

生藥複方 드링크劑 중 乾薑成分의 確認 및 6-Gingerol의 分離 定量

高成龍 · 崔康注 · 金錫昌 · 金那美

韓國人蔘煙草研究所

(1990년 11월 20일 접수)

Identification of Ginger Components and Quantitative Determination of 6-Gingerol from Crude Drugs-Drink Preparations

Sung Ryong Ko, Kang Ju Choi, Seok Chang Kim and Na Mi Kim

Korea Ginseng and Tobacco Research Institute, Taejeon 305-345, Korea

(Received November 20, 1990)

Abstract □ As a part of studies on the quality control of crude drug-drink preparations, ginger components were identified by TLC and 6-gingerol was determined quantitatively by HPLC. Ginger components were identified by TLC with benzene/acetone (4:1, v/v, on silica gel plate by spraying a vanillin-sulfuric acid reagent. 6-Gingerol contents were determined at 280 nm by HPLC on Lichro CART RP-18 column with acetonitrile/water(38:62, v/v). Its transfer rate in the 3 types of crude drug extract drinks was 65.4-85.1% compared to the content in the ginger extract.

Keywords □ Zingiberis rhizoma, ginger components, 6-gingerol, crude drug preparation, TLC, HPLC.

緒 言

乾薑(Zingiberis Rhizoma)은 生薑(*Zingiber officinale* Roscoe)의 뿌리줄기를 乾燥시킨 것으로 特有의 香氣와 매운맛을 가지며 그 香味의 官能性은 매우 特異한 맛과 香을 나타내어 世界的으로 오랫동안 널리 사용되는 香辛料의 一種이다. 또한 生薑(乾薑)은 發汗劑나 健胃劑 등 藥效가 있어 漢方에서도 널리 이용되어져 왔으며, 特異成分으로 gingerol, shogaol 및 zingerone과 같은 有效成分¹⁻³⁾과 cineol, zingiberol, zingiberone camphene, citral 등 여러 종류의 terpene류, aldehyde, alcohol, ketone, ester 및 sulfide 등으로 구성된 芳香成分들이 보고되고 있다.^{1,4,5)} 그리고 食品學的으로 볼때는 gingerol 및 그의 誘導體가 抗酸化效果가 있는 것으로 보고되고 있다.^{6,7)} 이와 같이 독특한 香味와 그 效能 때문에 最近에는 生薑茶와 같은 茶類와 生藥複方劑 타입의 健康飲料나 醫

藥品드링크 등 많은 新製品이 開發되고 있는 실정이다. 한편 生藥複方劑 醫藥品の 有效指標成分에 대한 品質管理는 주로 TLC 確認方法과 HPLC 定量方法이 通用되고 있다.^{8,9)} 그러나 生藥複方劑 중 乾薑指標成分에 대한 確認方法이나 定量方法은 거의 보고된바 없는 실정이다. 따라서 本 研究에서는 生藥複方劑에 대한 品質管理研究의 일환으로 紅蔘 엑기스가 多量 함유된 生藥複方劑 드링크 중 乾薑成分의 TLC 確認方法과 HPLC 定量方法을 設定하고 6-gingerol의 含量을 HPLC로 分析하여 原料用 乾薑 엑기스로부터 生藥複方劑 드링크 중의 移行量을 調査하였다.

材料 및 方法

1. 原料用 人蔘 및 生藥材料

前報¹⁰⁾에서 사용된 原料紅蔘, 大棗, 乾薑, 桂皮, 枸杞子 및 淫羊藿을 각각 엑기스 抽出用 材料로 사용

Table 1. Preparation of crude drug drinks with the extracts of red ginseng and crude drugs
(Extract content*: mg)

Crude drug	Type		
	A-type	C-type	E-type
Panax ginseng (紅蔘)	1593.6	1195.2	796.8
Zizyphi fructus (大棗)	350.6	350.6	350.6
Zingiberis rhizoma (乾薑)	64.00	34.56	34.56
Cinnamomi cortex (桂皮)	17.50	9.10	9.10
Lycii fructus (枸杞子)	35.98	35.98	35.98
Epimedii herba (淫羊藿)	8.94	8.94	8.94
Sugars (fructose and glucose syrup)	8100	8100	8100
Others (Additives)	S.A.**	S.A.**	S.A.**
Water	30 ml	30 ml	30 ml

*Extract content in one bottle (30 ml)

**Small amount

하였다.

