化学成分によるワインの類別

清水理通・青柳尚徳・柴崎茂郎・井上 浩・大塚謙一
(三楽株式会社酒類研究所)

昭和 60 年 2 月 7 日受理

Classification of Wines by Their Chemical Components Significance of Chemical Components in Wine (Part 2)

Masamichi SHIMIZU, Naonori AOYAGI, Shigero SHIBASAKI,
Hiroshi INOUE and Ken-ichi OTSUKA
(Research Laboratories of Alcoholic Beverages, Sanraku Inc.,
Fujisawa, Kanagawa-ken)

Chemical analysis of twenty-five common components were carried out on forty-six white and thirty-three red domestic table wines, twelve white and twelve red Bordeaux A. C. wines and twelve white and eleven red Burgundy A. C. wines which were available on the market.

Principal component analysis were applied to the correlation matrixes of analytical data of white and red wine respectively.

As to white wines, the cumulative communality up to the eighth principal component (PC) was 81.7%. Burgundy wines were separated from domestic and Bordeaux wines group along the first PC related to pyroglutamic acid, total nitrogen and lactic acid and the fourth PC related to total phenols. Domestic wines were separated from French wines along the seventh PC related to glycerol and the eighth PC related to glucose.

As to red wines, six PCs were extracted. The cumulative communality attained 80.4%. The wines were divided into domestic wine, Bordeaux wine and Burgundy wine groups along the second PC related to glucose, total nitrogen, pyroglutamic acid and higher alcohols and the third PC related to intensity and tint (hue) of color of wine.

Key words: 国産・フランス産・主成分分析

緒 言

E. PEYNAUD¹⁾ はブドウの成熟、ワインの醸造、熟成や処理の過程で起る様々な現象を理解するのにワインの化学成分、組成についての研究が不可欠であると述べている。

ワインの成分の分析について Williams²⁾ によれば 1950 年代以降液体クロマトグラフィーの発達により主として味に関係する糖類など非揮発性成分について容易に情報が得られるようになり、60 年代にはガスクロマトグラフィー (GC)、70 年代には GC-質量分析計のシステムの利用により分析同定されるワインの香気に関係する揮発成分の数は飛躍的に増加している。

これらの微量分析技術から多量に得られる分析情報のワインにおける化学成分の意義 (第 2 報)

中から食品や飲料の官能上の特異的な性質に対応する成分を明らかにするのに多変量解析技術が有力な方法であるとされている³⁾。

官能検査ではその香味の相違から比較的容易に識別出来るワインの原料ブドウ品種、産地や醸造法などの違いを成分の面から明らかにするため化学成分によるワインの分類の研究が行なわれている^{4~8)}。

我国では大塚ら⁹⁾のシェリー酒のタイプと成分の関係について、篠原、渡辺ら¹⁰⁾の市販国産ワインと外国産ワインにつき、これらの主要揮発成分相互の関係、醸造法と揮発成分の関係について因子分析法を用いた研究などの報告がある。

著者らは市販国産ワイン (白 46 点, 赤 33 点) とフランス産ワイン (白 24 点, 赤 23 点) の一般的な成分について分析し、その結果について主成分分析を行な

い、成分による国産ワインとフランス産ワインの差別が可能であるという結果を得た。本報では国産ワインとフランス産ワインの相違をもたらす成分とそれらの成分の由来について述べる。

実験方法

1. 試料：白ワイン 720 ml 詰で市価 700～6,000 円, 1,800 ml 詰で 1,220～1,430 円の国産ワイン 46 点および 750 ml 詰で市価 1,500～30,000 円のフランス産ワイン 24 点 (ボルドー産 AC 級 12 点, ブルゴーニュ産 AC 級 12 点) の計 70 点のワインを購入し試料とした。

赤ワイン 720 ml 詰で市価 700～5,000 円, 1,800 ml 詰で 1,220～1,430 円の国産ワイン 33 点および 750 ml 詰で市価 1,200～25,000 円のフランス産ワイン 23 点 (ボルドー産 AC 級 12 点, ブルゴーニュ産 AC 級 11 点) の計 56 点のワインを購入し試料とした。(価格は白, 赤ワインとも昭和 57 年当時)

