清酒用麴菌の研究 (第6報)*

Asp. oryzae var. *Saké* と酒造の諸現象の考察

村上英也, 河合美登利 (国税庁醸造試験所)

昭和 32 年 7 月 4 日 受理

緒 言

前報⁽¹⁾に於て麴の製造, 醗の経過, 酒質の変化等の諸点からいわゆる安全醸造を目的とする酒造に於ては栗香を生産する好氣的生育型の菌株即ち *Aspergillus oryzae* var. *Saké* がその代表的菌種と見做されるべきことを報告した. 本文に於ては多少重複するが之を補う目的で更に 2~3 の実験を行い, その根拠を明確にしようと思う. 即ち栗香は嫌氣的培養によっては生産されず好氣的培養によって多量に生産される⁽²⁾一種の酸化的生産物と考えられ, 古くより麴の鑑定にその出現を尊ばれて来たものであるが, 仕込後は経過に従って変化し直接清酒中に残るものかどうか官能的にも分析的にも多くの疑問があり, 栗香そのものの醸造に於ける役割は全く不明であるが, 微生物生態論的に好氣的代謝能の強い麴菌と嫌氣的代謝能の強い酵母とが働らく場として清酒醸造を観ると従来経験的にのみ知られて来た多くの現象がほぼ合理的に説明されるのである.

本文を要約すれば (I) 菌株の形態上 stalk の形の種々異常を呈するもの⁽³⁾は菌体構成力は強いがその機構維持力が弱い傾向あり, (II) 種々のカビの酸素要求力を比較すれば *Asp. oryzae* var. *Saké* が強力であり, (III) かかる菌を用いるときは製麴に於ける熱量放出多く (製麴経過安全), (IV) これを仕込めば初期醗中の溶存酸素量は甚しく減少し, (V) 従って酵母による酒精醗酵を速かに誘発し⁽⁴⁾ (醗経過安全), (VI) 好氣的であるが故に嫌氣的な菌株に較べて酸素に対し敏感ではなく従って醸造経過の再現性高く, (VII) 常に清酒の酸化還元電位は高く, (VIII) 従って清酒を火入した後の変化性 (秋落ち) が少く, (IX) 麴及び酒粕の褐変性はかかる麴菌を用いた場合に生起するという試験の結果を種々実験的に考察し, 之により麴の栗香の意義を, 少なくともその酒造に於ける役割が不明な今日, 麴の酸素吸収力 (呼吸力) を官能的に判定する手段として経験的に尊ばれて来たものと解するのである.

実 験 と 考 察

(I) 麴菌の構成的呼吸と維持的呼吸: 微生物の生長に於ては發育の初期を除けば次の関係式が成立つ.

$$c = p(a + \frac{1}{2}b \cdot t)$$

ここに c は培養 t 時間に於て消費した糖分, a は菌体 1 g の構成に要する糖量, b は菌体 1 g を 1 時間維持するに要する糖量である.

Czapek 改変培地⁽⁵⁾ 25 cc 宛を形状の同じ 100 cc 容三角フラスコに採り, 1 はそのまま, 1 は H_2SO_4 を滴下して pH 3.2 とし, 菌を接種し 31° に夫々 50 及び 150 時間培養した後菌体を分ち菌体重量と消費糖量を測定し次式により b 及び a を求めるに第 1 表の如くである.

$$b = 2(c_2 - c_1) / (t_2 - t_1)$$

第 1 表 生長速度の異なる菌体の重量と消費糖量

菌株 No.	23	25	40	69	70	83	101	119	127	128	138	139	143
c_1	0.227	0.227	0.460	0.390	0.233	0.480	0.400	0.460	0.420	0.450	0.276	0.392	0.326
$p_1(\times 10)$	0.651	0.460	1.576	1.061	0.614	1.200	1.002	1.553	1.420	1.315	0.764	0.962	0.980
c_2	0.405	0.371	0.775	0.774	0.551	0.422	0.200	0.766	0.653	0.407	0.312	0.435	0.602
$p_2(\times 10)$	0.973	0.520	1.603	1.476	1.240	0.808	0.487	1.749	1.358	1.143	0.386	0.765	1.194
a	3.150	3.847	1.948	2.891	3.475	3.142	3.011	2.259	2.829	3.357	1.358	1.855	2.469
b	0.013	0.043	0.038	0.031	0.012	0.024	0.014	0.028	0.026	0.002	0.090	0.051	0.034

(No. 25 は Nitratophobe で生育異常)

これにより各生育型の特徴を示せば第 2 表の如くである.

