

권삼의 소염활성성분(1)

안중수, 권용수, 김창민*

강원대학교 약학대학

Anti-inflammatory Constituents of *Polygonum bistorta*

Jung Su Ahn, Yong Soo Kwon and Chang Min Kim*

College of Pharmacy, Kangwon National University, Chun Cheon, 200-701, Korea

Abstracts – Five compounds were isolated from the BuOH fraction of *Polygonum bistorta* (Polygonaceae). On the basis of spectral data, these compounds were established as caffeic acid, quercimeritrin, avicularin, gallic acid and protocatechuic acid. The inhibitory activities on 3 α -hydroxysteroid dehydrogenase (3 α -HSD) of isolated compounds were compared. IC₅₀ value of isolated compounds were 133.57 μ g/ml (caffeic acid), 89.1 μ g/ml (quercimeritrin), 189.85 μ g/ml (avicularin), 140.69 μ g/ml (gallic acid) and 165.27 μ g/ml (protocatechuic acid) respectively. Although all compounds showed lower inhibition activities than BuOH fraction (IC₅₀ < 50 μ g/ml) of *Polygonum bistorta*, it showed higher inhibition activities than aspirin (IC₅₀ 246.81 μ g/ml).

Key words – *Polygonum bistorta*; Polygonaceae; caffeic acid; quercimeritrin; avicularin; gallic acid; protocatechuic acid; 3 α -hydroxysteroid dehydrogenase(3 α -HSD); anti-inflammatory activity.

清熱藥은 藥性이 寒涼하고 清熱, 瀉火, 燥濕, 涼血, 解毒 및 清虛熱하는 효능이 있어 外感熱病, 高熱煩渴, 濕熱泄痢, 溫毒發斑, 癰腫發熱 등 裏熱을 淸解하는 약으로 쓰여왔다.¹⁾ 이러한 청열제의 활용은 현대 약학적으로 소염제의 의미라 생각되어지고 있다. 최근, 저자 등은 과거로부터 열증 등에 활용되어온 52종 한방청열제의 3 α -hydroxysteroid dehydrogenase에 대한 억제율로부터 소염활성을 측정하여 보고한 바 있다.²⁾

이중 강한 억제활성과 함께 농도에 따른 높은 상관관계를 나타낸 拳蓼 (*Polygonum bistorta*)은 gallic acid, ellagic acid, d-catechol, l-epicatechol, 6-galloylglucose 등의 tannin과 starch, 당류 등에 관하여 보고되어 있으나 충분한 연구가 행해지지 않았다.³⁾ 이에 저자 등은 권삼으로부터 소염활성을 가지는 화합물을 분리하기 위하여 실험에 착수하였으며, 분획물 중 억제활성이 강하게 나타난 BuOH 가용부로부터 5종의 화합물을 분리하고, 그 소염활

성에 관하여 약간의 지견을 얻었기에 이를 보고한다.

재료 및 방법

실험재료 – 본 실험에서 사용한 권삼 (*Polygonum bistorta*)은 경동시장에서 구입하여 사용하였으며, 표본은 강원대학교 약학대학 표본실에 보관중이다.

기기 – 용점은 Fisher-Johns의 melting point apparatus를 사용하였으며 온도는 보정하지 않았다. Infrared spectrum은 Bio-Rad FTS-7 spectrophotometer를 사용하여 KBr disc법으로 측정하였고, UV spectrum은 HITACHI U-2000 spectrophotometer, BECKMAN DU 650 spectrophotometer를 사용하였다. ¹H-NMR 및 ¹³C-NMR은 Varian Gemini-200을 이용하여 측정하였고, Lobar column은 Merck의 Lobar Lichroprep RP-18 size B를 사용하였다.

시약 – Aspirin, NADPH, EDTA, dithiothreitol, NaH₂PO₄ 등은 Sigma사에서 구입하였고, 각

*교신저자 : Fax 042-622-9323

분획의 추출용매 및 칼럼 크로마토그래피용 용매는 공업용 용매를 재증류하여 사용하였다. TLC 전개용매 및 기타시약은 일급 및 특급을 사용하였고, TLC plate는 Merck의 precoated Kieselgel 60F_{254s}, RP-18 F_{254s}를 사용하였으며, TLC plate의 발색시약으로는 20% H₂SO₄를 사용하였다. 칼럼크로마토그래피의 충전제는 Merck의 Kieselgel 60 (No. 7734, 9385) 및 Pharmacia Biotech의 Sephadex LH-20을 사용하였다.