2. 分析：白ワインの色度は分光光度計 (島津 UV 150-02 型) により, 10 mm のセルを用い 430 nm で測定した OD 値を, 色調は 370 nm の OD 値と 430 nm の OD 値の比を用いた。赤ワインの色度, 色調は OIV の分析法¹¹⁾に従い測定した。pH は pH メーター (東亜電波 HM-20 B) で測定した。総酸度は OIV の分析法に従い pH 7.0 までの滴定値を酒石酸に換算した値を用いた。酒石酸, リンゴ酸, 乳酸, コハク酸, ピログルタミン酸, グルクロン酸および酢酸は高速液体クロマトグラフ (島津 LC 3 型) で定量した。この際, 試料を活性炭で前処理した。なお, コハク酸のピークは未知の成分を含有している¹²⁾が本報ではこのピークをコハク酸として計算した。揮発酸は水蒸気蒸留法¹³⁾で, 酢酸エチル, *n*-プロピル, *i*-ブチルおよび *i*-アミルアルコールはガスクロマトグラフ (日立 163 型) で *n*-ブタノールを内部標準として定量した。*n*-プロピル, *i*-ブチルおよび *i*-アミルアルコールの合計量を高級アルコールとして表わした。グルコース, フラクトースおよびグリセリンは高速液体クロマトグラフで試料を島津らの方法¹⁴⁾で前処理し定量した。プロリンを比色法¹⁵⁾で, 全窒素をケルダール法¹⁶⁾で定量した。カリウムは炎光法で, マグネシウム, カルシウム, 鉄および銅は原子吸光法で原子吸光分光光度計 (日本ジャーレルアッシュ AA-780) で分析定量した。総フェノールは比色法¹⁷⁾で定量し, 没食子酸として表わした。

3. 主成分分析：25 項目の分析値を変数として相関行列を計算し, これについて主成分分析を行った。固有値が 1 以上の主成分をバリマックス法で回転した。計算

は国税庁醸造試験所のコンピューター (日立 Hitac 10) と主成分分析プログラムを借用して行った。

結果と考察

白ワイン

1. 成分分析：国産ワイン 46 点, フランス産ボルドー産白ワイン 12 点およびブルゴーニュ産白ワイン 12 点の分析値の平均値と標準偏差を第 1 表に示した。

ワインの色度はブルゴーニュ産ワインが最も濃く, 国産ワイン, ボルドー産ワインの色は同じ程度で淡かった。総酸度は国産ワインよりフランス産ワインの方がかなり高く, とりわけブルゴーニュ産ワインは高い酸度を示し, 酒石酸も多かった。リンゴ酸はボルドー産ワインに最も多く, ブルゴーニュ産ワインはリンゴ酸が最も少く乳酸は最も多かった。大塚らの式¹⁸⁾で計算した MLF 化率を第 2 表に示した。ブルゴーニュ産ワインの MLF 化率は高く, マロラクチック発酵を起していることがわかった。酢酸エチルはフランス産ワインに多かった。ブルゴーニュ産ワインはプロリン, 全窒素, 総フェノールが多い。特にプロリンは KLIEWER¹⁹⁾によればシャルドネ種に多く, ソービニオン種, セミヨン種に少ないことからブドウ品種ないし果汁成分の特徴を表わしているものと思われる。ボルドー産ワインには高級アルコールおよびグリセリンが多かった。篠原ら²⁰⁾によればセミヨン種

