

韓國產 木耳와 石衣의 脂肪酸 및 스테롤 成分 組成에 關한 比較 研究

南 貞 媛 · 高 英 秀

漢陽 大學校, 食品 科學 研究所

(1979년 7월 26일 접수)

A Comparative Study on the Compositions of Fatty Acids and Sterols of *Hirneola auricula-Judae* and *Gyrophora esculenta*

Jung Won Nam and Young Su Ko

Institute of Food Sciences, Hanyang University, Seoul, Korea

(Received July 26, 1979)

Abstract

Compositions of fatty acid and sterol of *Hirneola auricula-Judae* and *Gyrophora esculenta* produced in Korea were analyzed by gas liquid chromatographic(GLC) and infra red(IR) spectrophotometric techniques.

As results, *H. auricula* showed linoleic acid 33.73, palmitic acid 15.52, stearic acid 5.03, oleic acid 16.03, linolenic acid 17.80, and unknown acid 11.89 % respectively, in their composition, while *G. esculenta* linoleic acid 46.35, palmitic acid 31.71, oleic acid 16.82, unknown acid 5.12 %, and trace of stearic and linolenic acids, respectively.

Sterols were separated by thin layer chromatographic technique from both samples and identified by IR analysis. Two sterols, sitosterol and ergosterol, were present in both samples.

序 論

우리들의 식 생활에서 많이 애용을 받고 있는 한국산 버섯의 총수는 수백종^(1,2)에 달하고 있으며 국내외에서 각종 식품의 風味劑로서 이용되고 있다⁽³⁾. 石衣는 버섯 종류가 아닌 地衣類이나⁽⁴⁾ 木耳와 용도가 비슷하여 흥미가 있으나 이것들에 대한 보고는 매우 드문 편이다.

木耳는 擦子菌綱(Basidiomycetes)의 木耳科(Auriculariaceae)에 속하며 그의 學名은 *Hirneola auricula-Judae*이며 그의 종류에는 텔木耳(*Hirneola polyticha Montague*) 및 흰木耳(*Tremelle fusiformis Berkeley*) 등이 있으며 이것들은 민간에서는 음식이 여름철에

쉬는 것을 방지하거나 漢方에서는 營養, 強壯, 肺結核 치료等 그의 용도가 다양하다^(5,6).

石衣는 地衣 植物門(돌웃식물문, Lichenae)중의 石衣 벼刹科(Gyrophoraceae)에 속하며 學名은 *Gyrophora esculenta Miyoshi*이며 그의 群集은 組成的으로 石衣 群集(*Gyrophoretum esculentae*)로 되어있고 石衣 群團(*Gyrophorion esculenta*)등이 있으며 食用 外에 肝의 디스토마(distoma) 치료약, 利尿藥 및 強壯劑로서 이용되고 있다⁽⁶⁾.

食用 및 野生 버섯에 관한 연구로는 金⁽¹⁰⁾ 및 尹⁽¹¹⁾ 외에 許⁽¹²⁾와 金等⁽¹³⁾의 보고등이 있으며 1969년 이후에 金等^(14~19)의 보고와 魯等⁽²⁰⁾ 그리고 그밖의 연구 등^(21~23)의 報告가 있으며 金等⁽²²⁾은 양송이 버섯의 지방산의 成分에 관해서 發表한 바 있다.

우리의 食生活에 많이 애용되고 있는 油脂類는 그의 지방산 조성이나 지방의 變質程度나 그리고 비타민 및 콜레스테롤(cholesterol)等의 含量에 따라서營養價가 좌우되므로 油脂成分의 규명은 의의가 있다^(24~26).

그러나 우리나라의 木耳와 石衣에 對한 이들 脂肪成分의 규명이 아직 보고되어 있지 않으므로 본 실험에서는 G.L.C.에 의한 지방산의 조성 및 I.R.에 의한 스펙트럼에 成分의 分析을 比較하였기에 報告하는 바이다.

材料 및 方法

木耳

本 實驗에 使用한 木耳는 *Hirneola auricula-Judae* Berkeley이며 1978年 8月에 울릉도에서 採取한 것을 물로 씻어서 乾燥시켜 乳鉢로 粉碎한 다음에 Folch法⁽²⁷⁾에 依해서 클로로포름과 메틸알콜(2:1)抽出法으로 2~3日間 冷浸으로抽出하여서 얻은 木耳 버섯의 粗脂肪(crude fat)을 질소 氣流下에서 約 20分間 蒸溜하고 溶媒를 除去시켜서^(28, 29) 얻은 油性成分을 지방산 및 스페를 分析을 위한 材料로 使用하였다.

