

국내산 프로폴리스의 화학적 특성에 관한 연구

이수원 · 김희재* · 황보 식
성균관대학교 생명공학부, *한국식품연구소

Studies on the Chemical Characteristics of Korean Propolis

S. W. Lee, H. J. Kim*, and S. Hwangbo

Faculty of Life Science and Technology, Sungkyunkwan University
*Korea Advanced Food Research Institute

Abstract

This study was conducted to analyze the chemical compositions of Korean propolis. In proximate analysis, the moisture, crude protein, crude fat, ash and carbohydrate content of Yecheon and Youngwol propolis were 3.25 and 3.97%, 9.82 and 7.04%, 48.25 and 50.7%, 3.91 and 5.89%, 34.77 and 32.4%, respectively. The highest level of P, Ca and Cu were revealed at Youngwol propolis as much as 184.15, 128.32 and 1.77ppm. As a harmful heavy metals, the Cr, As, Cd, and Pb level of Australian propolis were revealed 2.2888, 0.9534, 0.2611 and 2.5595ppm. However, Korean propolis was not detected the Cd. The benzoic acid content of Yecheon and Youngwol propolis were 1.130.6 ppm and 1.049.1 ppm. And than Chinese product revealed the highest level of benzoic acid content. The linoleic and linolenic acid content of Yecheon and Youngwol propolis were 47.6:70.0 and 37.3:47.0mg/100g, respectively.

Key words : propolis, benzoic acid, heavy metal, mineral, fatty acid.

서론

국민 생활수준의 향상과 이로 인한 식품의 대량생산 및 소비시대에 접어들면서 식품의 안전성에 대한 소비자들의 관심과 요구가 증대되고 있다. 현재 우리 나라에서는 benzoic acid, sorbic acid, propionic acid, dehydroacetic acid 등 10여종의 화학적 합성품이 식품의 보존료로 기준이 설정되어⁽¹⁾ 있으나, 실제로 이들 보존료의 사용기준이 준수되고 있는지에 대하여 소비자들의 불신이 커지고 있다. 또한 이들 보존료들이 지속적으로 체내에 축적될 경우 급성, 만성 독성, 발암성, 돌연변이 유발성 등의 우려가 있어⁽²⁾, 이러한 첨가물을 배제하려는 경향이 커지고 있으며 천연 첨가물에 대한 소비자

의 욕구가 높아지고 있다⁽³⁾.

그러므로 소비자의 요구에 부응하고 식품의 안전성과 경제성을 향상시킬 수 있는 천연 보존료에 대한 개발 요구가 점차 증가하고 있는 실정이다. 이러한 차원에서 천연물에 존재하는 항균성 물질의 검색과 개발에 관한 연구는 오래 전부터 많은 연구자들에 의하여 수행되어 왔다^(4~7). 천연물에 존재하는 항균성 물질에 관한 연구로는 마늘, 양파, 육두구, 정향과 백리향 등과 같은 향신료로부터 추출한 성분들의 항균력에 대한 보고도 있으며^(8~11), 달걀이나 우유, 감자 및 어류 등을 비롯한 식품소재에서 분리한 항균성 물질에 대한 연구도 보고되고 있다^(12~14).

한편 벌집에서 얻어지는 지용성 복합체인 프로폴리스는 여러 가지 꽃봉오리와 수목들의 생장점을 보호하기 위하여 분비하는 봉교(蜂膠)를 꿀벌들이 모아 벌 자신의 침샘 분비물과 혼합하여 만드는 수지성, 점착성, 고무상의 물질이다. 현재 북구와 동구권에서는 프로폴리스의

Corresponding author : S. W. Lee, Faculty of Life Science and Technology, Sungkyunkwan University, 300, Chunchun-dong, Jangan-gu, Suwon, Kyunggi-do, Korea. E-mail : leesw@skku.ac.kr

방부, 수렴, 정균, 진경, 소염, 마취효과 등 그동안의 연구 결과에서 나타난 효과들을 이용하여 화장품, 건강식품, 치약성분 등으로 광범위하게 이용하고 있다^(15,16). 이러한 프로폴리스의 다양한 유용성은 프로폴리스 자체가 아주 많은 화학성분을 갖는 혼합물이라는 사실을 시사해 주고 있다⁽¹⁷⁾. 그러나, 한국산 프로폴리스의 구성성분, 항균작용 및 항균성 물질에 대하여 체계적으로 보고된 예는 거의 없는 실정이다. 따라서 본 연구에서는 한국산 프로폴리스를 경북 예천·강원 영월에서 채취하여, 병원성 미생물의 살균제를 개발하기 위한 기초자료로 이용하기 위하여 실시하였다.