2. 試藥

Gingerol 標準品는 日本 松浦藥業株式會社の 6-gingerol(8.03 mg/ml ethanol)을 標準品으로 사용하였다. HPLC分析에 사용한 acetonitrile과 蒸溜水는 E. Merck 會社の HPLC用 溶媒流를 사용하였고, 乾薑成分의 抽出溶媒와 展開溶媒는 一級試藥을, TLC plate는 Silica gel 60 precoated aluminum sheet(E. Merck Co., layer thickness 0.2 mm)을 사용하였다.

3. 生藥複方劑 드링크 製造

前報¹⁰⁾에서와 같이 製造된 原料用 乾薑 엑기스와 生藥複方劑 드링크를 分析用 試料로 사용하였다. 즉 紅蔘, 大棗, 乾薑, 桂皮, 枸杞子 및 淫羊藿의 물抽出 엑기스(75-80°C에서 8時間씩 3反覆 抽出後 60°C 以下에서 濃縮)를 각각 製造한 後 前報¹⁰⁾에서 언급한 바와 같이 嗜好度나 經濟性을 고려하여 이들 엑기스의 配合量을 달리하여 Table 1과 같이 製造된 A-type, C-type, E-type의 生藥複方劑 드링크를 分析用試料로 사용하였다.

4. 乾薑成分의 TLC 確認

乾薑成分의 확인은 乾薑 特異의 有效成分이 함유된 Oleoresin¹¹⁾과 주된 유효성분인 6-gingerol이 脂溶性成分^{11, 12)}인 점을 고려하여 다음과 같이 脂溶性 分割을 抽出 分離하여 TLC로 확인하였다. 즉 生藥複方劑 드링크 1병(30 ml)씩을 취하여 分획여두에 넣고 ethyl

ether 50 ml로 抽出한 다음 그 水層을 다시 ethyl ether 30 ml로 추출하여 합하고 증류수 30 ml로 진탕시켜 세척하였다. Ethyl ether 추출액만을 分離하여 소량의 sodium sulfate로 탈수시킨 후 減壓濃縮하고 ethyl ether에 溶解시켜 TLC검액으로 하였다. 한편 건강 엑기스 및 健康의 TLC檢液은 본 드링크 1병(30 ml)에 함유된 동량의 原料用 乾薑 엑기스와 이에 상당하는 原料 乾薑의 물抽出物을 각각 물 30 ml에 용해시켜 상기와 동일한 방법으로 ethyl ether 抽出物을 分離하여 TLC검액으로 하였다. 乾薑成分의 확인은 silica gel plate를 이용하여 benzene/acetone(4 : 1, v/v)으로 展開시킨 다음 vanillin-sulfuric acid(1 % vanillin in 40% sulfuric acid, w/v)을 噴霧 加溫하여 확인하였다.

