

北海道産木香の調製法と化学的品質評価

姉 帯 正 樹^{*,a}, 兼 俊 明 夫^a, 林 隆 章^a
 青 柳 光 敏^a, 飯 田 修^b, 畠 山 好 雄^b

^a 北海道立衛生研究所, ^b 国立衛生試験所北海道薬用植物栽培試験場

Preparation and Chemical Evaluation of *Saussureae Radix* Produced in Hokkaido

MASAKI ANETAI,^{*,a} AKIO KANETOSHI,^a TAKAAKI HAYASHI,^a MITSUTOSHI AOYAGI,^a
 OSAMU IIDA^b and YOSHIO HATAKEYAMA^b

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

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

(Received February 26, 1996)

In Hokkaido, outdoor drying of the root of *Saussurea lappa* harvested in autumn to prepare *Saussureae Radix* is not easy because of the subsequent snow season. Therefore, we examined the effects of other drying methods such as lengthwise root splitting for easier drying, hot-air drying and others, or the harvesting in spring on the amounts of dilute ethanol-soluble extract, essential oils (costunolide and dehydrocostuslactone) and sugars (fructose and glucose) and the quality of the product, *Saussureae Radix*. *Saussureae Radix* of market value was obtained only when the roots were outdoor dried for about one month, during which period, inulin in the roots should be hydrolyzed enzymatically to produce fructose and a small amount of glucose. Consequently the drying of the roots became more difficult but the quality seemed to be improved. Lengthwise splitting of the roots or hot-air drying right after harvesting shortened the drying period, but these treatments also reduced the dilute ethanol-soluble extract contents and the sugar contents and accordingly the quality of the product. The spring climate of Hokkaido is rather dry. Therefore, we consider that in Hokkaido, outdoor drying for about one month, or combination of outdoor drying and subsequent hot-air (below 50°C) drying of the roots of *S. lappa* harvested in spring may be the best procedure for the preparation of *Saussureae Radix*.

Keywords—*Saussureae Radix*; *Saussurea lappa*; preparation; chemical evaluation; HPLC; costunolide; dehydrocostuslactone; fructose; glucose; Hokkaido

木香は *Saussurea lappa* CLARKE (キク科) の根を乾燥したもので、芳香性健胃薬、薫香料の原料などに使用されるほか、女神散などの漢方薬にも配合されている。現在わが国での生産はなく、中国雲南省、四川省、インドなどの栽培品を年20トン程度輸入している¹⁾。輸入品の化学的品質については既に報告した²⁾。

S. lappa はインド北部の高地に自生するが、絶滅の恐れがある植物としてワシントン条約の適用を受けるため、国内での木香生産が急務となっている。

このような状況の下、国立衛生試験所北海道薬用植物栽培試験場ではソ連(当時)から種子を導入し、栽培法を検討した結果、栽培および採種に成功し、国内においても *S. lappa* の供給が可能となった³⁾。北海道の寒冷な気候は栽培に適していると考えられている。

同試験場圃場(名寄市)で試作したところ生育は良好で、2年目の秋には収穫可能と考えられた。中国では10月から翌1月にかけて収穫し日干しするという^{1,4,5)}が、この

時期北海道では積雪があり、地面も凍結するため、その後の作業を考えると収穫は10月末頃が限度となる。また、秋は一般に天候が不順で、屋外で半月ほど自然乾燥できたとしても十分ではなく、積雪前に屋内に取り込み乾燥を継続する必要があった。乾燥を短期間で済ませる方法として、根の縦分割、強制乾燥、春掘などが考えられた。

そこで今回著者らは、木香の調製法に関する基礎的データを得ることを目的として、秋掘および春掘根について縦分割、自然乾燥、温風乾燥などを行い、各々の乾燥根について、前報²⁾と同様に希エタノールエキス、精油(costunolide, dehydrocostuslactone)および単糖(果糖、ブドウ糖)を定量し、主として化学的な面から品質を評価した。

実験材料および方法

1. 秋掘試料(A~C)の調製法

上記試験場圃場で栽培した直播3年生根を1992年10月

22日に掘上げ、土の付着したまま5日間放置した。水洗後、側根(1株から5,6本得られる)を長さ10cm程度に横切し、試験に供した。A~Cの各処理区にそれぞれ10株を供した。