재료 및 방법

재 료

본 실험에 사용된 프로폴리스는 강원도 영월, 경북 예천 지방에서 원피 상태로 채취된 것과 브라질, 중국, 호주에서 수입된 에탄올 추출물을 사용하였다.

에탄올 추출물 조제

냉동된 원피를 상온에서 방치하여 하룻밤 동안 방치한 다음 원피 중량대비 10배의 에탄올을 첨가하여 약 70°C에서 6시간 가열 추출한 후, 여과지(Whatman No. 41)로 여과한 것의 여액을 진공농축기(Eyela, Japan)로 용매를 증발시켜 에탄올 농축 추출물로 하였다. 또한 에탄올 추출물의 수율은 추출용 시료 건물량에 대한 에탄올 추출물의 총 가용성 고형분 함량의 백분율로 계산하였다.

일반성분 분석

식품공전상의 수분함량 측정법 중 상압가열 건조법과 칼피셔(Karl Fisher) 법을 병행하여 측정하였다⁽¹⁾. 조단백질의 양은 micro-Kjeldahl 법을 사용하였으며, 조지방은 산분해법을, 회분은 직접회화법을, 그리고 탄수화물은 검체 100g 중 수분, 조단백질, 조지방, 회분함량을 감하여 얻은 양을 탄수화물함량으로 하였다⁽¹⁾.

미량성분 분석

중금속 및 미량의 무기물을 분석하기 위한 전처리하는 건식분해법을 이용하여 전처리하였

다⁽¹⁾. 각 원소의 분석은 ICP(Inductively Coupled Plasma) Emission Spectro Analyzer (JY 38 Plus ISA, Jobin Yvon, France)를 이용하였으며, 각 조건은 분석기기의 표준방법에 준하여 실시하였다. Carrier gas로는 argon을 사용하였다. 미량성분의 양은 ml당 1000 µg 함유한 ICP 분석용 표준용액(Spex Plasma Standard Solution)의 분석치와 비교하여 계산하였다.

안식향산 분석

에탄올 추출물에 대한 안식향산의 분석은 식품공전에 따라 실시하였다⁽¹⁾. 이 때 사용된 gas chromatography (Hewlett Packard HP5890 II)의 분석조건의 Table 1과 같다.

지방산 분석

추출물의 지방산 조성과 함량 분석은 식품공전에 준하여 실시하였다⁽¹⁾. 먼저 시료 일정량에 메탄올로 녹인 0.5N NaOH 5ml를 가한 후 100°C에서 1시간 비누화시켰다. 여기에 촉매제로 14% Boron Trifluoridemethanol을 5ml를 가하여 10분간 반응시킨 후 n-hexane 5ml를 가하고 5분 동안 냉각하였다. 여기에 포화 NaCl을 넣어 hexane층을 분리한 후 sodium sulfate를 가하여 수분을 제거하고 여과하여 얻은 것을 지방산 분석 시료로 하였으며, gas chromatography (Hewlett Packard HP5890 II)의 분석 조건은 Table 1과 같다.

결과 및 고찰

프로폴리스의 추출 및 일반성분

예천과 영월 지방의 프로폴리스를 에탄올로 추출한 결과, 각각 수율이 83.2%와 81.9%였다. 이렇게 추출량이 높은 것은 프로폴리스의 대부분을 차지하고 있는 수지, 방향유와 함께 락톤 및 정유 성분 등이 거의가 사용 유기용매에 의해 추출되었기 때문이라 생각된다. 또한 이러한 추출량은 산업적인 프로폴리스 추출물 제조보다 2배 이상 높은 것으로, 이는 상온에서 4~5시간 정도 추출하는 산업적 프로폴리스 제조 추출법보다 그 추출시간이 길었기 때문이라 생각된다.