* Studies on the Aspergilli for Saké-brewing. Part VI. Experimental Considerations on the Various Phenomena of Saké-brewing from the View Point of the Properties of *Aspergillus oryzae* var. *Saké*.

By Hideya MURAKAMI and Mitori KAWAI (Brewing Experiment Station, Tax Administration Agency)

第 2 表 各種の生育型の特徴

区分 生育型	消費糖量	菌体重量	菌体構成糖量 (a)	菌体維持糖量 (b)	エネルギー 利用率	即ち好気型 (又は呼吸型) は 少量の糖から能率良く多量の菌 体を造って糖の好氣的分解が盛 んであり、嫌気型 (又は醗酵型) は反対に多量の糖から少量の菌
好氣的生育型	多い	大きい	少ない	多い	良い	
中間的生育型	多い	大きい	多い	少ない	悪い	
嫌氣的生育型	少ない	小さい	多い	少ない	悪い	

体しか造らず糖は非能率的に即ち嫌氣的に分解され (酒精の生産⁽⁵⁾) ていることが解る。尚また常緑株 (No. 128, 70) や stalk の変形したもの⁽⁹⁾ (No. 83 U 型, No. 127 V 型, No. 128 W 型) は菌体構成が多いに拘らずその維持糖量の少い傾向のあることが注目される。

(II) 種々のカビの酸素要求性： 第 3 報⁽⁶⁾ と同様の方法で各種のカビ菌体 100 mg が M/5 グルコースに 30°, 60 分間作用するときの消費酸素量を定量した結果は第 3 表の通りで *Asp. oryzae* var. *Saké* が最大である。

第 3 表 各種のカビの酸素要求性

菌種	<i>Asp. oryzae</i> var. <i>Saké</i>			<i>Asp. niger</i>	<i>Asp. Usami</i>	<i>Asp. tamari</i>	<i>Asp. ochraceus</i>	<i>Asp. melles</i>	<i>Asp. sojae</i>	<i>Rhizopus javanicus</i>
O_2 μ l	No. 40	No. 81	No. 119							
基質呼吸	98.26	125.33	160.17	165.03	107.53	122.49	145.12	184.37	162.95	137.89
細胞内呼吸	45.19	61.42	86.81	160.54	69.75	109.95	87.39	138.41	126.10	119.23
消費 O_2 (μ l)	53.07	63.91	73.36	4.49	37.78	12.54	57.73	45.96	26.85	18.66
培地の栗香	卅	卅	卅	—	—	—	—	—	—	—

即ち之によっても清酒醸造と麹菌の酸素要求性とが有意の関係を有していることが推量される。

(III) 麹の製造に於ける熱量の変化： 精米各 100 g を用いて中型ペトリ皿により常法によって麹を造る際の熱量の変化を菌株別に比較した結果は第 4 表の通りである (培養温度 32°, 40 時間でこの間に 1 回攪拌する)。澱粉質糖分は 2% HCl 加水分解法によって定量しすべてグルコースとして表わし、熱量は燃研式断熱々量計 (Y. M. 改良 B 型) を用いて測定した。

第 4 表 製麹に於ける熱量計算

生育型と菌株 No.	好気型		嫌気型		中間型	
分析項目	40	119	23	138	83	128
(a) 蒸米重量 g	135.0	134.5	135.5	135.0	135.2	134.5
(b) 蒸米中水分量 g	45.09	44.92	45.26	45.09	45.17	44.92
(c) 蒸米中総糖量 g	83.73	83.42	84.04	83.73	83.85	83.42
(d) 蒸米(乾物)総熱量 kcal	381.2	381.6	382.6	381.2	381.8	379.8
(a') 麹重量 g	128.5	127.5	129.4	129.5	129.2	129.1
(b') 麹中水分量 g	40.06	38.37	41.24	40.91	40.28	39.01
(c') 出麹中総糖量 g	78.94	78.54	78.44	77.78	76.47	78.87
(d') 出麹(乾物)総熱量 kcal	353.3	356.6	359.8	357.5	336.7	359.5
全重量の減少 (a-a')	6.5	7.0	6.1	5.5	6.0	5.4
全水分の減少 (b-b')	5.03	6.55	4.02	4.18	4.89	5.91
全糖分の減少 (c-c')	4.79	4.88	5.60	5.95	7.38	4.55
総熱量の減少 (d-d')	27.9	25.0	22.8	23.7	45.1	20.3
水の気化熱量 (e)	2.9	3.8	2.3	2.4	2.8	3.4
製麹熱量の変化 (d-d')-e	25.0	21.2	20.5	21.3	42.3	16.9

