

열탈착식 가스크로마토질량분석기에 의한 국내 산지별 백리향의 휘발성향기성분

장매희¹ · 이광우² · 백정애^{1*}
¹서울여자대학교, ²세계사이버대학교

Volatile Aroma Compounds of Several Domestic *Thymus quinquecostatus* by Thermal Desorption Gas Chromatograph Mass Spectrometer

Maehee Chiang¹, Kwang-Woo Lee², and Jungae Baik^{1*}

¹Dept. of Horticulture Science and Landscape Architecture, Seoul Women's Univ., Seoul 139-774, Korea

²Dept. of NGO Landscape Architecture, World Cyber College, KwangJoo 376-2, Korea

Abstract. Objective of this research was to investigate the volatile aroma compounds and phenol contents for preservative effects. Aerial part of 5 Korean natured species of thyme located in Jeju alpine, jeju middle mountain, Kyeonggido, Ulleung island, and Gangwondo was analyzed by thermal desorption gas chromatograph mass spectrometer (TD-GC-MSD) method. Jeju middle mountain thyme was relatively high 62 species and has been investigated a high concentration of 7365.22 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ contents according to the quantitative analysis. Total phenol contents containing thymol and carvacrol of Jeju middle mountain thyme were relatively high and showed 35.92%.

Key words : anti-oxidant activity, chlorophyll, phenol, quantitative analysis, shikimic acid

서 론

한약재학에서 방부제로 이용되고 있는 백리향은 꿀풀과(Labiatae) 식물이며 프랑스, 독일에서 자생하는 백리향(*Thymus vulgaris* Linne)은 정유 중 phenol 함량은 25-42%를 차지하고 있으며 thymol이 주성분이고 carvacrol, *p*-cymen, *l*-borneol, linanool, β -pinene 등으로 구성되어 있고, 스페인 종의 경우 phenol 함량이 50~70% 이나 대부분이 carvacrol인 것이 특징으로 알려져 있다(David, 1998; Han, 1986). 또한 유사종인 *Thymus marschallanus*는 geraniol 성분이 대표적이며 계절과 시기에 따라 함량과 성분에 변동이 있다고 알려져 있다(Schratz와 Hörster, 1970). 백리향은 유럽 등지에서 오래전부터 민간에서 항균, 진해, 구충, 구풍, 소화불량, 위장염, 기관지염 등 약용으로 사용하였으며 독특한 향기 때문에 식품 및 향료자원으로 널리

이용되었다. 우리나라 자생종은 백리향(*Thymus quinquecostatus*)과 섬백리향(*Thymus magnus*)으로 각각 구분되고 있으며 전국 각지에서 서식하고 있는 것으로 알려져 있다. 특히 향기를 유발하는 물질은 monoterpene alcohol류인 geraniol과 monoterpene aldehyde류인 citral이 주성분으로 보고된 바 있다(Song 등, 2002). 제주 백리향의 경우는 98.8%가 정유이며 그중 *p*-cymen-3ol(50.41%), *p*-cymen-2ol(24.06%), cymen(19.04%)인 것으로 보고되었으며(Oh 등, 2009)은, 이들 백리향의 주성분은 shikimic acid 경로로부터 생성되는 phenylpropene계 화합물인 thymol과 carvacrol으로 알려져 있다(김 등, 1994; Woo, 1999). 따라서 본 연구에서는 백리향이 서식지에 따라 향기성분이 어느정도 차이가 있을 것으로 예상되어 우리나라의 몇몇 지방에서 자라고 있는 백리향의 서식지별 phenols 성분과 휘발성향기물질의 차이를 규명하여 백리향의 방부, 항균, 항산화 활성에 대한 유전자원확보의 기초를 마련하고자 실험을 수행하였다.

*Corresponding author: susi@korea.ac.kr
Received February 8, 2011; Revised March 10, 2011;
Accepted March 23, 2011

Table 1. Analysis conditions of volatile aroma compounds.