국내산인 예천과 영월 그리고 수입산인 브라질, 중국 및 호주의 프로폴리스에 대한 일반성

Table 1. The operating conditions of gas chromatography for benzoic acid and fatty acids of propolis

	Benzoic acid	Fatty acids
Column	HP-1 (I.D. 0.32mm)	5% DEGS/chromosorb W
Detector	FID	FID
Column oven temp.	100°C - 3min, 180°C - 1min, (20°C/min)	170°C - 7min, 225°C - 7min, (3°C/min)
Injection port temp.	220°C	230°C
Detector temp.	250°C	250°C
Carrier gas	Nitrogen (N ₂)	Nitrogen (N ₂)

Table 2. Chemical compositions of each propolis (%)

Samples	Components				
	Water	Crude protein	Crude lipid	Ash	Carbohydrate
Yecheon	3.25±0.24	9.82±1.84	48.25±1.10	3.91±0.34	34.77±2.07
Youngwol	3.97±0.18	7.04±1.20	50.70±1.25	5.89±0.40	32.40±1.12
Brazil	2.51±0.15	10.54±1.48	52.49±1.17	3.05±0.32	31.41±0.87
China	2.68±0.14	7.87±0.97	47.23±1.41	4.25±0.29	37.97±1.24
Australia	2.19±0.11	9.05±1.29	50.41±1.17	3.60±0.37	34.75±0.88

Results are expressed as Mean±S.D.(n=3).

분 분석 결과, 수분 함량은 영월 지방의 프로폴리스가 3.97%로 가장 높았으며, 예천 3.25%, 중국 2.68%, 브라질 2.51%, 호주 2.19% 순으로 나타났다(Table 2). 단백질 함량의 경우 브라질산이 10.54%로 가장 높았으며 예천, 호주, 중국, 영월이 각각 9.82, 9.05, 7.87, 7.04% 이었다. 조지방 함량도 브라질산이 52.49%로 가장 높았으며 영월 50.70%, 호주 50.41%, 예천 48.25% 이었으며 중국산이 47.23%로 가장 낮았다. 회분 함량은 영월이 5.89%로 가장 낮은 브라질 3.05%과는 2% 이상의 차이를 보였으며 중국이 4.25%, 예천이 3.91%, 호주가 3.60%의 함량을 나타내었다. 이는 지금까지 보고된바와 같이 산지에 따라 그 조성성분이 상이함을 입증한 것이었으며, 또한 프로폴리스의 성분은 지역의 환경적 요인에 의해서도 큰 영향을 받을 수 있다고 생각된다⁽¹⁷⁾.

미량성분

예천, 영월 지방과 브라질산, 중국산, 호주산 프로폴리스의 미네랄 성분과 유해성 중금속 함량에 대한 분석 결과, 미네랄 함량에서는 Se의

경우 모든 시료에서 검출이 되지 않았으며, 국내산 중 영월 지방의 프로폴리스에서 P 184.15 ppm, Ca 128.32ppm, Cu 1.77ppm으로 가장 높은 함량을 나타내었다(Table 3). 호주산에서는 Na 442.10ppm, K 788.85ppm, Zn 20.37ppm, Mg 174.80ppm으로 분석대상 중 여러 항목에서 미량성분을 가장 많이 함유하는 것으로 나타났다. 브라질산은 Mn이 7.59ppm으로, 중국산의 경우 Fe가 219.76ppm으로 유일하게 가장 높았으며, 예천 지방의 경우 전 항목에 걸쳐 가장 낮은 함량을 나타내었다.

유해성 중금속의 경우, 호주산이 Cr 3.3888 ppm, As 0.9534ppm, Cd 0.2611ppm, Pb 2.5595 ppm으로서 전반적으로 중금속 함량이 가장 높았으며, 그 다음이 As를 제외하고는 브라질산으로 나타났다(Table 3). 특히 Cd의 경우 국내산에서는 전혀 검출이 되지 않아, 국내산의 프로폴리스가 브라질산과 중국산 및 호주산에 비해 중금속에 대한 오염이 적은 것으로 나타났다.

