研究ノート

泡盛の蛍光指紋と品質特性に関する基礎的検討

葛 瑞樹¹, 相山 怜子¹, 塚原正俊², 塚原恵子², 平良英三^{3*}

¹ 国立研究開発法人農業・食品産業技術総合研究機構食品研究部門

² 株式会社バイオジェット

³ 琉球大学農学部

Preliminary Investigation on the Relationship between Fluorescence Fingerprint and Quality of *Awamori*

Mizuki Tsuta¹, Ryoko Aiyama¹, Masatoshi Tsukahara², Keiko Tsukahara² and Eizo Taira^{3*}

¹ Food Research Institute, National Agriculture and Food Research Organization,
2-1-12 Kan-nondai, Tsukuba, Ibaraki 305-8642

² Biojet Co., Ltd., 3204-7 Gushikawa, Uruma, Okinawa 904-2231

³ Faculty of Agriculture, University of the Ryukyus, Semburu 1, Nishihara, Nakagami, Okinawa 903-0213

Fluorescence fingerprints (FF) of *Awamori* and standard reagents of 4-vinylguaiacol (4-VG) and vanillin were measured. FFs of *Awamori* samples had three fluorescence peaks at excitation/emission wavelengths of 254.3/290.4, 254.3/338.0 and 296.2/340.3 nm. Principal component (PC) analysis of FF data revealed that young and aged samples were clearly separated on a PC score plot. Comparison of peak positions of FFs of *Awamori* samples, standard reagents and PC loadings revealed that these peaks could be classified into six groups. Among these, two groups were found to be derived from 4-VG fluorescence, while other two groups were related to vanillin.

(Received Apr. 18, 2017; Accepted Jul. 10, 2017)

Keywords : aging, distillation, 4-vinylguaiacol, vanillin

キーワード : 貯蔵, 蒸留, 4-ビニルグアイアコール, バニリン

泡盛は15世紀頃にタイから琉球王国に渡来し、その後独自に発展した蒸留酒で、焼酎の由来の1つとされている¹⁾。泡盛は米を原料とし、これに黒麹菌を繁殖させた黒麹、水、酵母を同時に仕込む「全麹仕込み」を特徴とする単式蒸留酒である¹⁾。また、長期熟成させた泡盛は「古酒(ケース)」と呼ばれ、芳醇な香りとまろやかな甘みにより古来より珍重されている¹⁾。沖縄県内には40を超える酒造所があり¹⁾、蒸留方法にも常圧、減圧といった違いがあつて²⁾、多様な品質の泡盛が商品化されている。

泡盛には多様な成分が含まれ、それらの由来も原料米に含有されているもの、発酵中に微生物が生成するもの、貯蔵中に含有成分が変化して生じるもの等多岐にわたっている。特に、風味を大きく左右する揮発性成分については、ガスクロマトグラフィー (GC) やガスクロマトグラフィー質量分析 (GC/MS) による網羅的な分析の事例が報告されている^{3)~5)}。中でも、バニリンは泡盛の代表的な特徴香であることが報告されており⁶⁾、原料米中のフェルラ酸が蒸留中に4-ビニルグアイアコール (4-vinylguaiacol : 4-VG) に変

換され、4-VGを前駆体として泡盛の貯蔵中にバニリンが生成されることが知られている⁷⁾。ヒトが4-VGとバニリンを感知できる閾値は、10%濃度のエタノール溶液の場合それぞれ40, 200 ppbと報告されている⁸⁾。両成分は泡盛中に400 ppb程度含有されていることが報告されており⁵⁾、ヒトが泡盛を飲む際には両成分に起因する香りを感じられると考えられる。また、玉村ら³⁾にはおい嗅ぎGCによる泡盛の香気成分分析を行い、両成分ともに1万倍に希釈してもヒトが検知できることを報告している。以上のことから、4-VGとバニリンは泡盛の香気特性に影響する重要な成分と考えられる。一方で、常圧、減圧といった蒸留方法の違いや、酒造所の違いによる泡盛含有成分の差異については、系統だった研究はほとんど報告されていない。

泡盛の出荷量は2004年度の28838 klをピークに減少を続けており、2015年度には20071 klであった⁹⁾。消費者の酒類関連情報に関するニーズ調査では、酒類、年代、性別を問わず「成分・品質」に対する関心が最も高いことが明らかとなっている⁹⁾。したがって、泡盛の消費拡大を目指す

¹ 〒305-8642 茨城県つくば市観音台2-1-12, ² 〒904-2231 沖縄県うるま市具志川3204-7, ³ 〒903-0213 沖縄県中頭郡西原町字千原1