효소(3 α -HSD)액의 조제 - SD계 응성 랫트(체중 180-200 g)의 간장을 취하여 3배량의 100 mM phosphate buffer (pH=5.8, 250 mM sucrose, 1 mM dithiothreitol 및 1 mM EDTA를 첨가하고 이를 PBS라 한다)를 가하고 homogenize시킨후 4°C 조건하에서 10,000 \times g로 30분간 원심분리하여 얻은 상등액을 다시 4°C조건하에서 100,000 \times g로 60분간 원심분리하여 cytosol분획을 얻었다. 이것을 PBS로 2.5 배 희석하여 검정용 효소액으로 하였고 -80°C이하로 유지하며 사용하였다.

3 α -HSD 억제활성의 측정 - 3 α -HSD의 억제활성은 Penning법을 변형하여⁴⁾ 측정하였다. 검체를 일정량의 PBS에 용해시키고 NADPH 100 μ M, progesterone 100 μ M를 함유하도록 만든 후 검정용 효소액 0.2 ml를 가하고 25°C, 340 nm에서 10분간의 흡광도 감소치를 관찰하여 IC₅₀ value를 측정하였고 IC₅₀ value결과는 3번 실험한 것의 평균값으로 계산하였다.

추출 및 분리 - 음건하여 파쇄한 권삼에 MeOH을 가하고 70°C 수욕상에서 4시간씩 3회 반복 추출하여 메탄올 농축물을 얻었다. 이 메탄올 농축물을 물에 분산하여 여과한 후 EtOAc로 충분히 추출 분획하고 수층을 다시 취하여 BuOH로 충분히 추출 분획하여 BuOH분획을 얻었다. BuOH 분획을 EtOAc:MeOH:Water (9:1.5:1)로 silica gel column chromatography를 실시하여 fr. 1에서 fr. 4까지 4개의 분획을 얻었고 활성이 높게 나타난 fr. 1을 대상으로 CHCl₃:MeOH:Water (3:1:0.1)로 silica gel column chromatography를 실시하여 subfr. 1에서 subfr. 4까지 4개의 소분획을 얻었다. Subfr. 2를 MeOH: Water (30:70)을 용매로 한 ODS column chromatography와 MeOH:Water (10:90)을 용매로 한 ODS column chromatography를 실시하여 화합물 1(8 mg)과 화합물 3(32 mg) 및 화합물 5(7 mg)를 얻었다. 다시 subfr. 3을 가지고 MeOH:Water (30:70)을 용매로 한 ODS column chromatography와 MeOH: Water

(50:50)의 Sephadex LH-20 column chromatography를 실시하여 화합물 2(12 mg)와 화합물 4 (17 mg)를 얻었다.

화합물 1 - Mp 223-225; IR ν_{\max}^{KBr} : 3432(-OH), 1648(C=O), 1619, 1511, 1493(aromatic C=C) cm⁻¹; UV λ_{\max} (MeOH): 213, 253, 369 nm; ¹H-NMR (200MHz, DMSO-*d*₆, ppm) : 6.20(1H, d, *J*=15.8Hz, H-8), 6.78(1H, d, *J*=8.0Hz, H-5), 6.96(1H, dd, *J*=8.0, 2.0Hz, H-6), 7.05(1H, d, *J*=2.0Hz, H-2), 7.40(1H, d, *J*=15.8Hz, H-7); ¹³C-NMR (50MHz, DMSO-*d*₆, ppm): 114.51(C-8), 115.73(C-2), 115.90(C-5), 120.86(C-6), 125.72(C-1), 143.88(C-3), 145.57(C-7), 148.02(C-4), 168.48(C-9)

화합물 2 - Mp 247-280; IR ν_{\max}^{KBr} 3317(-OH), 1621(C=O), 1598, 1509, 1460(aromatic C=C), 1372, 1105(C-O)cm⁻¹; UV λ_{\max} (MeOH): 214, 253, 370, UV λ_{\max} (MeOH+NaOH): 223, 245, 328, 410, UV λ_{\max} (MeOH+NaOAc): 213, 270, 381, UV λ_{\max} (MeOH+AlCl₃): 215, 269, 427 nm; ¹H-NMR (200MHz, DMSO-*d*₆, ppm): 4.81(1H, d, *J*=6.9Hz, H-1"), 6.66(1H, d, *J*=2.1Hz, H-6), 6.78(1H, d, *J*=2.1Hz, H-8), 6.90(1H, d, *J*=8.6 Hz, H-5"), 7.54(1H, dd, *J*=8.6, 2.0Hz, H-6"), 7.68(1H, d, *J*=2.0Hz, H-2"); ¹³C-NMR (50MHz, DMSO-*d*₆, ppm): 60.59 (C-6"), 69.47 (C-4"), 73.58 (C-2"), 75.57 (C-3"), 77.38 (C-5"), 97.19 (C-8), 103.05 (C-6), 103.84 (C-1"), 106.22 (C-10), 114.64 (C-2"), 115.50 (C-5), 119.42 (C-6"), 121.92 (C-1"), 137.26 (C-3), 143.49 (C-3"), 145.01 (C-4"), 147.25 (C-2), 157.10 (C-9), 158.39 (C-5), 162.39 (C-7), 171.73 (C-4)

