ダツタンそば (*Fagopyrum tataricum*) の 苦味の特徴とその除去

川上 晃*・茅原 紘**・氏原暉男**

Properties and Elimination of Bitter Components Derived from Tartary Buckwheat (*Fagopyrum tataricum*) Flour

Akira KAWAKAMI*, Hiroshi KAYAHARA** and Akio UJIHARA**

* Trading & Researching Section, Takano Company, 137,
Miyatamura, Kamiina, Nagano 399-43

** Faculty of Agricultural Science, Shinshu University, 8304,
Minamiminowa, Kamiina, Nagano 399-45

Tartary buckwheat (*Fagopyrum tataricum*), a species of edible buckwheats, is commonly taken as a diet in eastern Asian countries. Tartary buckwheat contains highly rutin, and has been found to lower one's blood pressure, but its characteristic bitter taste prevents it from using as a diet in Japan. Therefore, in an attempt to use tartary buckwheat as a desirable food additive available for improving hypertension, the elimination of bitterness from tartary buckwheat flours was investigated. It was revealed through sensory analysis that bitter components which mainly located outside the grain could be extracted from tartary buckwheat flour with 75% (v/v) aqueous ethanol solution. As the bitter components, three compounds, quercetin, uncertain bitter compound F 3 and F 4 were isolated. These components were easily eliminated by washing the flour with 75% (v/v) aqueous ethanol solution. Furthermore, the production of quercetin and uncertain bitter compound F3 were prevented by heating the flour at more than 70°C. Because these treatments didn't decrease the rutin content, bitterness free tartary buckwheat flour obtained was expected to be useful for a material of physiologically functional food available for improving hypertension. (Received Dec. 15, 1994)

日々摂取する食品中、そばは強いアンジオテンシンⅠ変換酵素阻害能を示し¹⁾、阻害物質が単離・構造決定された²⁾。さらに、そばは血圧降下作用が報告されたルチン³⁾⁴⁾が多く含まれていることから、高血圧に有効な素材の提供が期待できる。そばには、我々が日々食している普通そば (*Fagopyrum esculentum*) と、主に東アジア諸国で食されているダツタンそば (*F. tataricum*) が知られている。両そば種子に含まれる栄養成分の類似性が指摘されており⁵⁾⁶⁾、特にタンパク質は他の穀類のタンパク質に比べ高リジン、高生物価など栄養学的な優位さが指摘されている⁷⁾。ダツタンそばは普通そばに比べ種

子中のルチン含有量が多く、食品中でもルチンを多く含む素材の一つである⁸⁾。しかし、ダツタンそばは特有の苦味を有するため本邦では食されておらず、僅かに加工原料として用いられているにすぎない⁹⁾。ダツタンそばの苦味を除去できれば、その豊富なルチンや栄養価の高いタンパク質を利用でき、機能性食品素材としても有望であると考えられる。以上の理由から、ダツタンそばの苦味成分の性質を調べ、ルチンを損ねることなく苦味を除去する方法を考察することで、ダツタンそばのルチン利用を中心とした機能性食品素材の開発を試みた。

* タカノ株式会社 (〒399-43 長野県上伊那郡宮田村 137)

** 信州大学農学部 (〒399-45 長野県上伊那郡南箕輪村 8304)

実験方法

1. 実験材料

(1) そば粉

そばとして、1992年長野県産ダットンそば（苦そば：tartary buckwheat）と1993年産普通そば（玄そば：common buckwheat）を用いた。ダットンそば完熟種子を小型粉砕器（柴田製作所製 SCM-40 A）にて粉砕し、粉砕時間ごとに1番粉（粉砕初期、種子質量の50%；T1）、2番粉（粉砕中期、種子質量の25%；T2）、3番粉（粉砕末期、種子質量の10%；T3）に分割した。種子中の組織の柔らかさの差から、1・2番粉には胚や胚乳など種子の中心部が、3番粉には種子周辺部および殻の一部が含まれている¹⁰⁾。普通そばは、脱殻した後の全実粉（Eall）を用いた。そば粉は粉砕後、密閉容器中で4℃で遮光保存した。

