20가지 약용식물 추출물의 항산화 및 피부 항노화 활성

- 연구노트 -

구민경 · 송하영 · 홍은아 · 정윤조 · 조연재 · 이준수 · 정헌상 충북대학교 식품생명공학과

Antioxidant and Anti-Aging Activity of 20 Medicinal Plant Extracts

Min Kyung Gu, Ha Young Song, Eun Ah Hong, Yun Jo Jung, Yeon Jae Jo, Junsoo Lee, and Heon Sang Jeong

Department of Food Science and Biotechnology, Chungbuk National University

ABSTRACT This study evaluated the antioxidant activities and tyrosinase and collagenase inhibitory activities of 20 medicinal plant extracts for use in the development of anti-aging agents for the skin. The highest values of 2,2'-azi-no-bis(3-ethylbenzothiazoline-6-sulfonic acid) (ABTS) and 2,2-diphenyl-1-picrylhydrazyl (DPPH) radical scavenging activity were 31.54 and 21.71 mg AAE/sample g in the water extract of *Paeonia suffruticosa* and 81.35 and 51.70 mg AAE/sample g in the 70% ethanol extract of *Trapa japonica*, respectively. The tyrosinase inhibitory activity was highest in the water and 70% ethanol extracts at 39.18% and 72.51% for the *P. suffruticosa* and *T. japonica* extracts, respectively, and lowest for the *Glycine max* extract. Collagenase inhibitory activity ranged from 14.18% to 70.22% and 20.75% to 85.81% in the water and 70% ethanol extracts, respectively, with the *P. suffruticosa* 70% ethanol extract showing the highest inhibition at 85.81%. Correlation analysis revealed a strong positive correlation between the antioxidant and anti-aging activities. These results suggest that medicinal plant extracts have antioxidant and skin anti-aging effects. This data can be used for the future development of functional materials.

Keywords: medicinal plants, antioxidant activity, anti-aging activity, tyrosinase inhibitory activity, collagenase inhibitory activity

서 론

외부 자극으로부터 신체를 보호하는 피부는 크게 표피, 진피 및 피하조직으로 구분되며, 진피층은 피부의 물리, 화 학적 성질을 결정하는 중요한 역할을 하고 모세혈관과 신경 이 표피에 영양분을 보충해 주므로 피부의 노화와 밀접한 관련이 있다(Chung, 2003).

피부의 노화는 내인성 및 외인성 노화로 구분되는데 내인 성 노화는 나이가 들면서 피부의 구조와 생리적 기능이 점진적으로 감소하는 현상이며, 외인성 노화는 자외선에 장기간 노출되는 등 외부 요인에 의해 발생한다(Sung 등, 2008). 외부적 스트레스와 체내 산화적 스트레스로 인하여 생성되는 활성산소(reactive oxygen species)는 세포 기능에 손상을 주어 면역력 저하와 피부 탄력 감소, 주름, 기미, 주근깨등의 색소 침착을 유발하여 급격한 피부 노화를 일으킨다(Fisher 등, 1997). 또한 자외선과 체내 불균형으로 인해

생성된 활성산소는 피부의 주요 구성 요소인 collagen 단백질의 생성을 억제하고, collagen 분해 효소인 matrix metalloproteinase의 생성을 촉진하여 피부의 주름을 증가시키는 것으로 알려져 있다(Pentland 등, 1995).

지금까지 약리학적 효능을 지닌 약용식물에서 부작용을 최소화하고 기능성 소재를 탐색하는 연구가 활발하게 진행되고 있으며(Moon 등, 2004), 이러한 약용식물은 주로 식물의 2차 대사산물인 폴리페놀 계열 등의 다양한 생리활성 성분을 함유하고 있어, 복합적인 생물학적 효과를 가진다고 알려져 있다(Masteikova 등, 2008). 이와 관련된 연구로는 추출용매에 따른 어성초 추출물의 항산화 및 항노화 활성 (Jang 등, 2019), 뜸부기 추출물의 항노화 및 항치매 활성 (Choi 등, 2023) 및 한방원료의 초임계 추출을 이용한 항노화 및 주름 개선 효과(Kim 등, 2008) 등 다양한 연구가 이루어져 있으나 피부에 효과가 있다고 알려진 약용식물에 대한 항산화 및 항노화 활성에 관한 연구는 미흡한 실정이다.

Received 14 October 2024; Revised 13 November 2024; Accepted 18 November 2024

Corresponding author: Heon Sang Jeong, Department of Food Science and Biotechnology, Chungbuk National University, 1, Chungdae-ro, Seowon-gu, Cheongju, Chungbuk 28644, Korea, E-mail: hsjeong@chungbuk.ac.kr

This is an Open Access article distributed under the terms of the Creative Commons Attribution Non-Commercial License (https://creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0) which permits unrestricted non-commercial use, distribution, and reproduction in any medium, provided the original work is properly cited.

^{© 2024} The Korean Society of Food Science and Nutrition.

따라서 본 연구에서는 피부에 효과가 있다고 알려진 20가지 약용식물의 피부 항노화 소재 개발 가능성을 평가하기위하여 몇 가지 약용식물 추출물에 대한 ABTS 및 DPPH라디칼 소거 활성과 tyrosinase 및 collagenase 저해 활성을 평가하였다.

