

「伊吹山麓よもぎ」を使った機能性製品の開発(第3報)

今泉茂巳、加島隆洋

Developments of functional products of *Ibuki Sanroku Yomogi* (III)

Shigemi IMAIZUMI and Takahiro KASHIMA

「伊吹山麓よもぎ」の100%エタノール抽出液を調整し、太白ごま油と0.2%重曹水を加えてエタノールを留去して、続いて0.01%重曹水で精製することにより、暗所でもよぎの色を保持できる「よもぎエキス」を作製することができた。エキスは弱いよもぎの香りがしたが、トップノート成分の割合が減少した。香气成分としては、様々な生理活性を持つテルペン類を含んでいた。このエキスを素地に用いて石鹼を試作したところ、暗所下で熟成を進めることにより緑色を保持した石鹼ができた。ただし、その香りは甘く花のような感じであった。「伊吹山麓よもぎ」に含まれるセスキテルペンラクトンとして、arglanine, douglanline, yomoginの可能性が見出せた。

1. はじめに

岐阜県から滋賀県に広がる伊吹山麓には約280種類の薬草が繁殖しており¹⁾、その中の1つ「よもぎ」は古くから草餅の材料や和漢薬(艾葉)、艾として利用されてきた。現在、揖斐川町の生産組織が伊吹山一帯に自生するよもぎを元に優良系統の選抜と栽培を行い、「伊吹山麓よもぎ」としてブランド化を進めている。

よもぎを加工食品で使用する際、ブランピング後に乾燥粉末化やペースト化して使用することが多い。しかし、これらは粉碎不十分な繊毛を多く含むため、添加する食品によっては食感の低下をもたらす。

また、よもぎは新芽部分しか食用として利用されていない。残りの部分は一部入浴剤等に利用される他は廃棄物となっており、これらの有効活用も望まれている。

そこで、本研究では「伊吹山麓よもぎ」の全草を原料としたエキスを開発し、その色、香り、機能性成分について検討した。また、よもぎエキスを使った化粧石鹼を試作した。

2. 実験

2.1 使用したよもぎ

2015年6月から10月に揖斐川町のNPO法人が管理する圃場で「伊吹山麓よもぎ」を根本から刈り取り、実験に供した。

2.2 エタノール抽出条件の検討

既報において、よもぎのエタノール抽出液が時間とともに褐色化する問題を報告した²⁾。処理を室温で行ったことが原因と考えられたため、抽出液の色の安定性に着目して、抽出温度および保管温度と保管期間について検討した。よもぎ100gを99.5%一級エタノール(関東化学(株))800mlに2日間冷蔵下または室温下で浸した。よもぎを取り出してNo.2定性濾紙で濾過した後、各抽出液について冷蔵下または室温下で10日間保管した。抽出液の色を目視により観察すると共に、田中³⁾の方法によりクロロフィル類(chlorophyll a,b, chlorophyllide a,b, pheophytin a,b)濃度を、今泉ら⁴⁾の方法によりクロロゲン酸類(3-CQA, 4-CQA, 5-CQA,

3,4-diCQA, 3,5-diCQA, 4,5-diCQA)を測定した。

2.3 エキスの試作

よもぎ200gを短く切り簡単に水洗いした後、2リットル瓶に入れ、一級エタノール1.6リットルにより抽出した。抽出液500mlに太白油(マルホン太白胡麻油、竹本油脂(株))を50ml添加し、一部はさらに0.2%重曹水50mlを添加して、水温40℃、真空度100hPaで1.5時間エバポレーションし、エタノールを除去した。3回分の残留物を併せて500ml遠沈管に入れ、蒸留水(エタノール留去時に重曹水を添加した場合は0.01%重曹水)を150ml添加し、3,000rpmで10分間遠心分離した。水層を除去し、さらに蒸留水または0.01%重曹水で同様に2回処理し、精製した。最後に無水硫酸ナトリウムで水分を除去し、No.1定性濾紙で濾過した。

