

トウキの基原植物の研究 (2) 北海道産野生トウキ類の成分分析

高橋知子^a, 土田貴志^{*,a}, 宇野敏夫^a, 関田節子^b, 佐竹元吉^c, 吉田尚利^d

^aカネボウ株式会社漢方研究所, ^b国立医薬品食品衛生研究所,

^cお茶の水女子大学, ^d北海道医療大学薬学部

Study on the Botanical Origins of “Toki” Analysis of Chemical Constituents of wild *Angelica* species distributed in Hokkaido

Tomoko Takahashi^a, Takashi Tsuchida^{*,a}, Toshio Uno^a, Setsuko Sekita^b,
Motoyoshi Satake^c, Naotoshi Yoshida^d

^aKampo Research Laboratories, Kanebo, Ltd., 3-1, Kanebo-machi, Takaoka, Toyama 933-0856, Japan

^bTsukuba Medicinal Plant Research Station, National Institute of Health Sciences,

1 Hachimandai Tsukuba, Ibaraki 305-0843, Japan

^cInstitute of Environmental Science for Human Life, Ochanomizu University

2-1-1, Ohtsuka, Bunkyo-ku, Tokyo 112-8610, Japan

^dFaculty of Pharmaceutical Sciences, Health Sciences University of Hokkaido

1757, Kanazawa, Ishikari-Tobetsu, Hokkaido 061-0293, Japan

(Received March 3, 2005)

Quantitative analysis of five phthalides, one polyacetylene, two unsaturated fatty acids and five furocoumarins in roots and leaves of *Angelica acutiloba* var. *sugiyamae* and wild *Angelica* plants collected in Hokkaido was studied. Phthalides and furocoumarins were contained in roots and leaves. Polyacetylene and unsaturated fatty acids were contained in roots, however in leaves, a small amount of these were identified. These plants were divided into each type by their chemical components. Phthalide contents were the highest in *A. acutiloba* var. *sugiyamae* and very low in *A. acutiloba* var. *iwatensis*. Chemical characteristics of furocoumarins were also different among them, oxypeucedanin and heraclenin which were not identified in *A. acutiloba* var. *sugiyamae* were confirmed in other plants. Ligustilide contents in the plants collected in Karikachi-toge whose external characteristics were similar to *A. acutiloba* var. *sugiyamae* were very low. Chemical characteristics also differed from cultivated *A. acutiloba* var. *sugiyamae*.

Keywords : Toki; Hokkaido; *Angelica acutiloba* var. *sugiyamae*; *A. acutiloba* subsp. *lineariloba* f. *lanceolata*; *A. acutiloba* subsp. *lineariloba*; *Angelica acutiloba* var. *iwatensis*; HPLC; phthalide; polyacetylene; furocoumarin; unsaturated fatty acid

「トウキ(当帰)」は漢方の要薬として古来使用されている。「トウキ」の基原植物として日本薬局

方¹⁾では「トウキ *Angelica acutiloba* KITAGAWA 又はホッカイトウキ *Angelica acutiloba* KITAGAWA var. *sugiyamae* HIKINO」と規定している。現在の市場品は全て栽培品であるが、栽培種は野生種から栽培化されたものであると考えられている。現在の栽培種の形質は組織形態学的²⁾には国内の野生種に類似しており、中国産「当帰」の原植物であるカラトウキ *A. sinensis* DIELS とは異なることが報告されている。国内のトウキ類の野生種には母種以外にミヤマトウキ *A. acutiloba* KITAGAWA var. *iwatensis* HIKINO, ツクバトウキ *A. acutiloba* KITAGAWA f. *tsukubana* HIKINO, ホソバトウキ *A. acutiloba* KITAGAWA subsp. *lineariloba* Kitamura(=*A. sienoloba* KITAGAWA, *A. acutiloba* KITAGAWA var. *lanceolate* OHWI)などがあり、現在の栽培種はそのような植物に由来すると考えられる。奈良、和歌山などで「大和当帰」として栽培されているトウキは17世紀の中頃には既に栽培化され、当時の山城、大和地方で生産されていたことが記録されている³⁾。一方、北海道で「北海当帰」として栽培されているホッカイトウキはその由来が明確でなく、大正年間に北海道に導入されて間もないトウキと斜里岳に自生する「山当帰」と称するセリ科の植物を交配させ、数年かけて育成された種とされている⁴⁾。「山当帰」をエゾノヨロイグサ *A. sachalinensis* Maximowicz ex Fr. Schmidt(=*A. anomala* LALLEMANT)とする説⁴⁾があるが、その反面、ホッカイトウキ育成過程におけるエゾノヨロイグサの関与は従来から疑問視されており、RAPD法によるDNA解析⁵⁾の結果、ホッカイトウキとエゾノヨロイグサとの関連性は認められなかった。ホッカイトウキは他のトウキ類と近縁で、ホッカイトウキ、トウキ、ミヤマトウキ及びホソバトウキのフラグメントパターンは一部に違いが見られるが、おおむね類似していた⁵⁾。中でもトウキとミヤマトウキのフラグメントパターンは特に良く類似し、また、ホッカイ