재료 및 방법

실험 재료

본 실험에 사용된 시료는 선행 연구에서 피부 상재균의 생 육조절에 유의미한 영향을 미치는 것으로 알려진 약용식물 20가지를 선발하였다. 잎을 사용한 식물은 병풀(Centella asiatica L. Urban), 부평초(Spirodela polyrhiza (L.) Schleid), 어성초(Houttuynia cordata Thunb.), 구절초(Chrysanthemum zawadskii var. latilobum (Maxim.) Kitam), 부추(Allium tuberosum Rottler ex Spreng.)이며, 과실 또 는 종자를 사용한 식물은 영실(Rosa multiflora Thunberg). 마름(Trapa japonica Flerow), 대추(Ziziphus jujuba Miller), 초피(Zanthoxylum piperitum (L.) DC.), 대두(Glycine max (L.) Merr.), 우방자(Arctium lappa L.), 귀리(Avena sativa L.), 홍화씨(Carthamus tinctorius L.)이며, 뿌리 또 는 껍질을 사용한 식물은 초석잠(Stachys sieboldii Miq.), 참당귀(Angelica gigas Nakai), 민들레(Taraxacum platycarpum Dahlst.), 목단피(Paeonia suffruticosa), 돼지감 자(Helianthus tuberosus L.)였으며, 옥수수수염(Zea mays L.) 및 자작나무 껍질(Betula platyphylla Suk.)을 2024년 약재상(한약재시장 및 동의한재)에서 구입하여 시료로 사용 하였다.

약용식물 추출물 제조

약용식물 시료는 분쇄기(Twister TW100, POWTEQ)를 이용하여 60 mesh 크기로 분쇄한 다음 시료 10 g에 20배 (w/v)에 해당하는 증류수 및 70% 에탄올을 용매로 첨가한다음 초음과 추출기(SD-350H, Sungdong Ultrasonic Co., Ltd.)로 25°C에서 1시간씩 3회 반복 추출하였다. 대추는 당을 제거하기 위해 4배량의 에탄올로 당을 침전 제거 후 사용하였다. 모든 시료는 추출 후 여과(Whatman No. 2)하여 회전진공농축기(N-1000, EYELA)로 40°C에서 용매를 제거한다음 동결건조(FD5508, Ilshin Lab Co., Ltd.)하고 -80°C에서 보관하면서 시료로 사용하였다.

ABTS 라디칼 소거 활성 측정

약용식물 추출물의 항산화력은 ABTS[2,2'-azino-bis (3-ethylbenzothiazoline-6-sulfonic acid)] 라디칼 소거 활성으로 측정하였다(Hwang 등, 2011). 즉 7 mM의 농도로 ABTS(Sigma-Aldrich Co.)를 용해한 후 2.4 mM의 potassium persulfate 용액에 첨가하여 실온의 암소 공간에서 하

루 동안 교반하여 ABTS 양이온을 형성하였다. 이후 735 nm에서 1.4~1.5의 흡광도 값이 되도록 증류수를 이용하여 희석하였다. 희석한 ABTS 라디칼 양이온 용액 1 mL에 시료 또는 증류수(blank) 50 μL를 첨가하여 1시간 반응시키고 분광광도계를 이용하여 흡광도 변화를 735 nm에서 측정하였다. ABTS 라디칼 소거 활성은 표준물질로 L-ascorbic acid(Sigma-Aldrich Co.)를 사용했으며 시료 첨가구와 비첨가구의 흡광도 차이를 추출물 1 g당 mg ascorbic acid로 나타내었다.

DPPH 라디칼 소거 활성 측정

약용식물 추출물의 DPPH(1,1-diphenyl-2-picrylhydrazyl) 라디칼 소거 활성은 Choi 등(2019)의 방법을 변형하여 측정하였다. 0.2 mM DPPH(Sigma-Aldrich Co.) 용액 0.8 mL에 0.1 mg/mL 농도의 추출물 또는 증류수(blank) 0.2 mL를 가한 후 실온에서 30분간 반응하여 흡광도 변화를 520 nm에서 측정하였다. DPPH 라디칼 소거 활성은 표준물질로 L-ascorbic acid(Sigma-Aldrich Co.)를 사용했으며 시료 첨가구와 비첨가구의 흡광도 차이를 추출물 1 g 당 mg ascorbic acid로 나타내었다.

Tyrosinase 저해 활성 측정

약용식물 추출물의 피부 미백 효과를 측정하기 위해 Yagi 등(1987)의 방법을 이용하여 tyrosinase 저해 활성을 측정하였다. 즉, 0.1 mL의 시료 용액에 0.5 mL의 0.175 M sodium phosphate buffer(pH 6.8) 및 0.2 mL의 10 mM L-DOPA 기질액 0.1 mL를 첨가한 후 110 Unit/mL mushroom tyrosinase를 0.2 mL 첨가하여 25°C에서 2분간 반응시켰다. 반응 후 생성된 DOPA chrome은 분광광도계를 이용하여 475 nm 흡광도에서 측정하였다. Tyrosinase 저해활성은 시료 용액의 첨가구와 무첨가구의 흡광도 감소율로나타내었으며, positive control로 ascorbic acid를 1 mg/mL의 농도로 사용하였다.