石衣

石衣는 食用으로 市販되고 있는 것을 1978年 8月에 市場에서 購入하였으며 本 實驗에 使用한 材料는 一般家庭에서 料理用 및 酱等을 만드는데 普偏의으로 使用하는 *Gyrophora esculenta Miyoshi*이며 材料의 處理方法은 위의 木耳와 同一한 條件으로 處理하면서 成分의 比較 檢討에 差異가 나지 않도록 한 것이다.

G.L.C.에 依한 脂肪酸의 組成

가. 混合 脂肪酸의 調製

實驗 材料 項에서 얻은 粗脂肪成分을 1N alcohol-KOH로 鹼化시킨 다음에^(30~32) 不鹼化物을 除去하고^(33, 34) 常法에 依해서 混合 脂肪酸을 調製^(35, 36)하였다. 즉抽出한 粗脂肪을 1N alcohol性 KOH溶液으로 1時間 동안 沸騰 鹼化를 시키고 나서 于先의으로 不鹼化物을 除去시킨다. 濃鹽酸으로 酸性化 시킨 다음에 遊離된 脂肪酸을 에틸에테르로 數回 抽出하고 그 抽出液을 飽和食鹽水로 數回 洗滌하여서 中性으로 만든 다음 그 에틸에테르 抽出液에 無水 나토리움 설페이트(Na_2SO_4)를 加하여 脱水시키고 에틸에테르를 蒸發乾固하여 얻어진 脂肪酸을 질소 가스를 通過시킨 後에 保管하였다.

나. 脂肪酸 메틸 에스테르의 調製

油脂의 메틸 에스테르화를 本 實驗에서는 니트로소 메틸 우레아[$\text{CH}_3\text{N}\cdot(\text{NO})\text{CO}\cdot\text{NH}_2$]에서 디아조 메탄에 의한 메틸 에스테르화法^(37, 38)으로 調製하였다. 즉濃縮

한 脂肪酸 溶液에 다시 에틸 에테르를 加하고 脱水濾過한 다음에 에틸 에테르가 낭을 程度까지 減壓濃縮시킨 後 여기에 10%의 KOH와 니트로소 메틸 우레아와 에틸 에테르에서 發生하는 디아조 메탄가스를 通氣으로서 脂肪酸의 메틸 에스테르를 合하고 15時間 동안 放置한 後에 展開溶媒를 클로로포름으로 한 薄層 크로마토그라피로서 메틸화를 確認하였다.

그렇게 한 다음에 에틸 에테르 溶液 및 石油 에테르의 混合溶液에 넣고 水洗한 다음 溶媒를 除去시키고 나토리움 설페이트(Na_2SO_4)로 乾燥시켜서 에틸 에테르의 混合物을 그대로 G.L.C.用 柱(cylinder)에 注入시켰다.

다. G.L.C. 分析

脂肪酸의 G.L.C. 分析은 Shimazu model GC 4B(with hydrogen flame ionization detector)를 使用하여서 常法에 의하여^(39~42) 分析을 하였다. G.L.C. 裝置는 同一條件下에서 標準品 및 試料의 가스 크로마토그램을 作成하여 그의 calibration curve의 retention time을 比較하여서 脂肪酸을 同定하였다.

本 實驗에 使用한 柱 物質은 クラス製이고 길이는 2m이며 內徑은 4mm이고 15%의 DEGS on chromosorb W(60~80 mesh)이고 질소 가스의 流速은 40 ml/min, 柱의 溫度는 180°C 恒溫이었으며 檢出은 flame ionization detector (F.I.D.)를 使用하였으며 試料의 메틸 에스테르 溶液은 각각 마이크로 시린지에 依해서 8.0 μl 를 注入시켰다. 內壓(inlet press)은 1 kg/cm²이고 感度는 10²이었고 쳐一트 speed는 10 mm/min이었다. 그리고 標準 脂肪酸의 含量 決定을 常法에 의해서^(43~46) 그의 面積 比로서 重量比를 求하였다.

標準 脂肪酸으로서는 飽和 脂肪酸으로서 팔미틴酸(palmitic acid)과 스테아린酸(stearic acid)을 그리고 不飽和 脂肪酸으로서는 올레인酸(oleic acid)과 리노레인酸(linoleic acid) 및 티노레닌酸(linolenic acid)의 各 메틸 에스테르를 使用하여서 그들의 retention time을 比較하여서 各 成分을 確認定量하였다.

I.R. 스펙트럼에 依한 스페를 成分의 究明

가. 不鹼化物(unsoapifiable matters)의 檢出

韓國產 木耳와 石衣 中의 스페를 成分를 檢出하기 为해서는 于先 에테르의 可溶性 成分을 前記한 方法대로 多量을 抽出한 다음에 不鹼化物를 檢出하여야 한다.