화합물 3 - Mp 213-214; IR ν_{\max}^{KBr} : 3373 (-OH), 1656 (C=O), 1606, 1509 (aromatic C=C), 1362, 1088 (C-O) cm⁻¹; UV λ_{\max} (MeOH): 221, 258, 357, UV λ_{\max} (MeOH+NaOH): 230, 268, 401, UV λ_{\max} (MeOH+NaOAc): 225, 265, 363, UV λ_{\max} (MeOH+AlCl₃): 221, 264, 386, UV λ_{\max} (MeOH+AlCl₃+HCl): 221, 265, 361; ¹H-NMR (200MHz, DMSO-*d*₆, ppm): 4.81 (1H, d, *J*=1.5 Hz, H-1"), 6.20 (1H, d, *J*=1.7Hz, H-6), 6.41 (1 H, d, *J*=1.7Hz, H-8), 6.86 (1H, d, *J*=8.5 Hz, H-5), 7.50 (1H, d, *J*=1.8Hz, H-2"), 7.57 (1H, dd, *J*=8.5, 1.8Hz, H-6"); ¹³C-NMR (50MHz, DMSO-*d*₆, ppm): 60.38 (C-5"), 76.53 (C-3"), 81.95 (C-2"), 85.64 (C-

4th), 93.51 (C-8), 98.74 (C-6), 103.54 (C-1st), 107.64 (C-10), 115.33 (C-5th), 115.46 (C-2nd), 120.78 (C-6), 121.58 (C-1st), 133.18 (C-2), 145.08 (C-3rd), 148.51 (C-4), 156.35 (C-9), 156.78 (C-3), 161.14 (C-5), 164.92 (C-7), 177.56 (C-4)

화합물 4 - Mp 268-271; IR ν_{\max}^{KBr} : 3282(-OH), 1666(C=O), 1614, 1532 (aromatic C=C) cm^{-1} ; UV λ_{\max} (MeOH): 229, 254, 294; $^1\text{H-NMR}$ (200MHz, DMSO- d_6 , ppm): 6.97(2H, s, H-2, H-6); $^{13}\text{C-NMR}$ (50MHz, DMSO- d_6 , ppm): 103.55 (C-2, C-6), 120.37 (C-1), 137.87 (C-4), 145.32 (C-3, C-5), 167.50 (C-7)

화합물 5 - Mp 223-225; IR ν_{\max}^{KBr} : 3432 (-OH), 1648 (C=O), 1619, 1541 (aromatic C=C) cm^{-1} ; UV λ_{\max} (MeOH): 237, 250, 299nm; $^1\text{H-NMR}$ (200 MHz, DMSO- d_6 , ppm): 6.78 (1H, d, $J=8.0$ Hz, H-5), 6.96 (1H, dd, $J=8.0, 2.0$ Hz, H-6), 7.31 (1H, d, $J=2.0$ Hz, H-2); $^{13}\text{C-NMR}$ (50MHz, DMSO- d_6 , ppm): 114.51 (C-8), 115.73 (C-2), 115.90 (C-5), 120.86(C-6), 125.72 (C-1), 143.88 (C-3), 145.57 (C-7), 148.02 (C-4), 168.48(C-9)

당의 확인 - 화합물 2, 3을 각각 TLC plate에 점적하고 c-HCl을 1 drop씩 떨어 뜨린후 hot plate에서 건조시켜 n-butanol-acetic acid-water (4:1:5)를 용매로 표준품과 함께 전개시키고 20% H_2SO_4 로 발색시켜 D-glucose 와 L-arabinose를 각각 확인하였다.

