents (%) of Essential Oil Components and Deposition of White Cotton Like Crystals in Rhizomes of *Atractylodes lancea* Growing in China

Locality	No. of ind. examined		Component (%)						Crystal observed (frequency)		
			1	2	3	4	5	6			
Hubei prov.	Ta	28	mean	0.18	ND	5.35	0.30	ND	0.01	0.54	
			max. ¹⁾	0.51		9.43	0.57		0.12		
			min. ²⁾	ND		2.20	0.13		ND		
	Ca	30	mean	0.09	ND	3.50	2.47	ND	0.14	1.00	
			max.	0.26		8.29	4.28		0.36		
			min.	ND		0.59	0.38		ND		
	Wu	22	mean	0.20	ND	2.71	2.88	ND	0.05	0.96	
			max.	0.33		5.40	6.14		0.28		
			min.	ND		1.55	1.47		ND		
	Lu	55	mean	0.14	0.003	2.95	2.48	ND	0.09	0.95	
			max.	0.43	0.17	7.05	6.37		0.50		
			min.	ND	ND	0.72	0.93		ND		
Anhui prov.	Hu	49	mean	0.13	0.03	2.04	3.17	ND	0.34	0.74	
			max.	0.61	0.26	5.59	7.02		0.65		
			min.	ND	ND	0.44	0.68		0.11		
Jiangsu prov.	Maoshan area (茅山)	Xu, Li, Ya, Fo	144	mean	0.01	0.67	0.14	0.29	0.09	0.37	0.007
			max.	0.31	1.94	1.91	2.50	0.45	1.01		
			min.	ND	ND	ND	ND	ND	0.12		

1) Max. indicates maximum content of individuals examined.

2) Min. indicates minimum content of individuals examined.

ND: non detect, 1: elemol, 2: atractylon, 3: hinesol, 4: β -eudesmol, 5: selina-4(14),7(11)-dien-8-one, 6: atractylodin.

(TABLE II). 茅山地域のホソバオケラは同一集団内に、3と4を主成分とする個体と、2と6を主成分とする個体などが認められた¹¹⁾。今回調査した各地点の植物は同一集団内では主成分は一定であり、またガスクロマトグラムは単純であった (Fig. 1)。

蒼朮からしばしば析出する白色綿状の結晶は3と4の分子結晶であり、結晶中には1も微量含まれる¹⁵⁾。結晶は茅山地域のホソバオケラからは1個体で析出が認められたのみであったが、湖北省中部のCaではすべての調査個体から析出した (TABLE II)。今回、湖北省と安徽省で調査したホソバオケラからは、茅山地域を除いて0.54~1.00の高い頻度で結晶の析出が確認された。調査地点間では、茅山地域を除いて3と4の合計含量は等しく5.21~5.97%であり高含量を示したが、湖北省東部Taの植物は湖北省の他の地域および安徽省の植物と比較して析出する結晶の量は少なく、その頻度も0.54と低い傾向が認められた (TABLE II)。Taに生育するホソバオケラは3と4の含有率の比が0.06であり、他の地域の0.77~1.74と比較し著しく偏った比を示した。このような偏った比を示す個体はTa以外の植物からは認められなかった。結晶は根茎中の3と4の含量が高いほど析出しやすいことは明らかである。また、これら成分の含有率の比は結晶の析出に影響する要因の一つであると推定された。3と4の含有率の比の頻度分布をFig. 2に示した。ただし、茅山地域の頻度分布は両成分を同時に含有する60個体の結果に基づいている。3と4の含量は同一集団内で個体によって逆転する場合があ

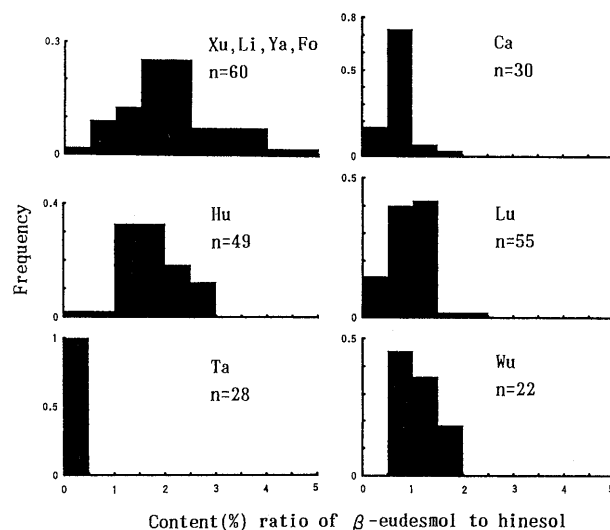


Fig. 2. Histograms of Content (%) Ratio of β -Eudesmol to Hinesol Contained in *Atractylodes lancea* among Localities Examined

The numerals in the figure show the number of individuals.