第 1 表 白ワインの成分分析結果

項 目	国産ワイン		ボルドー産 ワイン		ブルゴーニュ 産ワイン	
	平均値	標準 偏差	平均値	標準 偏差	平均値	標準 偏差
色 度	0.08	0.03	0.08	0.03	0.12	0.03
色 調	1.25	0.38	1.55	0.27	1.59	0.28
pH	3.22	0.14	3.18	0.09	3.18	0.10
総 酸 度 (g/l)	5.58	0.55	6.28	0.52	6.98	1.02
酒 石 酸 (〃)	1.38	0.36	1.93	0.39	2.80	0.57
リ ン ゴ 酸 (〃)	1.61	0.63	2.38	0.77	0.88	0.72
乳 酸 (〃)	0.50	0.28	0.56	0.46	2.70	0.80
酢 酸 (〃)	0.23	0.05	0.29	0.09	0.31	0.08
コ ハ ク 酸 (〃)	1.97	0.64	3.59	0.59	6.64	0.58
ピログルタミン酸 (〃)	0.05	0.03	0.02	0.01	0.13	0.07
グルクロン酸 (〃)	0.33	0.10	0.31	0.13	0.16	0.06
揮 発 酸 (〃)	0.62	0.08	0.50	0.20	0.54	0.09
プ ロ リ ン (〃)	0.43	0.10	0.35	0.12	0.72	0.19
全 窒 素 (mg/l)	196	64	158	48	392	65
グ ル コ ー ス (g/l)	4.31	2.87	0.73	0.38	0.44	0.11
フ ラ ク ト ー ス (〃)	7.72	4.64	1.25	0.79	0.65	0.16
グ リ セ リ ン (〃)	5.76	0.70	6.91	1.37	6.50	0.90
高級アルコール (mg/l)	301	86	464	116	336	77
酢 酸 エ チ ル (〃)	44	10.6	51	36	59	33
銅 (〃)	0.17	0.08	0.44	0.34	0.39	0.28
鉄 (〃)	4.10	1.80	4.70	1.80	5.20	1.90
マグネシウム (〃)	62	9	58	6	75	7
カルシウム (〃)	94	11	92	13	74	12
カ リ ウ ム (g/l)	0.62	0.12	0.75	0.19	0.70	0.15
総 フェ ノ ー ル (〃)	0.25	0.03	0.21	0.04	0.27	0.05

第2表 白ワインの MLF 化率

ワ イ ン	MLF 化 率	
	平 均 値	標 準 偏 差
国 産 ワ イ ン	31.9%	15.0
ボ ル ド ー 産 ワ イ ン	25.9%	21.7
ブ ル ゴ ー ニ ュ 産 ワ イ ン	81.5%	16.4

は高級アルコール生成量の多い方であり、生成条件の一つに 20℃ ないしそれ以上の発酵温度をあげており、また乙黒ら²¹⁾はグリセリンの生成条件として高い発酵温度をあげており、これらの成分の含量はボルドー産ワインのブドウ品種、発酵条件の特徴を示しているものと思われる。国産ワインはグルコース、フラクトースが多く、フランス産ワインよりやや甘口であることを示している。

2. 主成分分析：第3表に 25 の分析項目の相関行列を示した。また第4表に主成分分析から求めた各主成分の固有値、累積寄与率および高い因子負荷量をもつ成分とその負荷量を示した。第8主成分までの累積寄与率は 81.7% であった。

第1主成分（寄与率 31.3%）ではピログルタミン酸、全窒素および乳酸の因子負荷量が大きく、この主成分は果汁の成分とマロラクチック発酵に関するものであった。

第2主成分（11.8%）には酢酸エチルが高い相関を示しており、フランス産ワインに多いことから篠原ら²⁰⁾の酸化的発酵条件を意味するものと思われる。

第3主成分（9.8%）にはワインの色が、第4主成分（9.3%）にはフェノール成分が高い負荷量をもっていた。第5主成分（6.1%）には揮発酸と負荷量は小さいが酢酸が相関しており、揮発酸を意味する主成分であった。

第6主成分（5.3%）には pH と負荷量はやや小さいが総酸、酒石酸が相関しており酸度に関係する主成分で

第4表 白ワインの主成分分析

主成分	固有値	累積寄与率	因 子 負 荷 量
1	7.83	31.33%	ピログルタミン酸 (0.908) 全窒素 (0.828) 乳酸 (0.778)
2	2.96	43.16	酢酸エチル (0.895)
3	2.44	52.91	色調 (0.902) 色度 (0.812)
4	2.33	62.22	総フェノール (0.846)
5	1.53	66.33	揮発酸 (0.823)
6	1.33	73.65	pH (0.926)
7	1.07	77.92	銅 (0.875) グリセリン (0.764)
8	0.95	81.74	グルコース (0.761) カルシウム (0.754)

第1図 第1主成分 (F-1) と第4主成分 (F-4) の因子得点の散布図 (白ワイン)

ブルゴーニュ産白ワイン 国産+ボルドー産白ワイン

第2図 第1, 第4および第8主成分による白ワインのパターン分類

あった。第7主成分（4.3%）にはグリセリンの負荷量が大きく、第8主成分（3.8%）には残糖分を表わすグルコースが相関しており、ともに発酵に関係する主成分であった。

3. 白ワインの類別：1) 第1主成分（果汁成分と MLF）と第4主成分（総フェノール）を座標軸とする二次平面に試料ワインの因子得点をプロットしたものを第1図に示した。ブルゴーニュ産ワインが一つのクラスターをつくり国産ワインとボルドー産ワインのクラスターと分離した。この他にも第8主成分（残糖）にそってワインが産地別に分離した。