(対照に恒温器中に蒸米のまま放置したものの全水分の減少は 6.57 g である。水の気化熱は 580 cal/g として計算)

われたためと考えられる⁽⁶⁾。一般工場製麹ではより温度高く (好気型は高温に強い⁽⁷⁾) より酸素の多い条件で行われるので生育型による放出熱量の差はより大きくなるものと考えられる。

(IV) 麹浸出液中の溶存酸素： 前記の麹を 10 倍量の水で 5° に 2 日間浸漬した後濾過し直ちに Warburg manometer を用いるアルカリ性ピロガロール吸収法と Miller 変法により定量した。前法は後法に比し常に過大の値を与えるが両値は平行的関係にあるので之を併記し相対値で比較することとした⁽⁴⁾。前法は cc/2cc, 後法は mg/l の値である。

(b-b') はすべて物理的に蒸発した水分と考えられ、又 (b-b')+(c-c') > (a-a') の理由は不明であるが、菌種により殆んど差がない点より共通の実験誤差を含むものと考えられる。結局好気型は熱量の放出多いことは明らかであるが嫌気型との差が少く、又糖以外の物質の燃焼が盛んである。これは上の培養条件が酸素の供給少く分解呼吸に適し (pH 5~6 では分解呼吸により必要エネルギーを獲得することが出来る)、また pH の変動により一部蛋白の分解が行

第 5 表 麴浸出液中の溶存酸素量 (相対値)

菌株 No.	40	119	23	138	83	128
溶存酸素量 { 検 圧 法	0.398	0.412	0.576	0.556	0.450	0.491
Miller 変法	2.62	2.86	4.03	3.96	3.23	3.45

(V) 麴の力, 醗の力: 精米 100 g を用い常法により (但しその間種々の方法で空気の供給量を変え) 軟質, 普通及び硬質 3 種の麴を造り麴の水分を定量して乾物として各 40 g を採り, 之に井水を麴中の水分量と合して 130 cc になるように加え, トルエン 1 cc を加えて 20° に 24 時間浸漬の後濾過し直ちに分析する. 又 α -アミラーゼは Wohlgemuth 法によりこの浸出液を酵素液とし(A), 次に麴の 2 g (乾物として) を夫々定量の 1% 食塩水 (全水量 15 cc) で 20° に 3 時間浸出した液を酵素液とし(B), プロテアーゼは松島氏の gelatine-formol 法⁽⁸⁾ により B 液を酵素液として定量し, 各酵素毎にその最も強いものを 100 として力価を比較した. 麴の栗香の生産及び褐変性は何れも官能によりその多いか色度の大きなるに従って + の符号を多くして示した. 次にこの麴を乾物として各 25 g を採り, 予め pH 3.2 とした Bg 5° 麴汁 50 cc 宛に清酒酵母を 1 夜培養したものの中に投じ, 麴中の水分量と合計して 30 cc になるように加水し 20° に 6 日間醗酵させた後濾過し分析した. 総て濾液 10 cc に対し総酸は 0.1 N NaOH の滴定数, アミノ酸はホルモール法による 0.1 N NaOH の滴定数で示す. Eh の測定は前報⁽¹⁾による. 尚醗酵生起時間は肉眼観察により醗表面全面を泡が掩うまでの時間を測定したものである. これらの結果を表示すれば第 6 表の通りである.

