

桑白皮の品質に関する研究 (2) — 皮層部の成分組成と基原 —

布目慎勇^a, 近藤健児^a, 寺林進^a, 佐々木博^a, 成 暁^b, 郝小江^b, 岡田稔^a
^a(株) ツムラ, 漢方生薬研究所, ^b中国科学院昆明植物研究所

Studies on the Quality of Mulberry Bark (2) — Botanical Source and Chemical Components of Mulberry Cortex —

Shinyu NUNOME^a, Kenji KONDO^a, Susumu TERABAYASHI^a,
Hiroshi SASAKI^a, Cheng Xiao^b, Hao XiaoJiang^b and Minoru OKADA^a

^a Kampo and Pharmacognosy Laboratory, Tsumura & CO., 3586 Yoshiwara Ami-Machi,
Inashiki-gun, Ibaraki, 300-1192, Japan

^b Kunming Institute of Botany, Academia Sinica, Heilongtan, Kunming, Yunnan, 650204,
the People's Republic of China

(Received October 18, 1999)

The main botanical source of Mulberry Bark in China is said to be *Morus alba* Linne. To determine the botanical source and quality of Mulberry Bark, we studied the chemical components of the cortex of Mulberry Barks commercially obtained in eleven provinces in China and those of the root barks of the following five species; *M. alba* from China and Japan, *M. mongolica* (Bureau) Schneider from China, *M. cathayana* Hemsl. from China and Indonesia, *M. australis* Poirer from China and Taiwan, and *M. bombycis* Koidzumi from China and Japan.

The commercial Chinese Mulberry Barks from seven of the eleven provinces were found to contain mulberroside A, which was detected in the cortex of four *Morus* species except *M. mongolica*. By comparing the chemical components of the cortex and cork layer of Mulberry Barks with those of the five *Morus* species, the main botanical sources of Mulberry Bark were *M. alba* and *M. mongolica*. Some of Mulberry Bark samples were of *M. australis*, *M. bombycis* and an unidentified type.

Keywords — *Morus alba*; *Morus mongolica*; Mulberry Bark; mulberroside A; Botanical Source

桑白皮は「第13改正日本薬局方」¹⁾に記載され、その基原はクワ科のマグワ *Morus alba* Linne の根皮と規定されている。現在日本市場に出回っている桑白皮はほとんどが中国産であり、『中華人民共和国薬典』²⁾にも *M. alba* が挙げられている。しかし桑白皮は中国各地から産出し、その基原は必ずしも明確ではなく、*M. alba* 以外に *M. mongolica*, *M. bombycis*, *M. cathayana*, *M. australis* などがあげられ³⁾、またエキス含量にもばらつきがあるといわれ

ている。桑白皮は薬用部分として通常皮層部を使用するが、前報⁴⁾では非薬用部分であるコルク層について検討し、市場品の基原は主として *M. alba* または *M. mongolica* (Bureau) Schneider の根皮であることを述べた。今回、中国、日本、台湾、インドネシアに産する *Morus* 属植物 5 種の根皮および中国市場品の桑白皮 22 検体について、皮層部の成分組成を検討したところ mulberroside A (MA) の有無により 2 タイプに分けられることが明らかとなった。本報では

桑白皮の成分組成および基原との関係について報告する。

実験の部

1. 実験材料

本報で使用した材料は(株)ツムラ、漢方生薬研究所に保管される。

1) 中国市場品桑白皮

桑白皮は中国各地から広く産出するので、1984年から1999年にかけて来るだけ多くの地域から市場品を入手し、実験材料とした。

河南省(6検体)、河北省(2検体)、安徽省(3検体)、湖北省(4検体)、湖南省(1検体)、浙江省(1検体)、江西省(1検体)、四川省(2検体)、貴州省(1検体)、雲南省(1検体)

2) 比較材料

比較に用いた材料は、主に地上部の葉の特徴に基づ

いて同定を行った。

a) マグワ *Morus alba* Linne(白桑)