Lipinska⁽²⁰⁾ 등에 의하면, 폴란드산 프로폴리스에 대한 미네랄과 유해성 중금속을 조사한

Table 3. Mineral elements contents of each propolis (ppm)

Minerals	Yecheon	Youngwol	Brazil	China	Australia
Na	38.32 ± 2.31	182.48 ± 14.12	382.32 ± 21.55	251.80 ± 33.61	442.10 ± 54.27
K	126.25 ± 11.57	678.28 ± 34.55	685.74 ± 43.11	457.32 ± 41.33	788.85 ± 66.49
Se	N.D. ¹⁾	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
Zn	2.95 ± 0.55	6.97 ± 0.25	4.52 ± 0.99	10.94 ± 1.22	20.37 ± 2.44
Mn	1.75 ± 0.42	5.40 ± 0.44	7.59 ± 1.22	2.21 ± 0.17	6.70 ± 1.64
Fe	8.87 ± 1.11	8.42 ± 1.21	125.21 ± 18.84	219.76 ± 21.11	144.15 ± 12.54
P	29.43 ± 5.33	184.15 ± 17.33	55.27 ± 4.22	56.05 ± 3.48	70.37 ± 3.78
Ca	36.59 ± 5.44	128.32 ± 11.44	86.87 ± 3.66	30.25 ± 2.88	62.43 ± 6.17
Cu	0.81 ± 0.04	1.77 ± 0.25	1.55 ± 0.09	0.66 ± 0.01	0.91 ± 0.02
Mg	17.40 ± 1.14	114.99 ± 13.12	45.84 ± 5.77	83.46 ± 3.77	174.80 ± 22.51
Cr	0.051 ± 0.002	0.068 ± 0.001	3.005 ± 0.55	0.658 ± 0.172	3.388 ± 0.46
As	0.059 ± 0.002	0.101 ± 0.002	0.199 ± 0.07	0.276 ± 0.018	0.953 ± 0.27
Cd	N.D.	N.D.	0.158 ± 0.305	0.045 ± 0.001	0.261 ± 0.057
Pb	0.034 ± 0.001	0.025 ± 0.001	1.259 ± 0.251	0.338 ± 0.024	2.561 ± 0.541

¹⁾ Not detected.

Results are expressed as Mean ± S.D. (n=3).

결과, 꿀, 화분, 프로폴리스와 같은 양봉 산물의 유해성 중금속 분석 결과는 프로폴리스가 수확된 지역의 환경 오염 발생에 대한 척도가 될 수 있다고 하였다. 한편 Okhotski⁽²¹⁾는 프로폴리스, 로얄제리 등과 같은 양봉산물에 의한 질병의 예방과 치료에 있어 가장 중요한 성분이 미량성분이라고 하였다. 또한 구 소련의 과학자들이 의해 당시까지 밝혀진 프로폴리스의 미량성분은 Al, Fe, Ca, Si, Mn, 그리고 Sr 등이며, 이러한 프로폴리스의 미량성분들은 체내에서의 대사, 발효과정에 관여하여 빈혈치료, 동맥경화 방지, 질병에 대한 면역력 증대와 같은 중요한 역할을 수행하고 있다고 하였다. 따라서 이러한 미량성분들은 오염의 지표로 이용될 수 있을 뿐만 아니라 프로폴리스의 생리적 작용에 크게 관여하고 있으리라 생각된다.

안식향산

국내산 프로폴리스 및 수입된 브라질, 중국, 호주산의 천연 안식향산의 함량을 측정된 결과, 중국산이 1383.3ppm으로 가장 높았으며, 그 다음이 호주산 제품으로 1318.9ppm, 그리고 예천과 영월은 각각 1130.6, 1049.1ppm, 브라질산의 경우 가장 낮은 1007.5ppm으로 나타났다 (Table 4). 지금까지 보고된 바에 의하면, 뉴질

Table 4. Natural benzoic acid contents of each propolis (ppm)

Propolis	Benzoic acid content (ppm)
Yecheon	1130.6 ± 78.7
Youngwol	1049.1 ± 91.4
Brazil	1007.5 ± 69.7
China	1383.3 ± 97.3
Australia	1318.9 ± 88.9

Results are expressed as Mean ± S.D. (n=3).

랜드산의 경우 1,470~2,800ppm으로 전반적으로 본 실험 결과보다 높은 천연 안식향산을 함유하고 있는 것으로 알려져 있다⁽¹⁸⁾. 또한 프로폴리스의 p-hydroxybenzoate에 대한 HPLC 및 GC-MS 분석 결과, 시판용 로얄제리에서 22.3 ± 6.8ppm이 검출되었으나 벌꿀, 프로폴리스 및 화분에서는 검출되지 않았으며, 항진균 작용이 현저한 pinocembrin 또는 galangin과 같은 플라보노이드가 프로폴리스의 항균활성에 관여하는 것으로 알려져 있다⁽¹⁹⁾. 따라서 천연 안식향산 함량이 항균력에 주 영향을 미친다거나, 프로폴리스의 알려진 항균력이 함유된 천연 안식향산 단독적 작용에 의해 발생하는 것으로는 단정하기 어렵다고 생각된다.

