

令和 3 年 6 月 18 日現在

機関番号：32658

研究種目：基盤研究(C) (一般)

研究期間：2018～2020

課題番号：18K02262

研究課題名(和文) 国産ハッカからのデオドラント効果を有する機能性成分の単離と解析

研究課題名(英文) Components of deodorization effects of dementholized oil and their by-product of Japanese mint

研究代表者

妙田 貴生 (MYODA, Takao)

東京農業大学・生物産業学部・教授

研究者番号：80372986

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,000,000円

研究成果の概要(和文)：本研究は、和ハッカ「ほくと」の脱メントール精油およびその抽出残渣のもつ新たな機能性として、消臭効果と抗菌作用に着目して寄与成分の特定を目指すものである。消臭効果に関しては、脱メントール精油および蒸留残渣とも有しており、特に後者は広範な悪臭に対して効果を示した。抗菌作用に関しては、残渣抽出物の口腔内細菌に対する抗菌作用を測定した。その結果、歯周病菌に対してとくに効果を示し、その寄与成分としてスダチチン、デメトキシスダチチンおよびクリソエリオールの3化合物を特定した。いずれも、ハッカからは初めての報告となる。

本研究により脱メントール精油および蒸留残渣の新たな機能性を明らかにすることができた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

香りは、我々のQOLを高める重要なツールである。無臭を支持する文化のあるわが国では、消臭を意識したデオドラント製品の需要は高い。このような製品には消臭活性成分として銀イオンが用いられているが、消費者の天然由来成分を望む声大きい。本研究では、その課題をクリアすべくハッカの精油とその抽出残渣に着目し、デオドラント製品の素材になり得ることを示すことができた。とくにハッカは、メントールを供給する植物として今後も世界的な需要拡大が予測され、それに応じて脱メントールされた精油や精油抽出残渣は有効活用に関しても取り組みが必要になると考えられる。したがって、本研究の結果は今後大いに役立つものと考えている。

研究成果の概要(英文)：Present study was performed to investigate the potential deodorization effects against malodors and anti-microbial activities on dementholized oil of hokuto, as well as by-product of steam distillations. The deodorization activities of DM oil against human malodors were measured by sensory evaluation and SPME-GC/MS analysis. DM oil significantly deodorized only isovaleric acid by a masking effect, with compounds containing pulegone and menthone, found to contribute largely to the deodorant effects. In contrast, 50% acetone extract of by-product showed the deodorization effects to extensive malodors by inhibition of their vaporization. Moreover, by-product extract exhibited anti-microbial activities against *Porphyromonas gingivalis*, and found that sudachitin, demethoxysudachitin, and chrysoeriol should be contributing compounds for its effects. These results demonstrate the possibility of using dementholized oil and by-product of Japanese mint as a freshening agent of toiletry products.

研究分野：香料化学

キーワード：ハッカ 脱メントール精油 精油蒸留残渣 スダチチン 消臭活性 抗菌活性

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

香りは、我々の QOL を高める重要なツールである。とくに、無臭を支持する文化のあるわが国では、消臭を意識したデオドラント製品の需要が高い。このような製品には、消臭活性成分として銀イオンが広く用いられているが、一方で消費者の天然由来成分を望む声大きい。

デオドラント製品に欠かすことのできない成分としてメントールがある。この成分は爽やかな香気とともに冷涼感を口腔内や皮膚に付与できる特徴を持つ。この化合物は有機合成できるものの未だに植物体であるハッカの精油より抽出される。他方、それ以外の成分である脱メントール精油および蒸留残渣は活用されていないのが現状である。さらに、消費者の安全・安心思考からも、今後は国内産のハッカ栽培が注目され、それに応じて脱メントールされた精油や精油抽出残渣は有効活用に関しても取り組みが必要になると考えられる。

2. 研究の目的

本研究は、わが国で育成された和ハッカ品種「ほくと」の脱メントール精油およびその抽出残渣から新たな機能性を明らかにすることが目的である。具体的には、脱メントール精油に悪臭に対する消臭効果があることからこれらの特徴を明らかにし、抽出残渣の機能性解析として抗菌作用と悪臭に対する消臭効果および活性寄与成分の単離を試みた。