*連絡先 (Corresponding author), e-taira@agr.u-ryukyu.ac.jp

ためには、消費者に対して客観的な成分や品質に関する情報を提示する必要があると考えられる。泡盛は40を超える酒造所で多様な商品が醸造されている一方、生産量100kl以下の酒造所が全体の約半数を占めており¹⁰⁾、清酒と比べて個々の酒造所の規模が小さい。そのため、個々の酒造所がGCやGC/MSのように初期費用が高額で、試薬等のランニングコストがかかり、さらに試料の前処理や廃液処理等の手間がかかる装置を用いて、泡盛商品の分析を行うことは現実的ではないと考えられる。

そこで、本研究では蛍光指紋に着目した。蛍光指紋は励起蛍光マトリックス (excitation-emission matrix : EEM) とも呼ばれ、試料に照射する励起光の波長を走査しつつ蛍光スペクトルを連続的に計測し、励起波長と蛍光波長の全ての組み合わせで発せられる蛍光の強度を網羅的に計測する手法である¹⁰⁾¹¹⁾。このような網羅的な計測は、食品のように複数の成分が混在し、成分間のバランスや微量成分の有無が重要となる試料には非常に効果的である¹²⁾。また、蛍光指紋計測は標準的な分析手法に比べて迅速、低コストかつ試料調製の手間が最小限で済むという特徴があり¹³⁾、現在までにブランデーと他のワイン蒸留酒の判別¹⁴⁾、ワインの醸造年および醸造所の判別¹⁵⁾、牛肉面で増殖する一般生菌数の推定¹⁶⁾等の研究事例が報告されている。

本研究では、泡盛試料とその主要な特徴香成分の1つであるバニリンおよびその前駆体である4-VGの標準試薬の蛍光指紋を計測し、泡盛の簡易かつ迅速な品質評価に利用できる情報が含まれているかどうかを検討することとした。

1. 実験方法

(1) 泡盛試料

表1に本研究で用いた泡盛試料の一覧を示す。8つの異なる酒造所が醸造した39点の泡盛市販品を実験に供試した。このうち、常圧蒸留法で蒸留されたものは33点、減圧蒸留法によるものは6点であった。試料には酒造所でステンレスタンクなどの大容量容器で貯蔵された古酒を入手して供試したもの、新酒を入手後すぐに実験に供試したもの、新酒または古酒を入手した後ビンのまま室温で貯蔵した後実験に供試したものが含まれていたが、本研究では貯蔵容器や場所によらず詰口年月日から2014年10月の実験日までの経過時間を貯蔵期間と定義した。また、古酒の定義¹⁷⁾にしたがい、貯蔵期間が3年未満の16点を新酒に、3年以上の23点を古酒に分類した。全ての試料をエタノール濃度10% (v/v) に調製した後、蛍光指紋計測に供試した。

(2) 試料の蛍光指紋計測

泡盛試料の蛍光指紋計測には分光光度計 (Aqualog, 株式会社堀場製作所) を用い、実験開始前に3種の蛍光標準物質 (SRM 2490, 2492 および 2493, National Institute of Standards and Technology, 米国) を用いて波長校正を実施した。実験室内の温度は空調により25℃に保たれてお

表1 本研究で使用した泡盛試料一覧

酒造所	蒸留方法	保管期間 [年]
A	減圧	0.1, 4.5, 7.1
	常圧	—
B	減圧	—
	常圧	0.2, 1.7, 4.9
C	減圧	—
	常圧	0.3, 0.5, 3.5, 4.6, 6.9, 8.8, 15.3
D	減圧	0.7
	常圧	0.3, 1.2, 3.4, 7.6, 9.7, 11.4
E	減圧	0.5
	常圧	0.8, 3.7
F	減圧	1.2
	常圧	0.5, 3.6, 7.4, 8.0, 9.9
G	減圧	—
	常圧	0.8, 1.1, 1.8, 4.4, 5.7, 6.3
H	減圧	—
	常圧	0.9, 6.1, 7.7, 17.6

「保管期間」列の各数値が各試料に対応する。保管期間は詰口年月日から2014年10月の実験日までの経過時間とした。

り、試料温度による蛍光強度の変動を避けるため、密封した試料を一晩実験室内に静置した後蛍光指紋計測を実施した。蛍光指紋を計測する励起波長範囲は230.98-450.00nm、蛍光波長範囲は247.64-499.23nmとし、測定波長間隔は励起、蛍光ともに2.33nm、スリット幅は5nmとした。励起波長条件数、蛍光波長条件数はそれぞれ95および111となり、合計10545波長条件下における蛍光強度を計測した。Aqualogの蛍光検出器にはマルチチャンネルCCDが用いられており、各励起波長条件における蛍光スペクトルを一度に計測する方式が採用されている。また、光電子増倍管を検出器とする分光器では印加電圧で感度を調整するのに対し、Aqualogの感度は露光時間で調整する。また、蛍光強度は0から65535の範囲で16ビットの階調度にて記録される。本研究では、予備実験により全ての試料の蛍光強度が飽和せず、かつ最大蛍光強度が50000程度となり装置のダイナミックレンジを最大限活用できる露光時間を探索し、最終的に0.4秒を採用した。試料を10mm角の石英セル (T-3-UV-10, 東ソー株式会社) に3mL注入し、上記の条件で蛍光指紋を3回繰り返し計測し、全部で117点の蛍光指紋データを得た。