(2) 試薬

呈味試験における苦味標準物質として、カフェインを用いた。そば粉抽出液中のルチン・ケルセチンの分析に、ルチン3水和物、ケルセチン・2水和物を標品として用いた。タンニンの分析に酒石酸ナトリウムカリウム、硫酸鉄（II）・7水和物、標準物質として没食子酸エチルを用いた。そば粉の洗浄にアセトン・エタノール、HPLC 溶離液にメタノール・アセトニトリル・酢酸を用いた。試薬や溶媒は全て和光純薬工業（株）製の最高純度の試薬を用いた。緩衝液の作製、HPLC およびカラムの溶離液など、用いた水は全て脱イオン蒸留水を用いた。

2. 薄層クロマトグラフィー（TLC）分析

Whatman KC₁₈F 逆層 TLC plate F 254（フナコシ（株）製）、250×20 mm を用いた。展開液には75%（v/v）エタノール水溶液を用い、UV 360 nm、254 nm における蛍光発色により分析を行った。

3. 高速液体クロマトグラフィー（HPLC）分析

以下の溶離条件で分析を行った。HPLC、東ソー SC 8010；分析カラム、東ソー TSK gel-G 2000 SW_{XL}10×300 mm、30℃、UV 210 nm；溶離液、0.5%（w/v）食塩水、流速 0.5 ml/min。

4. 呈味試験及び苦味の閾値評価

5人〔男性4名（27・24・22・22歳）、女性1名（23歳）〕のボランティア（パネラー）による官能試験により苦味強度を測定した。苦味標準溶液（1 mM カフェイン水溶液、Sst）、蒸留水（Sdi）、被試験溶液（Ssam）の苦味強度を盲検下にて比較した。各パネラー毎に苦味スコ

ア（感じた苦味強度が Ssam > Sst > Sdi の時3ポイント、Sst = Ssam > Sdi の時2ポイント、Sst > Ssam > Sdi の時1ポイント、以外は全て得点なしとして算出した。各パネラーのスコア値を用いて Mann-Whitney の有意差検定¹¹⁾を行った。Ssam における各パネラーの苦味スコア群と、Sdi を Ssam のかわりに用いた時の苦味スコア群間の有意差を検定し、苦味の棄却判定を行った。Ssam が苦味を呈した場合、さらに Ssam を蒸留水にて希釈し、再度 Sst・Sdi との盲検比較を行った。以降、Ssam の苦味が棄却されるまでの希釈操作を繰り返した。苦味が棄却された時の被試験溶液の希釈倍数から、閾値（TV 値）を求めた¹²⁾。

5. ルチン・ケルセチン・タンニンの定量

ダットンそばの洗浄処理液中に溶出されるルチンの量を、小原らの方法¹³⁾に従って HPLC にて測定した。以下に溶離条件を示す。HPLC、東ソー SC 8010；分析カラム、GL Science 社製 Nucleosil 100-7 C₁₈、6×250 mm、30℃、UV 350 nm；溶離液、2.5%（v/v）酢酸、メタノール、アセトニトリル = 35：5：10（v/v）、流速 1.0 ml/min。さらにそば洗浄液中のケルセチンの量を 360 nm の吸光度¹³⁾により測定した。また、タンニン含量を没食子酸エチルを標準サンプルとして酒石酸鉄法¹⁴⁾により分析した。

実験結果

1. ダットンそばの苦味強度と苦味の性質

ダットンそば粉（T1～T3）および普通そば粉（Eall）50 mg を、蒸留水 5 ml に懸濁して呈味試験に用いた。結果を Table 1 に示す。呈味試験の結果、ダットンそば3番粉；T3 より得られた苦味の閾値は 156 mg-そば粉/l と低く、ダットンそば種子外辺部に強い苦味が感じられた。一方、ダットンそばの1番粉；T1（種子中心部）は苦味を呈さないことがわかった。ダットンそば粉を水に懸濁して含んだ場合、苦味は 30 sec（以下 s）～1 min 後に渋味を伴って感じ、2 min 以上まで渋味が継続した。一方そば粉だけを口に含んだ場合、10～20 s 後に強い苦味を感じ、1～2 min まで継続した。