2.4 石鹼の試作

よもぎエキス201.5gとヤシ油(NIKKOL TRIFAT C-24, 日光ケミカル(株))200.0gを約50℃に加熱し混合した。そこへ水酸化ナトリウム量として62.2gとなる量の水酸化ナトリウム水溶液(約40℃加温)を加えて攪拌した。14分後トレースを確認したところで攪拌を止め、型に入れて1日保温した。その後、型から出して、室温で7日間熟成した。

2.5 エキスおよび石鹼の評価

試作した「よもぎエキス」および「よもぎ石鹼」の色は目視により評価した。香りについては、今泉ら²⁾の方法によりヘッドスペースガスのSPME-GC-MS/O分析を行った。

2.6 よもぎの機能性成分の探索

クロロゲン酸類以外の機能性成分として、同じキク科のチコリ等に含まれるセスキテルペンラクトン類の探索を行った。

よもぎの凍結乾燥物を使用してFerioli et al.⁵⁾の方法により分析試料を調整し(ただし、最後は100%メタノールに溶解)、松枝⁶⁾の方法により TLC Silica gel 60 F₂₅₄ プレート(Merck)で薄層クロマトグラフィー(TLC)を行った。よもぎエキスについては、メタノール10mlで3回抽出し、全抽出液を合わせてメタノールを留去、乾固した後、メタノール1mlに再溶解した。

3. 結果及び考察

3.1 エタノール抽出条件

2日間抽出直後の抽出液の目視観察では、冷蔵抽出、室温抽出共に緑色を呈しており、室温抽出液の方がより濃色であった。クロロフィル類およびクロロゲン酸類濃度の測定結果(表1)から、室温抽出液が濃色なのはクロロフィル類の抽出量が大きかったためと思われる。しかし、これらを10日間保管したところ、室温保管液はいずれも緑色が薄くなり、冷蔵抽出液は若干の黄味を、室温抽出液は褐色味を帯びた。表1によると室温保管液の方が褐色成分の増え方が大きく、フェオフィチン化がより進行していることが原因として考えられる。また、クロロゲン酸類についても、冷蔵抽出液は保管中に増加したが(増加した原因は不明)、室温抽出液では逆に若干減少しており、クロロゲン酸類の酸化や重合による褐変も寄与していると思われる。

以上より、冷蔵下で抽出や保管を行うと共に、抽出後は迅速に次の工程に進むことが望ましいことが明らかになった。

3.2 エキスの試作条件と色について

太白油のみを添加してエタノールを留去し、蒸留水で精製を行ったところ、調整直後は緑色だったが、時間とともに褐変が進んだ。これはエキス中に含まれる有機酸によりフェオフィチン化が進んだためと考え、0.2%重曹水を加えて弱アルカリ性下でエタノールを留去し、精製にも0.01%重曹水を使用した結果、鮮やかな緑色を呈するエキスを調整できた。なお、このエキスは3か月経過後も緑色を保っていた。

3.3 エキスの香気成分について

試作したよもぎエキスは弱いよもぎの香りがした。生草5.0gまたはエキス2mlを使用した香気成分分析の結果を図1に示す。主な香気成分は、樹木様の α -pinene, camphene, 1,8-cineol, 2-hexen-1-ol, borneol、ハーブ様のp-cymene、

草様の2-hexenal, 3-hexen-1-ol, δ -cadinene、マツシユルーム様の1-octen-3-oneであった。ただ、トップノート成分(ピーク1~3)の割合が生草と比べると小さかった。

また、 α -pinene, camphene, 1,8-cineol, borneol, δ -cadineneはテルペン類である。テルペン類には抗菌作用、鎮静作用、抗炎症作用等の生理活性を持つことが明らかになっており、本エキスにもそのような効果が期待される。

3.4 よもぎエキスを使用した石鹸の試作

熟成時に極力光を当てないようにした結果、よもぎの緑色を十分に保持した石鹸を試作することができた(図2)。香りについては、よもぎの爽やかな感じではなく、甘く花のような香りであった。香気成分分析の結果(図3)から、試作中に沸点が低くスツとした香りの α -pinene(ピーク2)等が揮発し、沸点が高い β -caryophyllene(ピーク14)や β -farnesene(ピーク16)の割合が増えたためであると思われる。