トウキはホソバトウキと類似していることが判明した⁵⁾。

ホッカイトウキの基原についてさらに精査するため北海道各地の野生種を調査したところ、道央狩勝峠付近で外部形態がホッカイトウキに酷似した植物を確認した。そこで、当該種を含め、北海道各地で採取した野生種のDNA比較解析を行ったところ、道央狩勝峠で採取した植物はDNA解析でもホッカイトウキとの相同性が認められた⁶⁾。今回、それら野生種につき成分分析を行い、成分面からそれらの関係についてさらに検討した。

実験の部

1. 実験材料

今回使用した野生種(北海道採取品)及びその他の材料の由来をTABLE Iに示す。

2. 標品

ligustilide(**1**), 9Z, 11E-13-hydroxyoctadecadienoic acid(**4**), 10E, 12Z-9-hydroxyoctadecadienoic acid(**5**)は市場品の日本産トウキより、falcariindiol(**3**)はホッカイトウキ新鮮根より、senkyunolide I(**6**), senkyunolide H(**7**)は市場品の中国産トウキより単離した。一方、butyridenephthalide(**2**)はアルプス薬品工業より入手し、psoralen(**8**), xanthotoxin(**9**), bergapten(**10**)はフナコシより購入した。oxypeucedanin(**11**), heraclenin(**12**)は北海道で採取した野生トウキ類より、senkyunolide A(**13**)はホッカイトウキの新鮮地上部より単離した。

3. 装置

ポンプ, LC-10ATVP; オートインジェクター, SIL-10ADVP; 紫外外部検出器, SPD-10AVP; クロマトデータ処理及びシステムコントロールソフト, CLASS VP(以上島津製作所製)。

4. 内部標準(IS)溶液の調製

pyrene100mgを精密に量り、アセトン5mlに溶

TABLE I. Collection Data of Materials

Species ¹⁾	Japanese name	Source	Date of Collection
<i>Angelica acutiloba</i> KITAGAWA var. <i>sugiyamae</i> HIKINO	Hokkai-toki	cultivated in Hokkaido Univ. (1)	1999. 8
		cultivated in Hokkaido Univ. (2)	1999. 8
		cultivated in Hokkaido Univ. (3)	1999. 8
		cultivated in Hokkaido Univ. (4)	1999. 8
		Karikachi-toge(狩勝峠)	1999. 8
<i>A. acutiloba</i> KITAGAWA subsp. <i>lineariloba</i> KITAMURA form. <i>lanceolata</i> S. WATANABE et KAWANO (= <i>A. stenoloba</i> KITAGAWA f. <i>lanceolata</i> HARA)	Tokachi-toki	Urakawa(浦河町上杵臼)	1999. 8
		Samani(様似町旭)	1999. 8
		Nakasatsunai(中札内村)	1999. 8
		Erimo(えりも町)	1999. 8
		Samani(様似町オンコル岬)	1999. 8
<i>A. acutiloba</i> KITAGAWA subsp. <i>lineariloba</i> KITAMURA (= <i>A. stenoloba</i> KITAGAWA)	Hosoba-toki	Hobetsu(徳別町)	1999. 8
<i>A. acutiloba</i> KITAGAWA var. <i>iwatensis</i> HIKINO	Miyama-toki	Mashike(増毛町別荘)	1999. 8
		Sapporo(札幌市南区定山溪)	1999. 8
		Kamoenai(神恵内村神威岬)	1999. 8
		Yoichi(余市町出足平)	1999. 8
		Mashike(増毛町日和)	1999. 8
commercial crude drug, "Hokkai-Toki"		Osaka	1999. 9. 21
		Osaka	1999. 9. 21
		Osaka	1999. 9. 21
commercial crude drug, "Yamato-Toki"	Tokyo		1999. 9. 30

1) Latin name estimated from external characteristics.