Collagenase 저해 활성 측정

약용식물 추출물의 피부주름 개선 효과를 확인하기 위해 Yang 등(2016)의 방법을 이용하여 collagenase 저해 활성을 측정하였다. 즉, 0.1 M tris-HCl buffer(pH 7.5)에 4 mM CaCl₂를 첨가하고 4-phenylazobenzyloxy-carbonyl-Pro-Leu-Gly-Pro-Arg(0.3 mg/mL)를 녹인 기질액 0.35 mL에 시료 용액 0.1 mL 및 0.15 mL collagenase(0.2 mg/mL)를 첨가하여 실온에서 20분간 반응시켰다. 이후 0.5 mL의 6% citric acid를 넣어 반응을 정지시키고 1.5 mL의 ethyl acetate를 첨가하여 교반 후 상등액을 취해 320 nm에서 흡광도를 측정하였다. Collagenase 저해 활성은 첨가구와 무첨가구의 흡광도 감소율에 따라 나타냈으며, positive control로 epigallocatechin gallate를 1 mg/mL의 농도로 사용하였다.

통계분석

모든 분석은 3회 반복 측정하였고 mean±SD로 표현하였다. 통계분석은 SPSS 통계프로그램(Statistical Package for the Social Science, Ver. 12.0, SPSS Inc.)을 사용하였으며, 각 처리군의 평균과 표준편차를 산출해 Duncan's multiple range test를 이용해 유의성 검정하였다. 또한, 약용식물 추출물의 항목 간 상관관계를 분석하였다.

결과 및 고찰

ABTS 및 DPPH에 라디칼 소거 활성

추출물의 ABTS 및 DPPH 라디칼 소거능을 측정한 결과는 Table 1과 같다. ABTS 라디칼 소거 활성은 물 및 70% 에탄올 추출물에서 각각 0.68~31.54 mg AAE/sample g 및 1.35~81.35 mg AAE/sample g 범위로 70% 에탄올 추출물이 물 추출물보다 높은 활성을 나타냈다. Kim 등(2021)의 연구에서도 쇠미역의 에탄올 추출물이 물 추출물보다 약 3.3 배 높은 활성을 보였으며, 식물의 유용성분 추출 시 물보다 에탄올 추출물이 높은 생리활성을 갖는다고 보고한 Balasinska와 Troszynska(1998) 및 Duh 등(1992)의 연구와일치하는 경향을 보였다. 목단피(P. suffruticosa) 및 마름(T. japonica Flerow) 추출물의 ABTS 라디칼 소거 활성은물 및 70% 에탄올 추출물에서 각각 31.54 및 81.35 mg AAE/sample g으로 가장 높았고, 귀리(A. sativa L.)물 및 70% 에탄올 추출물이 각각 0.68 및 1.35 mg AAE/sample

g으로 가장 낮게 나타났다. 뿌리 및 과실을 사용한 목단피 및 마름 물 추출물은 각각 31.54 및 16.22 mg AAE/sample g으로 높은 항산화 활성을 나타냈으며, 잎을 사용한 병풀(C. asiatica L. Urban) 및 구절초(C. zawadskii) 물 추출물은 각각 6.97 및 3.86 mg AAE/sample g으로 상대적으로 낮은 항산화 활성을 나타내었다. 20가지 약용식물 중 항산화 활 성은 대부분 뿌리 및 과실 부위에서 높은 활성을 보였는데, 이는 마삭줄의 과실 및 잎의 활성산소 제거능을 평가한 결과 과실이 잎보다 높은 활성을 갖는다는 Kim 등(2006)의 연구 와 8종의 식용 및 약용 양치식물 중 쇠고비의 뿌리에서 RC50 이 0.132 mg/mL⁻¹로 가장 높게 나타난 Jeong 등(2007)의 연구 결과와 일치하는 경향이었다. DPPH 라디칼 소거 활성 측정 결과 ABTS 라디칼 소거 활성과 유사한 경향이었으며, 물 및 70% 에탄올 추출물에서 각각 0.06~21.71 mg AAE/ sample g 및 0.26~51.70 mg AAE/sample g의 범위를 나 타내었다. 물 추출물에서는 목단피가 21.71 mg AAE/sample g으로 가장 높았으며, 돼지감자(H. tuberosus L.)가 0.06 mg AAE/sample g으로 가장 낮게 나타났다. 산수유, 백복령 및 목단피 등 7개의 한약재를 물 추출한 Choe 등 (2008)의 연구에서도 목단피가 가장 높은 DPPH 라디칼 소 거 활성을 나타내 높은 항산화력을 가진 것으로 보고하였다. 70% 에탄올 추출물에서는 마름이 51.70 mg AAE/sample g으로 가장 높았으며, 귀리가 0.26 mg AAE/sample g으로 가장 낮은 값을 나타내었다.