中国産：江蘇省(1988.12, 1989.11), 安徽省(1990.7, 1999.6), 浙江省(1989.11), 湖北省(1999.7), 四川省(1990.6), 雲南省(1987.11, 1999.6)

日本産：山梨県(1987.5), 群馬県(1987.10, 1988.4, 1988.5), 茨城県(1987.5, 1987.10, 1988.5, 1988.10, 1989.1)

b) ヤマグワ *M. bombycis* Koidzumi(山桑)

雲南省(1999.6), 群馬県(1971.10)

c) モウコグワ *M. mongolica* (Bureau)Schneid. (蒙桑)

遼寧省(1987.9), 北京(1988.9), 山東省(1989.10), 四川省(1996.6)

d) シマグワ *M. australis* Poiret (鷄桑)

四川省(1996.9), 雲南省(1999.6), 台湾(1987.11)

e) ケグワ *M. cathayana* Hemsl. (華桑)

雲南省(1999.6), インドネシア(1987.10)

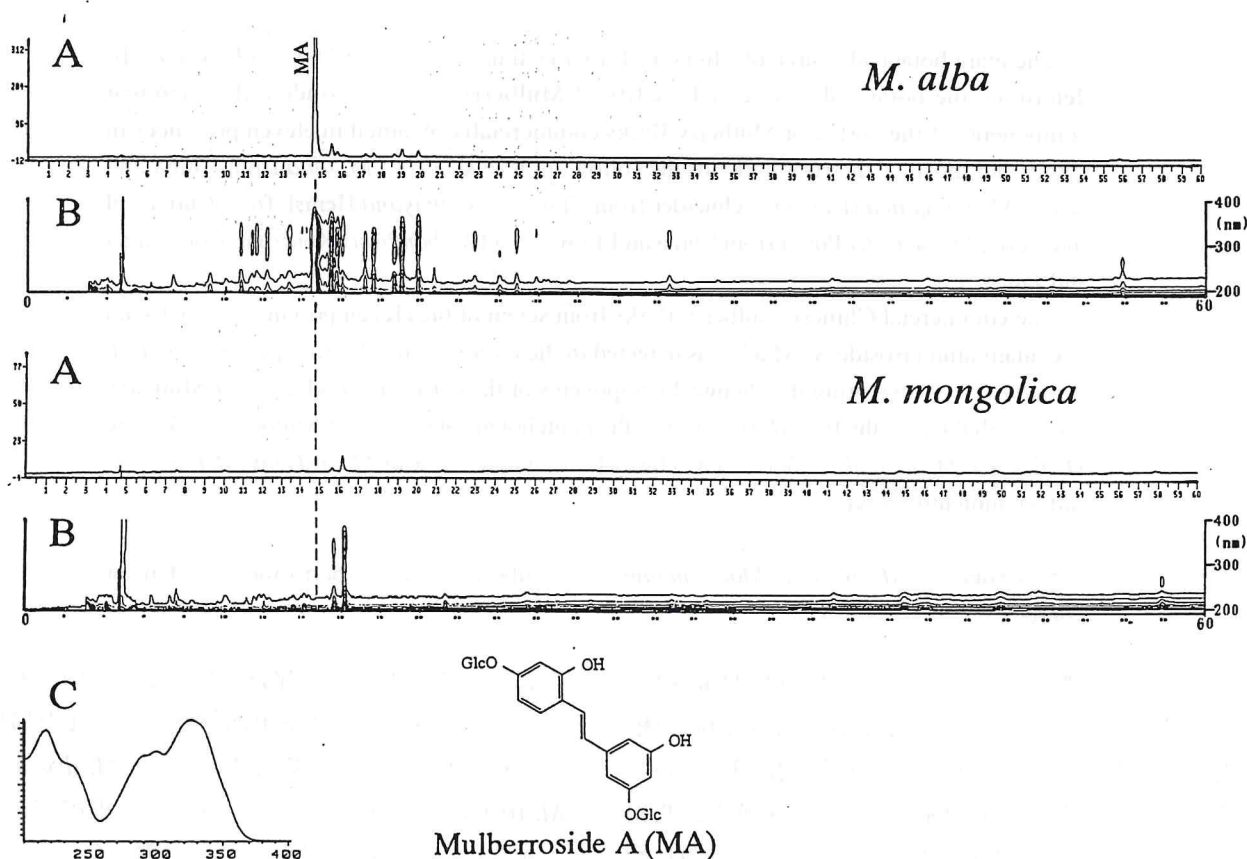


Fig. 1. HPLC chromatograms of *M. alba* and *M. mongolica*.
A: 235 nm, B: contour plot, C: UV spectre of mulberroside A