A:屋外で自然乾燥(10月27日~11月19日)後、無加温ハウス(屋根はプラスチック、周囲は厚手ビニールで雪や雨は入らない。気温は外と同じ)内で自然乾燥(11月19日~1993年1月29日)、更に、温室内(40℃以上50℃以下)で乾燥(1月29日~4月5日)した。

B:屋外で自然乾燥(10月27日~11月19日)後、無加温ハウス内で自然乾燥(11月19日~12月1日)、更に、50℃の温風を24時間当て、強制乾燥した。

C:縦に二分割後、Aと同様に乾燥した。

2. 春掘試料(D~I)の調製法

直播3年生根を1993年5月14日に掘上げ、水洗後、側根を長さ10cm程度に横切し、試験に供した。D~Iの各処理区にそれぞれ10株を供した。

D:無加温ハウス内で自然乾燥(5月14日~6月24日)した。

E:無加温ハウス内で自然乾燥(5月14~26日)後、50℃の温風を72時間当て、強制乾燥した。

F:水に浸漬(5月14~17日)後、無加温ハウス内で自然乾燥(5月17日~6月24日)し、その後、Eと同様に強制乾燥した。

G:縦に二分割後、Dと同様に自然乾燥した。

H:縦に二分割後、Eと同様に乾燥した。

I:縦に二分割後、Fと同様に水に浸漬してから、乾燥した。

3. 春掘試料(J~M)の調製法

直播7年生根(1株)を1995年5月12日に掘上げ、水洗後、直ちに株から一次側根および二次側根を外し、LおよびMについては10~15分以内に加熱処理を開始した。各々3本の側根を試験に供し、仕上りはしなり具合で判断した。

J:屋外で6月9日迄陰干した。

K:温室内(30℃以上40℃以下)で5月18日迄日干した。

L:70℃の湯に20分間浸漬後、屋外で5月18日迄陰干した。

M:70℃の温風を72時間当て、強制乾燥した。

4. 分析用試料の調製

各試料を剪定バサミで適当な大きさに切った後、超遠心粉砕機で48メッシュ以下の大きさに粉砕し、分析用試料とした。試料Aは10株を別々に、試料B~Mは各処理区毎にまとめて粉砕した。

5. HPLCによるcostunolideおよびdehydrocostuslactoneの定量

前報²⁾に従った。即ち、分析用試料1.0gを精秤し、50mlのネジ栓付遠沈管に入れ、エチルエーテル50mlを加えた後、30分間超音波処理した。遠心分離(3,000rpm, 10分間)後、上清を試験溶液とした。

HPLCの条件:装置;日立655型高速液体クロマトグラフ。カラム;TSKgel ODS-80T_M(4.6φ×250mm)。移動相;メタノール・水混液(3:1)。流速;1.0ml/分。カラム温度;40℃。検出波長;215nm。注入量;5μl。

6. HPLCによる果糖およびブドウ糖の定量

前報²⁾に従った。即ち、分析用試料500mgを精秤し、10mlのネジ栓付遠沈管に入れ、水5.0mlを加えた後、20分間振とう抽出した。遠心分離(3,000rpm, 10分間)後、上清の一部を0.45μmのフィルターを用いてろ過し、ろ液を試験溶液とした。

HPLCの条件:装置;日立L-6200型高速液体クロマトグラフ。カラム;Develosil NH₂-5(4.6φ×250mm)。移動相;アセトニトリル・水混液(7:3)。流速;1.0ml/分。カラム温度;37℃。検出器;示差屈折計(エルマ社, ERC-7522)。注入量;10μl。

7. 精油含量

試料AおよびCを薄切りにした後、ブレンダーで粗く粉砕した。粉砕試料100.0gを用い、第十二改正日本薬局方の生薬試験法・精油定量法に準じて精油含量を算出した。各々の値を2で割り、50.0g当りの含量に換算した。

結果および考察

1. 精油成分および単糖の定量結果

先ず試料の個体差を知るため、試料Aの各々についてcostunolideおよびdehydrocostuslactoneを定量したところ、平均値±標準偏差($n=10$)は $1.28 \pm 0.28\%$ および $0.89 \pm 0.17\%$ であった。また、果糖で $13.8 \pm 2.6\%$ 、ブドウ糖で $2.9 \pm 0.4\%$ 、糖合計で $16.7 \pm 2.7\%$ の値が得られ、各個体間の含量差は小さいと判断した。