5. 6-Gingerol의 HPLC 定量

本 드링크 試製品 중 乾薑指標成分의 定量은 生薑의 특이성분인 동시에 主要成分으로 通用되고 있는 6-gingerol을 指標成分으로 定量하였다. 定量 方法은 kano¹²⁾ 등의 抽出方法과는 달리 本 試製品 1병(30 ml)을 hexane 60 ml로 진탕 추출하여 분획하고 그 수층을 다시 hexane 30 ml로 抽出하여 합한 다음 물 30ml로 세척하여 hexane 추출액만을 減壓 濃縮시킨 후 acetonitrile에 용해시켜 HPLC 分析用 檢液으로 하였다. 이 때 사용한 HPLC는 Waters Associates Model 244 를, column은 Lichro CART RP-18(Merck Co. 10 um, 250 mm×4 mmI.D.)를, 檢出器는 UV 280 nm을 사용하였고 mobile phase는 acetonitrile/water(38 : 62, v/v)를 각각 사용하였다. 한편 HPLC 分析 方法으로 얻은 6-gingerol chromatogram의 peak 높이로서 작성된 檢量線은 Fig. 1과 같다. 이 檢量線의 回歸方程式은 $y=0.6530x-0.1688$ 이었으며, 直線性을 檢定한 結果 그 相關係數가 $r=0.9994$ 로서 1.0에 接近하여 6-gingerol의 重量과 peak height ratio간에 直線性이 確認되었다.

結果 및 考察

1. 乾薑成分의 確認

本 試驗에서 製造한 生藥複方劑 드링크 중 乾薑成分의 TLC에 의한 확인시험 결과는 Fig. 2와 같다. 즉 乾薑, 乾薑 엑기스 및 生藥複方劑 드링크를 각각 동일한 방법으로 처리하여 乾薑의 ethyl ether 추출분

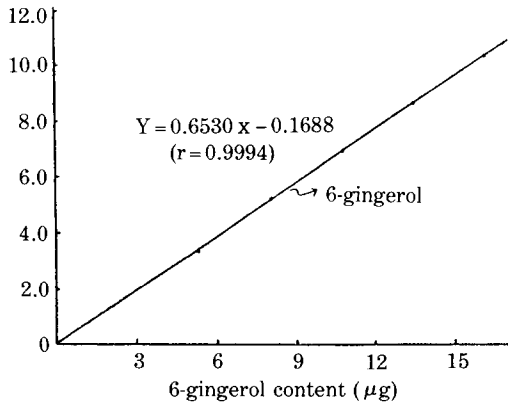


Fig. 1. Calibration curve of 6-gingerol by HPLC.

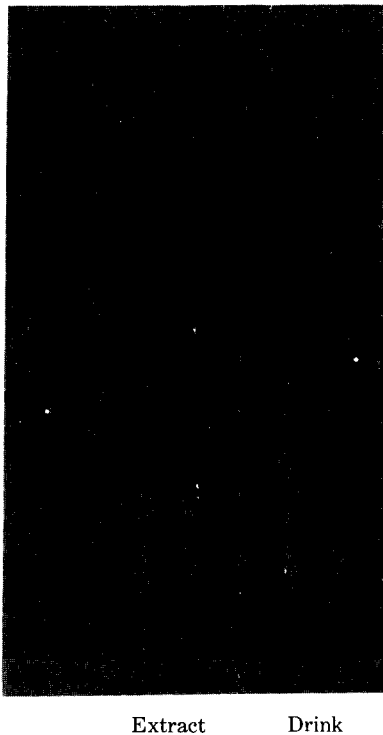


Fig. 2. Thin layer chromatogram of ethyl ether fractions of the Zingiberis Rhizoma extract and the crude drug preparation drinks. Developed with benzene/acetone (4: 1, v/v) on silica gel 60 plate and detected with vanillin-sulfuric acid. The samples were as follows: 6-G: 6-Gingerol, ZG: Zingiberis Rhizoma, Extract: Zingiberis Rhizoma extract, Drink: Crude drug preparation drink (A-type).