결과 및 고찰

화합물의 화학 구조 - 화합물 1의 IR spectrum을 보면 3432 cm^{-1} 에서 -OH, 1648 cm^{-1} 와 1619 cm^{-1} 부근에서 C=O, aromatic C=C결합을 나타내는 흡수대가 나타나고 UV spectrum을 보면 213 nm, 253 nm, 369 nm에서 흡수극대가 나타나며, $^1\text{H-NMR}$ spectrum의 7.40과 6.20 ppm에서 $J=15.8$ Hz의 doublet이 각각 나타나는 것으로 보아 이 화합물은 phenyl propanoid계열임을 알 수 있었다⁵⁾. 또한, 7.05 ppm에서의 doublet($J=2.0$ Hz), 6.78 ppm에서의 doublet($J=8.0$ Hz) 및 6.96 ppm에서의 double doublet($J=2.0, 8.0$ Hz)로 나타나는 peak로 볼 때, 이 화합물은 3번과 4번에 치환체가 있는 phenyl propanoid임을 알 수 있었다.⁵⁾ 이상의 결과를 종합하고 문헌⁵⁻⁶⁾과 비교하여 이 화합물을 3,4-dihydroxy cinnamic acid 즉, caffeic acid로 동정하였다.

화합물 2의 IR spectrum을 보면 3317 cm^{-1} 에서 -OH, 1621 cm^{-1} 에서 C=O, 1598 cm^{-1} , 1558 cm^{-1} 에서 aromatic C=C, 1372 cm^{-1} , 1105 cm^{-1} 에서 CO의 흡수대가 나타나고, UV spectrum을 보면 214, 253 및 370 nm에서 흡수극대가 나타나는 것으로 보아 이 화합물은 flavone 배당체임을 알 수 있었고 shift reagent의 첨가에 의해 3, 3', 4' 및 5번 탄소에 OH가 치환된 flavonol 배당체임을 알 수 있었다.⁷⁾ $^1\text{H-NMR}$ spectrum의 6.78과 6.66 ppm에서 나타나는 $J=2.1$ Hz의 doublet은 A ring의 H-8과 H-6에 기인하는 것임을 알 수 있었고, 7.68 ppm에서 나타나는 $J=2.0$ Hz의 doublet, 7.54 ppm에서 나타나는 $J=2.0, 8.6$ Hz의 double doublet 및 6.90 ppm에서 나타나는 $J=8.6$ Hz의 doublet은 그 위치로 볼 때 B ring의 H-2', H-6' 및 H-6에 의한 것임을 알 수 있었다. 또한, D_2O 로 처리하면 anomeric proton이 4.81 ppm에서 $J=6.9$ Hz의 doublet으로 나타나는 것으로 보아 1개의 당이 β 위로 결합하고 있음을 알 수 있었으며, $^{13}\text{C-NMR}$ spectrum의 60.59, 69.47, 73.58, 75.52, 77.38 및 103.84 ppm에서 당의 signal이 각각 나타나는 것으로 보아 결합된 당은 glucose임을 알 수 있었다.

이상의 결과를 종합하고 문헌⁸⁻⁹⁾과 비교하여 이 화합물을 7-O- β -D-glucopyranosyloxy-3, 3', 4', 5-tetrahydroxyflavone 즉, quercimeritrin으로 동정하였다.

화합물 3의 IR spectrum을 보면 3373 cm^{-1} 에서 -OH, 1656 cm^{-1} 에서 C=O, 1606 cm^{-1} , 1569 cm^{-1} 에서 aromatic C=C, 1362 cm^{-1} , 1169 cm^{-1} 에서 C-O의 흡수대가 나타나고 UV spectrum 의 221 nm, 258 nm, 357 nm에서 흡수극대가 나타나는 것으로 보아 이 화합물도 flavone배당체임을 알 수 있었고 shift reagents의 첨가에 의해 3', 4', 5 및 7번의 탄소에 OH가 치환된 flavone배당체임을 알 수 있었다.⁷⁾ $^1\text{H-NMR}$ spectrum의 6.41과 6.20 ppm에서 $J=1.7$ Hz로 나타나는 doublet은 A ring의 H-8과 H-6에 기인하는 것임을 알 수 있으며, 7.50 ppm에서 나타나는 $J=1.8$ Hz의 doublet, 7.57 ppm에서 나타나는 $J=1.8, 8.5$ Hz의 double doublet 및 6.86 ppm에서 나타나는 $J=8.5$ Hz의 doublet은 각각 B ring의 H-2', H-6' 및 H-5에 의한 것임을 알 수 있었다. 또한, D_2O 로 처리하면 anomeric proton이 4.81 ppm에서 $J=1.5$ Hz의 doublet으로 나타나는 것으로 보아 1개의 당이 α 위로 결합하고 있음을 알 수 있었으며, $^{13}\text{C-NMR}$ spectrum에서 당의 각 탄소 signal이 60.38,

76.53, 81.95, 85.64 및 103.54 ppm에서 각각 나타나는 것으로 보아 결합된 당은 arabinose임을 알 수 있었다.

