

자원식물로서 응용을 위한 야광나무 열매의 식물화학적 연구

박희준 · 이명선 · 양한석* · 최재수** · 정원태***

상지대학교 자원식물학과 · *부산대학교 약학과 · **부산수산대학교 식품영양학과 · ***일양약품 중앙연구소

Phytochemical Study for Botanical Utilization of the Fruits of *Malus baccata*

Hye Juhn Park, Myung Sun Lee, Han Suk Young*, Jae Sue Choi** and Won Tae Jung***

Department of Botanical Resources, Sangji University, Wonju 220-702, *Department of Pharmacy,

Pusan National University, Pusan 609-735, **Pusan National Fisheries University of Pusan,

Pusan 608-737 and ***Central Research Institute, Il-Yang Pharm. Co., Ltd., Yongin 449-900, Korea

Abstract—Very little utilization of the fruits of *Malus baccata* (Rosaceae) has been employed for food and medicinal plants except for preparing fruit beverages. But, it was estimated as valuable to investigate the chemical components for the botanical resource of this plant. In this study, it was found that the fruits of this plant contained primary long chain alcohol, β -sitosterol, campesterol, ursolic acid and β -D-glucosides of β -sitosterol and campesterol. However, phloretin (dihydrochalcone) and its 5-O-glucoside (phloridzin) known as plant growth regulators in many Rosaceae plants were not found in this plant material by co-TLC analysis with authentic specimens. Although plant sex hormone, estrone, was often contained in relatives of *M. baccata*, e.g., *Prunus* spp., *Crataegus* spp. and *Malus* spp., this compound was not detected in this fruit by comparison with an authentic material. By RIC chromatography, it was suggested that the Soxhlet extraction by the solvent of ether was excellently useful to extract ursolic acid efficiently.

Keywords—Rosaceae · *Malus baccata* · ursolic acid · RIC · chemotaxonomy

야광나무 (*Malus baccata*)는 장미과 (Rosaceae)에 속하는 낙엽활엽 교목으로 북반구의 산야에 자생하는 식물이다.¹⁾

이 식물은 높이 약 4~5m에 달하며 잎은 어긋나고 길이 4~8cm로서 타원형이며 끝이 뾰족하고 기부가 둥글거나 썸기모양이고 잔 톱니가 있으며 자루는 길이 약 3~4cm이고 털이 없다. 꽃은 5월에 피며 연한 분홍색 또는 백색이고 지름 2.5~3cm이며 2~5개가 잎겨드랑이에 달린다. 꽃자루는 길이 약 15mm이고 타원형이다. 수술은 암술대 기부에 털이 있다.^{2,3)}

이의 근연식물로서는 화편과 엽병에 털이 있

는 털야광나무와 잎 뒷면에 털이 없는 민야광나무가 변종으로 자생하며 국내에 자생하는 야광나무 유사식물로는 아그배나무 및 제주아그배나무 뿐인 것으로 알려져 있다.²⁾

야광나무의 열매는 대추 정도의 크기와 유사한 형태를 하고 있으며 과실이 가을에 홍숙하여 매우 아름다우며 가을철 낙엽이 진 후에도 오랫동안 낙과하지 않는다. 그러므로 식용이나 약용의 가치보다 정원수로서의 가치가 더 큰 실정이다.⁴⁾

사과나무 (*Malus pumila*)는 야광나무 등을 대목으로 하여 접목한 식물로서 그 과실의 과육이 크고 맛과 향기가 좋고 당도가 높으므로 식용에

적합하고 한방 식이적 요법 등에 사용되며, 알려진 주요 식물성분으로는 에스트론과 아미그달린 등이 있다.⁵⁾

장미과에서 약용으로 많이 쓰이는 한약은 주로 *Prunus* 속과 *Crataegus* 속에 속해 있으며 여기에 관한 많은 연구들이 진행되어 있으나 *Malus* 속 식물에 관한 연구가 미흡하였으므로 이에 관한 자원식물학적 개발을 위한 기초연구가 필요하리라 사료되었기에 본 연구에 착수하였다.

실 험

식물재료—전북 옥구군 일대에서 11월 중 야광나무(*Malus baccata*)에서 열매를 채취하고 채취 즉시 세절하여 통풍이 잘되는 그늘에서 건조하였으며 식물재료의 건조중량 3.7 kg을 얻었다.