2. 溶媒洗浄による苦味除去効果

エタノール水溶液（エタノール：25・50・75・100%（v/v）含有）およびアセトン水溶液（アセトン：25・50・75・100%（v/v）含有）を用いて、それらの溶媒によるダットンそば粉からの苦味の除去効果を調べた。ダットンそば2番粉；T2、1 g に上記溶媒 10 ml を加え、室温・12 h 攪拌した。遠心分離後（8000×g、20

min), 沈殿物を通風乾燥 (室温, 24 h) して洗浄済みそば粉とした。一方, 上澄み 5 ml を 30°C で減圧濃縮後, 蒸留水 5 ml を加えて懸濁液とした。洗浄済みそば粉・懸濁液の苦味強度について, 口中含んだ直後および 90 s 後の呈味を Table 2 に示す。エタノールまたはアセト

ン水溶液中, 特に 75% (v/v) 含有水溶液によるダッタンそば粉洗浄処理で, 呈味試験直後に感じる苦味を低減できることがわかった。一方, これらの溶液による洗浄操作後も, 1~2 min 後に感じる渋味を伴った苦味は除去できず, 処理済みそば粉中に残留した。このことから

Table 1 Results of sensory analyses of buckwheat flours and their components

Flours examined	Sum of the bitterness scores of 5 panels* ¹									T.V. g/l
	Powder intakes	Suspended in distilled water (diluting)								
		10 mg/dose.	10 mg/ml	×2	×2	×2	×2	×2	×2	
Tartary buckwheat										
T 1	2	2	0							no
T 2	8* ²	10	8	8	2	0				2.5
T 3	15	15	15	15	13	8	4	0		0.156
Common buckwheat										
Eall	2	3	0							10.0
Rutin	2	1	0							no
Quercetin	10	8	5	4	3	1	0			1.25* ³

*¹: Bitterness score (bitterness intensity, sample > standard (3 pt), sample = standard (2 pt), standard > sample (1 pt), and no bitterness (0 pt)). These values were obtained by adding all the individual bitterness scores.

*²: These bold shaped scores indicates P(0.05) significant concentrations in Mann-Whitney tests.

*³: The threshold value of quercetin could not estimated correctly because of it's less solubility in water and uncertain bitterness property.

Table 2 The effects of washing treatment on elimination of bitterness from tartary buckwheat flours

Composition of washing solvents (by vol.)			Threshold value of bitterness (mg-flour/ml)			
			Treated flours		Supernatants	
DW* ¹	acetone	ethanol	Immediate	90 s after	Immediate	90 s after
100	0	0	5.0	2.5	10.0	no
75	25	0	10.0	5.0	10.0	no
50	50	0	10.0	5.0	10.0	no
25	75	0	no	5.0	2.5	10.0
0	100	0	1.3	1.3	no	no
75	0	25	10.0	5.0	no	no
50	0	50	5.0	5.0	5.0	no
25	0	75	no	10.0	1.3	no
0	0	100	1.3	5.0	10.0	no
Untreated flour (T2)			1.3~2.5			

*¹: DW; distilled water. Tartary buckwheat flour (T 2), 1 g, was washed with each solvent (10 ml) for 12 h at room temperature. After centrifugation, the sediment and the supernatant were submitted to sensory evaluation after drying separately.

ダツタンそば中には、種類の異なった二つの苦味成分、エタノールまたはアセトン水溶液に可溶な苦味成分と、それらの有機溶媒で除去できない苦味成分の存在が示唆された。

3. 苦味成分の単離

(1) ケルセチンの単離

ダツタンそば粉（全粉）1 kg にアセトン（1 l）を加えて、4℃にて一晩攪拌した。遠心分離後（8 000×g, 20 min）、沈殿物に 75% エタノール水溶液（1 l）を加え、4℃にて 48 h 攪拌した。吸引過後、ろ液を 30℃にて減圧濃縮し黄色オイル状の残渣を得た。この残渣に蒸留水 200 ml を加え攪拌後、4℃にて 4 h 放置し、遠心分離（8 000×g, 20 min）にて沈殿物を集めた。この沈殿物を非加熱下で凍結乾燥させ、黄色粉末（3.6 g）を得た。得られた黄色粉末を呈味試験に用いたところ、苦味を呈した。この黄色粉末を TLC にて分析したところ、単一スポットであった。Fig. 1 に、得られた黄色粉末とケルセチンの IR スペクトルを載せた。双方のスペクトルが一致したことにより、ダツタンそば粉よりエタノールまたはアセトン水溶液により除去された苦味成分の一つが、ケルセチンであることがわかった。