Table 1. ABTS and DPPH radical scavenging activity of medicinal plant extracts (Unit: mg AAE¹⁾/sample g)

Douts	Samples	ABTS radical scavenging		DPPH radical scavenging	
Parts		Water	70% EtOH	Water	70% EtOH
Leaves	Centella asiatica L. Urban	$6.97\pm0.16^{i2)3}$	12.23±0.15 ⁱ	6.65±0.07g	12.89±0.05 ⁱ
	Spirodela polyrhiza (L.) Schleid	4.55 ± 0.11^{j}	14.30 ± 0.07^{h}	4.55 ± 0.02^{i}	$16.13\pm0.61^{\rm f}$
	Houttuynia cordata Thunb.	10.17 ± 0.15^{h}	21.02 ± 0.59^{f}	$8.01\pm0.17^{\rm f}$	17.45 ± 0.06^{e}
	Chrysanthemum zawadskii	3.86 ± 0.09^{1}	8.63 ± 0.25^{j}	2.16 ± 0.01^{1}	11.85 ± 0.05^{j}
	Allium tuberosum Rottler ex Spreng.	$10.97{\pm}0.02^g$	11.82 ± 0.12^{i}	3.38 ± 0.04^{j}	3.91 ± 0.02^{m}
Fruits, seeds	Rosa multiflora Thunberg	6.79±0.18 ⁱ	12.51±0.23 ⁱ	6.18±0.06 ^h	15.13±0.23 ^g
	Trapa japonica Flerow	16.22 ± 0.06^{d}	81.35 ± 0.55^{a}	10.92 ± 0.18^{b}	51.70 ± 0.67^{a}
	Ziziphus jujuba Miller	2.06 ± 0.07^{p}	$2.71\pm0.06^{\circ}$	0.73 ± 0.01^{n}	$0.98\pm0.01^{\circ}$
	Zanthoxylum piperitum (L.) DC.	19.50±0.15°	52.87 ± 0.53^{d}	9.96±0.21°	28.71 ± 0.33^{d}
	Glycine max (L.) Merr.	$2.53\pm0.09^{\circ}$	3.58 ± 0.07^{mn}	$0.14\pm0.00^{\circ}$	1.18 ± 0.03^{no}
	Arctium lappa L.	$14.96\pm0.24^{\rm f}$	49.07 ± 0.49^{e}	4.72 ± 0.10^{i}	17.20 ± 0.37^{e}
	Avena sativa L.	0.68 ± 0.01^{q}	1.35 ± 0.08^{p}	$0.17\pm0.00^{\circ}$	0.26 ± 0.00^{p}
	Carthamus tinctorius L.	2.31 ± 0.06^{op}	16.97 ± 0.17^g	0.55 ± 0.01^{n}	14.22 ± 0.10^{h}
Roots, bark	Stachys sieboldii Miq.	15.90±0.25°	17.46 ± 0.02^{g}	9.72 ± 0.08^{d}	11.24 ± 0.10^{k}
	Angelica gigas Nakai	3.68 ± 0.12^{lm}	7.69 ± 0.11^{k}	3.08 ± 0.08^{k}	5.77 ± 0.09^{1}
	Taraxacum platycarpum Dahlst.	4.24 ± 0.13^{k}	5.82 ± 0.15^{1}	1.99 ± 0.05^{1}	5.82 ± 0.23^{1}
	Paeonia suffruticosa	31.54 ± 0.20^{a}	69.84 ± 0.40^{b}	21.71 ± 0.30^{a}	49.03 ± 0.56^{b}
	Helianthus tuberosus L.	2.93 ± 0.02^{n}	3.03 ± 0.06^{no}	$0.06\pm0.00^{\rm o}$	1.34 ± 0.02^{no}
	Zea mays L.	$3.49{\pm}0.06^{m}$	4.08 ± 0.05^{m}	1.52 ± 0.01^{m}	1.57 ± 0.01^{n}
	Betula platyphylla Suk.	22.28 ± 0.39^{b}	66.76 ± 1.37^{c}	9.34 ± 0.12^{e}	35.73 ± 0.51^{c}

¹⁾mg ascorbic acid equivalent (AAE) per 1 g of extracts.

²⁾Values are mean±SD (n=3).

³⁾Different small letters in the same column indicate a significant difference by Duncan's multiple range test (P<0.05).

Tyrosinase 저해 활성

Melanin 생성에 중요하게 작용하는 tyrosinase(monophenol, dihydroxy-L-phenylalanne; oxygen oxidoreductase)는 melanin 합성을 억제하여 직접적으로 미백효과 를 검정할 수 있으며(Hearing, 1987), 약용식물 추출물의 tyrosinase 저해 활성을 측정한 결과는 Table 2와 같다. 물 및 70% 에탄올 추출물의 tyrosinase 저해 활성은 각각 5.19~39.18% 및 14.98~72.51% 범위로 70% 에탄올 추출 물이 물 추출물보다 tyrosinase 저해 활성이 높았다. Kwak 등(2004)의 연구에서도 치자 에탄올 및 물 추출물의 tyrosinase 저해 활성은 각각 81.5% 및 62.7%로 나타나 에탄 올 추출물의 효소 저해 활성이 물 추출물보다 우수하다는 결과와 일치하였다. 목단피(P. suffruticosa)와 마름(T. japonica Flerow) 추출물의 tyrosinase 저해 활성은 물 및 70% 에탄올 추출물에서 각각 39.18% 및 72.51%로 가장 높았고, 대두(G. max (L.) Merr.) 추출물이 각각 5.19% 및 14.98%로 가장 낮게 나타났다. Ding 등(2011)의 연구에서