기기—용점은 Electrothermal digital melting point apparatus를 사용하여 측정하였으며 보정하지 않았다. IR spectrum은 Bomem MB-100 FT-IR spectrometer를 사용하여 KBr disk법으로 측정하였으며 NMR spectrum은 TMS를 내부 표준물질로 하여 측정하였다. 질량 스펙트럼은 Finnigan Mat TSQ-700을 사용하였고 측정 시 ion electron volt는 70 eV이었으며 온도는 100°C~800°C까지 10분간 가온하였다. 표준물질 estrone, phloretin 및 phloridzin은 Sigma사 제품을 사용하였다.

추출 및 분획—재료 3.7 kg을 메타놀로서 수욕 상에서 환류하에 5시간씩 3회 추출하고 메타놀 추출물 1.25 kg을 얻었다. 이를 CHCl₃/H₂O로 헹 닦한 후 분배시키고 CHCl₃ 층을 농축하여 CHCl₃ 분획 255.4 g을 얻었으며 수층으로부터 EtOAc 분획을 같은 방법으로 하여 81.5 g을 얻었다.

속스레 추출장치에 재료 100 g을 넣고 10시간 추출한 후 농축하여 ether 용매에 의한 속스레 추출물 5.8 g을 얻고 이를 메타놀 100 ml에 녹여 24시간 방치하였을 때 석출하는 백색의 물질(4.3 g)을 얻고 이를 sample-1이라 하였다.

물질 1, 2, 3 및 4의 분리—내경 5 cm의 silica gel column chromatography에서 *n*-hexane-EtOAc (3:1) 전개용매로 용출시켜 fr. 1~fr. 5까지 얻었으며 그 후 CHCl₃-MeOH(10:1) 전개용매로 용출시켜 fr. 6, fr. 7을 얻었으며 여기에서 fr. 1로부터 물질 1을, fr. 4, fr. 5 및 fr. 7으로 부터 각각 Liebermann-Burchard 반응에 양성을 나타내는 물질 2, 물질 3 및 물질 4를 각각 분리하였다. 이상의 주요 fraction의 화합물의 구조를 추정하고, 또한 estrone 화합물을 검출하기 위한 여러가지의 분석을 시행하였는데 그 결과를 Table I에 나타내었다. 이 과정에서 estrone 화합물의 존재를 시사하는 어떤 증거도 찾을 수 없었다.

고급 알코올 성분의 분리(물질 1)—Fr. 3을 *n*-hexane-EtOAc(10:1)에 녹여 방치하였을 때

Table I. Presumed structure of each fraction of *M. baccata*

Sample	Isolation	Outlined structure	Method	RIC
Fr. 1	(-)	fatty acid	TLC with stearic acid	
Fr. 2	(-)	nonpolar triterpene	color reaction on TLC UV $\lambda_{max} < 250$ nm	
Fr. 3	(+)	long chain alcohol	IR, ¹ H-NMR, ¹³ C-NMR	4 min 45 sec
Fr. 4	(+)	sterol	IR, ¹ H-NMR, ¹³ C-NMR	see Fig. 1
Fr. 5	(+)	triterpene	IR, ¹ H-NMR, ¹³ C-NMR	see Fig. 1
Fr. 6	(-)	triterpene mixture	LB test	—
Fr. 7	(+)	steryl glycoside	IR, ¹ H-NMR, ¹³ C-NMR	
Sample-1		ursolic acid, etc.	—	2 min 35 sec (M ⁺ , m/z 456)
CHCl ₃ ext.		ursolic acid, etc.	—	48 sec (M ⁺ , m/z 456)

Liebermann-Burchard test에 음성인 물질을 잘 여별하여 분리하였다.

물질 1: amorphous powder from *n*-hexane-EtOAc(10:1); IR, ν_{\max} (KBr) cm^{-1} 3400(broad OH), 2842(CH), 1475, 1465; $^1\text{H-NMR}$ (300 MHz, CDCl_3) δ : 0.86(3H, t, $J=6.9\text{Hz}$, CH_3), 1.25[(CH_2) $_n$], 1.58(CH_2 CH $_2$ OH), 3.64(2H, t-like, CH_2 OH).