이상의 결과를 종합하고 문헌¹⁰⁻¹¹⁾과 비교하여 이 화합물을 quercetin-3- α -L-arabofuranoside 즉, avicularin으로 동정하였다.

화합물 4의 IR spectrum을 보면 3282 cm^{-1} 에서 COOH, 1666 cm^{-1} 에서 C=O, 1614 cm^{-1} 에서 aromatic C=C의 흡수대가 나타나고, UV spectrum의 229 nm, 254 nm 및 294 nm에서 흡수극대가 나타나는 것으로 보아 이 화합물은 benzoic acid계열의 화합물임을 알 수 있었다.⁶⁾ $^1\text{H-NMR}$ spectrum의 6.9 7 ppm에서 나타나는 2H에 해당하는 singlet은 H-2와 H-5에 기인하는 것임을 알 수 있었고, $^{13}\text{C-NMR}$ spectrum의 137.87 ppm에서 C-4, 145.32 ppm에서 C-3와 C-5가 나타난 것으로 보아 이 화합물은 C-3, C-4, C-5가 -OH기로 치환되었다는 것을 알 수 있었다. 이상의 결과를 종합하고 문헌¹²⁻¹³⁾과 비교하여 이 화합물을 3, 4, 5-trihydroxy benzoic acid 즉, gallic acid로 동정하였다.

화합물 5도 IR spectrum과 UV spectrum에 의해 화합물 4와 같은 benzoic acid계열의 화합물임을 알 수 있었다.⁶⁾ $^1\text{H-NMR}$ spectrum의 6.78 ppm에서 나타나는 $J=8.1\text{Hz}$ 의 doublet은 H-5가 H-6과 ortho coupling 하는 것에 기인한 것이고, 7.31 ppm에서 나타나는 $J=1.8\text{Hz}$ 의 doublet은 H-2가 H-6과 meta coupling 하는 것에 기인하는 것임을 알 수 있다. 또한, 7.25ppm에서 나타나는 $J=8.1, 1.8\text{Hz}$ 의 double doublet은 H-6이 H-5와 ortho coupling하고 다시 H-2와 meta coupling 하는 것에 기인한 것으로 이상의 결과와 문헌¹⁴⁾을 비교하여 이 화합물을 3, 4-dihydroxybenzoic acid 즉, protocatechuic acid로 동정하였다.

화합물의 소염활성 - 권삼의 각 분획과 화학구조가 결정된 화합물에 대하여 3 α -HSD의 억제활성을 측정하고, 그 결과를 Table I에 나타내었다. 즉, 권삼을 MeOH로 추출, 농축하여 얻은 엑스를 EtOAc 및 BuOH로 분획하고, 각 분획의 소염활성을 측정한 결과 BuOH분획의 소염활성의 IC_{50} value가 대조약물인 aspirin의 246.81 $\mu\text{g/ml}$ 보다 강한 <50 $\mu\text{g/ml}$ 로 나타나, 이 분획에 대한 성분분리를 실시하여 5종의 화합물을 얻었으며, 이들의 소염활성을 측정한 결과 IC_{50} value는 각각 caffeic acid (133.57 $\mu\text{g/ml}$), quercimeritrin (89.1 $\mu\text{g/ml}$), avicularin (189.85 $\mu\text{g/ml}$), gallic acid (140.69 $\mu\text{g/ml}$) 및 protocatechuic acid (165.27 $\mu\text{g/ml}$)이었다. 이상의 결과에서 보듯이 단리된 화합물의 소염활성은 대조약물인 aspirin의 IC_{50} value인 246.81 $\mu\text{g/ml}$ 보다는 높았으나 BuOH분획의 IC_{50} value인 50 $\mu\text{g/ml}$ 보다는 낮았다.