(2) 水溶性苦味成分 F3 の単離

(1) の 75% (v/v) エタノール水溶液抽出物において、ケルセチン沈殿後の上澄み溶液を呈味試験したところ、淡味を伴った苦味を呈した。そこで、その上澄み中に含まれる苦味成分の単離精製を試みた。上澄み液を 30℃にて減圧濃縮後、残渣を凍結乾燥して褐色の苦味成分粉

末 1.5 g を得た。この褐色粉末を、ゲルろ過カラム（Sephadex G-15 (φ 20×300 mm)、溶出：蒸留水）にて分画した。Fig. 2 に各溶出画分の 210 nm における吸光度を示した。この分画毎に呈味試験を行ったところ、画分 F3 に苦味を認めた。さらに F3 溶出後アセトニトリルで濃度勾配をかけて、別の苦味画分 F4 を得た。苦味画分 F3 は強い苦味を感じた後、2 min まで淡味を伴った苦味が継続した。一方、F4 は含んだ直後、苦味を呈したが 1 min 以上苦味は持続しなかった。

4. そば粉中の苦味成分 F3 の所在

ダツタンそば粉（T1～T3）および普通そば粉（Eall）の 75% (v/v) エタノール水溶液抽出物について、HPLC によるゲルろ過カラム分析を行った。結果を Fig. 3 に示す。苦味成分 F3 は単一ピークとして得られた。さらに、該当するピークが普通そば抽出物中に検出されないことから、F3 はダツタンそば種子に特有の物質であることがわかった。また、F3 は種子中の外辺部（3 番粉）に多く含まれ、内部（1 番粉）には僅かしか含まれないことがわかった。一方、苦味画分 F4 中には多くの微量成分のピークが認められた。

5. ダツタンそば水抽出液中における F3 生成量の経時変化

F3 は水に可溶である。ところが、ダツタンそば粉を蒸留水で洗浄した直後、洗浄液中に F3 を検出できなかった。そこでダツタンそばの蒸留水抽出液を一定温度で放置し、F3 生成量の経時変化を調べた。結果を Fig. 4 に示す。F3 は水中で時間の経過とともに増加し、8～

Fig. 1 Infrared absorption (IR) spectra of the isolated bitter component from tartary buckwheat

Yellow powder, upper (A) and quercetin lower, (B).

Fig. 2 Isolation of the bitter components F3 and F4 from the extracts of tartary buckwheat flour by gel filtration

Aqueous ethanol solution (75% (v/v)) was used for preparation of the extracts.

Column, Sephadex G-15 (20 φ×300 mm); eluted, distilled water.

Fig. 3 HPLC analyses of bitter components in fraction No. 3 (F 3), No. 4 (F 4) and of the extracts of tartary buckwheat (T 1-T 3) and common buckwheat (Eall) flours

HPLC condition ; (TOSOH TSKgel-G 2 000_{sw}), UV 210 nm. Black-lacquered area shows bitterness components.

Fig. 4 Relation between incubation time and the production of bitter component F 3 in aqueous extract of tartary buckwheat

Tartary buckwheat flour (T 2, 100 mg) was suspended into 1 ml of water and was shaken for 20 s. Then the supernatant (200 μ l) was obtained by centrifugation (5 200 $\times$ g, 5 min), and was incubated at 20°C.

HPLC conditions ; See Fig. 3.

12 h で生成が平衡に達することがわかった。

6. 苦味物質 F 3 の生成量と温度の関係

ダツタンそば粉の蒸留抽出液を 10~80°C の温度で放置した。各液に含まれる F 3 の生成量を HPLC で分析し

た。結果を Fig. 5 に示す。F 3 の生成は 20~60°C で進行し、70°C 以上では起こらないことがわかった。(Fig. 5 中○印)。さらに各設定温度で洗浄液を静置した後、F 3 の生成に適する温度 (25°C) で続けて静置した時の F 3 生成量を調べた (Fig. 5 中●印)。その結果、洗浄液を 70°C 以上に加熱すると、F 3 は生成しなくなることがわかった。