스테롤 성분의 분리(물질 2)—Fr. 4를 메타놀로 수회 세척하고 CHCl_3 -MeOH 혼액 및 *n*-hexane-EtOAc 혼액으로 수회 재결정하여 Liebermann-Burchard 반응에 청색을 나타내는 물질 2(760 mg)을 수득하였다.

물질 2: Colorless needles from CHCl_3 -MeOH; mp 138~140°; IR, ν_{\max} (KBr) cm^{-1} 3400(broad OH), 1465(CH_2), 1380(CH_3), 790~840(trisubstituted double bond); EIMS m/z (%) 414[M^+ of β -sitosterol](100), 400[M^+ of campesterol](16.9), 396[M_1 - H_2O] $^+$ (27.7), 382[M_2 - H_2O] $^+$ (4.6), 381[M_1 - H_2O - CH_3] $^+$ (25.3), 329(30.7), 303(26.1), 273(13.8), 255 [M-side chain- H_2O] $^+$ (25.4), 213(15.4); $^1\text{H-NMR}$ (300MHz, CDCl_3) δ : 0.68(3H, s, 18- CH_3), 1.00(3H, s, 19- CH_3), 3.51(1H, m, H-3), 5.35(1H, d-like, H-6); $^{13}\text{C-NMR}$ (75.5MHz, CDCl_3) δ : 37.3(C-1), 31.7(C-2)*, 71.8(C-3), 42.3(C-4), 140.8(C-5), 121.7(C-6), 31.9(C-7)*, 31.6(C-8)*, 50.2(C-9), 36.5(C-10), 21.1(C-11), 37.3(C-12), 42.3(C-13), 36.8(C-14), 24.3(C-15), 28.2(C-16), 56.1(C-17), 11.87(C-18), 19.4(C-19), 36.2(C-20), 18.8(C-21), 26.2(C-23), 45.9(C-24), 29.2(C-25), 19.1(C-26), 19.8(C-27), 23.1(C-28), 11.99(C-29). *Values may be interchangeable.

트리테르펜 성분의 분리(물질 3)—Fr. 6을 CHCl_3 -MeOH(10:1) 전개용매로 silica gel column chromatography로 정제하여 얻어진 물질을 CHCl_3 -MeOH 혼액으로 재결정하여 Liebermann-Burchard 반응에 양성인 물질 3(690 mg)을 얻었다.

물질 3: Colorless needles from CHCl_3 -MeOH; mp 282~283°; IR, ν_{\max} (KBr) cm^{-1} 3400(broad OH), 1690(COOH); $^1\text{H-NMR}$ (300MHz, pyri-

dine- d_5) δ : 0.90(3H, s, CH_3), 0.96(3H, d, $J=5.7\text{Hz}$, sec- CH_3), 1.01(3H, d, $J=6.5\text{Hz}$, sec- CH_3), 1.02(3H, s, CH_3), 1.06(3H, s, CH_3), 1.24(6H, s, 2 \times CH_3), 2.62(1H, d, $J=11\text{Hz}$, H-18), 3.45(1H, t, $J=6.9\text{Hz}$, H-3), 5.48(1H, t, $J=3.4\text{Hz}$, H-12); $^{13}\text{C-NMR}$ (75.5MHz, pyridine- d_5) δ : 39.4(C-1)*, 23.7(C-2), 78.2(C-3), 40.1(C-4), 53.6(C-5), 16.6(C-6), 33.0(C-7), 39.6(C-8)*, 48.1(C-9), 39.2(C-10)*, 23.9(C-11), 125.7(C-12), 139.3(C-13), 42.6(C-14), 28.2(C-15), 21.4(C-16), 48.17(C-17), 55.9(C-18), 37.4(C-19)**, 37.5(C-20)**, 31.1(C-21), 39.4(C-22)*, 28.8(C-23), 17.5(C-24), 17.5(C-25), 15.7(C-26), 24.0(C-27), 179.8(C-28), 18.9(C-29), 25.0(C-30). **Values may be interchangeable; EIMS m/z (rel. int.) 456[M^+](13.3), 438[$\text{M}-\text{H}_2\text{O}$] $^+$ (1.1), 410[$\text{M}-\text{HCOOH}$] $^+$ (13.5), 248[RDA] $^+$ (100), 207(15), 203(33), 189(8.6), 133(12.5).