不鹼化物은 常法에 依해서⁽⁴⁷⁾ 鹼化된 비누液을 分液濾汁에 옮기고 蒸溜水를 加하여 에틸 에테르 層이 明確하게 分離될 때까지 에틸 에테르로 抽出을 數回 反復하고 全 抽出物을 함께 合하여서 처음에는 알칼性 KOH

溶液으로 洗滌하고 나중에 蒸溜水를 加하여 그 洗液이 페놀프타레인 試液에 依해서 紅色이 나타나지 않을 때 까지 洗滌하고 에테르 液을 蒸發 乾固시킨 後에 이 不鹼化物을 메시케이터 속에 넣어서 放冷하며 이렇게 하여서 얻은 不鹼化物은 스테롤 層의 分離를 위한 T.L.C. 用으로 使用하였다.

나. 스테롤 層의 分離

不鹼化物 中에서 스테롤 層을 檢出하는 方法은 디지토닌 析出法^(48,49), 알루미니움 옥사이드層^(50~54) 또는 酸性⁽⁵⁵⁾이나 알카리性⁽⁵⁶⁾ 시리카겔 層에 依한 法이 있으나 本 實驗에서는 어느 方法보다도 分離能이 좋다고 思料되는 실리카겔 G (E. Merks)를 直接 preparative T.L.C.에 利用해서 分離하는 方法^(57,58)을 利用하였다.

T.L.C.用으로 檢出한 不鹼化物은 $0.25 \mu\text{m}$ 두께인 실리카겔 G의 T.L.C. plate를 만들어서 벤젠 溶液에 各

木耳와 石衣의 不鹼化物을 溶解 시키고 展開液으로 n -헥산과 에틸 에테르의 同量($1:1$)⁽⁵⁹⁾을 使用하여 展開시켰으며 이를 10%의 檸檬油酸의 에틸 알콜 溶液으로 $105\sim110^\circ\text{C}$ 에서 發色⁽⁶⁰⁾시켜서 스테롤 層의 ベンド가 確認되는 곳을 表示해 두고 T.L.C. plate의 스테롤 層들은 모두 질소 기류下에서 두수 알콜 溶液만으로 스프레이 한 다음에 白色 벤드로 스테롤 層이 나타나면 즉시 表示해 두고 그 스테롤 層 만을 에틸 에테르로 數回 溶出(elution)하고 그 溶液을 나토리움 설페이트로 乾燥시킨 後에 蒸發 乾固 시켜서 木耳와 石衣의 各 스테롤 成分을 獲得하였다.

다. I.R. 스펙트럼에 依한 스테롤의 測定

스테롤 成分의 同定 method으로서 예로부터 I.R. 스펙트럼에 依해서 天然의 스테롤을 많이 分離한 報告가 있어서 本 實驗에서는 NaCl cell⁽⁶¹⁾을 使用하여 常法