7. ケルセチン・タンニンの溶媒洗浄による除去およびルチンの動向

ダツタンそば粉 (T 2, 0.5 g) にアセトン水溶液およびエタノール水溶液 (40ml) を加え、4°C・1 h 攪拌した。遠心分離後 (5 200 $\times$ g, 10 min), 上澄み中に含まれるケルセチン量 (洗浄液の UV 360 nm の吸光度) を Fig. 6 に、タンニン量¹⁴⁾ を Fig. 7 に示した。HPLC によるルチン分析¹³⁾ の結果、これらの洗浄液中のルチンは微量しか検出されなかった。一方、75% (v/v) エタノールおよび 75% (v/v) アセトン水溶液にケルセチンは抽出され易く、さらにタンニンも抽出されやすいことが確認された。エタノール水溶液はアセトン水溶液に比べ、ケルセチンやタンニンの抽出に効果的であることがわかった。

Fig. 5 Relation between incubation temperature and the production of bitter component F 3 in aqueous extract of tartary buckwheat

Tartary buckwheat flour (T2 100 mg) was suspended into 1 ml of water and was shaken for 20 s. Then the supernatant (200 μ l) was obtained by centrifugation (5 200 $\times$ g, 5 min), and was incubated at indicated temperatures for 1 h, [—○—]. Further incubation was continued at 25°C for 6 h, [—●—].

Fig. 6 Relation between the eliminated quercetin concentration and the ratios of organic solvents in washing solutions

Quercetin concentration was estimated by UV absorbance values at 360 nm.

—○—, Aqueous acetone solution ;
—●—, Aqueous ethanol solution.

Fig. 7 Relation between the eliminated tannin concentration and the ratios of organic solvents in washing solutions

—○—, Aqueous acetone solution ;
—●—, Aqueous ethanol solution.

考 察

ダッタンそば粉中には、アセトン水溶液やエタノール水溶液に可溶性苦味成分 (a) と、水に可溶で渋味を伴った苦味を呈する成分 (b) の、二つの苦味成分の存在が示唆された。ダッタンそば粉を直接口に含んだ場合感じる強い苦味は水に難溶性の成分 (a) に、また水懸濁時に感じる渋味を伴った苦味は (b) に起因すると考えられた。機器分析の結果、苦味成分 (a) の主成分はケルセチンであることを明らかにした。今回のアセトン水溶液およびエタノール水溶液、特に 75% (v/v) エタノール水溶液によるダッタンそば粉の洗浄処理によって、苦味の原因となるケルセチンを取り除くことができた。さらにそばタンパク質の消化吸収性を妨げる原因の一つとされているタンニン類も⁵⁾、同一処理で除去できることから、この 75% (v/v) エタノール水溶液によるダッタンそば粉の洗浄処理は、ダッタンそばの苦味除去および消化吸収性の改善に有効であると考えられた。苦味成分 (b) については、ダッタンそば粉の 75% (v/v) エタノール水溶液抽出物の蒸留水可溶画分より、F3 を単離した。苦味成分 F3 は今回構造決定には至っていない。この苦味成分 F3 はダッタンそば粉に蒸留水を加えた直後から、時間の経過に伴って生成する。その生成には至適温度域が存在し、70℃ 以上に加熱処理すれば F3 の生成を止められることがわかった。ここで、F3 の生成に至適温度領域が存在することや、加熱により F3 の生成が止まることなどから、F3 の生成に酵素の関与が示唆された。ダッタンそば粉において、ルチン分解酵素によりルチンは速やかに加水分解され、苦味物質であるケルセチンを生じる。このルチン分解酵素は、70℃ 以上の加熱処理により失活するため^{15) 16)}、ルチン分解酵素を失活させる加熱処理は、そば粉中のルチンの保持だけでなく、ケルセチンや F3 に由来する苦味の生成抑制にも有効であると考えられた。ダッタンそば粉を用いた呈味試験の結果、1 番粉は苦味を呈さなかった。そば種子中のルチンおよびケルセチンの分布を調べた報告では、ルチンは種子外辺部に多く存在し⁸⁾、ルチン分解酵素活性も外辺部の方が高いとされている¹⁵⁾。ルチンの加水分解により苦味物質ケルセチンが生じるため、外辺部はケルセチンに由来する苦味をより強く呈すると考えられた。呈味試験の結果は、これらの考察を支持するものと考えられる。さらに、ダッタンそば中心部 (1 番粉) から生成する苦味物質 F3 は僅かであるため、苦味を伴わないダッタンそば粉の作製には、ダッタンそば種子の 1 番粉を用いれば良い