解させ、メタノールを加えて 200ml に定容して内部標準溶液とした。

5. 試料溶液の調製

採取した野生種及びホッカイトウキ(新鮮材料):葉及び根(主根中央部)各々 10g を精密に量り、アセトニトリル 16ml 及び 70%アセトニトリル 14ml を加え、ミキサーで切碎し、70%アセトニトリル 10ml を加えて室温で 15 分間振とうした後、内部標準溶液 1ml を正確に加え、70%アセトニトリルで 50ml に定容し、メンブランフィルターでろ過して HPLC 用試料とした。

市場品(乾燥材料): 粉砕機で粉砕して得た粉末 2.5g を精密に量り、70%アセトニトリル 15ml を加えて室温で 15 分間振とうした後、内部標準溶液 1ml を正確に加え、70%アセトニトリルで 25ml に定容し、メンブランフィルターでろ過して HPLC 用試料とした。

6. HPLC 分析条件及び定量

試料溶液を下記の HPLC 条件に従って分析し、各成分の含量を算出した。

分析条件 A (1~5): カラム, YMC-ODS, A-312,

S-5(6mm I. D.×150mm); 移動相, 0.05M リン酸二水素ナトリウム: エタノール(1:1); 流量, 1.0ml/min; 検出波長, 210nm(1, 3), 230nm(2, 4, 5); カラム温度, 50℃. 内部標準物質(pyrene)のピーク高さに対する内部標準法により定量した。

分析条件 B (6~13): カラム, YMC-ODS, A-312, S-5(6mm I. D.×150mm); 移動相, 0.05M リン酸二水素ナトリウム: アセトニトリル(2:1); 流量, 1.0ml/min; 検出波長, 210nm(13), 254nm(6~12); カラム温度, 40℃. ピーク高さによる絶対検量線法により定量した。

結 果

各成分の定量結果を TABLE II に示す。

1. ホッカイトウキ(*A. acutiloba* var. *sugiyamae*)

根: 北大のホッカイトウキはフタリド類では ligustilide(1)含量が高く, butylenephthalide(2), senkyunolide I(6), senkyunolide A(13)などが少量認められた。ポリアセチレン類 falcarindiol(3)は高含量認められた。不飽和脂肪酸類は非常に低含量で、