획물에서 乾薑 指標成分으로 6-gingerol외에 5종의 spot를 同定할 수 있었고 生藥複方劑 드링크 A-type

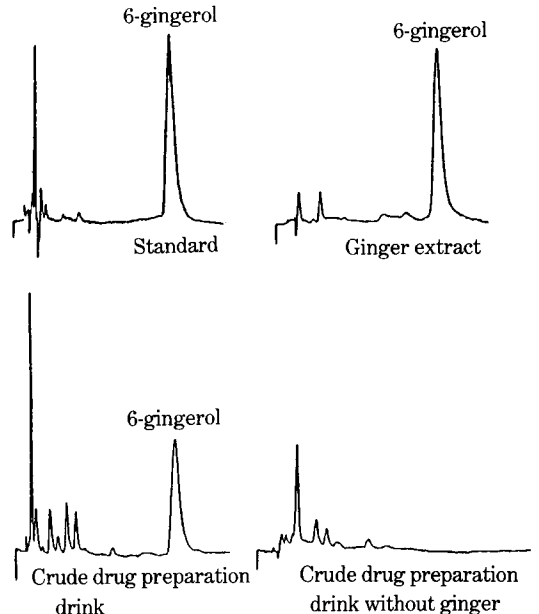


Fig. 3. HPLC patterns of 6-gingerol and hexane fractions extracted from the ginger extract and the drug preparation drinks.

에서도 다른 生藥成分들의 spot와 함께 이들 乾薑 特異의 spot를 확인할 수 있었다. 또한 별도로 수행한 C-type 및 E-type의 TLC패턴에서도 이와 같은 結果를 考察할 수 있었다. 따라서 이들 3가지 type의 生藥 複方劑 드링크 試製品에 대한 TLC패턴조사 結果 乾薑 特異의 指標成分들을 확인할 수 있었다.

2. 6-Gingerol의 定量 및 移行量 調査

乾薑 指標成分의 定量은 本 試製品 3가지 type별로 드링크 1병(30 ml)에 함유된 乾薑 엑기스에 相當하는 原料用 乾薑 엑기스와 드링크 1병 中の 含量을 각각 3 lot×3反覆으로 分析하여 製造過程에 따른 移行量을 調査하였다. 乾薑의 指標成分¹¹⁾으로는 乾薑의 Oleoresin 中 含量이 높고 生薑 特異의 主要 成分^{1-3, 11)}으로 通用되는 6-gingerol을 HPLC로 定量하였다.¹²⁾ 本 試驗에서 사용한 HPLC 分析條件은 Fig.3에서와 같이 6-gingerol의 分離定量에 매우 적합한 조건이었으며 本 드링크 製品 中에서도 잘 檢出되었다. 또한 드링크 製品 中 乾薑 엑기스만을 제외하고 5종 엑기스와 糖類 및 添加物만을 동일하게 配合하여 製造한 경우 HPLC패턴에서 볼 수 있듯이 6-gingerol과 겹치는 peak가 檢出되지 않아서 6-gingerol을 指標成分으로 선정하여 品質管理를 수행하였다.

Table 2. Recovery contents of 6-gingerol from the Zingiberis rhizoma extracts to the crude drug drinks

(Unit: mg)

Lot. No	Sample	A-type		C-type		E-type	
		Extract*	Drink**	Extract*	Drink**	Extract*	Drink**
Lot A	1	0.792	0.500	0.358	0.299	0.359	0.301
	2	0.744	0.512	0.365	0.295	0.363	0.302
	3	0.800	0.537	0.368	0.300	0.351	0.294
	Average	0.789	0.516	0.364	0.298	0.358	0.299
Lot B	1	0.750	0.480	0.388	0.306	0.385	0.297
	2	0.731	0.490	0.389	0.309	0.375	0.301
	3	0.729	0.504	0.381	0.300	0.371	0.305
	Average	0.737	0.492	0.386	0.304	0.377	0.301
Lot C	1	0.772	0.510	0.346	0.303	0.341	0.290
	2	0.757	0.493	0.351	0.292	0.338	0.296
	3	0.740	0.512	0.350	0.295	0.349	0.289
	Average	0.756	0.505	0.349	0.297	0.343	0.292