従って、試料B以下については各処理区毎にまとめて定量し、調製法と共にTABLE Iに示した。

北海道産木香はその調製法、収穫時期の違いにかかわらず、costunolideおよびdehydrocostuslactoneの含量差は小さく、それらの合計含量は輸入品²⁾と大差なかった。輸入品ではcostunolide含量がdehydrocostuslactone含量を下回った²⁾が、道産品では逆に上回った。

一方、糖含量(果糖およびブドウ糖の合計値)は調製法により差が認められたので、以下に詳述する。

2. 希エタノールエキス含量と性状

希エタノールエキス含量は最高値37.7%、最低でも18.4%の値が得られ、全ての試料が局方値17.0%を上回

TABLE I. Preparation Methods for the Root of *Saussurea lappa* Cultivated in Hokkaido and Analytical Results of *Saussureae Radix*

Sample		Preparation method				Essential oil		Sugar** ³ (%)	Dilute ethanol-soluble extract (%)
		Soaking in water	Drying outdoors	Drying indoors	Hot-air (50°C)	Cos (%)	DeC (%)		
A	Maruboshi* ¹	—	23 days	137 days	—	1.28	0.89	16.7	36.1
B	"	—	23 days	12 days	24 h	1.40	1.22	15.2	37.7
C	Wariboshi* ²	—	23 days	137 days	—	1.24	1.00	7.3	18.4
D	Maruboshi	—	—	41 days	—	1.56	1.27	12.2	25.4
E	"	—	—	12 days	72 h	1.37	1.13	15.4	27.8
F	"	3 days	—	38 days	72 h	1.22	0.85	11.8	27.1
G	Wariboshi	—	—	41 days	—	1.11	0.97	10.3	21.5
H	"	—	—	12 days	72 h	1.10	0.98	9.2	20.2
I	"	3 days	—	38 days	72 h	1.38	1.38	10.5	22.2

S. lappa cultivated in Nayoro for three years were harvested in October 22, 1992 (samples A-C) and May 14, 1993 (samples D-I).

*¹The lateral roots were cut into suitable sized sticks and were subjected to drying.

*²The lateral roots were splitted lengthways into two pieces then cut to suitable size before drying.

*³Total amounts of fructose and glucose.

Cos: costunolide, DeC: dehydrocostuslactone.

った。輸入品²⁾と同じく、希エタノールエキス含量の高い試料は糖含量も高く、逆に低い試料では糖含量も低い傾向にあった。そこで、希エタノールエキス含量と糖含量間の相関係数を求めたところ、 $r=0.913$ ($n=9$) と高い値を示した。

希エタノールエキス含量の多い試料は折りにくく、切口には油気があり、粉碎は容易ではなかった。しかし、少ない試料の内部は充実していない上に脆く、粉碎も極めて簡単であった。この傾向は輸入品²⁾と同一であった。

なお、国内市場においては、油気に富み香りの強い木香の方が、油気が少なく内部に空隙があり香りの弱いものよりも好まれるという⁶⁾。また、中国雲南省の商品規格は、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を良品としている⁷⁾。

3. 丸干しと割干し

一色は1916年(大正5年)に上梓した著書⁹⁾の中で、「…太いものは縦に二條或は四條に切斷し、…」と述べており、第十二改正日本薬局方でも縦分割された木香の流通を示している。また、縦分割により乾燥がより簡単になることが予想される。そこで、縦分割の調製過程および成分含量に及ぼす影響について検討を加えた。以下、側根を適当な長さに横切後、乾燥する方法を“丸干し”、側根を縦に二分後、乾燥する方法を“割干し”とした。

割干しは乾燥時間が丸干しより短縮されたものの、途中でカビが発生したり、細い側根では分割作業に手間がかかるなど、実用的な方法ではなかった。また、TABLE Iから明らかのように、希エタノールエキス含量および糖含量において丸干しより劣る傾向が認められたため、側根では丸干しが適当と考えられた。