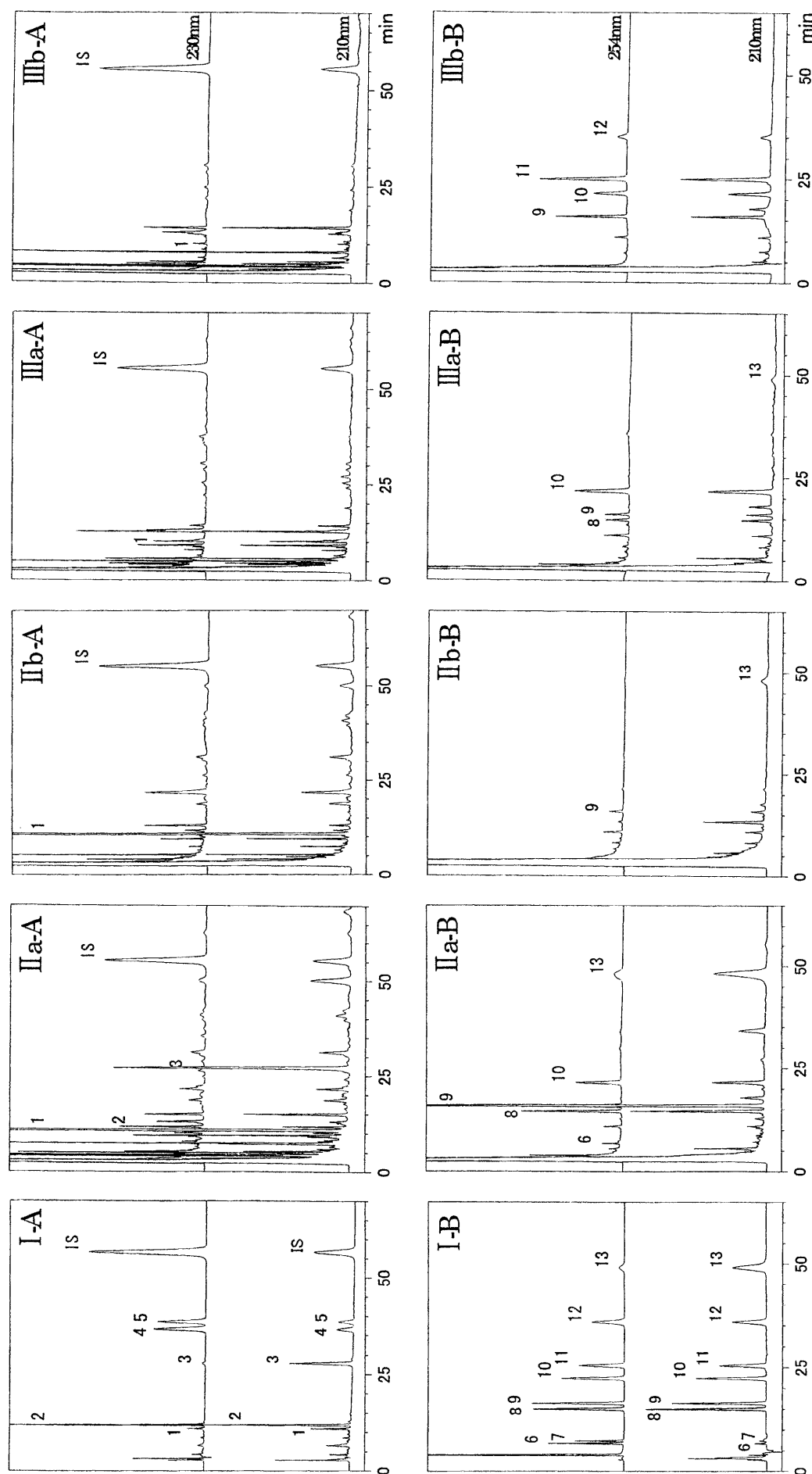


Fig. 1. HPLC Profiles of *Angelica* species

I, standard solution; IIa, *A. acutiloba* var. *sugiyamae* (cultivated in Hokkaido Univ. No. 4), root; IIb, *A. acutiloba* var. *sugiyamae* (cultivated in Hokkaido Univ. No. 4), leaf; IIIa, *A. acutiloba* var. *iwatensis* (Yoichi), root; IIIb, *A. acutiloba* var. *iwatensis* (Yoichi), leaf
A and B respect HPLC conditions. Condition A: column, YMC-ODS, A-312, S-5(6mm I. D. $\times$ 150mm); mobile phase, 0.05M NaH_2PO_4 -EtOH(1:1); flow rate, 1.0ml/min; detection, 210nm(lower), 230nm(upper); column temp., 50°C. Condition B: column, YMC-ODS, A-312, S-5(6mm I. D. $\times$ 150mm); mobile phase, 0.05M NaH_2PO_4 -MeCN(2:1); flow rate, 1.0ml/min; detection, 210nm(lower), 254nm(upper); column temp., 40°C.

TABLE II. Contents of Components of *Angelica* spp. and Commercial Crude Drugs (mg/g)