Items		VOCs analysis conditions
Split ratio		30 : 1
Detector		MSD (5975, Agilent)
Column		HP-VOC 60.0 m × 320 μm × 1.8 μm
Carrier GAS and inlet flow, column flow		He (99.999%), 27 ml/min, 0.8 ml/min
Temperature program	Initial temperature	50°C (5 min)
	Heating rate	5°C/min, 220°C, (10 min)
	Final temperature	10°C/min, 250°C, (5 min)
MS condition	MS source	230°C
	MS quad	150°C
	Mode	EI
	EM voltage	200
	Detection mode	TIC (scan), m/z: 35~350

재료 및 방법

1. 식물재료

식물재료는 제주 고산종(해발 1000m 이상), 제주 중간산종(해발 1000m 이하), 강원도 정선 산간종, 울릉도 서식종, 경기도 가평 서식종을 산유화식물원(충북 충주)을 통해 수집하였으며 산유화 식물원에서 노지환경으로 1년간 적응한 후 2009년 6월 생육의 특징조사와 향분석을 실시하였다. 식물체간의 가지적인 차이는 엽장, 엽폭을 측정하여 구분하였고, 수분함량은 2g의 지상부 생체를 105 드라이오븐에 3일간 건조하여 측정하여 생체중에서 건물중을 뺀 값으로 하였으며 또한 엽록소를 측정하였다. 엽록소는 Aron(1949)의 방법으로 식물의 상단에서부터 1~2단의 엽 0.5g을 85%(V/V)의 아세톤 10mL로 24시간 추출 후 660nm, 642.5nm의 파장으로 분광도를 측정하였다. 엽록소 a, b와 총 엽록소 함량(m/mg.f.w)은 다음과 같은 식에 의해 계산하였다.

$$\text{Chl a} = 9.93D_{660} - 0.777D_{642.5}$$

$$\text{Chl b} = 17.6D_{642.5} - 2.81D_{660}$$

$$\text{Total Chl} = 7.12D_{660} + 16.8D_{642.5}$$

2. 성분분석방법

열탈착식 가스크로마토질량분석기(Thermal desorption gas chromatograph mass spectrometer: TD-GC-MSD) 방법은 서울대 NICEM에 의뢰하여 Tenax TA 흡착관을 가열탈착위치에 넣고, 식물의 생체를 가열에 의해

휘발성 향기화합물을 탈리하며, 휘발성향기화합물의 종류를 확인하는 경우는 질량분석계(MS)를 scan mode로 조작하고, 질량 스펙트럼으로 판별하여 용매로 추출한 성분과 비교하였다. GC-mass의 조건은 Table 1과 같았다.

결과 및 고찰

꿀풀과 백리향의 주요 향기성분은 phenols이 대부분을 차지하는 것으로 알려져 있으며 약용적 가치로서 방부의 기능을 가지고 있으나 백리향의 향성분에 있어서 원산지에 따라 변동이 있는 것으로 알려져 있다(Schraatz와 Hörster, 1970). 식물의 외형도 지역에 따라 차이를 나타내고 있으며 강(2008)은 백리향, 섬백

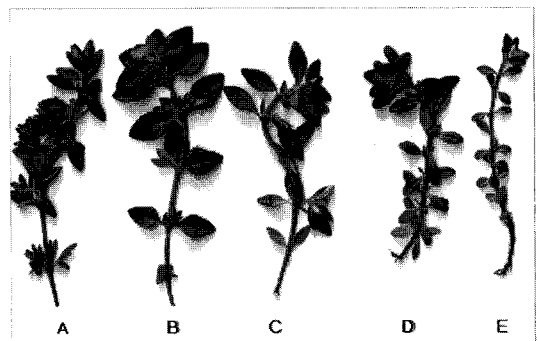


Fig. 1. Comparison of the blade shape in several regional places of thyme in Sanyuhwa botanic garden of the Choongju of chungbuk province, Korea. A; Kyeonggido, B; Gangwondo, C; Ulleung island, D; Jeju middle land, E; Jeju high land.

리향으로 나누어 분류하고 있으며 백리향은 낙엽성 반 관목으로 높은 산의 바위 표면이나 바닷가에서 자라는 것으로 설명하고 있다. 식물체의 높이는 10~20cm로 가지가 많이 갈라지고 옆으로 퍼지며 잎은 마주나고 엽장은 5~12mm, 엽폭은 3~8mm의 난상타원형으로 털이 약간 있는 것이 특징이다. 섬백리향은 주로 울릉도에서 자라는 종류를 말하며 원줄기가 백리향에 비해 약간 굵고 엽장은 15mm로 백리향에 비해 길며 겨울에도 상록으로 남아 있는 것이 특징이다. 본 연구에서