り、その含量比は個体変異を示した (Fig. 2)。茅山地域と安徽省のHuは変異が大きく、頻度分布は類似した。湖北省中部・西部地域のCa, Wu, Luはそれぞれ分布は類似し、東部のTaは変異が小さく、まとまった分布を示した。

乾燥根茎から析出した結晶の主成分はTaの植物は3であり、Ta以外の湖北省と安徽省 (Ca, Wu, Lu, Hu) は

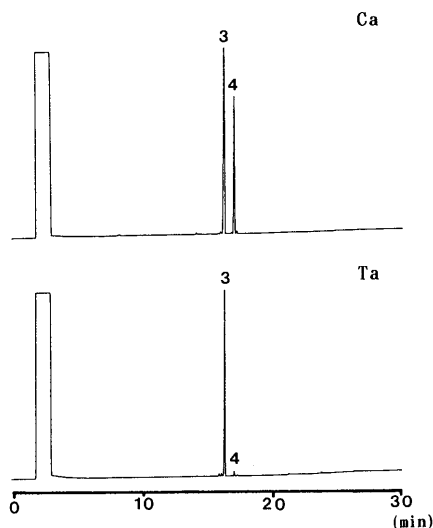


Fig. 3. Gas Chromatograms of Cotton Like Crystals Deposited from Rhizomes of *Atractylodes lancea* Growing in Hubei Province

3: hinesol, 4: β -eudesmol.

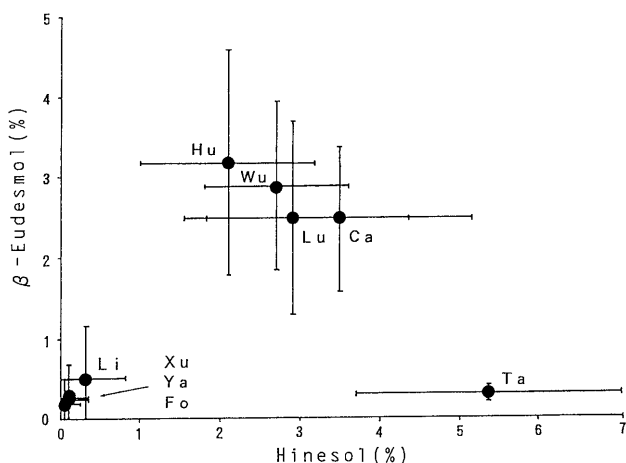


Fig. 4. Variations of β -Eudesmol and Hinesol Contained in Rhizomes of *Atractylodes lancea* Growing in China
The error bars in the figure show standard deviations.

3と4であり、ピーク比率はヘキササン抽出液と一致することを確認した (Fig. 3). 寺林ら¹⁶⁾は **Ta** のホソバオケラから析出する結晶の形、偏光性は **Ca**, **Wu**, **Lu**, **Hu** の植物のものと異なり、区別されると報告している。この違いは結晶の成分組成の違いによると考えられた。

各地点で採集したホソバオケラの3と4の平均含量を標準偏差と共に Fig. 4 に示した。ホソバオケラの精油成分中3と4は最も含有率の変動幅が大きく、3と4の含量について両成分とも低い江蘇省南部の茅山地域、3を主成分とし、高含量を示す湖北省東部の **Ta** および両成分とも高い **Ta** 以外の湖北省および安徽省の **Hu**, **Ca**, **Lu**, **Wu** の3群に区別された。

2は安徽省の **Hu** では49個体中6個体から検出され、

湖北省では西部の **Lu** の1個体から確認されたのみであった。茅山地域のホソバオケラと比較し2を含有する個体の頻度は低く、低含量であった (TABLE II)。茅山地域のホソバオケラは2の含量が高く、白朮の基原植物であるオケラ *A. japonica* KOIDZUMI ex KITAMURA とオオバナオケラ *A. macrocephala* KOIDZUMI¹⁷⁾ に相当し、バニリン・塩酸反応に陽性であった¹¹⁾。安徽省と湖北省に生育するホソバオケラは日本薬局方の蒼朮の規定によく適合する特徴を示した^{2d)}。5は安徽省と湖北省のホソバオケラからは、検出されず、茅山地域の植物は安徽省と湖北省のものと区別された (TABLE II)。