* mg content in the Zingiberis rhizoma extracts

** mg content in one bottle (30 ml) of the crude drug drinks

本 試驗에서 시료로 사용한 生藥複方劑 드링크 製品의 경우 原料用 乾薑 엑기스로부터 최종 드링크 제품 중의 6-gingerol의 平均移行率은 A-type은 65.4-66.8%, C-type은 78.8-85.1%, E-type는 79.8-85.1%였다. 여기서 알 수 있듯이 紅蔘 엑기스와 乾薑 엑기스 및 桂皮 엑기스의 添加量이 가장 높은 A-type의 경우가 6-gingerol의 移行率이 가장 낮았으며, 紅蔘 엑기스 이외에 生藥材 엑기스나 添加物이 동일한 C-type과 E-type의 경우는 대체로 유사하였으나 紅蔘 엑기스의 配合比率이 낮은 C-type의 경우가 移行率이 다소 높았다.

生藥複方劑 중 6-gingerol 移行量의 減少比率이나 그 原因에 대해서는 거의 보고된 바 없어 그 減少의 原因에 대해서는 구체적으로 언급할 수는 없겠으나 우선 6-gingerol의 加熱에 의한 分解¹²⁾問題點 등을 생각할 수 있겠다. 그러나 本 試驗에서는 먼저 乾薑 엑기스를 제조한 다음 다른 生藥材 엑기스와 配合하여 드링크를 製造하였기 때문에 生藥材 엑기스들의 配合比率이나 配合量에 따라 溶解性이나 物性 등 여러 要因에 의해서 드링크 製造過程 중 遠心分離¹⁰⁾에 의한 沈澱物의 제거과정에서 遠心分離 沈澱物에 吸着混合되어 除去되는 것이 주된 減少原因임을 알 수 있었다. 따라서 生藥複方劑 드링크 제조시 동일한 人蔘 엑기

스와 生藥材 엑기스를 사용한 경우에도 배합량이나 배합비율에 의해서 最終 드링크 製品 중의 6-gingerol의 移行量이 다르다는 것을 알 수 있었다. 그러므로 乾薑이 함유된 生藥複方劑 드링크 제조시 原料엑기스들의 配合量이나 配合比率 등 여러 要因과 製造方法에 따라 6-gingerol의 移行量이 다를 것으로 사료되므로 드링크 製品 製造時 原料用 乾薑 엑기스는 물론 最終 드링크 製品에 대한 엄격한 品質管理가 要求되며 品質檢査 機關에서도 製品類에 따라 移行量의 減少比率에 대하여 認定이 되어야 할 것으로 사료된다.

引用文獻

1. 韓德龍：現代生藥學(改訂版)，韓國學習教材社，p.90-93(1985).
2. Thresh, I.C. : *Pharm. J.*, **10**, 171(1879).
3. Connell, D.W. and Sutherland, M.D. : *Aust. J. Chem.* **22**, 1033(1969).
4. Guenther, E. : *The Essential Oils* Vol.5 D Van Nostrand Co., Inc., N.Y. p.106(1952).
5. Nigam, M.C., Nigam, I.C., Levi, L. and Handa, K.L. : *Canad. J.Chem.*, **42**, 2610(1964).
6. 이인경, 안승요 : 韓國食品科學會誌, **17**(2), 55(19

- 85).
7. Lee, Y.B., Kim, Y.S. and Ashnove, C.R. : *J.Food Sci*, **51**, 21(1986).
 8. 國立保健院：生藥試驗方法集(국립보건원 예규 제 283호), 國立保健院, 서울(1986).
 9. 日本公定書協會：醫藥品 製造指針(第2章, 醫藥品の 製造承認), 藥業時報社, 東京(1987).
 10. 崔康注, 高成龍, 金那美, 成綯淳：高麗人蔘學會誌 **14** (2), 112(1990).
 11. 韓國食品工業協會 食品研究所：生薑 엑기스의 國産 化 및 産業化를 위한 研究, 韓國食品工業協會 食品 研究所, 서울(1988).
 12. Kano, Y., Saito, K., Sakuri, T. : *Shoyakugaku Zasshi*, **40**(3), 333(1986).