3. 研究の方法

(1) 脱メントール精油の悪臭成分に対するマスキング効果の解析

吉草酸、イソ吉草酸、2-ノネナール、および 2-オクタノールに対するマスキングの有無を官能評価した。評価に適した濃度に調整した悪臭に対し、1.0%に調整した精油を 1:1 に混合して 3 点識別法により消臭程度を評価した。なお、パネルは 20 代の男女 10 名とした。

(2) 精油抽出残渣の機能性解析

抗菌作用の解析と寄与成分の特定

蒸留残渣より 50%アセトン抽出物を調製し、ミュータンス菌およびジンジバリス菌に対する抗菌活性を常法に従って測定し、MIC を測定した。活性成分は各種クロマトグラフィーを活用して単離し、LC-MS および NMR に供して構造解析した。

悪臭成分に対する消臭活性の検討

悪臭成分として、アンモニア、アセトアルデヒド、酪酸、プロピオン酸、トリメチルアミン、および吉草酸を各閾値濃度で調整し、前項の抽出物を用いて (1) の方法で消臭活性の有無を評価した。活性成分は各種クロマトグラフィーを活用して単離を試みた。

4. 研究成果

(1) 脱メントール精油の悪臭成分に対するマスキング効果の解析

脱メントール精油の悪臭成分に対するマスキング効果を評価した。その結果、吉草酸およびイソ吉草酸に対して特異的に効果を示すことが認められた。消臭作用の特徴を調べるために、試料液をバイアルに詰めて SPME 法により気相中の香気成分を調べた。悪臭成分および精油成分共に気相中の濃度がコントロールと同程度であったことから、精油の有する消臭効果は人の感覚的なマスキング作用であると示唆された。なお、マスキング効果にはメントール骨格を有する成分のうち、とくに pulegone が主要な寄与成分であった (図 1)。¹⁾

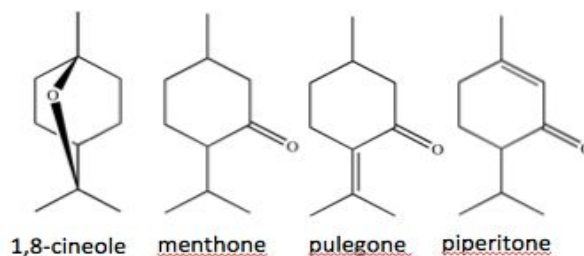
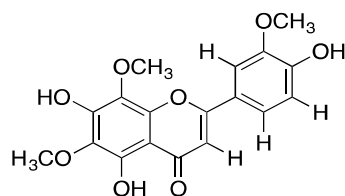


図 1 脱メントール精油にあるマスキング寄与成分

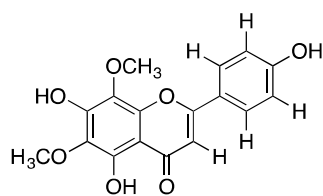
(2) 精油抽出残渣の抗菌作用の解析と寄与成分の特定

精油抽出残渣におけるミュータンス菌およびジンジバリス菌に対する抗菌作用と寄与成分の特定を試みた。両菌は、口腔内細菌として知られており、前者は虫歯、後者は歯周病の原因菌である。残渣抽出物は、両菌に対して抗菌活性を示し、とくにジンジバリス菌に対して高いことが示された。そこで、有機化学的手法で化合物を分離し、抗菌活性寄与成分の特定を試みた。抗菌活性を有する画分を得ることに成功し、これを HPLC に供したところ、3 成分のメジャーピークが得られた。これらを分取 HPLC に供して単離し、LC-MS および NMR

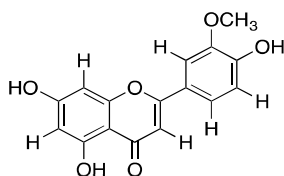
測定を実施して、それぞれの構造解析を試みた。その結果、ポリメトキシフラボン骨格を