4. 自然乾燥と温風による強制乾燥

自然乾燥の期間を短縮するため、温風による強制乾燥の可能性についても検討した。

屋外または屋内で自然乾燥後、温風(50°C)乾燥した試料(B, E, H)と、自然乾燥を続けた試料(A, D, G)を比較したところ、今回定量した成分に関する限り差は認められなかった。通風温度については検討を加えていないが、一定期間自然乾燥したのものについて、仕上げの意味で50°C以下で乾燥する限り変質はないものと考えられる。しかし、低沸点化合物については損失が考えられるため、更に検討が必要であろう。

5. 水浸漬の影響

中国では水洗後、直ちに日干しするという⁹⁾。一方、一色は日干しする前に「水に浸すのは、夏ならば五六時間、冬ならば一夜の後、とり出し能く水分をたらし、…」と述べている⁵⁾が、その理由を明らかにしていない。そこで、水浸漬の影響を知るため、自然乾燥した試料(D, G)と、水に3日間浸漬後、自然乾燥した試料(F, I)とを比較した。今回定量した成分に関する限り、差は認められなかった。

6. 収穫時期

先の試験では春掘品は秋掘品より costunolide および dehydrocostuslactone 含量が高く、また、根の生育上の問題、農作業の容易さなどの観点からも、収穫時期は3年目の春の萌芽前が適切とした⁸⁾。しかし、今回の試料では収穫時期の違いによる両成分の含量差は明確ではなく、成分含量から適期を判断できなかった。生育年数、部位等の違いもあり、今後の試験に委ねたい。

北海道の秋は一般に天候が不順で積雪も早いいため、秋掘品の乾燥は室内が主体とならざるを得ず、大量の根を扱う

にはそれなりの設備を必要とする。一方、北海道の春から初夏にかけての天候は安定しており、湿度も低いことなどを考慮すると、収穫時期としては春が適当と考えられる。

7. 精油含量

現行の日本薬局方では規定されていないが、参考のため最も糖含量が多く油気に富む試料 A および最も糖含量が少なく内部が充実していない試料 C の精油含量を求めたところ、0.16 ml/50 g および 0.15 ml/50 g の値が得られ、差は認められなかった。また、精油成分のうち今回定量した costunolide および dehydrocostuslactone 含量も、試料 A および C 間で差は認められなかった。

これらのことより、木香の油気は精油成分の多少よりむしろ糖分の多少に左右されると考えられた。このことは輸入品の品質比較からも推察されていた²⁾。

8. 酵素の失活による品質の低下

S. lappa 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⁴⁾。イヌリンは加水分解酵素により果糖と少量のブドウ糖に分解されることはよく知られている。

我々は上記の結果より、乾燥中に酵素が作用し、その結果糖含量が増加して乾燥は困難になるものの、品質は向上すると考えた。そこで確認のため、春掘根を収穫後直ちに酵素が失活すると考えられる条件（温風乾燥あるいは温湯浸漬）に供し、自然乾燥品と比較した。結果を TABLE II に示した。

温風乾燥（70℃、72時間）した試料 M は脆くて折れやすく、折口の油気は乏しい上に内部の空隙が多く充実していなかった。温湯浸漬（70℃、20分間）後、屋外で陰干ししたところ6日間で仕上がった試料 L、温室内で日干ししたところ同じく6日間で仕上がった試料 K も温風乾燥品 M と同様の傾向にあった。

一方、屋外で約1か月間かけて陰干しした試料 J は油気に富み、内部は比較的充実しており、粉碎も困難であった。自然乾燥品 J は短期間仕上げ品 K、L および M より性状のみならず、希エタノールエキス含量、糖含量および乾燥歩留りで勝っていた。

これらのことより、油気に富み内部の充実した良質の木香を得るためには収穫直後の加熱や急速な乾燥を避け、1か月程度の時間をかけてゆっくりと乾燥しなければならないことが明らかになった。

9. 北海道における木香の調製

酵素が作用するためには適度の外気温と湿度が必要であるが、北海道でこの条件を満たすのは秋から初冬にかけてよりもむしろ春から初夏にかけてである。そこで、現段階では2年生根を3年目の春に掘上げ、水洗、適当な長さに横切し、3週間から1か月間自然乾燥後、乾燥が不十分であれば温風（50℃以下）で仕上げ、磨きをかけてから出荷する方法を考えている。