第1, 第4および第8主成分の因子得点を大塚らの方法⁹⁾に従い0から10までの数値に変換し、産地別に合計し、平均値を求め、この平均値でレーダーチャートをつくり第2図に示した。図形はブルゴーニュ産ワインと国産、ボルドー産ワインの成分量とバランスの相違を示しており、マロラクチック発酵を起しておりフェノール成分が多く糖を残さず発酵させることがブルゴーニュ産ワインの特徴であった。

2) 第3図に第7主成分（グリセリン）と第8主成分に対し因子得点をプロットしたものを示した。この図からボルドー産とブルゴーニュ産、すなわちフランス産ワ

$\chi^2(68, 0.01) = 0.306$

釀 協 (1986)

第3図 第7主成分 (F-7) と第8主成分 (F-8) の因子得点の散布図 (白ワイン)

第4図 第3, 第7および第8主成分による白ワインのパターン分類

インのクラスターと国産ワインのクラスターが分離することがわかった。

この他に国産ワインとフランス産ワインを分離する第3主成分 (色調, 色度) を加え, 第2図と同様にレーダーチャートをつくり第4図に示した。フランス産ワインは色が濃く, 銅, グリセリンが多く, 残糖分が少い点で国産ワインと異なっており差別が可能であった。

赤ワイン

1. 成分分析: 国産赤ワイン 33 点, フランス産ボルドー産赤ワイン 12 点およびブルゴーニュ産赤ワイン 11 点の分析値の平均値と標準偏差を第5表に示した。

ボルドー産ワインは最も色が濃く, 色調も紫紅色を呈していた。国産ワインは平均すると色度は中間であったがブルゴーニュ産ワインより熟成を示す赤褐色であった。ブルゴーニュ産ワインの総酸が最も高く, pH も最も高かったが, Voet ら²²⁾はこれを緩衝能が高いためとしている。リンゴ酸は国産ワインに最も多く, 乳酸はブルゴーニュ産ワインに最も多かった。大塚らの式を用い産地別に計算した MLF 化率の平均値と標準偏差を第6表に示した。マロラクチック発酵はボルドー産とブルゴーニュ産ワインではほぼ完全に起っていた。酢酸, 揮発酸

第5表 赤ワインの成分分析結果

項 目	国産ワイン		ボルドー産ワイン		ブルゴーニュ産ワイン	
	平均値	標準偏差	平均値	標準偏差	平均値	標準偏差
色 度	4.31	0.89	6.07	1.20	4.00	0.73
色 調	4.4	15.8	38.6	17.2	17.3	10.6
pH	3.48	0.11	3.50	0.12	3.53	0.08
総 酸 度 (g/l)	5.54	0.39	5.29	0.36	6.01	0.47
酒 石 酸 (〃)	1.28	0.14	1.95	0.23	2.02	0.17
リ ン ゴ 酸 (〃)	0.78	0.48	0.20	0.06	0.45	0.24
乳 酸 (〃)	1.38	0.41	1.99	0.39	2.65	0.38
酢 酸 (〃)	0.48	0.14	0.40	0.10	0.49	0.05
コ ハ ク 酸 (〃)	2.76	0.83	8.98	1.94	2.90	0.78
ピログルタミン酸 (〃)	0.04	0.01	2.02	0.00	0.10	0.03
グルクロン酸 (〃)	0.21	0.10	0.04	0.03	0.09	0.04
揮 発 酸 (〃)	0.79	0.22	0.57	0.12	0.70	0.07
プ ロ リ ン (〃)	1.08	0.38	1.01	0.22	0.79	0.09
全 窒 素 (mg/l)	267	54	244	42	484	55
グ ル コ ー ス (g/l)	0.32	0.09	0.30	0.08	0.60	0.08
フ ラ ク ト ー ス (〃)	0.86	0.38	0.59	0.09	0.77	0.08
グ リ セ リ ン (〃)	7.00	0.58	7.10	0.42	7.92	0.46
高級アルコール (mg/l)	367	44	383	50	268	45
酢 酸 エ チ ル (〃)	111	31	30	12	31	6
銅 (〃)	0.11	0.03	0.20	0.16	0.39	0.12
鉄 (〃)	4.71	1.60	6.26	2.11	6.55	1.71
マグネシウム (〃)	79	8	78	5	86	6
カルシウム (〃)	31	17	67	11	66	8
カリウム (g/l)	1.03	0.13	1.18	0.15	1.11	0.12
総フェノール (〃)	1.36	0.18	2.01	0.23	1.89	0.17