2. Mulberroside A (MA) の単離

桑白皮(安徽省産) 1.5 kg を粗切し, 30% MeOH (10 ℓ) で3回還流抽出し, 減圧濃縮してエキス250gを得た. エキスをダイヤイオンHP-20 に付してメタノールで流下し, 流出液を濃縮した後, シリカゲル(AcOEt-MeOH), 逆相系シリカゲル(MeOH-H₂O)にて精製し, MA 12g を得た. 同定はMAの標準品をもとに, HPLCのリテンションタイムおよびUVスペクトルの比較により行った.

3. HPLCによる定量

材料の表面のコルク層を削り去ったのちロッドミルにて粉末とし, その500mgを取って水-エタノール(1:1, 50m ℓ)で一時間超音波抽出し, ろ過してHPLCの試料溶液とした. 標品として単離したMAを用い, メタノールに溶かして標準溶液とした. 試料溶液中の各成分のピークは標品の保持時間とUVスペクトルによって同定した(Fig. 1). 試料溶液中の成分の定量は, 各標品とのピーク面積比による絶対検量線法により行った. なお定量値は1検体につき3回分析を行って平均値を算出し, また1か所の産地で2検体以上ある試料については変動幅を示した.

4. HPLCの装置及び条件

高速液体クロマトグラフ, HP-1090 Series II (Hewlett-Packard); 分析カラム, TSKgel ODS-80Ts(4.6 × 250 mm); 移動層, 10mM リン酸-アセトニトリル (95:5 → 40:60, リニアグラジエント, 60min); 流速, 1m ℓ /min; カラム温度, 40℃; 定量の波長, 235nm; 注入量, 10 μ ℓ.

結果および考察

1. 桑根皮の成分については, 野村らによりステルベン配糖体であるMAを始め, 多くの成分を含むことが報告されている⁵⁾. 基原の明確なクワ属5種の根皮の皮層部をHPLCにて分析したところ, *M. alba*, *M. cathayana*, *M. australis*, *M. bombycis*にはいずれも主成分としてMAが検出されたが, *M. mongolica*にはMAがほとんど検出されなかった. また各分析試料についてHPLC上で三次元的にUV吸収(190 ~ 400 nm)を調べ, 等高線による表示(Fig. 1, B)を行ったが, MA以外に大きなUV吸収を持つ化合物は見出されなかった. 従って桑白皮の品

Table I. Contents(%) of MA in Cortex of Mulberry Barks and Root Barks of *Morus* spp.

materials	product places or markets	MA ^{a)}
[Type A]		
<i>M. alba</i> (C) ^{b)}	China: Anhui(安徽)	0.56-2.41
	Hubei(湖北)	0.52
	Jiangsu(江蘇)	2.71-3.45
	Zhejiang(浙江)	1.4
	Yunnan(雲南)	0.63-3.83
<i>M. alba</i> (J) ^{b)}	Japan: Ibaraki(茨城)	0.73-1.62
	Gumma(群馬)	0.76-1.16
	Yamanashi(山梨)	0.95
<i>M. bombycis</i>	China: Yunnan(雲南)	1.46
	Japan: Gumma(群馬)	1.01
<i>M. australis</i>	China: Si chuan(四川)	1.37
	Yunnan(雲南)	1.32
	Taiwan(台湾)	0.37
<i>M. cathayana</i>	China: Yunnan(雲南)	0.74
	Indonesia	0.24
Mulberry Bark	China: Anhui(安徽)	1.10-2.09
	Shanghai(上海)	1.12-1.64
	Si chuan(四川)	0.42
	Jiangxi(江西)	0.71
	Yunnan(雲南)	0.59
[Type B]		
<i>M. mongolica</i>	China: Liaoning(遼寧)	nd ^{c)}
	Beijing(北京)	nd
	Shandong(山東)	nd
	Si chuan(四川)	nd
Mulberry Bark	China: Hebei(河北)	nd
	Henan(河南)	nd
	Jiangsu(江蘇)	nd
	Zhejiang(浙江)	nd
	Hubei(湖北)	nd
	Hunan(湖南)	nd
	Guizhou(貴州)	nd