도 울릉도, 정선에서 발견한 백리향의 엽장이 다른 종류에 비해 긴 것으로 나타났다. 그 길이는 각각 12mm, 16mm로 측정되었다. 반면 제주도고산 1000m 이상 고산종과 1000m이하 중간산종, 경기도 원산의 종류의 엽장은 각각 5, 11, 8mm의 길이를 보였다 (Fig. 1, Table 2). 식물체의 함수율은 정선 수집 백리향이 상대적으로 많았으며 이는 식물체의 잎의 크기와 관계가 있는 것으로 보였다. 또한 잎의 엽록소 함량은 정선수집 백리향과 경기도 수집 백리향이 상대적으로

Table 2. Comparison of the morphological differences in growth of regional thyme in Sanyuhwa botanic garden of the Choongju of chungbuk province, Korea.

Region	Leaf length (cm)	Leaf width (cm)	Water contents (g)	Chlorophyll contents (mg · g ⁻¹ FW)		
				a	b	Total
Jeju high land	0.50 ± 0.10 ^y	0.33 ± 0.05	1.14 b ^z	10.85 ± 0.40	3.74 ± 0.05	14.59 ± 0.40
Jeju middle land	1.16 ± 0.15	0.53 ± 0.15	1.03 b	10.72 ± 4.15	3.76 ± 1.62	14.48 ± 5.78
Ulleung island	1.23 ± 0.05	0.53 ± 0.05	0.81 b	11.72 ± 4.01	4.06 ± 1.32	15.78 ± 5.33
Gangwondo (Jeongseon)	1.63 ± 0.11	0.83 ± 0.11	1.70 a	16.85 ± 5.68	5.92 ± 2.30	22.76 ± 7.97
Kyeonggido (Gapyeong)	0.86 ± 0.05	0.28 ± 0.02	0.82 b	14.15 ± 3.68	4.78 ± 1.30	18.92 ± 4.98

^zMeans separation within columns for each variety by Duncan's multiple range test, *p* = 0.05.

^yStandard deviation.

Table 3. The major compounds and its peak area (%) by TD-GC-MSD in *Thymus quinquecostatus* originated from high land species in Jeju island.

Peak No.	Retention time (min)	Compounds	Area (%)	Contents (ng)	Concentration (µg/m ³)
2	10.0937	Methylene chloride	4.20	74.22	148.45
10	26.4528	1-Isopropyl-4-methylbicyclo[3.1.0]hex-2-ene	1.52	26.85	53.71
12	26.9813	α-(+)-Pinene	3.61	114.38	228.76
13	27.7873	Camphene	4.45	156.96	313.93
14	28.1547	1-Octen-3-ol	2.51	44.47	88.95
16	28.552	β-Myrcene	2.09	102.27	204.55
21	30.059	α-Terpinene	1.81	21.61	43.23
22	30.4001	Benzene	8.88	156.90	313.81
23	30.5388	Limonene	5.80	182.86	365.72
25	31.5209	γ-Terpinene	14.95	470.86	941.72
26	32.0982	γ-Terpinene	3.56	62.95	125.91
32	35.4832	Bicyclo[2.2.1]heptan-2-on	10.61	187.55	375.10
33	35.9968	Borneol	4.84	85.59	171.18
37	38.3997	2-methyl-5-(1-methylethyl)-2,5-Cyclohexadiene-1,4-dione	1.10	19.51	39.03
38	38.992	Thymol	13.89	245.43	490.87
39	39.3368	L-α-bornyl acetate	1.84	61.88	123.76
40	39.4193	Carvacrol	0.67	11.97	23.95
44	44.6636	Caryophyllene	2.64	46.78	93.57
46	46.1106	Pentanamide	1.01	17.84	35.67
47	46.4892	Naphthalene	1.23	21.81	43.62
50	48.3748	δ-Cadinene	1.407	1766.100	3532.200

*: above 1% of total area.

많았고 제주도원산 2종류는 엽록소 함량이 상대적으로 낮게 나타났다(Table 2).

제주 고산종의 경우 총 50개의 성분이 분석되었으며 그중 GC Chromatogram에 나타난 total area에서 1% 이상을 차지하는 것으로 15개의 주요성분 Methylene chloride, 1-Isopropyl-4-methylbicyclo[3.1.0]hex-2-ene, alpha-(+)-Pinene, Camphene, 1-Octen-3-ol, beta-Myrcene, alpha-Terpinene, Benzene, Limonene, gamma-Terpinene, icyclo[2.2.1]heptan-2-on, 2-methyl-5-(1-methylethyl)-2,5-zCyclohexadiene-1,4-dione, Borneol, Thymol, L-alpha-bornyl acetate, Carvacrol, Caryophyllene, Pentanamide, Naphthalene, delta-Cadinene 등이 분석되었다(Table 3).