ことがわかった。反面、血圧降下作用の因子となるルチンは種子外部に多く含まれるため、ルチンを利用するためには、1番粉は適当ではないと考えられる。一方、70℃以上の加熱処理および75% (v/v) エタノール水溶液による洗浄処理を加えたダッタンそば粉は、ルチン利用および苦味の除去の観点から有用と考えられる。最後に、この加熱処理や溶媒による洗浄処理によって、同時に損なわれる可能性が高い“そば”としての風味を、いかに維持するかは今後の課題である。

要 約

ダッタンそば粉中の苦味成分の特性および除去方法を検討した。その結果、ダッタンそばを苦味のない食材として利用するためには(1)1番粉を利用する。(2)エタノール水溶液、アセトン水溶液(特に75% (v/v) エタノール水溶液)による洗浄を行う。(3)ダッタンそば粉を70℃以上に加熱処理する。以上の方法が有効であることがわかった。ここで、ルチンの摂取を目的としてダッタンそば粉を摂取する場合、ルチン含有量の少ない1番粉は適さないと考えられる。そのためダッタンそば粉に(2)・(3)の処理を加えるのが苦味除去に有効であると思われた。明らかにした苦味成分のうち、ケルセチンはルチンの加水分解によって生じる。この加水分解反応を防ぐのに有効とされる70℃以上の加熱処理は、苦味物質ケルセチンやF3の産生も防ぐため、苦味除去の観点からも有用である。75% (v/v) エタノール水溶液による洗浄処理ではルチンは損なわれず、ケルセチンとタンニンのみを除去可能である。そばタンニンは、タンパク質の消化吸收を妨げる原因となると考えられており、その除去はそばの消化吸収性の促進につながると考えられる。最後に、ダッタンそばの苦味成分としてケルセチンおよびF3の存在を明らかにした。しかしながら、F3の構造や別の苦味画分F4の諸物性について、今後の研究の進展を期待している。

文 献

- 1) 鈴木建夫・石川宣子・目黒 熙: 農化, **57**, 1143 (1983).
- 2) 小山文彦・中村由美夫: 日特公, 平5-97798 (1993).
- 3) MATSUBARA, Y., KUMANOTO, H., IIZUKA, Y., MURAKAMI, T., OKAMOTO, K., MIYAKE, H. and YOKOI, K.: *Agric. Biol. Chem.*, **49**, 909 (1985).
- 4) 岩田多子・三輪里見・稲山貴代・佐々木弘子・添田貫四郎・菅原龍幸: 女子栄養大学紀要, **21**, 55 (1990).
- 5) JAVORNIK, B.: *Proceeding of 2nd International Symposium of Buckwheat*, p. 199, Miyazaki (1983).
- 6) 川上 晃・茅原 紘・只左弘治・氏原暉男: 日食工誌, **41**, 481 (1994).
- 7) KUSANO, T., NAKAYAMA, N., DOI, J., KIYAMASA, Y., CHINE, H. and IKEDA, K.: *Proceeding of 5th International Symposium of Buckwheat*, p. 453, Taiyuan (1992).
- 8) 鈴木建夫・桜田尚子・目黒 熙・鈴木彦市・坂上孝彦・氏原暉男: *New Food Industry*, **29** (6), 29 (1987).
- 9) 氏原暉男: *New Food Industry*, **36** (5), 11 (1994).
- 10) 曾田武富・加藤潤子・桐淵滋雄・青木 宏: 日食工誌, **28**, 297 (1981).
- 11) 市原清志: *バイオサイエンスの統計学*, 第3版(南江堂出版, 東京), p. 90 (1991).
- 12) ISHIBASHI, N., KUDO, T., CHINO, M., FUKUI, H., SHINODA, I., KIKUCHI, E., OKAI, H. and FUKUI, S.: *Agric. Biol. Chem.*, **52**, 95 (1988).
- 13) 小原忠彦・大日方洋・松村信之・松橋鉄治郎: 日食工誌, **36**, 114 (1989).
- 14) 岩浅 潔・鳥井秀一: 茶業研究報告, **19**, 104 (1962).
- 15) 小原忠彦・大日方洋・松村信之・大池昶威・松橋鉄治郎: 日食工誌, **36**, 121 (1989).
- 16) 安田俊隆・正木和好・柏木隆史: 日食工誌, **39**, 994 (1992).

(平成6年12月15日受理)