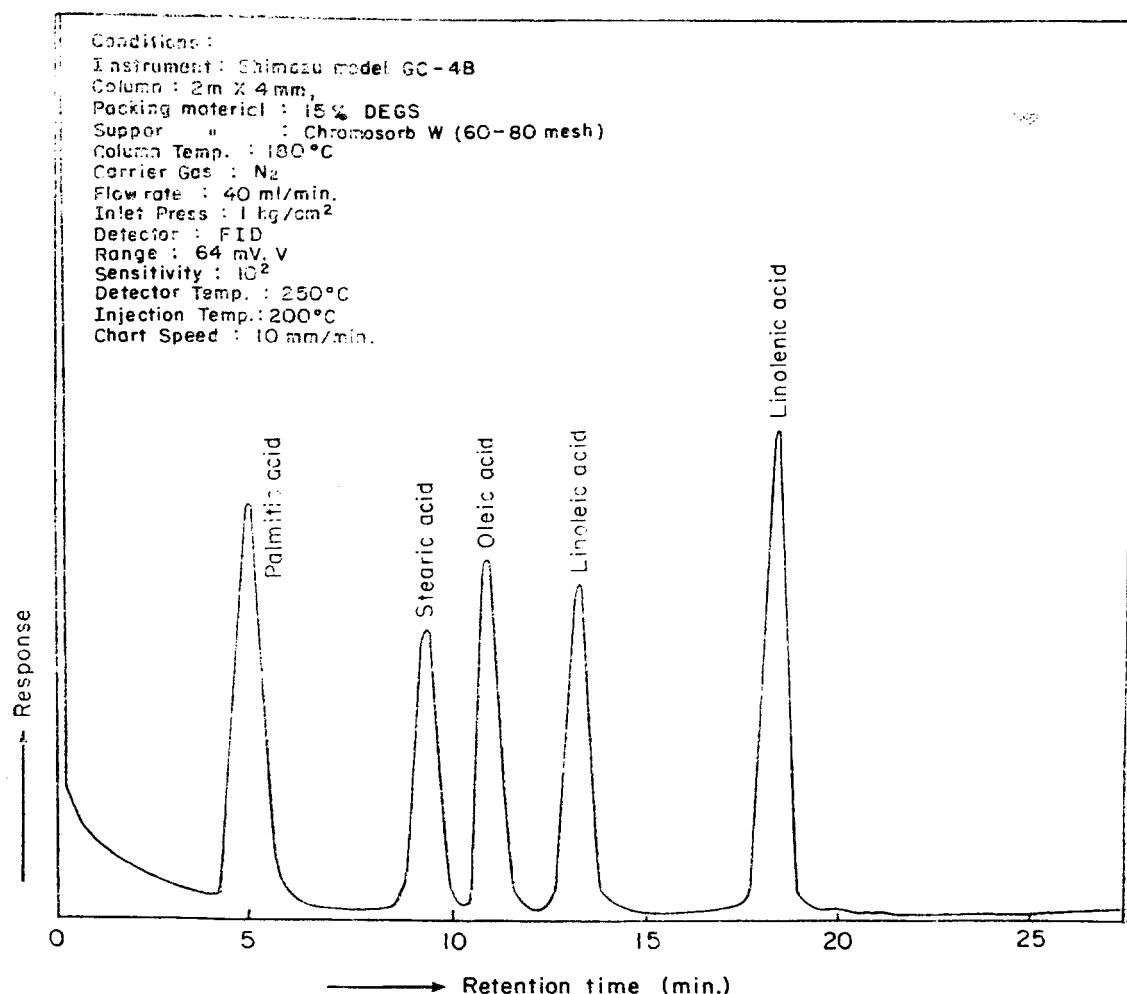


Fig. 1. Gas liquid chromatogram of standard fatty acid methyl esters

대로 测定하였다.

따라서 木耳와 石衣의 스테롤 成分을 同定하여서 普偏的으로 利用되는 不飽和結合의 吸收 피크와 關聯되는 것을 中心으로 하여서 同定하였다.

結果 및 考察

木耳와 石衣의 脂肪酸의 組成

前記한 方法대로 韓國產 木耳와 石衣의 混合 脂肪酸의 메틸 에스테르를 調製하여서 G.L.C.에 依하여 脂肪酸의 組成을 究明할 目的으로 標準 脂肪酸인 팔미틴酸을 위시한 5種의 脂肪酸 메틸 에스테르를 分離한 크로마토그램은 Fig. 1.과 같으나 同一한 分析條件으로 分離한 木耳의 脂肪酸 메틸 에스테르는 Fig. 2와 같고 石衣의 脂肪酸 메틸 에스테르의 크로마토그램은 Fig. 3과 같다. 그리고 이들을 半值幅法⁽⁶²⁾ 및 프라니메트리法⁽⁶³⁾,

⁽⁶⁴⁾에 依해서 定量한 피크의 面積 測定의 結果는 Table 1과 같다.

木耳와 石衣의 스테롤 成分의 同定

I.R. 吸收 스펙트럼에서 스테롤 成分을 同定한 結果는 sitosterol과 ergosterol이 大體的으로 一致한다고 生覺되었음으로 標準 스테롤로서 sitosterol과 ergosterol을 스펙트럼에 나타낸 것은 Fig. 4 및 5와 같으며 木耳의 I.R. 스펙트럼은 Fig. 6과 같고 石衣의 I.R. 스펙트럼은 Fig. 7과 같다.

以上과 같은 實驗 結果에 依해서 木耳와 石衣 中의 脂肪酸의 組成과 스테롤 成分의 究明을 G.L.C.와 I.R.에 依해서 檢討한 結果 다음과 같은 結論을 얻었다.

1. G.L.C.에 依한 脂肪酸의 組成은 木耳와 石衣는 다 必須 脂肪酸인 리노레인酸이 主成分을 이루어서 각각 리노레인酸의 含量이 33.73 및 46.35 %로 가장 높았으며 올레인酸의 경우는 木耳와 石衣 中의 含量이

Same conditions as above Fig. 1.