Species	Source	Part of analysis	phthalide			polyacetylene			unsaturated fatty acid					furocoumarin		
			1	2	6	7	13	3	4	5	8	9	10	11	12	
<i>A. acutiloba</i> var. <i>sugiyamae</i>	Hokkaido univ.	root	2.728	0.016	0.013	tr.	0.014	0.262	0.005	0.001	0.043	0.214	0.028	—	—	—
		leaf	1.672	0.004	0.003	—	0.002	—	—	—	—	0.007	tr.	—	—	—
	Hokkaido univ.	root	1.380	0.004	0.004	—	tr.	0.194	tr.	tr.	tr.	tr.	0.002	—	—	—
		leaf	1.160	0.003	0.003	—	0.001	—	—	—	—	0.025	0.008	—	—	—
<i>A. acutiloba</i> var. <i>sugiyamae</i>	Hokkaido univ.	root	1.455	0.004	0.006	—	tr.	0.352	tr.	tr.	tr.	tr.	tr.	—	—	—
		leaf	0.914	0.002	0.003	—	0.001	—	—	—	—	0.003	0.002	—	—	—
	Hokkaido univ.	root	1.308	0.007	0.007	0.002	0.006	0.134	tr.	—	0.048	0.200	0.020	—	—	—
		leaf	1.266	0.003	0.002	0.001	0.001	—	—	—	tr.	0.003	0.001	—	—	—
<i>A. acutiloba</i> subsp. <i>lineariloba</i> f. <i>lanceolata</i>	Karikachi-toge	root	0.177	0.001	tr.	—	tr.	0.112	tr.	tr.	—	tr.	0.004	—	0.047	—
		leaf	0.634	0.002	0.002	tr.	tr.	—	tr.	tr.	—	0.003	0.002	—	—	—
	Urakawa	root	0.303	0.008	0.008	—	tr.	0.056	tr.	tr.	0.008	0.012	0.011	0.014	0.427	—
		leaf	0.543	0.003	0.008	0.003	0.002	—	—	—	—	0.011	0.009	0.067	0.639	—
<i>A. acutiloba</i> subsp. <i>lineariloba</i> f. <i>lanceolata</i>	Samani(様似町旭)	root	1.587	0.010	0.011	0.003	0.002	0.108	0.003	0.004	—	tr.	0.005	—	tr.	—
		leaf	0.587	0.004	0.006	0.003	0.003	—	—	—	—	0.027	0.054	tr.	0.375	—
	Nakasatsunai	root	0.051	0.001	0.002	—	tr.	0.106	tr.	tr.	—	tr.	0.030	tr.	0.056	—
		leaf	0.398	0.002	0.007	—	tr.	—	—	—	—	0.025	0.054	tr.	0.267	—
<i>A. acutiloba</i> var. <i>iwatensis</i>	Erimo	root	0.641	0.008	0.007	tr.	tr.	0.021	tr.	tr.	—	0.021	0.017	0.072	0.874	—
		leaf	0.333	0.003	0.003	tr.	tr.	—	tr.	—	—	0.008	0.018	0.026	0.209	—
	Samani(様似町オコノホ)	root	0.129	0.001	0.002	—	—	0.067	tr.	tr.	—	tr.	0.002	tr.	0.036	—
		leaf	0.487	0.003	0.005	0.006	tr.	—	—	—	—	0.045	0.035	0.017	0.158	—
<i>A. acutiloba</i> subsp. <i>lineariloba</i>	Hobetsu	root	0.025	tr.	0.004	—	0.002	0.192	tr.	tr.	0.002	0.059	0.063	0.015	0.068	—
		leaf	0.002	tr.	0.004	—	tr.	—	—	—	—	0.144	0.055	0.821	0.335	—
	Mashike(増毛町別荘)	root	0.002	tr.	tr.	—	tr.	0.045	0.002	0.006	0.004	0.006	0.018	0.009	0.012	—
		leaf	0.012	tr.	tr.	—	—	—	—	—	—	0.184	0.098	0.760	0.181	—
<i>A. acutiloba</i> var. <i>iwatensis</i>	Sapporo	root	0.036	0.001	0.002	0.002	tr.	0.005	0.001	0.002	0.001	0.007	0.015	—	0.040	—
		leaf	tr.	0.001	0.004	0.004	tr.	—	—	—	tr.	0.026	0.041	0.054	0.419	—
	Kamoenai	root	0.001	tr.	0.003	tr.	tr.	0.056	0.004	0.015	0.023	0.033	0.065	tr.	0.027	—
		leaf	0.010	tr.	tr.	tr.	tr.	—	—	—	—	0.095	0.045	tr.	0.209	—
<i>A. acutiloba</i> var. <i>iwatensis</i>	Yoichi	root	tr.	tr.	0.004	tr.	tr.	0.024	tr.	0.015	0.020	0.025	0.068	tr.	tr.	—
		leaf	0.010	tr.	tr.	tr.	—	—	—	—	—	0.104	0.060	0.795	0.088	—
	Mashike(増毛町日和)	root	tr.	tr.	tr.	—	tr.	0.089	—	tr.	tr.	tr.	0.004	0.005	0.026	—
		leaf	0.003	tr.	0.003	—	tr.	tr.	—	—	—	0.043	0.054	0.084	0.054	—
Hokkai-Toki	Osaka	root	0.890	0.045	0.169	0.058	—	0.158	0.105	0.092	0.010	0.016	0.003	—	—	—
		root	1.077	0.022	0.054	0.014	—	0.362	0.035	0.031	0.005	0.068	0.009	—	—	—
	Osaka	root	1.065	0.018	0.027	0.008	tr.	0.232	0.039	0.029	tr.	0.038	0.011	—	—	—
		root	0.600	0.026	0.092	0.025	tr.	tr.	0.036	0.030	tr.	0.012	tr.	—	—	—

— : not detected, tr. : trace.