6は、安徽省の **Hu** のホソバオケラからは茅山地域の植物と同様にすべての個体から検出され、高い含有率を示した (TABLE II)。一方、湖北省では低含量であり、検出されない個体が認められた。特に東部の **Ta** は低含量であったが、調査したすべての集団から検出された。

以上のようにホソバオケラは個体変異が大きく、自生地と精油成分との関係は成分により異なった。精油成分の特徴と自生地との関係を総合的につかむ目的で多変量解析法の一つである主成分分析を行った。各要因の係数から第1主成分 (**Z1**) は3と4の合計含量を意味し、第2主成分 (**Z2**) は両成分の含量の偏りを意味する総合特性と判断され、**Z2** までの累積寄与率は98%であった (TABLE III)。

328個体の **Z1**, **Z2** の主成分得点を散布図に示した (Fig. 5)。湖北省東部の **Ta** は他の集団と重なりが認められず特徴的であった。茅山地域の144個体は他の集団の分布と重なりを示したが、第2, 3象限に極在し、よくまとまっていた。その他の集団は第1象限に分布する個体が多く、分布は重なり互いに区別されなかった。主要な精油成分に関する主成分分析の結果、ホソバオケラは①湖北省東部 (**Ta**)、②江蘇省南部の茅山地域 (**Xu**, **Li**, **Ya**, **Fo**) および③湖北省西部・中部地域 (**Lu**, **Wu**, **Ca**)、安徽省南部 (**Hu**) の3群に類別された。①の地域に生育するホソバオケラは3を主成分とし、白色綿状の結晶を析出し、②は2と6を主成分とし結晶の析出はほとんど認められず、③は3と4が主成分であり結晶をよく析出する特徴をそれ

TABLE III. Eigenvectors and Eigenvalues from the Data of GC Analysis for *Atractylodes lancea* Growing in China

Variable	Z1	Z2	Z3
1: elemol	0.040	0.010	0.042
2: atractylon	-0.123	-0.025	0.904
3: hinesol	0.855	-0.506	0.110
4: β -eudesmol	0.500	0.861	0.069
5: selina-4(14),7(11)-dien-8-one	-0.017	-0.003	0.124
6: atractylodin	-0.043	0.048	0.386
Eigenvalues	4.862	1.482	0.089
Cumulative contribution ratio	0.753	0.982	0.996

$$\sum_{i=1}^p V_{ii}/p = 1.077 \quad (p: \text{number of variable, } V: \text{variance}).$$

- 15) a) I. Yoshioka, T. Tani, M. Hirose, I. Kitagawa, *Chem. Pharm. Bull.*, **22**, 1943 (1974); b) 西川洋一, 渡辺四男也, 瀬戸隆子, *生薬*, **29**, 139 (1975).
- 16) 寺林 進, 三木栄二, 武田修己, 岡田 稔, 呂 曄, 賀慧生, 賀 善安, 日本薬学会第113年会講演要旨集, Vol. 2, p. 219 (1993).
- 17) 北村四郎, *植物分類地理*, **7**, 118 (1938).
- 18) 武田修己, 三木栄二, 寺林 進, 岡田 稔, 日本薬学会第114年会講演要旨集, Vol. 2, p. 249 (1994).
- 19) M. Oyanagi, N. Hiraoka, Y. Tomita, T. Ogawa, H. Mizukami, H. Ohashi, *Shoyakugaku Zasshi*, **44**, 323 (1990).
- 20) M. Mizuno, M. Kato, N. Iinuma, T. Tanaka, H. Ohashi, H. Sakai, T. Kajita, *Bot. Mag. Tokyo*, **102**, 403 (1989).
- 21) 内藤尚賢編, “近世漢方医学集成”, Vol. 56, 名著出版, 東京, 1980, p. 75.
- 22) 趙 橘黄, *祁州薬誌*, 第1集, **3**(2), 18 (1936).
- 23) 高橋真太郎, *漢方と漢薬*, **7**, 49 (1940).