Table 5. Fatty acids contents in the different propolis samples by gas chromatography (mg/100g)

	Yecheon	Youngwol	China	Australia
Linoleic acid	47.6±2.45	37.3±1.54	125.4±11.27	115.3±14.59
Linolenic acid	70.0±3.11	47.0±2.44	146.0±18.32	105.6±18.22
Arachidonic acid	N.D. ¹⁾	N.D.	173.4±21.11	N.D.
EPA ²⁾	N.D.	N.D.	71.1± 7.82	N.D.
Palmitic acid	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.
γ -linolenic acid	N.D.	N.D.	N.D.	N.D.

¹⁾ Not detected.

²⁾ eicosapentaenoic acid.

지방산 분석

프로폴리스의 지방산 조성을 분석한 결과, 경북 예천산, 강원도 영월산과 호주산의 경우는 linoleic acid와 linolenic acid만이 검출되었으며, 그 함량은 예천산이 각각 47.6, 70.0mg/100g, 영월산이 37.3, 47.0mg/100g 이었으나, 호주산은 115.3, 105.6mg/100g으로 국내산 보다 2배 이상 높았다(Table 5). 중국산의 경우 linoleic acid와 linolenic acid가 125.4, 146.0mg/100g으로 가장 함량이 높게 나타났을 뿐만 아니라, arachidonic acid 173.4mg/100g, EPA 71.1mg/100g를 각각 함유하고 있는 것으로 나타났다. 그 외 palmitoleic acid, γ -linolenic acid는 전혀 함유되어 있지 않는 것으로 밝혀졌다. Kenneth 등⁽¹⁸⁾에 의하면, 뉴질랜드의 8개 지방에서 수집한 프로폴리스의 경우 palmitic acid가 0.04~0.09mg/ml 함유되어 있었으며, linoleic acid는 0.03~0.05mg/ml로 뉴질랜드 8개 지방에서 채집된 프로폴리스간에는 거의 차이가 없었지만, 호주산 및 국내산의 함량에는 절반 정도 밖에 안되는 것으로 나타났다. 또한 oleic acid의 경우 palmitic acid와 같이 국내산, 호주산 및 중국산에서는 검출되지 않았으나, 뉴질랜드산은 최고 0.15~0.05mg/ml 함유되어 있다고 하였다. Myristic acid의 경우, 3개 지역에서는 0.01mg/ml 검출되었으나 5개 지방에서는 검출되지 않았다. 이러한 결과와 비교하여 볼 때, 프로폴리스에는 ethyl palmitate를 제외하고는 포화지방산보다는 불포화지방산이 더 많이 함유되어 있는 것으로 생각되며, 지방산의 조성 및 그 함량은 지역이나 생육환경에 따라 크게 영향을 받는 것으로 생각된다.

요 약

본 연구는 국내산 프로폴리스의 화학적 특성을 조사하기 위하여 실시하였다. 위한 기초 자료를 얻고자 실시하였다. 예천과 영월 프로폴리스의 수분, 조단백질, 조지방, 회분, 그리고 탄수화물의 함량은 각각 3.25와 3.97, 9.82와 7.04, 48.25와 50.7, 3.91과 5.89, 그리고 34.77과 32.1%였다. 미네랄에서 Se은 검출이 되지 않았으며 P, Ca 및 Cu은 영월 프로폴리스가 184.15, 128.32, 1.77ppm으로 가장 높았다. 유해성 미량 성분은 호주산 프로폴리스가 가장 높았으며, 한국산 프로폴리스에서는 Cd가 검출되지 않았다. 안식향산은 중국산 프로폴리스가 1383.3 ppm으로 가장 높았으며, 예천산은 1130.6ppm, 그리고 영월산은 1049.1ppm이었다. 지방산 중 linoleic acid와 linolenic acid는 예천 프로폴리스가 47.6 및 70.0mg/100g이었으며, 영월 프로폴리스는 37.3과 47.0mg/100g이었다.