는 목단피 추출물의 mudanpioside, pentagalloyl glucose 및 tetragalloyl glucose 등과 같은 주요 성분이 항산화 활성 과 tyrosinase 저해 활성을 증가시킨다고 보고하였으며, Kim(2023)의 연구에서도 마름 70% 에탄올 추출물에서 tyrosinase의 활성이 억제되는 것을 확인하였으며, 자외선 노 출에 의해 과도하게 생성되는 멜라닌을 조절하여 피부를 밝 게 만들고, 자외선에 의한 과색소침착증을 완화하는 개선 원 료로서의 개발 가능성이 높은 소재로 판단하였다(Pillaiyar 등, 2017; Smit 등, 2009). 과실을 사용한 마름 및 초피(Z. piperitum (L.) DC.) 물 추출물은 각각 36.13% 및 33.25% 로 높은 tyrosinase 저해 활성을 보였으며, 종자를 사용한 귀리(A. sativa L.) 및 홍화씨(C. tinctorius L.) 물 추출물은 각각 9.96% 및 15.06%로, 상대적으로 낮은 저해 활성을 나타내었다. Kim 등(2014)의 연구에서도 파프리카 부위에 따른 미백 활성에서 높은 항산화 활성을 보인 과육이 씨보다 tyrosinase 저해 활성이 높았다. 상관관계 분석 결과(Table 3) tyrosinase 저해 활성은 ABTS 라디칼 소거 활성(r=0.918.

Table 2. Tyrosinase inhibitory activity of medicinal plant extracts

Parts	Commiss	Tyrosinase inhibit	Tyrosinase inhibitory activity (%)		
raits	Samples	Water	70% EtOH		
	Centella asiatica L. Urban	25.27±0.93 ^{e1)2)}	41.68±1.85 ^e		
	Spirodela polyrhiza (L.) Schleid	12.84 ± 0.25^{j}	26.09 ± 0.62^{h}		
Leaves	Houttuynia cordata Thunb.	24.44 ± 0.65^{e}	$35.64\pm1.03^{\rm f}$		
	Chrysanthemum zawadskii	6.91 ± 0.00^{1}	19.51 ± 0.43^{1}		
	Allium tuberosum Rottler ex Spreng.	19.26 ± 0.00^{g}	20.25 ± 0.65^{kl}		
	Rosa multiflora Thunberg	18.85±0.14 ^g	35.22±0.25 ^f		
	Trapa japonica Flerow	36.13 ± 0.57^{b}	72.51 ± 1.17^{a}		
	Ziziphus jujuba Miller	19.51 ± 0.86^{g}	24.28 ± 0.51^{i}		
F	Zanthoxylum piperitum (L.) DC.	33.25±1.00°	45.43 ± 1.54^{d}		
Fruits, seeds	Glycine max (L.) Merr.	5.19 ± 0.25^{m}	14.98 ± 0.38^{n}		
	Arctium lappa L.	21.32 ± 0.38^{f}	$35.23\pm0.71^{\rm f}$		
	Avena sativa L.	9.96 ± 0.38^{k}	22.96 ± 0.49^{ij}		
	Carthamus tinctorius L.	15.06 ± 0.49^{i}	29.47 ± 0.79^g		
	Stachys sieboldii Miq.	17.45±0.57 ^h	28.15±0.89g		
	Angelica gigas Nakai	14.57 ± 0.25^{i}	21.73 ± 0.25^{jk}		
	Taraxacum platycarpum Dahlst.	10.70 ± 0.38^{k}	20.33 ± 0.75^{kl}		
Roots, bark	Paeonia suffruticosa	39.18 ± 1.85^{a}	60.74 ± 0.89^{b}		
	Helianthus tuberosus L.	19.26 ± 0.43^{g}	21.98 ± 0.49^{j}		
	Zea mays L.	6.34 ± 0.29^{1}	17.94 ± 0.14^{m}		
	Betula platyphylla Suk.	30.37 ± 1.13^{d}	52.02 ± 1.36^{c}		

Positive control was used ascorbic acid (1 mg/mL): 90.70±0.51%

Table 3. Correlation coefficients between antioxidant activity, and anti-skin aging activity of 70% ethanol extracts of medicinal plants

Factors	ABTS	DPPH	Tyrosinase inhibitory	Collagenase inhibitory
ABTS	1	0.949**	0.918**	0.880**
DPPH		1	0.950**	0.915** 0.908**
Tyrosinase inhibitory			1	0.908^{**}
Collagenase inhibitory				1

^{**}P<0.01.

¹⁾Values are mean±SD (n=3).

²⁾Different small letters in the same column indicate a significant difference by Duncan's multiple range test (P<0.05).