물질 3의 아세틸화—물질 3 50 mg을 pyridine 2 ml에 녹이고 acetic anhydride 2 ml를 가하여 24시간 방치시킨 후 빙수를 반응액에 가하여 얻어지는 석출물을 여과하고 증류수로서 수회 세척한 후 CHCl_3 -MeOH 혼액에서 재결정하여 물질 3의 아세테이트체(물질 3a) 46 mg을 얻었다.

물질 3a: Colorless needles from CHCl_3 -MeOH; IR, ν_{\max} (KBr) cm^{-1} no OH, 1724, 1228; $^1\text{H-NMR}$ (300MHz, CDCl_3) δ : 0.78~1.25(7 \times CH_3), 2.05(3H, s, OAc) 4.50(1H, t, $J=9\text{Hz}$, H-3), 5.28(1H, m, H-12); EIMS m/z (rel. int.) 498[M^+](3.1), 248[RDA] $^+$ (83.5), 203(37.6), 79(100).

물질 4의 분리—Fr. 7을 CHCl_3 -MeOH(10:1) 전개용매로 silica gel column chromatography로 정제하고 농축한 후 농축물을 MeOH로 조심스럽게 세척하고 CHCl_3 -MeOH 혼액으로 재결정하여 Liebermann-Burchard 반응에 양성인 무색침상결정의 물질 4(110 mg)를 얻었다.

물질 4: mp 276~279°; Liebermann-Burchard test: positive, Molisch test: positive; IR, ν_{\max} (KBr) cm^{-1} 3400(OH), 1100~1000(glycosidic C-O), 840~790(trisubstituted double bond); ^1H -

NMR(300MHz, pyridine- d_5) δ : 0.66(3H, s, CH₃), 0.86(3H, d, $J=6.4$ Hz, CH₃), 0.87(3H, t, $J=6.4$ Hz, CH₃), 0.93(3H, d, $J=5.7$ Hz, CH₃), 0.94(3H, s, CH₃), 0.98(3H, d, $J=6.2$ Hz, CH₃), 3.95(1H, m, H-3), 5.03(1H, d, $J=7.7$ Hz, Glc H-1), 5.34(1H, brd, H-6); ¹³C-NMR(75.5MHz, pyridine- d_5) δ : 102.6(C-1'), 75.4(C-2'), 78.7(C-3'), 71.8(C-4'), 78.5(C-5'), 62.9(C-6').

물질 4의 산가수분해—물질 4 90 mg을 MeOH 성 5% HCl 용액에서 3시간 가열 교반한 후 용액을 반량으로 농축하고 빙수를 가하여 석출하는 침전물을 여별하였다. 여액을 Ag₂CO₃로 중화하여 여과하고 농축하여 TLC에서 표품과 비교하여 D-glucose를 확인하였다.

표품 estrone, phloretin, phloridzin과의 TLC—장미과의 과실 중 널리 분포하고 있다고 알려진 estrone, phloretin 및 phloridzin 표품과 CHCl₃ 분획 및 EtOAc분획과 co-TLC하였을 때 그 존재를 인정할 수 없었다.

실험 결과 및 고찰

물질 1은 IR spectrum에서는 3400cm⁻¹에서 OH기 2842cm⁻¹에서 aliphatic CH stretching 등의 단순한 흡수 피크만이 나타나고 ¹H-NMR spectrum에서도 δ 0.86에서도 메틸기의 시그널, δ 1.25에서 매우 강한 피크로 메틸렌 시그널을, δ 3.64에서 수산기에 결합된 CH₂를 관측할 수 있으며, δ 1.58에서 primary alcohol에 기인한 피크가 나타났으므로 이 화합물을 aliphatic long chain alcohol로 동정할 수 있었다.^{7,8)}

물질 2는 Liebermann-Burchard test에서 스테롤로 추정되는 색상(pink에서 blue)을 나타내었으며 IR spectrum에서 3400cm⁻¹에서 OH기, 1465cm⁻¹에서 CH stretching, 1380cm⁻¹에서 CH₃ 그리고 840~790cm⁻¹에서 trisubstituted double bond가 나타났으며 ¹H-NMR에서 δ 0.68과 δ 1.00에서 스테롤의 특징적인 angular methyl signal이 나타나고⁹⁾ δ 5.35에서 환내 이중결합에 기인한 피크가 나타났다. ¹³C-NMR에서 나타난 피크들은 β -sitosterol의 문헌치와 잘 일치하였으

며¹⁰⁾ 질량 스펙트럼에서 특징적인 식물 스테롤의 분열이온¹¹⁾ 이외에 β -sitosterol의 분자이온과 campesterol의 분자이온이 나타났다. 따라서 물질 2는 β -sitosterol과 campesterol의 혼합물임을 알 수 있었다.