제주 1000m 이하 중간산종의 경우 총62개의 성분이

분석되었으며 그중 total area에서 1% 이상을 차지하는 것으로 14개의 주요성분이 분석되었으며 thymo, p-Thymol의 상대적 함량은 8.38, 27.54%로 나타났으며 주요 성분은 gamma-Terpinene, Cyclohexene, Benzene, Caryophyllene, Cis-Sabinehydrate, Methylene Chloride, Alpha-Terpinene, alpha-Thujene, Naphthalene 등의 순으로 나타났다(Table 4).

울릉도 서식 품종의 경우 총41개의 성분이 분석되었으며 그중 total area에서 1% 이상을 차지하는 것으로 10개의 주요성분이 분석되었으며, Phenol은 13.489%를 차지하였고 그 농도는 999.368(μg/m³)이었다. 그 외 phenol 성분으로 Carvacrol, Thymol acetate가 각각 1.309, 1.035%로 상대적으로 전체 성분 중 낮은 비율을 차지한 것으로 나타났다. 그 외 gamma-

Table 4. The major compounds and its peak area (%) by TD-GC-MSD in *Thymus quinquecostatus* originated from middle land species in Jeju island.

Peak No.	Retention time (min)	Compounds*	Area (%)	Contents (ng)	Concentration (μg/m ³)
3	10.1051	Methylene Chloride	2.77	102.97	205.94
12	26.4567	α-Thujene	1.45	54.02	108.04
15	28.1623	1-Octen-3-ol	2.18	80.97	161.94
17	28.5559	β-Myrcene	2.06	211.48	422.96
23	30.0629	α-Terpinene	1.81	45.42	90.84
24	30.404	Benzene	5.82	215.78	431.56
28	31.5248	γ-Terpinene	12.13	801.37	1,602.74
29	32.1021	Cis-Sabinehydrate	3.19	118.39	236.79
41	38.9959	Thymol	8.38	310.46	620.93
42	39.4307	p-Thymol	27.53	1,020.10	2,040.20
44	41.6949	Carvacryl acetate	1.04	38.80	77.60
52	44.6713	Caryophyllene	4.71	174.54	349.08
57	46.4969	Naphthalene	1.65	61.30	122.60
58	46.9617	Cyclohexene	10.53	390.36	780.72

Table 5. The major compounds and its peak area (%) by TD-GC-MSD in *Thymus quinquecostatus* originated from Ulleung island.

Peak No.	Retention time (min)	Compounds	Area (%)	Contents (ng)	Concentration (μg/m ³)
3	10.1202	Methane, dichloro-	3.03	112.49	224.99
19	30.4154	p-Cymene	1.76	65.29	130.58
23	31.5362	δ-Terpinene	4.21	278.31	556.62
24	32.1135	Cis-Sabinehydrate	2.30	85.41	170.83
28	36.0121	BORNEOL L	1.15	42.69	85.39
32	39.0072	Phenol	13.48	499.68	999.36
33	39.4383	Carvacrol	1.30	48.50	97.01
34	41.0727	Thymol acetate	1.03	38.36	76.73
36	44.6827	Caryophyllene	3.46	128.17	256.35
40	46.9768	β-Bisabolene	1.93	71.50	143.00

*: above 1% of total area.

Table 6. The major compounds and its peak area (%) by TD-GC-MSD in *Thymus quinquecostatus* originated from Jeongseon in Gangwondo.

Peak No.	Retention time (min)	Compounds	Area (%)	Contents (ng)	Concentration ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)
2	10.1089	Methylene Chloride	1.75	65.05	130.10
14	28.5635	β -Myrcene	1.18	120.65	241.30
21	30.0666	α -Terpinene	1.22	30.50	61.00
22	30.4078	p-Cymene	1.92	71.18	142.36
26	31.5286	γ -Terpinene	8.83	583.53	1167.06
27	32.1022	Cis-Sabinehydrate	5.55	205.71	411.43
32	35.997	Borneol	1.89	133.76	267.53
36	39.4308	Carvacrol	19.20	711.53	1423.07
37	44.6713	Caryophyllene	2.20	81.66	163.32
40	46.9618	Cyclohexene	1.02	37.92	75.85

*: above 1% of total area.