第6表 赤ワインの MLF 化率

ワ イ ン	MLF 化 率	
	平 均 値	標 準 偏 差
国 産 ワ イ ン	71.8%	17.8
ボ ル ド ー 産 ワ イ ン	93.3%	9.4
ブ ル ゴ ー ニ ュ 産 ワ イ ン	89.7%	5.4

はボルドー産ワインが最も少かった。高級アルコールはボルドー産および国産ワインに多く, またグルコースはブルゴーニュ産ワインにやや多かった。Castor²³⁾らは糖分よりの高級アルコール生成を報告しており, また ÄY-RÄPÄ²⁴⁾は窒素源の増加による高級アルコール生成の抑制を報告している。全窒素はブルゴーニュ産ワインに最も多かった。プロリンは国産とボルドー産ワインに多かった。Kliwer によればピノノワール種は窒素成分が多く, 主要なアミノ酸としてアルギニンを含む品種であり, 一方, カベルネソービニオン, メルロー種は窒素成分が少く, プロリンを主要アミノ酸とする品種であることからこれらの分析値はブドウ品種の相違を示すものと思われた。

2. 主成分分析: 第7表に分析成分の相関行列を示した。また第8表に主成分分析から求めた固有値, 累積寄与率と各主成分に高い因子負荷量をもつ成分を示した。抽出した第6成分までの累積寄与率は 80.4% であった。

[illegible][illegible]

15.	グ	ル	コ	ー	ス
16.	フ	ラ	ク	ト	ー
17.	グ	リ	セ	リ	ン
18.	ブ	ロ	リ	ン	素
19.	全	窒	分	分	ム
20.	鉄	銅	ウ	ム	ム
21.	鋼	リ	ウ	ウ	ム
22.	マ	ダ	ネ	シ	ウ
23.	カ	ル	シ	ウ	ム
24.	総	ア	エ	ノ	ール
25.					

第8表 赤ワインの主成分分析

主成分	固有値	累積寄与率	因子負荷量
1	7.19	28.74%	リンゴ酸 (-0.900) グルクロン酸 (-0.898) カルシウム (-0.765) 乳酸 (0.687)
2	4.95	48.53	グルコース (0.856) 全窒素 (0.853) ピログルタミン酸 (0.850) 高級アルコール (-0.867)
3	3.28	61.65	色度 (-0.804) 色調 (-0.802)
4	1.86	69.08	総酸 (-0.825)
5	1.54	75.42	pH (0.748) 酢酸 (0.954)
6	1.24	80.39	揮発酸 (0.921) マグネシウム (0.904)

第1主成分(寄与率28.7%)にはリンゴ酸, グルクロン酸, カルシウムが負の相関をしており, 一方, やや負荷量は小さいが乳酸が正の相関をしており, この主成分は MLF に関するものであった。

第2主成分(19.8%)にはグルコース, 全窒素, ピログルタミン酸が正の, 高級アルコールが負の負荷量をもっており, ブドウ品種と高級アルコールの生成に関する主成分と解釈した。

第3主成分(13.1%)にはワインの色度, 色調が, 第4主成分(7.4%)には総酸, pH が高い因子負荷量を持ち, 酸に関する主成分と考えた。第5主成分(6.3%)には酢酸, 揮発酸が, 第6主成分(5.0%)にはマグネシウムが高い負荷量をもっていた。

3. 赤ワインの類別: 第5図に, 第2主成分(ブドウ品種, 高級アルコール)と第3主成分(ワインの色)を軸とする座標面に試料の因子得点をプロットしたものを示した。国産ワイン, ボルドー産ワインおよびブルゴーニュ産ワインがそれぞれクラスターを作り分離した。

また第6図に第1(MLF), 第2および第3主成分の因子得点を大塚らの方法に従い0から10までの数値に変換し, 産地別に合計し, 平均値を求め, この平均値を用いてレーダーチャートに作り示した。ワイン産地により図形が異なり, それぞれに産地のワインの成分バランスの特徴を表わしており, これはマロラクチック発酵の度合, ブドウ品種, 果汁成分, 高級アルコール生成量, ワインの色等が産地毎に異なることによるものであった。