Table 4. Collagenase inhibitory activity of medicinal plant extracts

Douts	Commles	Collagenase inhibi	Collagenase inhibitory activity (%)		
Parts	Samples	Water	70% EtOH		
	Centella asiatica L. Urban	$32.88\pm0.29^{h1)2)}$	57.74±0.19 ^{de}		
	Spirodela polyrhiza (L.) Schleid	28.63 ± 0.10^{j}	$53.45\pm0.77^{\mathrm{f}}$		
Leaves	Houttuynia cordata Thunb.	32.96 ± 0.16^{h}	50.21 ± 1.58^g		
	Chrysanthemum zawadskii	29.38 ± 0.08^{j}	32.59 ± 0.25^{k}		
	Allium tuberosum Rottler ex Spreng.	20.73 ± 0.25^{m}	28.06 ± 0.49^{lm}		
	Rosa multiflora Thunberg	35.95±0.38g	58.28±1.07 ^d		
	Trapa japonica Flerow	64.34 ± 0.44^{c}	82.67 ± 0.31^{b}		
	Ziziphus jujuba Miller	22.43 ± 0.67^{l}	27.48 ± 0.49^{m}		
F '4 1	Zanthoxylum piperitum (L.) DC.	70.22 ± 0.24^{a}	78.31 ± 0.17^{c}		
Fruits, seeds	Glycine max (L.) Merr.	14.18 ± 0.45^{p}	34.40 ± 0.72^{j}		
	Arctium lappa L.	48.62 ± 0.28^{e}	53.25 ± 0.18^{f}		
	Avena sativa L.	18.52 ± 0.25^{n}	31.99 ± 0.24^{k}		
	Carthamus tinctorius L.	$37.93 \pm 0.72^{\rm f}$	56.93±0.41°		
	Stachys sieboldii Miq.	16.35±0.23°	44.52±0.09 ^h		
	Angelica gigas Nakai	14.67 ± 0.18^{p}	20.75 ± 0.25^{n}		
	Taraxacum platycarpum Dahlst.	22.56 ± 0.48^{1}	28.88 ± 0.36^{1}		
Roots, bark	Paeonia suffruticosa	62.21 ± 0.55^{d}	85.81 ± 0.66^{a}		
	Helianthus tuberosus L.	30.82 ± 0.19^{i}	33.05 ± 0.26^{k}		
	Zea mays L.	24.49 ± 0.58^{k}	37.05 ± 0.21^{i}		
	Betula platyphylla Suk.	67.28 ± 2.02^{b}	81.89 ± 0.99^{b}		

Positive control was used epigallocatechin gallate (1 mg/mL): 81.64±1.58%

P<0.01) 및 DPPH 라디칼 소거 활성(r=0.950, P<0.01)과 높은 양의 상관관계를 보였다. 이는 항산화 물질이 자유라디 칼에 의한 피부 손상을 감소시키고, melanin 생성 과정에서 환원제의 역할을 하며 melanin 생성을 억제한다고 보고한 Naidoo 등(2016)의 연구 결과와 동일한 경향이었다.

Collagenase 저해 활성

단백질로 알려진 collagenase의 과도한 활성에 의해 collagen 단백질이 분해되면 피부의 주름 생성과 피부가 탄력 을 잃어 피부 처짐이 발생하게 되므로 피부 노화를 늦추기 위해서는 collagenase의 활성을 저해하는 것이 중요하다 (Castejón 등, 2021). 약용식물 추출물의 collagenase 저해 활성에 대해 측정한 결과는 Table 4와 같다. 약용식물 물 추 출물의 collagenase 저해 활성은 5 mg/mL 농도에서 14.18 ~70.22%의 범위를 나타냈다. 초피(Z. piperitum (L.) DC.), 자작나무(B. platyphylla Suk.) 및 마름(T. japonica Flerow) 물 추출물 순으로 각각 70.22%, 67.28% 및 64.34%의 높은 저해 활성을 나타내었으며, 대두(G. max (L.) Merr.) 물 추 출물이 14.18%로 가장 낮은 저해 활성을 나타냈다. Kang 등(2022)의 연구에서도 마름 물 추출물이 2,000 μg/mL의 농도에서 42.73%의 저해 활성을 나타내 본 연구와 유사한 결과를 보였다. 70% 에탄올 추출물에서 목단피(P. suffruticosa) 추출물이 85.81%로 가장 높은 저해 활성을 보였으 며, 참당귀(A. gigas Nakai) 추출물이 20.75%로 가장 낮은 저해 활성을 나타내었다. 목단피 70% 에탄올 추출물이 1