薫香料として用いられる木香はその特異な芳香が品質を左右する大きな要因の一つであり、市場でもその強弱が問題となる。香気成分については未だ検討しておらず、今後は品質評価の方策を講じたい。

また、木香輸入品は主根を調製加工したものであり、本来は太い主根を用いて検討すべきである。しかし、今回試験に供した3年生の主根は太さが不揃いな上に、木質化し、一部に空洞を生じるなど調製法の検討には不向きであったため、ある程度均一な太さでしかも多数得られる側根を使用した。今後は2年生主根を用い、今回得られた基礎的データを基に、市場性のある木香の北海道に適した調製法の確立を目指したい。

ま と め

木香の基原植物である *S. lappa* の根を中国のように秋に掘上げ、自然乾燥する方法は降雪のある北海道では適切でなく、北海道の気象条件を加味した独自の調製法が必要となった。そこで、根の縦二分割、温風乾燥、春掘などの成分含量と性状に及ぼす影響を検討した。

その結果、油気に富み内部の充実した木香を得るためには、ゆっくりと十分な時間をかけて自然乾燥する必要があることが明らかになった。この間にイヌリンが酵素により分解されて単糖類が増加し、乾燥は困難になるものの、高いエキス含量を示すようになることが示唆された。

TABLE II. Preparation Methods for the Root of *Saussurea lappa* Cultivated in Hokkaido and Analytical Results of Saussureae Radix

Sample	Preparation method	Yield (%)	Sugar (%)	Dilute ethanol-soluble extract (%)
J	Drying outdoors (shady) 28 days	33.1	17.7	36.8
K	Drying in green house (sunny) 6 days	27.3	3.8	24.3
L	Soaking in hot water (70°C, 20 min) → outdoors 6 days	26.9	2.0	25.0
M	Drying by hot-air (70°C) 72 h	27.3	1.0	19.8

One plant of *S. lappa* cultivated in Nayoro for seven years was harvested in May 12, 1995 and the lateral roots were subjected to drying.

Loss on drying of each samples was 8.4-11.0%.

収穫直後の加熱乾燥，縦二分割は乾燥時間が短縮されたものの，糖および希エタノールエキス含量は自然乾燥品より低い値を示した．自然乾燥品の仕上げに温風（50℃以下）乾燥を適用することは可能と考えられた．北海道の秋は天候が不順な上に降雪があるため，自然乾燥を効率良く行うためには秋掘りより春掘りの方が適当と考えられた．

今後香気成分など検討すべき課題も残されているが，現段階では，春掘根を適当な長さに横切した後，自然乾燥または自然乾燥後，温風（50℃以下）で仕上げる方法が適当と考えられた．

謝 辞：本研究の一部は厚生省「特別研究事業」の一環として行ったことを付記し，関係各位に感謝いたします．また，栽培，収穫，調製，調査にご協力を頂いた国立衛生試験所北海道薬用植物栽培試験場の三浦忠一技官，沢井清道技官，佐藤里子

氏，成瀬ひとみ氏および種々の情報をお寄せ頂いた三星製薬所開発部長嶋田康男博士に深謝いたします．

引用文献および注

- 1) 日本公定書協会監修，“第十二改正日本薬局方解説書”，廣川書店，東京，1991，D-954.
- 2) 青柳光敏，姉帯正樹，兼俊明夫，林 隆章，飯田 修，畠山好雄，道衛研所報，**45**，21 (1995).
- 3) 畠山好雄，熊谷健夫，米田該典，生薬，**43**，246 (1989).
- 4) 上海科学技術出版社，小学館編，“中薬大辞典”，小学館，東京，1985，p. 2528.
- 5) 一色直太郎，“復刻版 和漢薬の良否鑑別法及調製方”，谷川書店，東京，1989，p. 261.
- 6) 有本恵子氏よりの私信.
- 7) 大阪生薬協会生薬懇話会編，“生薬の選品と評価 II”，大阪生薬協会，大阪，1995，p. 133.
- 8) 米田該典，西 章嘉，前平由紀，畠山好雄，飯田 修，*Nat. Med.*，**48**，28 (1994).