^{a)} MA: mulberroside A, ^{b)} *M. alba* (C): from China, *M. alba* (J): from Japan, ^{c)} nd < 0.01%

質評価には, MAの有無およびその含量が指標になるものと思われた.

2. 市場品桑白皮の主産地は河南省, 安徽省であるが, そのほか河北省, 江蘇省, 浙江省, 湖南省, 四川省, 広東省などからも産出する^{6,7)}. 今回入手し得た各種市場品の皮層部について分析定量を行ったところ, MAが検出されるか否かによりA, Bの2タイプに分けることが出来た(Table I). 基原の明確な*Morus*属5種と比較すると, MAを含むType Aは*M. alba*, *M. cathayana*, *M. australis*, *M. bombycis*であり, 安徽省, 四川省, 江西省, 雲南省産の桑白皮が属していた. 一方MAを含まないType Bは*M.*

Table II. Chemical Characteristics of Mulberry Barks and Root Barks of *Morus* spp.

	materials types ^{a)}	product places or markets	cortex		cork layer					
			MA	SCD	KL	KG	KC	KH	KE	Mor
Type A	【Type II】	Anhui, Sichuan, Jiangxi (安徽, 四川, 江西)	+	-	+	+	±	+	+	+
	<i>M. alba</i> (C)	China	+	-	+	+	+	+	+	+
	<i>M. bombycis</i>	China, Japan	+	-	+	+	-	+	+	+
	【Type III】	Yunnan (雲南)	+	+	-	+	+	+	+	+
	<i>M. australis</i>	China, Taiwan	+	+	-	+	+	+	+	+
	<i>M. alba</i> (J)	Japan	+	-	-	+	-	+	+	+
	<i>M. cathayana</i>	China, Indonesia	+	-	-	+	-	+	+	+
Type B	【Type I】	Hebei, Henan, Hubei (河北, 河南, 湖北)	-	+	+	+	-	-	+	+
	<i>M. mongolica</i>	China	-	+	+	+	-	-	+	+
	【Type IV】	Jiangsu, Zhejiang, Hunan, Guizhou (江蘇, 浙江, 湖南, 貴州)	-	+	-	-	-	-	-	±

*) Type I~IV mean four types described in the previous paper.

KC: kuwanon C, KE: kuwanon E, KG: kuwanon G, KH: kuwanon H, KL: kuwanon L, MA: mulberroside A, Mor: morsin, SCD: sanggenon C or sanggenon D

mongolica であり、河北省、河南省、湖北省、浙江省、江蘇省、貴州省、湖南省に産する桑白皮が属していた。桑白皮は古くから安徽省産の「毫桑皮」が優れているといわれてきたが⁹⁾、本省産の桑白皮はMAを含むタイプであることが判明した。今回の分析結果では省毎にA, Bのいずれかのタイプに分けたが、同一省内には複数の*Morus*属植物が分布していることから、さらに多くの市場品を分析する必要がある。

従来、桑白皮の成分として、kuwanon 類や sanggenon 類のフラボノイドなどが報告されているが、これらの成分はコルク層に存在しており、桑白皮の薬用部位はコルク層を削り去った皮層部である。最近MAには気管支平滑筋弛緩作用を有することが報告され⁹⁾、咳嗽や喘息に有効であることが示唆される。従って桑白皮の品質評価の指標成分としては、MAを指標にすることが適当と考えられる。