Table I. Inhibitory effect of caffeic acid on 3 α -hydroxysteroid dehydrogenase

Test samples	IC_{50} value ($\mu\text{g/ml}$)
<i>Polygonum bistorta</i> MeOH ex.	<50
H ₂ O fraction	109.53
EtOAc fraction	105.09
BuOH fraction	<50
caffeic acid	133.57
quercimeritrin	89.1
avicularin	189.85
gallic acid	140.69
protocatechuic acid	165.27
subfr. 4	<70
aspirin	246.81

ml), gallic acid (140.69) 및 protocatechuic acid (165.27 $\mu\text{g/ml}$)이었다. 이상의 결과에서 보듯이 단리된 화합물의 소염활성은 대조약물인 aspirin의 IC_{50} value인 246.81 $\mu\text{g/ml}$ 보다는 높았으나 BuOH분획의 IC_{50} value인 50 $\mu\text{g/ml}$ 보다는 낮았다.

결 론

예비실험결과 소염활성이 높게 나타난 권삼의 BuOH분획에 대하여 성분분리를 실시하고 5종의 화합물을 분리하였으며, 각종 기기분석 및 이화학적검사에 의해 그 구조를 caffeic acid, quercimeritrin, avicularin, gallic acid 및 protocatechuic acid로 각각 결정하였다. 이들 화합물에 대하여 3 α -HSD의 억제활성을 측정한 결과 quercimeritrin의 효력이 강하게 나타났다. 그러나, 이들 화합물의 IC_{50} value가 대조약물인 aspirin의 IC_{50} value (246.81 $\mu\text{g/ml}$)보다는 낮다고 하더라도 BuOH분획의 IC_{50} value (<50 $\mu\text{g/ml}$)보다는 높으므로 진정 활성성분은 이들 성분외에 다른 분획에 함유되어 있을 것으로 사료되는 바 현재 억제활성이 높게 나타난 subfr. 4에 대하여 성분분리를 수행중에 있다.

인용문헌

1. 한국생약학교수협의회(1995) 본초학, 143. 대한약사회

2. 안중수, 최승연, 권용수, 김창민 (1998) 한방청열제의 3 α -hydroxysteroid dehydrogenase에 대한 억제효과. 생약학회지 29: 8-12.
3. 김창민, 신민교, 안덕균, 이경순(1997) 완역 증약대사전, 651. 도서출판 정담, 서울
4. Penning, T. M. (1985) Inhibition of 5 beta-dihydrocortisone reduction in rat liver cytosol: a rapid spectrophotometric screen for nonsteroidal anti-inflammatory drug potency. *J. Pharm. Sci.* 74: 651-654.
5. Cheminat, A., Zawatzky, R., Becker, H. and Brouillard, R. (1988) Caffeoyl conjugates from *Echinacea* species: Structures and biological activity. *Phytochemistry* 27 : 2787-2794.
6. Dey, P. M. and Harborne, J. B. (1989) Methods in plant biochemistry, Vol. 1 Plant Phenolics. 29-111, Academic Press, London.
7. Marby, T. J., Markham, K. R. and Thomas, M.B.(1970) The systematic identification of flavonoids, 35-56 Springer-Verlag, New York.
8. Ramachandran Nair, A. G., Gunasegaran, R., Krishnan, S., Bayet, C. and Voirin, B. (1995) Flavonol glycosides from leaves of *Eupatorium glandulosum*. *Phytochemistry* 40: 283-285.
9. Alias, D. P., Simon, A., Benini, B., Chulia, A. J., Kaouadje, M. and Delage, C. (1991) Flavone and flavonol glycosides from *Calluna vulgaris*. *Phytochemistry* 30: 3099-3101.
10. Matsuura, S., Iinuma, M., Ito, E., Takami, H. and Kagei, K. (1978) Studies on the constituents of the useful plants. VIII. The constituents of *Lespedeza cuneata* G. Don. *Yakugaku Zasshi* 98: 1542-1544.
11. Kim, H. J., Woo, E. R. and Park, H. K. (1994) A novel lignan and flavonoids from *Polygonum aviculare*. *J. Nat. Prod.* 57: 581-586.
12. Saijo, R., Nonaka, G. I. and Nishioka, I. (1990) Gallic acid esters of bergenin and norbergenin from *Mallotus japonicus*. *Phytochemistry* 29: 267-270.
13. Kashiwada, Y., Nonaka, G. I. and Nishoka, I. (1988) Galloylsucroses from Rhubarbs. *Phytochemistry* 27: 1469-1472.
14. Yamanaka, M., Shimomura, K., Sasaki, K., Yoshihira, K. and Ishimaru, K. (1995) Glucosylation of phenolics by hairy root cultures of *Lobelia sessilifolia*. *Phytochemistry* 40: 1149-1150.

(1999년 6월 20일 접수)