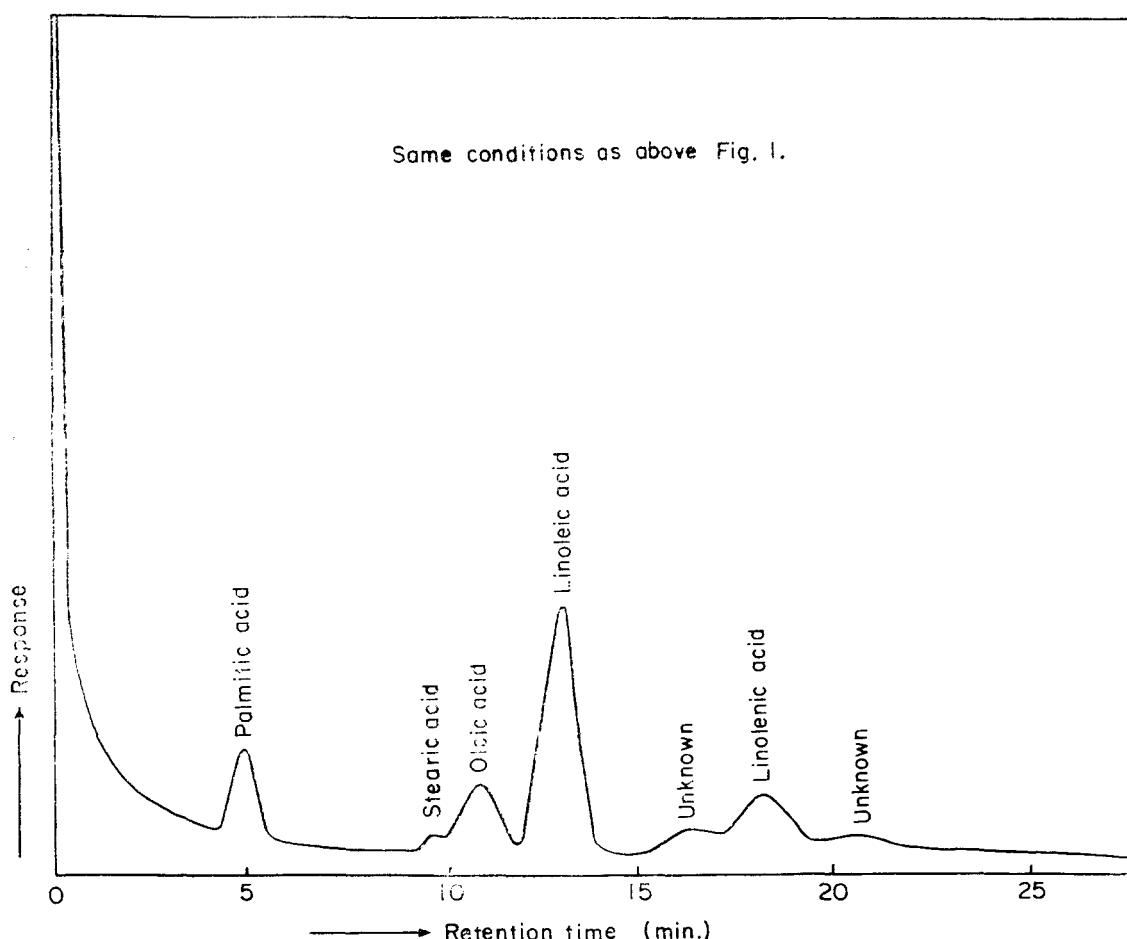
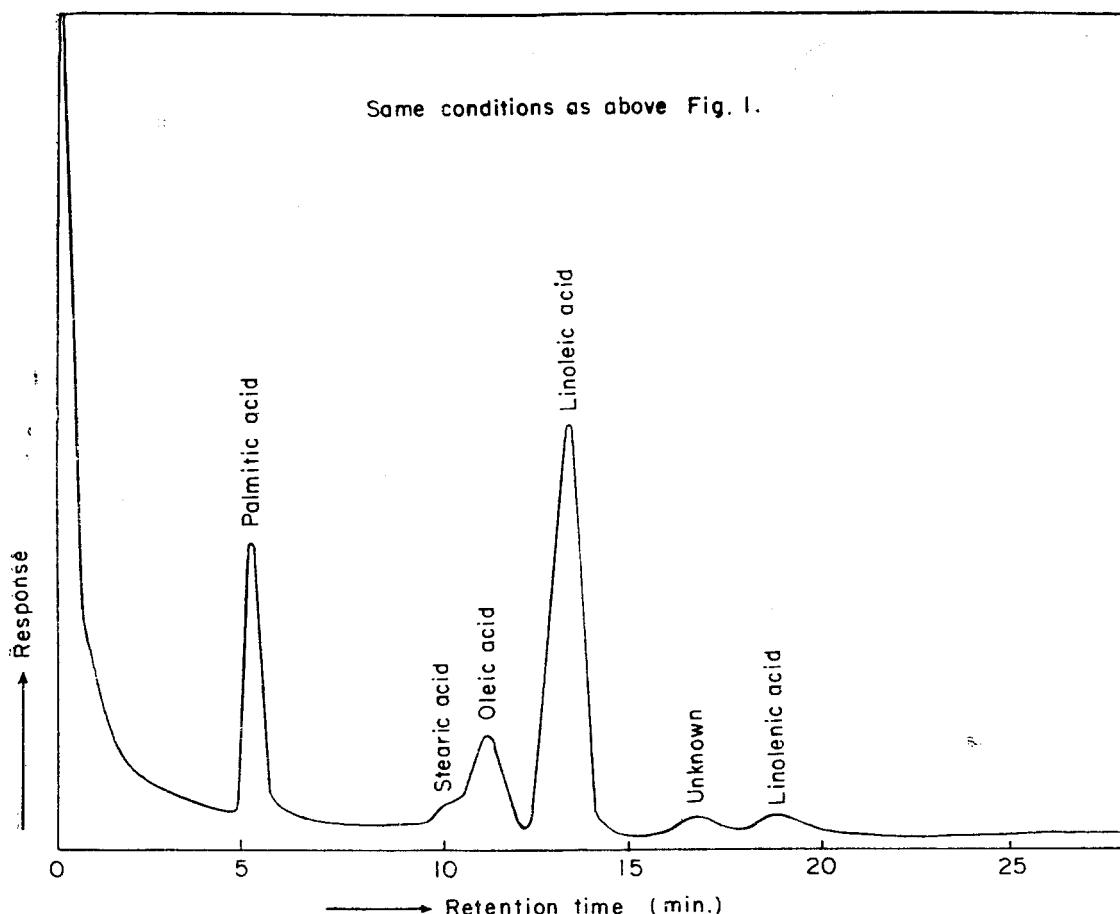