第 6 表 麴, 醗の力に関する諸表

麴 菌株		好気型 (No. 119)			嫌気型 (No. 23)		
		軟質	普通	硬質	軟質	普通	硬質
区分, 成分							
出麴全重量 g		132.5	115.5	111.5	134.5	119.5	113.5
出麴の水分 %		35.78	26.10	22.56	36.25	27.29	22.42
麴の栗香		+	+	+	—	+	+
麴の褐変性		+	+	+	—	+	+
ボーメ度		8.0	7.2	5.4	7.2	6.2	3.2
総酸 cc		0.65	0.58	0.50	0.40	0.36	0.32
アミノ酸 cc		2.45	2.70	2.05	2.35	2.20	1.20
糖 %		13.56	12.31	9.24	12.68	10.37	5.00
溶存酸素 { 検 圧 法		0.292	0.256	0.244	0.390	0.369	0.398
Miller 法		1.46	1.21	1.16	2.55	2.42	2.60
酵素力 { α -アミラーゼ (A)		80	100	50	36	44	16
" (B)		66	50	33	40	33	20
プロテアーゼ		80	100	96	72	69	47
酒 精 %		16.6	16.4	11.7	16.2	13.5	8.0
総酸 cc		3.50	3.60	3.40	3.40	3.60	3.30
アミノ酸 cc		3.10	2.80	1.90	3.00	2.30	1.90
醗酵生起時間		8	8	9	14	13	18
醗表面の状態		メシ蓋	小玉泡	薄皮	メシ蓋	小玉泡	薄皮
色度 { 430 m μ		0.084	0.082	0.064	0.096	0.071	0.057
470 m μ		0.048	0.046	0.032	0.050	0.037	0.030

第 7 表 醗酵経過による品温, 泡高の変化

区分		品 温 (°C)				泡 高 (cm)			
		好	気	嫌	気	好	気	嫌	気
生育型									
日 順 No		40	119	23	138	40	119	23	138
1		15.0	15.0	15.0	15.0	0	0	0	0
2		16.5	16.0	16.0	15.5	5	8	7	4
3		17.2	17.2	17.2	16.6	15	16	14	16
5		16.4	16.5	16.0	16.0	8	8	5	6
7		15.0	15.4	15.0	15.0	3	2	2	2
10		15.0	15.0	15.0	15.0	—	—	—	—

来った事実⁽¹⁾と合致し, 一般酒造工場で経験的に麴の栗香が尊ばれて来たという理由の一面が理解されるのである. その他醗酵液の各成分はその色度を含めて何れも好気型が多く酸化還元電位は常に高いのであるが, 更に之

麴の栗香と褐変性は麴が乾燥する程強く共に好気型にのみ認められる. 醗酵の生起は好気型が 5~10 時間速く, 醗酵の終了は普通麴が最も遅い. 小仕込のため酒精量はほぼ浸出液のボーメ度, 糖量に比例して明瞭を欠くが結局酵素力共に強く醗酵の継続永く酒精量も比較的多い好気型の普通麴及びその醗が最も力があると言ふことが出来る. 即ち麴の力が強いための必要な条件は醗に仕込んでも酵素力が強く多量の糖とアミノ酸 (酵母の栄養) を造ることであるが之は同時に有害細菌に対する条件でもあって不充分であり, 更に仕込初期品温を上昇させ, 酸素を吸収して速なる酒精醗酵を誘発させ, 少くとも好気性有害細菌を淘汰するに与かると考えられる麴の酸素吸収力 (呼吸力) を挙げなければならない. これは著者が醗造試験の都度観察し

第 8 表 麹浸出液及び清酒の成分

電 類	成 分		比重 (Be 又は清 酒メートル)	酸 cc	アミ ノ酸 cc	酒精 %	糖分 %	色 度		Eh (mV)	pH	α-アミ ラーゼ
	生育型	No.						430mμ	470mμ			
麹 浸 出 液	好気	40	1.2B	0.10	0.50	—	1.96	0.032	0.025	165	6.0	80
		119	1.2	0.12	0.52	—	2.06	0.033	0.022	265	6.2	100
	嫌気	23	1.1	0	0.45	—	1.74	0.022	0.015	149	6.0	90
		138	0.9	0	0.54	—	1.10	0.046	0.038	125	6.0	45
清 酒	好気	40	+14.0m	3.25	1.78	21.0	0	0.037	0.024	320	4.0	—
		119	+14.0	3.55	1.65	20.5	0	0.035	0.023	330	4.1	—
	嫌気	23	+12.5	3.30	1.22	18.5	0	0.034	0.021	310	3.9	—
		138	+3.5	3.50	1.55	14.5	0	0.040	0.027	310	3.8	—