3.5 よもぎのセスキテルペンラクトンの探索

よもぎ凍結乾燥物のTLCの結果、Rf値0.00, 0.19, 0.30, 0.48, 0.57, 0.67, 0.79, 0.85, 0.89に薄いスポットが見られた。松枝ら⁶⁾によると、同じTLC条件でRf値0.56にarglanineが、Rf値0.64にdouglanineが検出された例がある。また、Rf値0.79のスポットはsantoninのスポット(Rf値0.80)とほぼ同位置であった。Geissman⁷⁾は過去にsantoninのスポットとほぼ同位置にyomoginを確認している。そこで、同条件で本試料のTLCを行ったところ、santoninとほぼ同位置(Rf値は共に0.64)にスポットを確認した。また、過去に行った伊吹山麓よもぎ抽出液のLC-MS分析においても、これら3成分の存在の可能性は示唆された(図4)。

一方、よもぎエキスのTLCについては、緑色や黄色の色素がクロマトグラム全体に存在したため、セスキテルペンラクトンの有無については明らかにすることができなかった。

表1 エタノール抽出液のクロロフィル類およびクロロゲン酸類濃度(緑色成分=chlorophyll+chlorophyllide, 褐色成分=pheophytin, 括弧内は緑色成分と褐色成分の比率)

2日間抽出後	10日間保管後
冷蔵抽出 緑色成分=6.22 mg/l (95.3) 褐色成分=0.307mg/l (4.7) クロロゲン酸類=0.308g/l	冷蔵保管 緑色成分=4.64 mg/l (85.9) 褐色成分=0.763mg/l (14.1) クロロゲン酸類=0.700g/l
	室温保管 緑色成分=3.72 mg/l (75.4) 褐色成分=1.21 mg/l (24.6) クロロゲン酸類=0.679g/l
室温抽出 緑色成分=8.27 mg/l (86.5) 褐色成分=1.30 mg/l (13.5) クロロゲン酸類=1.49 g/l	冷蔵保管 緑色成分=6.79 mg/l (79.1) 褐色成分=1.80 mg/l (20.9) クロロゲン酸類=1.38 g/l
	室温保管 緑色成分=5.37 mg/l (66.3) 褐色成分=2.74 mg/l (33.7) クロロゲン酸類=1.39 g/l

a) 生草 5.0g (Split,20:1)

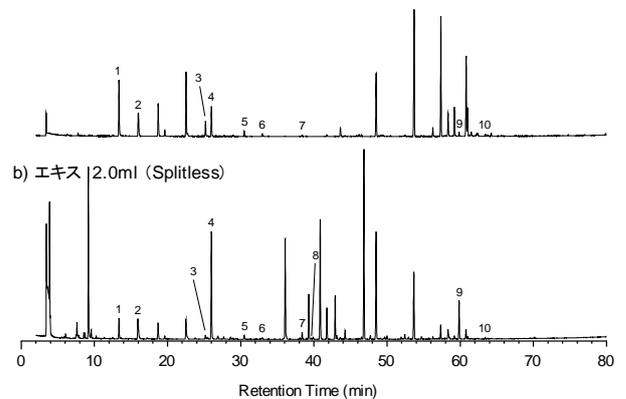


図1 よもぎ生草とよもぎエキスの香気成分分析, 数字はエキスのスニッフィングにおいて匂いを感じたピーク

1. α -pinene, 2. camphene, 3. 1,8-cineol, 4. 2-hexenal, 5. p-cymene, 6. 1-octen-3-one, 7. 3-hexen-1-ol, 8. 2-hexen-1-ol, 9. borneol, 10. δ -cadinene