mg/mL 농도에서 collagenase 저해 활성의 대조군으로 사 용된 녹차 추출물 유래의 단일 물질인 epigallocatechin gallate와 가장 유사한 높은 저해 활성을 나타내었다. 또한, Kim과 Ko(2013)의 연구에서도 목단피 추출물이 lipopolysaccharide에 의해 유도된 nitrite oxide 생성을 효과적으 로 저해하고, Seo와 Choi(2016)의 연구에서도 목단피 물 추출물이 UVB와 H₂O₂로 유도한 각질 형성 세포를 보호하 는 효과가 매우 우수하게 나타났다. 따라서 목단피 70% 에 탄올 추출물은 천연 화장품 소재로서의 개발 가능성이 높은 소재로 판단된다. 과실을 사용한 마름 및 초피 70% 에탄올 추출물은 각각 82.67% 및 78.31%로 높은 collagenase 저 해 활성을 나타냈으며, 잎을 사용한 구절초(C. zawadskii) 및 부추(A. tuberosum Rottler) 70% 에탄올 추출물은 각각 32.59% 및 28.06%로 과실 부위에 비해 상대적으로 낮은 저해 활성을 나타내었다. 이는 부위별 복분자딸기의 collagen 합성률이 과실 부위에서 130.1%로 가장 높게 나타났 고, 잎 부위에서 활성이 나타나지 않았다고 보고한 Park 등 (2007)의 연구 결과와 일치하는 경향이었다. 상관관계 분석 결과(Table 3), collagenase 저해 활성은 tyrosinase 저해 활성과 동일하게 ABTS 라디칼 소거 활성(r=0.880, PK 0.01) 및 DPPH 라디칼 소거 활성(r=0.915, P<0.01)과 높은 양의 상관관계를 보였으며, tyrosinase 저해 활성(r=0.908, P<0.01) 간에도 양의 상관관계가 나타났다. 이는 두 효소가 피부 노화와 관련된 공통된 생리적 메커니즘에 관여하는데, 광노화를 유발하는 활성산소종이 멜라닌 생성을 촉진하고

¹⁾ Values are mean±SD (n=3).

²⁾Different small letters in the same column indicate a significant difference by Duncan's multiple range test (P<0.05).

주름을 유발하는 원인 물질로 알려져 있다(Garrel과 Fontecave, 1995; Hogg, 1995).

요 약

본 연구는 약용식물의 피부 항노화 소재 개발 가능성을 평가 하기 위하여 20가지 추출물에 대한 ABTS 및 DPPH 라디칼 소거 활성과 tyrosinase 및 collagenase 저해 활성을 평가 하였다. ABTS 및 DPPH 라디칼 소거 활성은 물 추출물에서 목단피가 각각 31.51 및 21.87 mg AAE/sample g 그리고 70% 에탄올 추출물에서는 마름이 각각 81.14 및 51.95 mg AAE/sample g으로 가장 높았다. Tyrosinase 저해 활성은 목단피와 마름 추출물이 물 및 에탄올 추출물에서 각각 39.18% 및 72.51%로 가장 높았고, 대두 추출물이 가장 낮 았다. Collagenase 저해 활성은 물 및 에탄올 추출물에서 각각 14.18~70.22% 및 20.75~85.81% 범위였으며, 목단 피 70% 에탄올 추출물이 85.81%로 가장 높았다. 부위별 약용식물의 항산화 및 항노화 활성은 에탄올 추출물에서 높 은 활성을 보였으며, 과실 및 뿌리를 사용한 마름 및 목단피 에서 높은 활성을 나타냈다. 상관관계 분석 결과 항노화 활 성은 항산화 활성과 높은 양의 상관성을 보였다. 이상의 결 과 약용식물 추출물이 항산화 활성 및 피부 항노화 효과가 있으며, 향후 기능성 소재 개발에 대한 정보로 활용될 수 있을 것으로 판단된다.

감사의 글

본 연구는 2024년도 교육부의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 지자체-대학 협력기반 지역혁신 사업의 결과입니다(2021RIS-001). 이에 감사드립니다.

REFERENCES

- Balasinska B, Troszynska A. Total antioxidative activity of evening primrose (*Oenothera paradoxa*) cake extract measured in vitro by liposome model and murine L1210 cells. J Agric Food Chem. 1998. 46:3558-3563.
- Castejón N, Thorarinsdottir KA, Einarsdóttir R, et al. Exploring the potential of icelandic seaweeds extracts produced by aqueous pulsed electric fields-assisted extraction for cosmetic applications. Mar Drugs. 2021. 19:662. https://doi.org/10.3390/ md19120662
- Choe M, Kim DJ, Lee HJ, et al. A study on the glucose-regulating enzymes and antioxidant activities of water extracts from medicinal herbs. J Korean Soc Food Sci Nutr. 2008. 37:542-547.
- Choi JW, Lee YJ, Kim WS, et al. Anti-aging and anti-dementia activities of different solvent extracts from *Silvetia siliquosa*. Korean J Fish Aquat Sci. 2023. 56:526-531.
- Choi SY, Kim MY, Lee YJ, et al. Antioxidant activities and functional components of some rose flower cultivars. J Korean Soc Food Sci Nutr. 2019. 48:494-500.
- Chung JH. Photoaging in Asians. Photodermatol Photoimmunol