물질 3은 IR에서 3400cm⁻¹에서 OH기 1690cm⁻¹ COOH를 확인하였으며, ¹H-NMR로 부터 δ 0.90~1.24에서 7개의 메틸기를 δ 2.62에서 Δ^{12} -urs-28-oic acid system의 H-18에 기인한 시그널을¹²⁾ δ 5.48에서 이중결합의 수소를 각각 관측할 수 있었으므로 이 화합물은 ursolic acid로 추정되었다. 물질 3의 아세테이트체인 물질 3a의 ¹H-NMR로 부터 하나의 아세틸기를 확인함으로써 이 화합물은 OH기를 한 개를 가지고 있는 화합물임을 알 수 있었다. 물질 3a의 질량 스펙트럼에서 m/z 498에서 분자이온을 m/z 248에서 그의 RDA 분열이온을 각각 관측하였다. 물질 3의 질량 스펙트럼에서 ursolic acid의 분자이온 m/z 456과 base peak로 나타나는 그의 RDA 분열이온인 m/z 248 등이 나타났으며 표품 ursolic acid와 용점 및 TLC 등을 비교하였을 때도 일치하였으며 EIMS를 측정할 때의 RIC chromatogram을 Fig. 1에 나타내었다.

물질 4도 Liebermann-Burchard test에 양성이었으며 Molisch test에서도 양성이었으므로 배당체 화합물임을 알 수 있었으며 IR spectrum에서도 1100~1000cm⁻¹에서 배당체 결합이 나타났다. ¹H-NMR에서 δ 0.66~ δ 0.98에서 스테로이드의 특징적인 메틸기를 볼 수 있었다. 따라서 이를 산가수분해하여 그 genin을 EIMS로 분석한 결과 물질 2와 동일한 β -sitosterol과 campesterol로 구성되어 있음을 알 수 있었으며, 당은 TLC에서 D-glucose임을 알았다. ¹³C-NMR spectrum에서 구성당의 탄소 피크로부터 D-glucose임을 알 수 있었으며 ¹H-NMR spectrum에서 그 구성당의 anomeric proton이 $J=7.7$ Hz로 doublet splitting한 피크를 δ 5.03에서 관측할 수 있었으므로 물질 4는 β -sitosterol β -D-glucopyranoside와 campesterol β -D-glucopyranoside의 혼합물임을 알 수 있었다.