참고문헌

1. 한국식품공업협회 : 식품첨가물공전. 한국식품공업협회 (1997).
2. 芝崎勳 : 抗菌性天然添加物開發の現状と使用上問題点. *New Food Industry*, **25**, 28 (1986).
3. 노정구 : 식품첨가물의 안전성 평가. *식품과학과 산업*, **22**, 47 (1989).
4. Fleming, H. P., Walter, W. M. and Etchells, J. L. : Isolation of a bacterial inhibitor from green olives. *Appl. Micro-*

- biol.*, 18, 856 (1969).
5. Chipley, J. R. and Uraih, N. : Inhibition of *Aspergillus* growth and aflatoxin release by derivatives of benzoic acid. *Applied & Environment Microbiol.*, 40, 352 (1980).
 6. Branen, A. L., Go, H. C. and Genske, R. P. : Purification and properties of antimicrobial substances produced by *Streptococcus diacetiliactis* and *Luconostoc citrovorum*. *J. Food Sci.*, 40, 446 (1975).
 7. Abdel-bar, N., Harris, N. D. and Rill, R. L. : Purification and properties of antimicrobial substance produced by *Lactobacillus bulgaricus*. *J. Food Sci.*, 52, 411 (1987).
 8. Farag, R. S., Badei, A. Z. M. A. and Baroty, G. S. A. : Influence of thyme and clove essential oil in cotton seed oil oxidation. *JAOCs*, 66, 800 (1989).
 9. Shelef, L. A. : Antimicrobial effects of spices in foods. *J. Food Safety*, 49, 29 (1983).
 10. Yoshida, S., Kasuga, S., Hayashi, N., Ushiroguchi, T., Matsuura, H. and Nakagawa, S. : Antifungal activity of ajoene derived from garlic. *Appl. Environ. Microbiol.*, 53, 615 (1987).
 11. Karapinar, M. : Inhibitory effects of anethole and eugenol on the growth and toxin production of *Aspergillus parasiticus*. *International J. Food Microbiol.*, 10, 193 (1990).
 12. Islam, N. MD., Motohiro, T. and Itakura, T. : Inhibitory effect of protamine on the growth from the spores of two *Bacillus* species. *Bull. Japan Soc. Sci. Fish*, 52, 913 (1986).
 13. Houghton P. J., Woldemariam, T. Z., Davvey, W., Basar, A. and Lau, C. : Quantitation of the pinocembrin content of propolis by densitometry and high performance liquid chromatography. *Phytochem. Anal.*, 6, 207 (1985).
 14. Kyung, K. H. and Fleming, H. P. : Antibacterial activity of cabbage juice against lactic acid bacteria. *J. Food Sci.*, 59, 125 (1994).
 15. Ayala, F., Lembo, G., Nappa, P. and Balato, N. : Contact dermatitis from propolis. *Contact dermatitis*, 12, 181 (1985).
 16. Stojko, A., Scheller, S., Tustanowski, I., Ostach, S. and Obuszko, E. : Biological properties and clinical application of propolis VIII. Experimental observation on the influence of ethanol extract of propolis (EEP) on the regeneration of bone tissue. *Arzneim Forch/Drug Res.*, 28, 35 (1978).
 17. Wollenweber, E., Hausen, B. M. and Greenway, W. : Phenolic constituents and sensitizing properties of propolis, poplar balsam and balsam of Peru. *Bull. Groupe Polyphenols*, 15, 112 (1990).
 18. Kenneth, R. M., Mitchell, K. A., Wilkins, A. L., Daldy, J. A. and Yinrong, L. : HPLC and GC-MS identification of the major organic constituents in New Awa-land propolis. *Private Letter* (1996).
 19. Ishiwata, H., Takeda, Y., Yamada, T., Watanabe, Y., Hosagai, T., Ito, S., Sakurai, H., Aoki, G. and Ushiana, N. : Determination and confirmation of methyl p-hydroxybenzoate in royal jelly and other foods produced by the honey bee. *Food Additives and Contaminants*, 12, 281 (1995).
 20. Lipinska, J. and Zalewski, W. : Contents of microelements and harmful elements in bee products. *Pszczelnicze Zeszyty Naukowe*, 33, 113 (1990).
 21. Okhotski, B. : Microelements in apicultural products. Propolis. Apimondia Publishing House, p. 38 (1978).

(2001년 9월 4일 접수)