Table 7. The major compounds and its peak area (%) by TD-GC-MSD in *Thymus quinquecostatus* originated from Gapyeong in Kyeonggido.

Peak No.	Retention time (min)	Compounds	Area (%)	Contents (ng)	Concentration ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)
3	10.1201	Dichloromethane	3.28	121.61	243.22
14	28.1735	1-Octen-3-ol	1.92	71.24	142.29
16	28.5709	β -Myrcene	1.13	116.04	232.09
23	30.0779	α -terpinene	1.15	28.86	57.72
24	30.419	Benzene	3.44	127.56	255.13
28	31.5398	γ -Terpinene	8.73	576.50	1153.01
29	32.1133	Cis-Sabinehydrate	1.89	70.12	140.24
31	32.6606	α -terpinolene	1.01	46.61	93.22
40	39.0071	Thymol	6.69	247.91	495.83
41	39.4382	Carvacrol	18.25	676.11	1352.23
45	44.6825	Caryophyllene	4.23	156.75	313.51
49	46.1295	Naphthalene	1.07	39.99	79.99
50	46.5081	α -Amorphene	1.43	52.97	105.94

Terpinene, Caryophyllene 등의 방향성 성분이 검출되었다(Table 5).

강원도 서식 품종의 경우 총41개의 성분이 분석되었으며 그중 total area에서 1% 이상을 차지하는 것으로 10개의 주요성분이 분석되었으며 Carvacrol이 19.208%로 나타났고, gamma-Terpinene이 8.837%, Cis-Sabinehydrate가 5.553%로 상대적으로 타 서식지역 백리향에 비해 높게 나타났다. 그 외 Borneol, Caryophyllene, beta-Myrcene, p-Cymene 등의 방향성 성분이 분석되었다(Table 6).

경기도 지역에 서식 품종의 경우 총54개의 성분이 분석되었으며 그중 total area에서 1% 이상을 차지하는 것으로 13개의 주요성분이 분석되었으며, thymol, Carvacrol은 6.69, 18.25%로 나타났고, 휘발성향기성분인 Terpinene의 경우 8.731%, Dichloromethane, caryo-

phyllene, Benzene은 3.28, 4.22, 3.43%로 각각 높게 나타났다. 그 외 1-Octen-3-ol, beta-Myrcene, alpha-Amorphene, Cis-Sabinehydrate, alpha-terpinolene 등이 분석되었다(Table 7).

우리나라에서 자생하고 있는 백리향의 성분을 분석 시 약38종의 성분이 확인되었는데 그중 thymol (39.8%), camphor(5.9%), bornyl acetate(4.0%)가 주 성분이었고, 섬백리향에서는 thymol(54.7%), carvacrol (3.2%) 등이 주성분으로 보고 되었다(Kim 등, 1994). 또한 추출용매에 따른 백리향을 휘발성향기 분석을 한 결과 향성분은 대부분 10개성분 이내로 검출되었으나 (Baik 등, 2009), 본 실험의 경우 TD-GC-MSD 성분 분석에서 정유의 성분은 제주도 해발 1000m 이상의 고산종, 제주도 서식 해발 1000m 이하 중간산종, 경기도, 울릉도, 강원도 서식종에서 각각 약 50, 62,

Table 8. TD-GC-MSD analysis of volatile aroma compounds and a quantitative comparison of regional thyme.

Region	Total volatile essential oil contents ($\mu\text{g}/\text{m}^3$)
Jeju high land	3532.20
Jeju middle land	7365.22
Gapyeong in Kyeonggido	4587.39
Ulleung island	2881.74
Jeongseon in Gangwondo	3854.59