Fig. 2. Gas liquid chromatogram of fatty acid methyl esters of *Hirneola auricula Judae*.

Fig. 3. Gas liquid chromatogram of fatty acid methyl esters of *Gyrophora esculenta*Table 1. Fatty acid composition of *Hirneola auricula Judae* and *Gyrophora esculenta* produced in Korea

Fatty acid	Content(%)	
	<i>Hirneola auricula Judae</i>	<i>Gyrophora esculenta</i>
Palmitic(C ₁₆)	15.52	31.71
Stearic(C ₁₈)	5.03	trace
Oleic (C ₁₈ ¹)	16.03	16.82
Linoleic (C ₁₈ ²)	33.73	46.35
Linolenic(C ₁₈ ³)	17.80	trace
Unknown	11.89	5.12

16.03 및 16.82 %로 그의含量이 거의類似한 值로 나타났으나 리노레닌酸의含量은 木耳에서는 17.80 %로 윤례인酸의含量 보다도 많았으나 石衣에서는 아주極微量으로 거의確認되지 않았다.

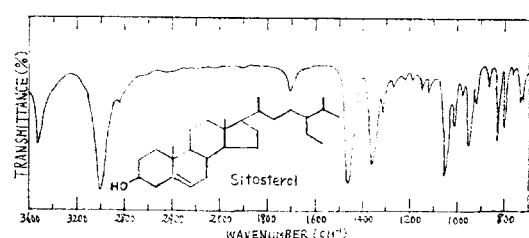


Fig. 4. The infrared spectrum of sitosterol

그리고 飽和脂肪酸의 경우 팔미틴酸의含量은 木耳에서는 15.52 %를 含有하고 있었으나 石衣에서는 거의倍量이나 되는 31.71 %를 含有하는 것이 特色이었으며 스테아린酸의 경우는 木耳에는 5.03 %나 宛明되었으나 石衣에서는 反面에 極微量으로 거의 確認하기 어려웠다. 그밖에 未知의 脂肪酸의含量이 木耳에서는 11.89 %를 含有하고 있으며 石衣에서는 5.12 %를 含有하고 있었다. 따라서 木耳와 石衣는 必須 脂肪酸의含量이

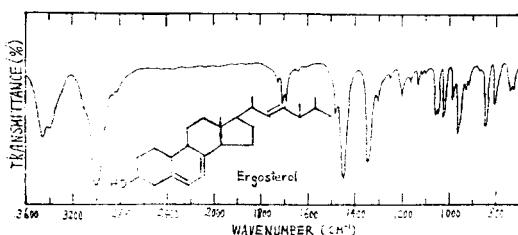
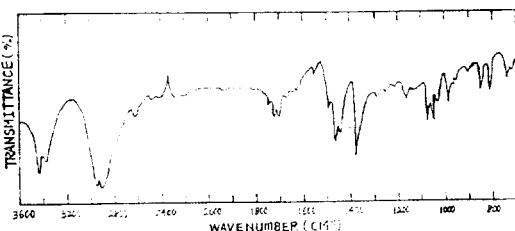
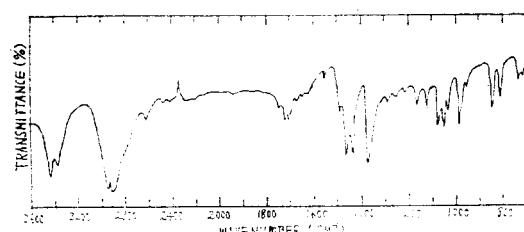