Sudachitin



Demethoxysudachitin



Chrysoeriol

をもつ2化合物、スダチチンおよびデメトキシスダチチン、その類縁体のクリソエリオールであると特定した。これらは、ハッカの構成成分としては初めての報告となる。なお、抗菌作用の他に抗酸化作用²⁾、抗炎症作用³⁾、および抗アレルギー作用⁴⁾のあることが報告されており、ハッカ精油抽出残渣のさらなる機能性が期待された。

(3) 精油抽出残渣の悪臭成分に対する消臭効果の解析

蒸留残渣 50%アセトン抽出物における代表的な悪臭成分に対する消臭効果のみた。その結果、実験に供試した全ての悪臭成分に対して強い消臭効果を示し、とくにアンモニア、メチルメルカプタン、酪酸、およびプロピオン酸に対して顕著であった。そこで、これらの効果が感覚的なマスキングなのか、あるいは物理・化学的な効果による消臭なのかを SPME 法により調べた。その結果、いずれの悪臭成分も残渣抽出物の添加により気相への揮発が抑制されたことから、この消臭効果は物理的、あるいは化学的な作用によると示唆された。前項において脱メントール精油のイソ吉草酸に対するマスキング効果を示したが、抽出残渣の効果はそれとは異なり、より広範な悪臭成分に対して効果を示すことが明らかとなった。そこで、消臭寄与成分を特定するために、各種クロマトグラフィーを駆使して化合物の単離を試みた。HPLC のクロマトグラム上で単一となる活性分を得ることに成功したが、含量が極めて少ないことから構造解析には至らなかった。

以上、本研究により和ハッカ「ほくと」の脱メントール精油および精油抽出残渣に抗菌作用や悪臭に対するマスキング・消臭作用といった新たな機能性のあることが明らかにできた。ハッカは、従来よりメントールを獲得するために栽培されてきたが、一方でそれ以外の成分も活かすことで、新たな口腔内の抗菌リフレッシュ剤への応用といった可能性を秘めていると考えられる。

引用文献

- 1) Myoda T., et al. *J. Essential Oil Res.*, 2019. 30, 431-436.
- 2) 新居家孝ら., 徳島県立工技セ報, 2014, 23, 15-19.
- 3) Yuasa K., et al. *Biosci. Biotech. Biochem.*, 2012, **76**, . 598-600
- 4) 吉田隆志, 有井雅幸. 植物ポリフェノール含有素材 の開発. 2007, 85

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計12件(うち査読付論文 11件/うち国際共著 5件/うちオープンアクセス 0件)