フロクマリン類の psoralen(8), xanthotoxin(9), bergapten(10)は 2 株に高含量認められた。oxypeucedanin(11), heraclenin(12)はいずれの試料中にも検出されなかった。狩勝峠の野生種は 1 及び 3 の含量が低く、また、北大の試料には検出されなかった 12 が検出され、パターンを異にした。

葉：北大のホッカイトウキでは根と同様、葉でも 1 が高含量であった。根に比較的高含量認められた 3 は葉には認められず、フロクマリン類も全体的には低含量であった。狩勝峠の野生種も葉では 1 が根より高含量認められ、北大の試料とほぼ同様のパターンであった。

2. トカチトウキ(*A. acutiloba* subsp. *lineariloba* f. *lanceolata*)

根：5 検体の中で 1 の含量に大きなばらつきが見られた。様似町旭採取品は 1 の含量が高く、ホッカイトウキと類似のパターンであったが、中札内採取品は低含量であった。3 は全体的にホッカイトウキより低含量であった。フロクマリン類も低含量ではあるが、8~10 の中でホッカイトウキは 9 が最も高含量であるのに対し、トカチトウキでは 10 の含量が高く、11 または 12 も検出された。

葉：1 の含量にばらつきは少なく、いずれも比較的含量は高かった。3 は認められなかった。

3. ホソバトウキ(*A. acutiloba* subsp. *lineariloba*)

根：1 は低含量で、3 の含量が高い。フロクマリン類はトカチトウキと同様 10 の含量が高く、且つ 11 及び 12 が認められた。

葉：1 は非常に低含量であった。フロクマリン類は含量が高く、11 及び 12 も顕著であった。

4. ミヤマトウキ(*A. acutiloba* var. *iwatensis*)

根：1 の含量はいずれも極めて低含量で、他のフタリド類もほとんど含有しない。3 の含量にはばらつきがあるが、全体的に低含量であった。フロクマリン類はトカチ、ホソバトウキと同様 10 の含量が高く、11 及び 12 も認められた。

葉：根と同様、1 の含量は低含量であった。フロクマリン類は比較的高含量であった。

5. 市場品

北海当帰：ホッカイトウキの新鮮根と比較してフタリド類 senkyunolide I(6)及び senkyunolide H(7), 不飽和脂肪酸類 9Z, 11E-13-hydroxyoctadecadienoic acid(4) 及び 10E, 12Z-9-hydroxyoctadecadienoic acid(5)が顕著に高含量であった。

大和当帰：北海当帰とほぼ同様のパターンであるが、3 の含量が著しく低含量であった。

考察及び結論

1. 今回分析した試料の中で、ホッカイトウキの根においては他のトウキに比べて、フタリド類の ligustilide(1), ポリアセチレン類の falcariindiol(3) 含量が高く、フロクマリン類の oxypeucedanin(11) 及び heraclenin(12)を検出しないという特徴点が認められた。さらに、フロクマリン類 xanthotoxin(9)及び bergapten(10)を含有する場合、ホッカイトウキでは 9 が 10 より著しく高含量であるが、他のトウキ類では同等又は 10 の方が高含量であった。また、他のトウキ類ではフロクマリン含量は根より葉の方が高含量である場合がほとんどであるのに対し、根にフロクマリン類の高含量を有するホッカイトウキの葉には著しく低含量であった。一方、狩勝峠で採取した野生のホッカイトウキは北大の試料と比較して根の 1 の含量が 1/7 以下であり、他の野生種に認められた 12 が検出されるなどパターンに違いが認められた。

2. 野生のトウキ類は生育環境や生育年数が一定でなく、それらが成分含量に及ぼす影響は少ないと考えられるが、ホッカイトウキ以外のトウキ類はホッカイトウキに比べ、フタリド類、ポリアセチレン類の含量が概して低かった。トカチ、ホソバ、ミヤマトウキはそれぞれの群で成分的にも類似性が見られた。ホソバトウキ及びミヤマトウキはフタリド類が特に低含量で、ほとんど含有されていなかった。また、ホソバトウキはポリア