図2 試作した伊吹山麓よもぎ石鹸

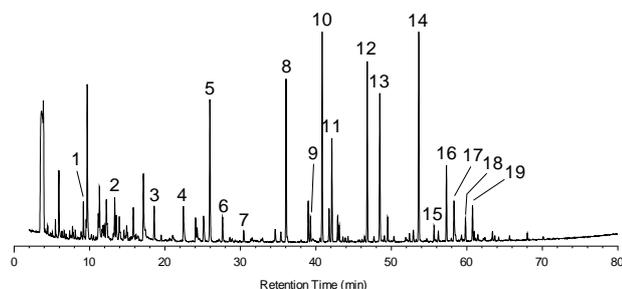


図3 伊吹山麓よもぎ石鹸の香気成分分析結果

1. ethanol, 2. α -pinene, 3. β -pinene, 4. β -myrcene, 5. 1,8-cineol, 6. ethyl caproate, 7. p-cymene, 8. artemisia ketone, 9. yomogi alcohol, 10. 2-methyl-2-octen-4-ol, 11. ethyl caprylate, 12. artemisia alcohol, 13. camphor, 14. β -caryophyllene, 15. ethyl caprate, 16. β -farnesene, 17. α -humulene, 18. borneol, 19. germacrene D

4. まとめ

「伊吹山麓よもぎ」の100%エタノール抽出液を調整し、太白ごま油と0.2%重曹水を加えてロータリーエバポレーターによりエタノールを留去して、続いて0.01%重曹水で精製することにより、暗所でよもぎの色を保持できる「よもぎエキス」を作製することができた。その香りについては、トップノート成分の割合が減少していたが、弱いよもぎの香りがした。香気成分には抗菌作用、鎮静作用、抗炎症作用等の生理活性を持つテルペン類が含まれていた。このエキスを素地に用いて石鹸を試作したところ、暗所で熟成させることにより、よもぎの色を保持した石鹸を作ることができた。香りについては、よもぎの爽やかな感じはなく、甘く花のような香りであった。

伊吹山麓よもぎに、セスキテルペンラクトンとして、arglanine, douglanine, yomoginが含まれる可能性が見出された。しかし、これらがエキス中に含まれるかどうかは明らかにできなかった。

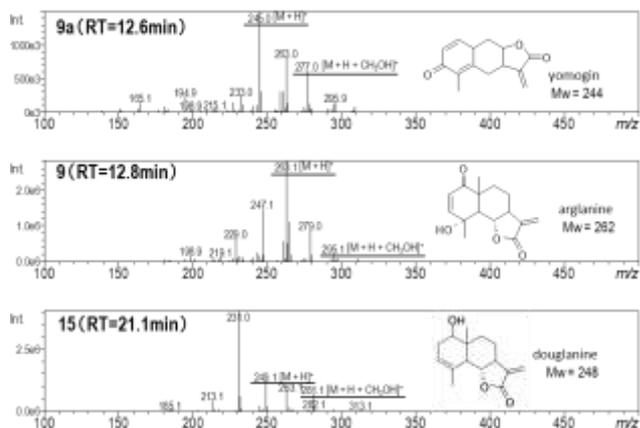


図4 伊吹山麓よもぎ抽出液のLC-MS結果, Column : Ascentis C18 3 μ m 2.1x150mm, Solvent : 30%MeOH-20min-50%MeOH-2min-MeOH(0.2%HCOOH) at 0.2 ml/min

【謝 辞】

NPO法人山菜の里いび様には「伊吹山麓よもぎ」をご提供いただきました。アトリエキク有限責任事業組合様には石鹸を試作していただきました。また、岐阜大学応用生物科学部の山内教授には、よもぎ抽出液のLC-MS分析を行っていただきました。以上の皆様に心から感謝いたします。

【参考文献】

- 1) 水野, 伊吹山の薬草—基礎と応用—, 春日村役場, pp.138, 1997.
- 2) 今泉ら, 岐阜県産業技術センター研究報告 9, pp.27-30, 2015.
- 3) 田中, 低温科学 67, pp.315-325, 2009.
- 4) 今泉ら, 岐阜県産業技術センター研究報告 8, pp.40-43, 2014.
- 5) Ferioli et al., Food Chemistry 135, pp.243-250, 2012.
- 6) 松枝ら, 薬学雑誌 90(9), pp.1140-1143, 1970.
- 7) Geissman, The Journal of Organic Chemistry 31(8), pp.2523-2526, 1966.