이상과 같이 야광나무 열매에는 primary long chain alcohol, β -sitosterol, campesterol, ursolic

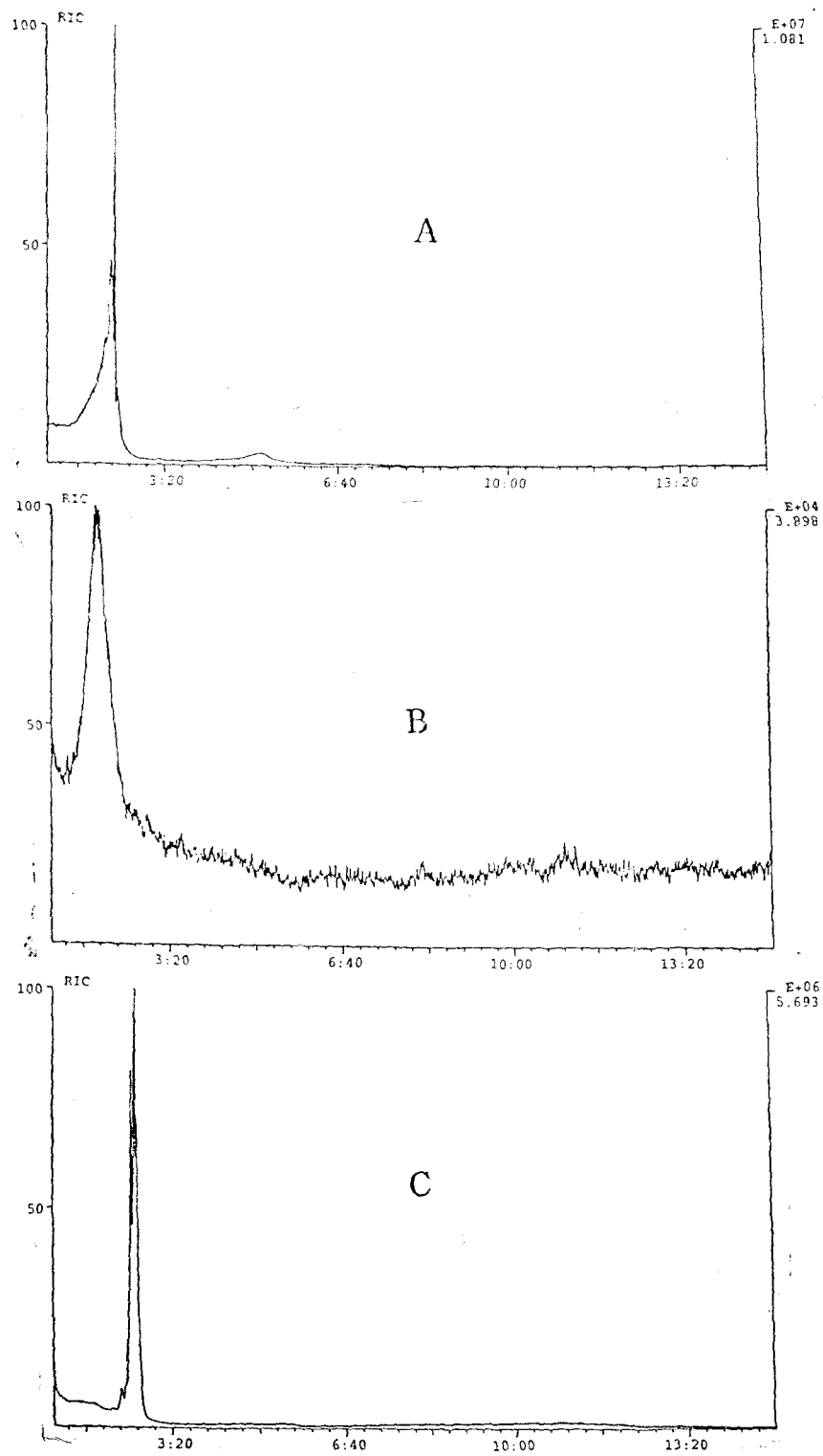


Fig. 1. RIC chromatogram of acetyl ursolic acid(A), CHCl_3 ext.(B) and sample-1(from Soxhlet ext., C)

acid, β -sitosterol β -D-glucopyranoside 및 campesterol β -D-glucopyranoside 등의 화합물을 함유하고 있음을 명백히 하였다. 그러나, 근연식물인 사과(*M. pumila*), 산사나무(*Crataegus pinnatifida*), 행인(Armenicae Semen), 도인(Perisicae Semen) 등에 함유되어 있다고 알려진¹³⁾ estrone은 표품과의 TLC에서 그 존재를 확인할 수 없었으며, 같은 실험 방법으로 장미과의 생장조절물질로 알려진 dihydrochalcone인 phloretin 및 그의 5-O-glucoside인 phloridzin 등¹⁴⁾의 함유여부는 극미량이거나 없다고 판단할 수 있었다. 특히 estrone 화합물은 각 subfraction에 대하여 RIC chromatogram 및 UV spectrum 등의 방법으로 다각도로 검출하고자 하였으나 그 존재를 인정할 수 없었다(Table I).