セチレン類が高含量であった。フロクマリン類について野生種のほとんどに **11** 及び **12** が認められ、含量比率等については前項に記したような傾向が認められた。しかし、各群を成分パターンで明確に区別するには至らなかった。

3. 北海道の野生のトウキ類については植物形態及び成分から少なくとも日高～十勝の太平洋側に分布するトカチトウキ、日高地方に分布するホソバトウキ、後志～留萌などの日本海側に分布するミヤマトウキの3系統の存在が示唆された。その中であって、今回狩勝峠で採取した野生種は栽培品ホッカイトウキと一部の成分パターンに違いが認められたが、植物形態及びDNA解析の結果⁶⁾はホッカイトウキとの相同性が認められている。本野生種の現在までに確認されている分布域は限られた地域であり、本植物の取扱いについてはさらに検討を要する。

4. 歴史的にはトウキの栽培が開始された以降も栽培品と野生品の両方から生薬に調製され、古くは野生品由来の生薬の方が薬効が高いとされ、³⁾専ら野生品が使用されていた。しかし、今回の結果では野生のトウキ類は特にフタリド類の含量が低く、また、栽培品には認められないフロクマリン類を含有するなど栽培品とは異なるパターンを示した。そのため、少なくとも北海道の野生トウキ類については栽培トウキと一線を画して考える必要がある。

5. 新鮮材料で低含量であったフタリド類の senkyunolide I(**6**)及び senkyunolide H(**7**)、不飽和脂肪酸類 9Z, 11E-13-hydroxyoctadecadienoic acid(**4**)及び 10E, 12Z-9-hydroxyoctadecadienoic acid(**5**)などが市場品では顕著に認められたことより、これらの成分は調製過程で生成したものであると考えられる。

6. フロクマリン類のうち、**8**～**10** はファイトアレキシンであり、また、乾燥など生薬調製過程でも生成するストレス化合物であることが報告されている⁷⁾。トウキの種類によりその含量比率に

差が認められたことから植物によりこれらの化合物の産生機構等に違いがあると考えられる。

REFERENCES AND NOTES

- 1) The Committee of Japanese Pharmacopoeia Guide Book, ed., "The Guide Book of Japanese Pharmacopoeia 14th Ed.", Hirokawa Publishing, Tokyo, 2001, pp. D-795-D-800.
- 2) a) Hikino H., *Acta Phytotax. Geobot.*, **17**, 76-84 (1958); b) *idem.*, *Shoyakugaku Zasshi*, **12**, 9-13, 14-17, 18-20, 21-25, 26-29, 30-34, 35-39 (1958).
- 3) Endo G. original, Namba T. ed, "Honzo Bengi", Kogensha, 1971, pp.106-107.
- 4) Hikono H., *Yakugaku Kenkyu*, **29**, 889-907, 1059-1078(1957).
- 5) Kohjyoma M., Iida O., Yoshida N., Hatakeyama Y., Satake M., Sekita S., Kohda H., *Natural Medicines.*, **52**, 130-134 (1998).
- 6) a) Kohjyoma M., Iida O., Kumagaya T., Hatakeyama Y., Li Y. R., Sekita S., Satake M., Yoshida N., Kohda H., Yamane C., Abstracts of Papers 2, The 119th Annual Meeting of the Pharmaceutical Society of Japan, 1999, p. 117.; b) Yoshida N., Kohjyoma M., Yamada K., Kurihara T., Iida O., Kumagaya T., Hatakeyama Y., Kohda H., Li Y. R., Sekita S., Satake, Abstract Papers of the 46th Japanese Society of Pharmacognosy, 1999, p. 215; c) Kohjyoma M., Yamada K., Kurihara T., Iida O., Kumagaya T., Hatakeyama Y., Yoshida N., Kohda H., Li Y. R., Sekita S., Satake, Abstract Papers of the 46th Japanese Society of Pharmacognosy, 1999, p. 216.
- 7) a) Masuda T., Takasugi M., Anetai M., *Phytochemistry*, **47**, 13-16 (1998); b) Anetai M., Masuda T., Takasugi M., *Natural Medicines.*, **50**, 399-403(1996); c) *idem.*, *ibid.*, **51**, 442-446 (1997); d) *idem.*, 40th Symposium on the Chemistry of Natural Products, 1998, p. 523-527 (1998)