を確めるため実験 (Ⅲ) に於ける麹 (普通麹) を用いて総米 1500kg 仕舞の 500 分の 1 の規模により室温 15° で小規模醸造試験 (速醸酵母使用) を行った結果は第 7~8 表の通りである。泡高は同一容器を用いて仕込み初めの醪面を基点として中心部の泡の高さの変化を測定し、麹の浸出は実験 (Ⅳ) の方法により行い、分析法はすべて上記と同じである。

室温が初めより 15° のため状貌著しく急進し 10 日目に熟成し、このため品温、泡高は大仕込と違って著しい差を示さないがやはり好気型が高い傾向を認める。酒精は明らかに好気型が多く前記特徴が一層明瞭になる。No. 138 菌株が Eh 低いに拘らず色度濃く工場仕込の場合と同じくこの場合も例外をなす。

(Ⅵ) 酒質の再現性に関する考察：第 5 報⁽¹⁾に於て麹菌種によってほぼ相応する酒質を得ることを明らかにし例外として嫌気型 (No. 138, 143), 中間型 (No. 70) の菌株を掲げ、又嫌気型の No. 23 が吟醸⁽⁹⁾に於て著しい相反を示したことを報告した。即ち好気型は製麹、醪経過より製成酒質に至るまで最も再現性が高いのである。この理由を微生物学的に次のように説明する。

一般に微生物細胞の Eh は外囲の酸素分圧によって支配され好気型は嫌気型よりも遙かに高い Eh を示すが、好気型はいわゆる緩衝能力強くどんな場合でもほぼ一定値を保つのに対し、嫌気型は痕跡の酸素によってもその生長を阻害されるなど酸素に対して遙かに敏感である。従ってかかる敏感な菌株 (嫌気型) を用いて製麹するならば仕事操作の微妙な変化によって出麹は種々に造られるべくすべてに再現性の低いことは当然と言わねばならない。

(Ⅶ) 清酒の酸化還元電位 (Eh) に関する考察：溶液の Eh はその中に含まれる酸化型物質と還元型物質との比率及びそこに存在する [H⁺] によって決定されるものであるから、殆んど [H⁺] に大差無い清酒間に於ては酸化型物質の多い程、換言すれば好氣的生産物を多産する好気型菌株による清酒ほど Eh は高い理であり試験の結果もその通りである。著者は酸化的産物として麹酸その他の有機酸、diacetyl, 色素 (メラニン系が多い⁽¹⁰⁾) 等^(5,7)を示したが強力な酸化酵素によってペプチドや蛋白も作用を受ける^(11,12) ことのあることをこの場合にも考えれば夥しい種類の酸化型物質が生産されていると言うことが出来よう。

(Ⅷ) 酒質の変化 (秋落ち) に関する考察：酵素の関与しない酸化還元系にあっては反応は熱力学的に電位の大きい方向に進行する。換言すれば Eh の低い程反応性に富み不安定であるが酵素が存在すれば酵素はその基質に対して特異的な親和力を有することによって反応の方向を限定するから必ずしも上の如く反応が進むとは限らない。この関係を火入によって殆んどすべての酵素が破壊された清酒 (酸化酵素のみは相当に破壊されずに残る) の貯蔵中の変化に及ぼせば当然に好気型の清酒は嫌気型に較べて変質 (秋落ち) し難いと言ひ得るのではなかろうか。これ著者が試醸酒について常に観察して来た事実とよく符合する。

(Ⅸ) 麹及び酒粕の褐変性：麹の種類を問わず又醸造条件の多少の差を問わず好気型菌株による場合に麹及び酒粕の褐変が速かに起りその色度も大きいこと⁽¹⁾、麹の褐変は培養条件により水分の少いほど (実験 V), 培養温度高く培養時間の長い場合に大きいのみならず好気型嫌気型両菌株の孢子配合比によって夫々異なること⁽¹³⁾、これらの着色は何れも空気中の酸素により酸化酵素を介して酸化的に起るとの見地より種々の還元剤、酸化酵素阻害剤の添加によって防止されること⁽¹⁴⁾等既に著者等の発表したところである。

以上のように安全醸造を目的とする酒造に於て初めに特に好気性の微生物 (粟香生産性麹菌) が用いられて来たということは意義のあることである。之により少くとも好気性の有害細菌を淘汰し、また麹を 3 回に亘って製造し隔日仕込むいわゆる 3 段仕込の方法は醪を出来るだけ長時間嫌気状態に保ちこの間酵母による酒精の生産を