저자 등은 상기의 화합물의 존재여부에 기대를 가지고 있었으나 그 함유를 인정할 수 없었으므로 식물의 분류 및 동정을 위한 화학적 수단이 될 수 있을 것으로 시사되었다. 따라서 이에 관한 보다 체계적인 연구가 필요한 것으로 생각된다. 또한, oleanolic acid의 위치 이성체인 ursolic acid가 본 실험에서 높은 수득률을 나타내었으므로 식물로부터 효율적인 ursolic acid의 추출법을 모색하고자 MeOH 추출물에서 분배추출한 CHCl_3 분획과 Soxhlet 장치에서 얻은 sample-1의 RIC chromatogram을 비교하였고 그것을 Fig. 1에 나타내었는데 여기에서 sample-1이 더욱 우수한 ursolic acid의 분리과정을 나타내고 있다. Probe-MS 측정시에 얻어진 RIC chromatogram(Fig. 1)에서는 acetyl ursolic acid의 경우에 주요 피크 영역이 이 화합물이었으며 (M^+ : m/z 498) CHCl_3 엑스의 경우에 주요 피크 영역이 ursolic acid이었으며 (M^+ : m/z 456), 그리고 sample-1의 경우에도 주요 피크 영역이 ursolic acid(M^+ : m/z 456)이었다. 이 RIC chromatogram에서 동일한 화합물에 대하여 다른 retention time를 나타내는 것은 실험오차에 기인한 것으로 정성적 관측치로는 신빙성이 낮음을 밝혀 두는 바이다. 한편 fr. 2는 표품 estrone과의 co-TLC에서 동일 반점을 관찰할 수 없었으며 estrone의 경우에 UV spectrum의 흡수 극대치가 281 nm 부근에서 관측되나 fr. 2의 경우에는 250

nm 이상에서는 어떠한 흡수 밴드도 관측할 수 없었다.

결 론

관상용의 가치로 정원수 등에 쓰이고 있는 야광나무의 열매를 유용식물로 개발하기 위한 연구의 일환으로 식물화학적 연구에 착수하여 primary long chain alcohol, β -sitosterol, campesterol, ursolic acid, β -sitosterol β -D-glucopyranoside, campesterol β -D-glucopyranoside 등을 함유하고 있음을 확인하였다. 근연식물인 *Malus pumila*, *Crataegus pinnatifida*, *Prunus armenica*, *Prunus persica* 등에 함유되어 있다고 알려진 estrone이 야광나무 열매에는 함유되어 있지 않았으며, 또한 장미과 식물의 과실의 성숙을 저해하는 dihydrochalcone인 phloretin 및 그의 배당체인 phloridzin 등은 함유되어 있지 않음을 확인할 수 있었던 바, 이는 장미과 식물의 chemotaxonomy의 도구가 될 수 있는 가능성을 시사하였다.

장미과에는 ursane계의 triterpenoid가 주로 함유되어 있는데 야광나무에는 ursolic acid의 형태로 다량 분리되어짐을 발견하였으며 이의 효율적인 추출법은 ether 용매에 의한 Soxhlet 추출법으로 추출하고 그의 독특한 용해성을 이용한다면 ursolic acid의 효율적인 수득을 위한 자원 식물이 될 수 있는 가능성을 시사하였다.

감사의 말씀—본 실험중 NMR 기기측정을 도와주신 안동대학교 식품영양학과 손건호 교수께 감사드립니다.

〈1993년 10월 11일 접수: 11월 1일 수리〉

참 고 문 헌

1. 任慶彬: 特用樹 栽培學, 鄉文社, 서울 (1990).
2. 李昌福: 大韓植物圖鑑, 鄉文社, 서울 (1988).
3. 高庚植, 金潤式: 原色韓國植物圖鑑, 아카데미서적, 서울 (1988).
4. 任慶彬: 特用樹 栽培學, 鄉文社, 서울 (1990).
5. 沈相龍: 韓方植療解典, 創造社, 서울 (1976).
6. 藥品植物學研究會: 新藥品植物學, 學窓社, 서울 (1991).

7. Asahi Research Center: *Handbook of proton-NMR spectra and data*, Vol. 4, Academic Press, Tokyo (1980).
8. 박희준, 양한석, 김정우, 이숙희, 최재수 : 생약학회지 **22**, 78 (1991).
9. Rubinstein, I. *et al.*: *Phytochem.* **15**, 195 (1976).
10. Chang, I.M., Yun, H.S. and Yamasaki, K.: *Kor. J. Pharmacogn.* **12**, 12 (1981).
11. Woo, W.S., Choi, J.S., Seligmann, D. and Wagner, H.: *Phytochem.* **22**, 1045 (1983).
12. Cheung, H.T. and Yan, T.O.: *Aust. J. Chem.* **25**, 2003 (1972).
13. Hsu, H.Y., Chen, Y.P. and Hong, M.: *The Chemical Constituents of Oriental Herbs*, Oriental Healing Arts Institute, Los Angeles (1982).
14. Harborne, J.B., Mabry, T.J. and Mabry, H.: *The Flavonoids*, Academic Press, New York, p.1022 (1975).