Fig. 5. The infrared spectrum of ergosterol

Fig. 6. I.R. absorption spectra of *Hirneola auricula Judae* sterolFig. 7. I.R. absorption spectra of *Gyrophora esculenta* sterol

豐富함으로 食品營養學의 意義가 크다고 思料된다. 2. 스탠다드 成分의 同定結果는 Fig. 6 및 7에서 나타난 바와 같이 木耳와 石衣는 모두 類似한 패턴을 나타내며 3,300~3,400 cm⁻¹에서 OH基에 彙屬된 强한吸收가 관측되며 1,650~1,660 cm⁻¹에서 -CH=CH-의 不飽和結合에 归속되는吸收가 관측되고 1,440~1,460 및 1,370 cm⁻¹에 메틸基에 归속되는吸收가 관측됨으로 스탠다드化合物임이 明白하고 全體의 패턴은 sitosterol 및 ergosterol과 一致하지만 ergosterol에 더 가까운 點으로 보아서 이系列의 스탠다드 木耳와 石衣의 主成分을 이루고 있다고 思料된다.

要 約

韓國產 木耳와 石衣中의 脂肪酸組成과 스탠다드 成分의 究明을 G.L.C.와 I.R. 分析에 依하여 檢討한 結果 다음과 같은 結果를 얻었다.

G.L.C.에 依한 脂肪酸의組成은 木耳의 경우 linoleic

acid 33.73, palmitic acid 15.52, stearic acid 5.03, oleic acid 16.03, linolenic acid 17.80 및 未知酸 11.89 %를 나타낸 反面, 石衣는 linoleic acid 46.35, palmitic acid 31.71, oleic acid 16.82, 未知酸 5.12 % 및 少量의 stearic acid와 linolenic acid를 보여 주었다.

스탠다드 成分을 T.L.C.에 依하여 分離한 後 I.R. 分析으로 究明한 結果 木耳와 石衣 모두 sitosterol과 ergosterol을 含有하였다.

文 獻

1. Kim, S. S. : *Korean J. Mycol.*, 2(1), 43 (1978)
2. 林鼎漢 : 韓國產 菌類總目錄, 韓國菌蕈研究所 p. 22 (1968)
3. 上田引一郎 : 竹タ・ケノコ 健康法, 讀賣新聞社, 東京, p. 39 (1975)
4. 林基興 : 藥用植物學各論, 東明社 p. 19 (1974)
5. 金永在 : 藥品資源植物學, 東明社, p. 69 (1974)
6. 秋山武一 : きのこ狩りの手びき, 福音印刷出版局 p. 59 (1974)
7. 大谷吉雄 : きのこの見分け方一, 北隆館, p. 122 (1968)
8. 岩田久敬 : 食品化學各論(第3次改著), 合養賢堂, p. 178 (1973)
9. Yamanaka, T. : *J. Jap. Bot.*, 43 (10-11 Asahina Comm. Number) p. 363 (1968)
10. 金貞姬 : 大韓植物學會誌, 117 (1958)
11. 尹斗石 : 國防部科學技術研究所報告, 73 (1959)
12. 許鳳錫 : 中央大學校大學院論文集, p. 31 (1960)
13. 金萬鳳 : 公衆保健雜誌, 6, 319 (1969)
14. Kim, B. K. : *Korean Biochem. J.*, 6, 6 (1969)
15. Kim, B. K., Lee, Y. S., Choi, E. C., Shim, M. J. and Lee, Y. N. : *J. Pharm. Soc. Korea*, 14, 15 (1970)
16. Kim, B. K., Lim, J. H., Yoon, I. H., Park, O. J. and Kim, H. S. : *Korean J. Pharmacog.*, 2, 95 (1971)
17. Kim, B. K. and Choi, E. C. : *Korean J. Pharmacog.*, 6, 49 (1975)
18. Kim, B. K., Kang, C. Y., Choi, E. C. and Kim, K. H. : *Korean J. Mycol.*, 4, 27 (1976)
19. Kim, B. K., Choi, H. K. and Choi, E. C. : *J. Natl. Acad. Sci. (Nat. Sci. Ser.)*, 15, 211 (1976)
20. Pyo, M. Y. and Ro, I. H. : *Korean J. Nutr.*, 8 (1), 47 (1975)