3. 前報ではコルク層の分析からI~IVの4タイプに分けたが、今回の皮層部の分析結果を踏まえて整理し、それらをまとめてTable IIに示した。成分組成の面からは外部形態による分類とは完全に一致しなかった。即ち*M. alba*は皮層部では中国産*M. alba* (C)と日本産*M. alba* (J)ともにMAを含むが、コルク

層では中国産がkuwanon L, kuwanon Cを含むのに対し、日本産には検出されなかった。また成分組成の面から*M. alba*(C)は*M. bombycis*に類似し、*M. alba*(J)は*M. cathayana*に類似しており、化学分類学的に興味を持たれる。一方sanggenon類は*Morus*属植物のコルク層に見出される成分であり、*M. mongolica*と*M. australis*に含まれ、両者は共通性が高いと思われたが、*M. mongolica*の皮層部にはMAが確認されなかった。

コルク層と皮層部の成分組成の面から桑白皮の基原を考察すると、MAを含むタイプの中で、Type II (安徽, 四川, 江西)は*M. alba*(C)または*M. bombycis*, Type III (雲南)は*M. australis*と考えられる。またMAを含まないタイプの中で、Type I (河北, 河南, 湖北)は*M. mongolica*に一致したが、Type IV (江蘇, 浙江, 湖南, 貴州)は該当するものが見当たらず、現在のところ基原は不明である。以上述べた如く成分組成に基づく基原解明は有力な手段であるが、桑白皮の基原は複雑であり、なお詳細な検討を要する。

桑白皮は五官による鑑定が難しく、MAも無味、無臭、無色の成分でありその有無を感知出来ず、また

形態学的な基原の確認も困難である。従って桑白皮の品質評価にはMAの分析定量が有用であり、さらに基原の確認にはコルク層の成分も利用できることを確認した。

4. クワ属植物は薬用として栽培されるほか、養蚕に栽培されたものが生薬に転用されることがあるといわれる。『中国桑樹栽培学』¹⁰⁾によるとクワの栽培の歴史は数千年に及び、中国各地で養蚕の飼料として品種改良がなされ、多くの品種が栽培されて来た。それ故現在の桑白皮の基原植物を正確に規定することは困難である。またクワの増殖法としては一般に接ぎ木が行われ、地下部と地上部の品種は必ずしも一致しない。今回比較に用いたクワ属植物5種は、主に葉の特徴に基づいて分類したものであるが、根皮の成分分析の結果、同一種内では成分含量に多少の変動はあるものの、成分組成により分類可能であった。従って接ぎ木のクワにおいては、成分組成の面では地上部の形質が地下部に優勢であると考えられるが、さらに詳細な検討が必要である。

謝辞 MAの標準品を提供していただいた東邦大学の野村太郎教授に深謝する。

引用文献

- 1) 「第十三改正日本薬局方」, 第一追補, 廣川書店, 東京, 1998, D-18.
- 2) 中華人民共和国衛生部薬典委員会編, "中華人民共和国薬典", 一部, 人民衛生出版社, 北京, 1990, pp.267-268.
- 3) 岡田稔, "現代東洋医学", Vol.17(1), 74(1996).
- 4) 布目慎勇, 岡田稔, 羽野芳生, 深井俊夫, 野村太郎, 三橋博, *Nat. Med.*, **48**, 71(1994).
- 5) K. Hirakura, Y. Fujimoto, T. Fukai, and T. Nomura, *J. Nat. Prod.*, **49**, 218(1986).
- 6) 朱聖和主編, "中国薬材商品学", 人民衛生出版社, 北京, 1990, pp.362-363.
- 7) 中国薬材公司等編, "中国薬材資源地図集", 華夏出版社, 北京, 1996, pp.10, 64, 72, 74, 75.
- 8) 朱聖和主編, "中国薬材商品学", 人民衛生出版社, 北京, 362, 1990.
- 9) 日本薬学会第115回年会講演要旨集(1995, 仙台), Vol 2, p.172.
- 10) 中国農業科学院蚕業研究所主編, "中国桑樹栽培学", 上海科学技術出版社, 上海, 1985.