以上の結果からワインを化学成分により, その産地別に類別することが可能であること。これらワインを類別する成分はその産地に特有のブドウ, アルコール発酵およびマロラクチック発酵等に関係するものであることがわかった。

第5図 第2主成分(F-2)と第3主成分(F-3)の因子得点の散布図(赤ワイン)

第6図 第1, 第2および第3主成分による赤ワインのパターン分類

終りにのぞみ, データの統計処理に際しコンピュータとプログラムの使用を快諾され, かつ, 結果の解釈に懇切な御教示を賜った福岡国税局鑑定官室長大場俊輝博士に厚く御礼申し上げます。

要 約

1. 市販国産白ワイン 46 点およびフランス産白ワイン 24 点の計 70 点と国産赤ワイン 33 点およびフランス産赤ワイン 23 点の計 56 点のワインを 25 の項目について分析し, その結果について主成分分析を行った。

2. 白ワインでは抽出した8つの主成分の累積寄与率は 81.7% であった。赤ワインでは6つの主成分が抽出され累積寄与率は 80.4% であった。

3. 第1主成分(果汁成分と MLF)と第4主成分(フェノール成分)で国産白ワインとフランス産白ワインのグループとブルゴーニュ産白ワインが, また第7主成分(グリセリン)と第8主成分(残糖)でフランス産白ワインと国産白ワインが類別された。

4. 赤ワインでは第2主成分(ブドウ品種, 高級アルコール)と第3主成分(ワインの色)で国産ワイン, ボルドー産ワインおよびブルゴーニュ産ワインが類別された。

5. ワインを化学成分により, その産地別に類別することが可能であり, それらの成分はその産地に特有の原料, 醸造法に関係するものであった。

文 献

- 1) E. PEYNAUD : *Connaissance et Travail du Vin* Dunod (1970)
- 2) A. WILLIAMS : *J. Inst. Brew* 88, 43 (1982)
- 3) T. AISHIMA : *J. Food Sci.* 47, 1562 (1982)
- 4) H. RAPP, H. HASTRICH : *Vitis* 15, 163 (1976)
- 5) P. SCHREIER et al. : *Mitt Klosterneuburg* 26, 225 (1976)
- 6) R. CANTAGREL, J. CARLES : *Ann Nutr Alim* 32, 1073 (1978)
- 7) B. KWAN, B. KOWALSKI : *J. Food Sci.* 43, 1320 (1978)
- 8) I. MORET, et al. : *Am. J. Enol. Vitic.* 31, 245 (1980)
- 9) K. OTSUKA, I. IKI, S. NOZU, Y. IIMURA, A. OTSUKA : *J. Ferment. Technol* 58, (4) 353 (1980)
- 10) 篠原 隆, 渡辺正澄 : 醸協 77, (9) 619 (1982)
- 11) O. I. V. : *Recueil des Methodes Internationales d'Analyse des Vins* (1972)
- 12) 横塚弘毅, 松土俊秀, 野崎一彦, 櫛田忠衛 : 山梨大学発酵研究所研究報告 18 巻 (1983)
- 13) 注解編集委員会 : 国税庁所定分析法注解 p. 58, 日本醸造協会 (1967)
- 14) 島津善美, 土原三喜夫, 渡辺正澄 : 醸協 75, (4) 317 (1980)
- 15) M. AMERINE, C. OUGH : *Methods for Analysis of Musts and Wines* John Wiley & Sons (1980)
- 16) 東京大学農芸化学教室 : 実験農芸化学 朝倉書店 (1972)
- 17) V. SINGLETON, J. ROSSI : *Am. J. Enol. Vitic.* 16, 144 (1965)
- 18) 大塚謙一, 飯村 稔, 神山政一 : 醸協 71, (9) 723 (1976)
- 19) W. KLIEWER : *J. Food Sci.* 35, 17 (1970)
- 20) 篠原 隆, 渡辺 正澄 : 農化 52, (8) 309 (1978)
- 21) 乙黒 親男, 荻野 敏, 渡辺 正平 : 醸協 78, (3) 214 (1983)
- 22) VOET et al. : *Analytica chimica Acta* 159, 159 (1984)
- 23) J. CASTOR, J. GUYMON : *Science* 155, 147 (1952)
- 24) T. ÄYRÄPÄÄ : *J. Inst. Brew* 71, 341 (1965)