54, 41, 41종의 성분이 확인되었고 thymol(phenol), carvacrol, gamma-Terpinene, borneol 같은 주요성분 외에 limonene, naphthalene, camphene 등의 향성분이 포함된 것으로 나타났으나 camphor는 5개 지역의 백리향에서 검출되지 않았다(Oh 등, 2009). 이러한 결과는 Song 등(2002)이 SPME법과 SDE법으로 추출하여 분석한 백리향의 향기성분에 나타난 주요 화합물인 trans-geraniol, citral 성분과도 조금 다른 경향을 보이고 있어 이는 백리향의 휘발성항기성분이 분석의 방법이나 식물의 지역에 따라 어느정도 차이를 보인 결과로 보인다. TD-GC-MSD 성분분석은 백리향의 휘발성 성분을 위주로 분석한 것으로 전체 성분 중 제주도 중간산종이 상대적으로 thymol과 phenol이 다른 휘발성분에 비해 35.92%로 높았고, 경기도, 강원도 서식종은 각각 24.94, 20.16%, 제주도 해발 1000m 이상 고산종과 울릉도 서식종은 각각 13.89, 15.89%로 나타났으며 휘발성 향기성분 총량에 있어서는 제주도 1000m 이하 중간산종이 상대적 높은 7365.22 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 으로 분석되었으며, 경기도, 강원도가 각각 4587.39, 3854.59 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 으로 높게 나타났다(Table 8).

이러한 결과를 통해 볼 때 백리향의 주성분이 thymol과 phenol을 이용한 방부제(Han, 1986) 및 항균활성, 항산화활성물질을 얻기 위한 식물 중 제주도 중간산종이 thymol과 phenol 함량, 휘발성 향기성분이 가장 높아 천연 방부제 개발 자원식물로 기대가 예상된다.

적 요

지역별로 자생하고 있는 백리향 지상부의 휘발성 향기 성분 및 방부성 물질인 phenols의 성분을 조사하기 위해 제주도 고산종, 제주도 중간산종, 경기도, 울

릉도, 강원도 서식종을 TD-GC-MSD로 분석한 결과 제주도 중간산종에서 상대적으로 높은 62종의 물질이 조사되었으며 함량도 7365.22 $\mu\text{g}/\text{m}^3$ 으로 높은 농도를 나타냈다. 또한 백리향의 휘발성 향기성분 중 제주도 중간산종이 다른 조사지역보다 상대적으로 thymol과 carvacrol의 phenol성 물질이 다른 휘발성분에 비해 35.92%로 높은 결과를 보였다.

주제어 : 시킵산, 엽록소, 정량분석, 페놀, 항산화활성

사 사

이 논문은 2008년도 정부(교육과학기술부)의 재원으로 한국연구재단의 지원을 받아 수행된 기초연구사업임(KRF-2008-313-F00032).

인 용 문 헌

1. Arnon, D.I. 1956. Chlorophyll absorption spectrum and quantitative determination. *Biochim. Biophys. Acta* 20:449-461.
2. Baik, J.A., Y.H. Baek, and M.H. Chiang. 2009. Phenol contents of solvent extraction in several domestic thymus quinquecostatus celak. *Journal of Bio-Environment Control* 18:468-474.
3. Choi, H.R. 2001. Antimicrobial and antioxidative activities of Korean and Western herbs. Seoul Women's Univ. Master thesis.
4. David, H. 1998. *Holistic Herbal*. Elements Books, California.
5. Han, D.Y. 1986. *Pharmacognosy*. Hakjangsa, Seoul.
6. Jeong, J.H. and H.B. Lim. 2005. The chemical composition and biological activities of volatile flavor components of *Elsholtzia splendens*. *Analytical Science & Technology* 18:500-510.
7. Kang, B.H. 2008. *A pictorial book of korean herb medicine resources*. GeoBook, Seoul.
8. Kim, Y.H., J.C. Lee, and Y.H. Choi. 1994. Essential oils of *Thymus quinquecostatus* Celacov. and *Thymus magnus* Nakai. *Kor. J. Med. CropSci.* 2:234-240.
9. Oh, T.H., S.S. Kim, W.J. Yoon, J.Y. Kim, E.J. Yang, N.H. Lee, and C.G. Hyun. 2009. Chemical composition and biological activities of Jeju *Thymus quinquecostatus* essential oils against *Propionibacterium* species inducing acne. *J. Gen. Appl. Microbiol.* 55:63-68.
10. Song, Y.E., C.S. Ku, S.P. Mun, D.H. Kim, J.S. Ryu, J.S. Choi, and Y.G. Choi. 2002. Volatile aroma compounds and their characteristics of Labiatae by solid -

- phase microextraction (SPME). Kor. J. Med. CropSci. 10:120-125.
11. Schratz, E. and H. Hörster. 1970. Composition of volatile oil from *Thymus vulgaris* and *Thymus marshallianus* depending on age of leaves and seasons. Planta Med. 19:160-176.
12. Woo, W.S. 1999. Method of medicinal chemistry & natural products. Sunbook, Seoul.