- Photomed. 2003. 19:109-121.
- Ding HY, Chou TH, Lin RJ, et al. Antioxidant and antimelanogenic behaviors of *Paeonia suffruticosa*. Plant Foods Hum Nutr. 2011. 66:275-284.
- Duh PD, Yeh DB, Yen GC. Extraction and identification of an antioxidative component from peanut hulls. J Am Oil Chem Soc. 1992, 69:814-818.
- Fisher GJ, Wang ZQ, Datta SC, et al. Pathophysiology of premature skin aging induced by ultraviolet light. N Engl J Med. 1997. 337:1419-1429.
- Garrel C, Fontecave M. Nitric oxide: Chemistry and biology. In: Favier AE, Cadet J, Kalyanaraman B, et al., editors. Analysis of Free Radicals in Biological Systems. Birkhäuser. 1995. p 21-35
- Hearing Jr. VJ. Mammalian monophenol monooxygenase (tyrosinase): Purification, properties, and reactions catalyzed. Methods Enzymol. 1987. 142:154-165.
- Hogg N. Pro-oxidant and antioxidant effects of nitric oxide. In: Favier AE, Cadet J, Kalyanaraman B, et al., editors. Analysis of Free Radicals in Biological Systems. Birkhäuser. 1995. p 37-49.
- Hwang CR, Oh SH, Kim HY, et al. Chemical composition and antioxidant activity of Deoduk (*Codonopsis lanceolata*) and Doragi (*Platycodon grandiflorum*) according to temperature. J Korean Soc Food Sci Nutr. 2011. 40:798-803.
- Jang YS, Seo SJ, Kim NW, et al. Antioxidant and anti-aging activity of Houttuyniae herba extracts obtained from different solvents. J Invest Cosmetol. 2019. 15:147-157.
- Jeong JA, Kwon SH, Lee CH. Screening for antioxidative activities of extracts from aerial and underground parts of some edible and medicinal ferns. Korean J Plant Res. 2007. 20:185-192.
- Kang HS, Seo JS, Lee YS. Physiological activity as cosmetic material of floating part extracts from *Trapa japonica*. J Invest Cosmetol. 2022. 18:23-33.
- Kim ID, Kwon RH, Heo YY, et al. Supercritical extraction of oriental herb: Anti-aging and anti-wrinkle effects. KSBB Journal. 2008. 23:529-534.
- Kim KA, Oh TH, Chun SH. Antioxidative activities and protective effects on alcohol-induced oxidative stress in the human hepatic HepG2 cells of *Undaria pinnatifida* and *Costaria costata* extracts. Journal of Marine Life Science. 2021. 6:66-72.
- Kim KD, Na MK, Kim SJ. The differences in efficacy and effect of herbal extracts by the part and solvent extraction from the medical plants. J Soc Cosmet Scientists Korea. 2006. 32: 105-110.
- Kim MY, Ko KS. Study on cosmeceutical activities of *Moutan cortex* radicis extracts. J Kor Soc Cosm. 2013. 19:1119-1126.
- Kim SW, Kim JG, Kim SK, et al. Antioxidant and tyrosinase inhibitory activities of different parts from different cultivar paprika. Journal of Basic Sciences. 2014. 31:33-43.
- Kim YJ. The inhibitory effects of water chestnut extracts on melanogenesis through regulation of tyrosinase expression. J Soc Cosmet Sci Korea. 2023. 49:307-312.
- Kwak JH, Kim YH, Chang HR, et al. Inhibitory effect of gardenia fruit extracts on tyrosinase activity and melanogenesis. KSBB Journal. 2004. 19:437-440.
- Masteikova R, Muselík J, Bernatoniene J, et al. [Antioxidant activity of tinctures prepared from hawthorn fruits and motherwort herb]. Ceska Slov Farm. 2008. 57:35-38. Czech.
- Moon JS, Kim SJ, Park YM, et al. Activities of antioxidation and alcohol dehydrogenase inhibition of methanol extracts from some medicinal herbs. Korean J Food Preserv. 2004.

- 11:201-206.
- Naidoo L, Khoza N, Dlova NC. A fairer face, a fairer tomorrow? A review of skin lighteners. Cosmetics. 2016. 3:33. https://doi. org/10.3390/cosmetics3030033
- Park CM, Joung MS, Yang DO, et al. The study on the effect of *Rubus coreanus* Miquel extract as a comsetic ingredient. J Soc Cosmet Scientists Korea. 2007. 33:41-45.
- Pentland AP, Shapiro SD, Welgus HG. Agonist-induced expression of tissue inhibitor of metalloproteinases and metalloproteinases by human macrophages is regulated by endogenous prostaglandin E₂ synthesis. J Invest Dermatol. 1995. 104:52-57.
- Pillaiyar T, Manickam M, Jung SH. Recent development of signaling pathways inhibitors of melanogenesis. Cell Signal. 2017. 40:99-115.

- Seo SH, Choi MO. The protective effects of *Paeonia suffruticosa* water extracts against UVB or hydrogen peroxide-induced oxidative damage on human keratinocyte HaCaT cells. J Kor Soc Cosmetol. 2016. 22:593-602.
- Smit N, Vicanova J, Pavel S. The hunt for natural skin whitening agents. Int J Mol Sci. 2009. 10:5326-5349.
- Sung HC, Jung HD, Park KD, et al. A clinical study on the efficacy of cosmetics containing the *Ascidian tunic* in reducing wrinkles. Kor J Dermatol. 2008. 46:896-902.
- Yagi A, Kanbara T, Morinobu N. Inhibition of mushroom-tyrosinase by *Aloe* extract. Planta Med. 1987. 53:515-517.
- Yang WT, Kim KS, Kwon YS, et al. Whitening and anti-aging effects of *Cistanche deserticola* extract. J Plant Biotechnol. 2016. 43:492-499.