21. Kim, B. K., Lee, Y. S., Choi, E. C., Shim, M. J. and Lee, Y. N. : *Korean Biochem. J.*, **10**, 1 (1977)
22. Kim, B. K., Lee, M. H. and Shim, M. J. : *Korean J. Mycol.*, **6**(1), 5 (1978)
23. Jung, J. K., Chung, J. Y. and La, S. M. : *Korean J. Nutr.*, **7**(4), 12 (1974)
24. Ko, Y. S., Chang, Y. K., Lee, H. J., Woo, S. K. and Yang, C. B. : *Korean J. Nutr.*, **10**(2), 44 (1977)
25. Ko, Y. S., Chang, Y. K. and Lee, H. J. : *Korean J. Nutr.*, **12**(1), 43 (1979)
26. Choi, K. Y. and Ko, Y. S. : *Korean J. Nutr.*, **12**(2), 75 (1979)
27. Folch, J., Lees, M. and Sistanley, G. H. : *J. Biol. Chem.*, **226**, 497 (1957)
28. DGF-Einheitsmethoden C-III, Ia, 53 (1975)
29. Official Methods of Analysis-A.O.A.C.- Association of Official Agricultural Chemists, Ninth edition (1970)
30. 日本油化學會編：基準油脂分析試驗法，胡倉書店(1966)
31. 小原哲二郎編：三訂食品營養化學實驗書，建帛社，43 (1975)
32. Kaufmann, H. P. : *Analyse der Fette und Fettprodukte*, Springer Verlag (1958)
33. Über neuere Methoden zur Untersuchung von Fetten und Fettprodukten(Deutsche Gesellschaft für Fettwissenschaft E.V.) (1974)
34. 西田壽美：“改訂食品化學實驗書”，光生館(1967)
35. Paoletti, E. and Krichevsky, D. : *Advanced in Lipid Research*, 1, 3, Acad. Press, New York (1963)
36. Ko, Y. S. : *Dissertation, Westfälischen Wilhelms Universität Münster*, West Germany (1962)
37. Watanabe, C. : *Japan Analyst*, **15**, 1292 (1966)
38. 釋谷年見, 山崎恵：日本食品工業會誌 **11**, 538 (1964)
39. Cooks, L. V. and Van Rede, C. : *Laboratory Handbook for Oil and Fat Analysts*, Academic Press, London and New York, 311 (1966)
40. James, A. T. : *J. Chromat.*, **2**, 552 (1959)
41. 日本生化學會編：“脂質の化學”，東京化學東人, 62 (1974)
42. 高木徹：油脂・脂質の機器分析，幸書房，180 (1976)
43. Robinson, J. W. : *Undergraduate Instrumental Analysis* (1971)
44. Ackerman, R. G. : *Methods in Enzymology*, Academic Press, **14**, 339 (1969)
45. Carroll, K. K. : *Nature(London)*, **191**, 377 (1961)
46. Hornig, E. C. : *J. Lipid Res.*, **5**, 20 (1964)
47. Seher, A., Korhn, M. and Ko, Y. S. : *Fette. Seifen. Anstrichmittel*, **79**, 203 (1977)
48. Windaus, M. : *Ber.*, **42**, 238 (1906)
49. Windaus, M. : *Z. Physiol. Chem.*, **65**, 110 (1910)
50. Capella, P., Fedeli, E., Cirimel, M., Lanzani, A. and Jacini, G. : *Rev. Ital. Sostanze Grasse*, **40**, 660 (1963)
51. Walberg, M. : *Rev. Franc. Corps Gras*, **12**, 41 (1965)
52. Armandola: *Ind. Aliment. Agr. (Paris)*, **5**, 64 (1966)
53. Audiau, E. and Wolff, J. P. : *Rev. Franc. Corps Gras*, **14**, 589 (1967)
54. Audiau, E. and Wolff, J. P. : *Rev. Franc. Corps Gras*, **13**, 165 (1966)
55. Fedli, E. : *Rev. Franc. Corps Gras*, **15**, 281 (1968)
56. Mordret, F. : *Rev. Franc. Corps Gras*, **14**, 589 (1967)
57. Homberg, E. : *Dissertation, Westfälische Wilhelms Universität Münster*, West Germany (1969)
58. Homberg, E. and Seher, A. : *Zeitschrift für Lebensmittel-Untersuchung und Forschung*, **148**, 133 (1972)
59. 橋本, 廣谷, 向井：油化學(日), **14**, 343 (1965)
60. Kaufmann, H. P. and Makus, Z. : *Fette. Seifen. Anstrichmittel*, **62**, 1014 (1960)
61. Clifton, E. Meloan and Robert, W. Kiser : “*Problems and Experiments in Instrumental Analysis*”, Prentice-Hall, Asian Edition (1965)
62. 日本分析化學會, 近幾支部編：機器分析實驗法(下), 化學同人, 702 (1969)
63. 松居正己：*Shimadz Review*, **28**, 45 (1971)
64. 池川信夫, 松居正己：衛生化學(日本), **15**, 16 (1961)