助けて自然に有害菌の繁殖を抑制する巧妙なる技法とも解され、かかる意味でまた醗の腐造細菌として真に恐るべきものは嫌気性乃至半嫌気性的のものであるとも言い得るのではなからうか。

要 旨

好気的生育型（呼吸型）の黄麹菌 *Asp. oryzae* var. *Saké* は他の種々のカビに較べてその酸素要求性が特に大きいことを明らかにし、これと清酒醸造との関係を考察し、従来経験的にのみ知られて来た若干の酒造現象に対し合理的な説明を行った。

本研究に当り終始御懇篤なる御指導と御鞭撻を賜った東大教授坂口 謹一郎博士、醸造試験所長山田正一博士に対し深甚なる謝意を表する。

(1) 村上英也：本誌, 32, 19 (1958).	(10) 寺本四郎：醸造学, 14, 201, 671 (1936).
(2) 安藤福三郎：醸造試報, 7, 46~54 (1906).	(11) E. Abderhalden, M. Guggenheim：Z. f. physiol. Chem., 54, 331 (1907); 57, 329 (1908).
(3) 村上英也：本誌, 31, 707 (1957).	(12) I. W. Sizer：Advances in Enzymology, 14, 129~161 (1953).
(4) 村上英也等：醸協, 52, 896 (1957).	(13) 村上英也, 矢野裕通：醸協, 52, (8)42 (1957).
(5) 村上英也：本誌, 31, 715 (1957).	(14) 村上英也, 河合美登利：醸協, 51, (8)73 (1956).
(6) 田宮 博：Acta phytochim., 3, 51 (1927); 4, 77, 215, 343 (1928~29).	
(7) 村上英也：本誌, 31, 710 (1957).	
(8) 松島欽一：本誌, 28, 711 (1955).	
(9) 村上英也等：醸協, 52, (7) 62 (1957).	

Pulp disc 法によるビタミン及びアミノ酸の微生物定量法 (第 3 報)*

ビタミン及びアミノ酸の標準曲線の作成

小嶋 尚夫, 松谷 豊 (東北大学農学部)

昭和 32 年 6 月 21 日 受 理

緒 言

前報^(1,2)において B 群ビタミン類の微生物定量に Pulp disc 法を適用して、定量の簡易化を計り、数種のビタミンについて検討して定量条件を設定した。更に数種の試料の定量を行って、その分析結果を tube 法と比較し、これらの成績から本法が Routine assay として適當する事を認めた。

Jones 等⁽³⁾はカップ法によって種々のビタミンの定量を行い、アミノ酸にも適用できることを示唆したが、最近、Simpson 等⁽⁴⁾は数種のビタミン及びアミノ酸にカップ法を適用し、tube 法に比して精度も高く、容易に定量出来ることを述べている。又、牛場等⁽⁵⁾が *E. coli* の栄養変異株を用いて、カップ法によるアミノ酸の定量を試みた。

本報では更に本法が他のビタミン又はアミノ酸の定量に適用し得るか否かについて、数種の定量菌株を用いて検討を加え標準曲線を求めたが、その結果、他のビタミン及びアミノ酸にも若干の困難を認める場合もあるが、本法が適用可能であることを認めたので報告する。

実 験 方 法

(1) 定量を試みた B 群ビタミン及びアミノ酸と使用した菌株は夫々第 1 表と第 2 表に記載した。

表註* 表中のチアミン要求酵母、コリン要求酵母は佐藤等⁽⁶⁾によって醬油諸味より分離した菌株である。

コリン要求酵母に関しては別報⁽⁷⁾で報告したが、その要求性は変化し易く、生育帯が得られない場合もあるので、目下安定な条件を更に検討中である。

使用菌株は第 1 報で述べたと同様にして保存し、*Lact. leichmannii* は日産水研製の保存培地に 1 週間毎に植え継ぎ氷室に保存した。

* Studies on the Microbiological Assay of Vitamins and Amino Acids by the Pulp Disc Method. Part III. On the Standard Curves for B-Vitamins and Amino Acids Assay. By Hisao KOJIMA and Yutaka MATSUYA (Department of Agricultural Chemistry, Faculty of Agriculture, Tôhoku University)