1. 著者名 Doi M., Toeda K., Myoda T., Hashidoko Y. and Fujimori T.	4. 巻 68
2. 論文標題 Seasonal fluctuations of aroma components of essential oils from <i>Larix leptolepis</i> .	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Journal of Oleo Science	6. 最初と最後の頁 671-677
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.5650/jos.ess19023	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -
1. 著者名 Araujo M., Carmo V. D., Fidelis M., Pressete C. G., Marques M. J., Castro-Gamero A. M., Myoda T., Granato D. and Almeidaetal L. A.	4. 巻 125
2. 論文標題 Hydroalcoholic <i>Myrciaria dubia</i> (camu-camu) seed extracts prevent chromosome damage and act as antioxidant and cytotoxic agents.	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Food Research International	6. 最初と最後の頁 1-11
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.foodres.2019.108551	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Fidelis M., Mariana, Carmo M. A V., Cruz T. M., Azevedo L., Myoda T., Furtado M. M., Marques M. B., Sant'Ana A. S., Genovese M. I., Oh W. Y., Wen M., Shahidi F., Zhang L., Franchin M., Alencar S. M., Rosalen P. L. and Granato D.	4. 巻 310
2. 論文標題 Camu-camu seed (<i>Myrciaria dubia</i>) - From side stream to an antioxidant, antihyperglycemic, antiproliferative, antimicrobial, antihemolytic, anti-inflammatory, and antihypertensive ingredient-.	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Food Chemistry	6. 最初と最後の頁 125909
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.foodchem.2019.125909	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する
1. 著者名 Matsushita K., Tamura A., Goshima D., Santiago D. M., Myoda T., Takata K. and Yamauchi H.	4. 巻 57
2. 論文標題 Effect of combining additional bakery enzymes and high pressure treatment on bread making qualities.	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Food Science and Technology	6. 最初と最後の頁 134-142
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s13197-019-04038-4	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Aisala H., Manninen H., Laaksonen T., Linderborg K. M., Myoda T., Hopia A. and Sandell M.	4. 巻 304
2. 論文標題 Linking volatile and non-volatile compounds to sensory profiles and consumer linking of wild edible Nordic mushrooms.	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Food Chemistry	6. 最初と最後の頁 125403
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.foodchem.2019.125403	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Abe K., Hori Y. and Myoda T.	4. 巻 19
2. 論文標題 Volatile compounds of fresh and processed garlic (Review)	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Experimental and Therapeutic Medicine.	6. 最初と最後の頁 1585-1593
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3892/etm.2019.8394	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 小山翔大、小泉香菜、妙田貴生、内野昌孝、藤森嶺、高野克己	4. 巻 45
2. 論文標題 後発酵茶・碁石茶の特徴香気成分とその生成に關与する微生物の解析	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 日本食品保蔵科学会誌	6. 最初と最後の頁 1585-1593
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Myoda T., Matsumura T., Watanabe K., Ebisuya K., Kaneshima T., Goto K., Nojima S., Hori H., Toeda K., Nishizawa M. & Fujimori T.	4. 巻 30
2. 論文標題 Components of essential oil of the Japanese mint 'Hokuto' and its deodorization effects against human malodors	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Journal of Essential Oil Research	6. 最初と最後の頁 431-436
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/10412905.2018.1494045	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Abe K., Hori Y. and Myoda T.	4. 巻 312
2. 論文標題 Characterization of key aroma compounds in aged garlic extract.	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Food Chemistry	6. 最初と最後の頁 126081
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.foodchem.2019.126081	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Araujo M., Fidelis M., Sanchez C. A., Castro A. P., Camps I., Colombo F. A., Marques M. J., Myoda T., Granato D. and Azevedo L.	4. 巻 136
2. 論文標題 Camu-camu (Myrciaria dubia) seeds as a novel source of bioactive compounds with promising antimalarial and antischistosomicidal properties.	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Food Research International	6. 最初と最後の頁 109334
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.foodres.2020.109334	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Endo A., Koizumi R., Nakazawa Y., Shiwa Y., Maeno S., Kido Y, Irisawa T., Muramatsu Y., Tada K., Yamazaki M. and Myoda T.	4. 巻 2021
2. 論文標題 Characterization of the microbiota and chemical properties of pork loins during dry aging.	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 MicrobiologyOpen	6. 最初と最後の頁 e1157
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1002/mbo3.1157	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Abe K., Myoda T. and Nojima S.	4. 巻 69
2. 論文標題 Identification and Characterization of Sulfur Heterocyclic Compounds That Contribute to the Acidic Odor of Aged Garlic Extract	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Agricultural and Food Chemistry	6. 最初と最後の頁 1020-1026
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acs.jafc.0c06634	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 高橋麻里子、菊田穂乃加、宗川祥之、堀容嗣、戸枝一喜、妙田貴生
2. 発表標題 ホタテ香気がスープと出汁の風味に及ぼす影響
3. 学会等名 食品保像科学会第68回大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 大越諒、宗川祥之、松尾嘉英、中原光一、堀容嗣、野島聡、妙田貴生
2. 発表標題 ピラジン類の口腔内における収れん作用の評価
3. 学会等名 第63回香料・テルペン及び精油科学に関する討論会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 澤田 慎之介、戸枝 一喜、堀 容嗣、妙田 貴生
2. 発表標題 和種ハッカほくとの消臭効果に関する研究
3. 学会等名 日本農芸化学会2019年度大会
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
---------	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------