(3) 蛍光指紋の前処理

得られた蛍光指紋から不要な情報を削除するために、蛍光波長が励起波長より小さくなる非蛍光領域と、蛍光波長が励起波長の2倍以上となる、蛍光の2次光が観察される波長領域のデータを0に置き換えた。次に、各励起波長における蛍光スペクトルを一行に並び替え、95×111の行列であった蛍光指紋を、10545列のベクトルに展開した¹⁸⁾。最

図 1 泡盛試料の蛍光指紋

図中の数値は該当線上の蛍光強度を示す。

後に、各試料の蛍光指紋を蛍光強度の総和が1となるように規格化し、各波長の蛍光強度から全試料の平均値を差し引く中心化処理を施して、以降の解析に供試した。ここで規格化を実施したのは、試料の絶対的な蛍光強度ではなく試料間の蛍光特性の違いに注目すること、また比較的強度の弱い蛍光ピークの情報を活用すること¹⁹⁾が目的であった。

(4) 主成分分析

主成分分析とは多次元データの持つ分散を最大化するように新しい変数を合成する手法で、試料間の差異を元データよりも大幅に少ない次元数で視覚化すると同時に、その差異に寄与する変数を探索する手法である²⁰⁾。本研究では、前処理を経た全試料の蛍光指紋、117点×10545波長条件の行列データに対し主成分分析を適用した。次に、累積寄与率が95%を超えるまでの主成分についてスコアプロットを作成して酒造所、蒸留方法、貯蔵期間による差異を確認した。また、各スコアに対応して得られたローディングについて蛍光指紋状の等高線図を作成し、各スコアの大小に寄与する波長条件を探索した。なお、蛍光指紋の前処理および主成分分析には、数値解析ソフトウェア (MATLAB 2016b, The Mathworks, Inc., 米国) およびその多変量解析用アドオンソフトウェア (PLS_toolbox 8.0, Eigenvector Research Inc., 米国) を用いた。

(5) 標準試薬の蛍光指紋計測

本研究では標準試薬として 4-VG (2-Methoxy-4-vinylphenol analytical standard, シグマアルドリッチジャパン) および バニリン (vanillin 和光特級, 和光純薬工業株式会社) を供試した。それぞれ 10mg/L, エタノール濃度 10% (v/v) に調製した後、10mm 角の石英セルに 3mL 注入して蛍光指紋計測に供試した。

(6) ピーク位置の探索

泡盛および標準試薬の蛍光ピーク波長と、主成分ローディングにおける正負ピークの波長の位置を比較するため、それぞれのデータが極大および極小値をとる位置を探

索した。泡盛試料に関しては、予備実験により貯蔵期間により蛍光指紋パターンに変化が生じることが示唆されていた。そこで、貯蔵期間 3 年未満、3 年以上 6 年未満、6 年以上の 3 グループに分け、それぞれの蛍光指紋を平均したデータに対してピーク位置を調べた。ピーク位置の探索には MATLAB 2016b およびその画像解析アドオンソフトウェア (Image Processing Toolbox R2016b, The Mathworks, Inc., 米国) を用いた。

2. 実験結果および考察

(1) 泡盛試料の蛍光指紋

図 1 に貯蔵期間別に平均化した泡盛の蛍光指紋を示す。泡盛の古酒は「3 年以上貯蔵したもの」と定義されているため¹⁷⁾、貯蔵期間を 3 年未満、3 年以上 6 年未満および 6 年以上の 3 つに区切った。貯蔵期間 3 年未満の新酒には励起/蛍光波長が 254.3/290.4, 254.3/338.0 および 296.2/340.3 nm の位置に 3 つの蛍光ピークが観察された。これらのピークをそれぞれピーク a, b, c とすると、ピーク b, c の蛍光強度は、貯蔵期間が長くなるにつれ減少する傾向が見られた。また、明確な蛍光ピークは見られないものの、励起波長 300–350, 蛍光波長 400–450 nm 付近の微弱な蛍光が、貯蔵期間が長くなるにつれ若干増加する傾向が見られた。これらは複数の泡盛試料のデータを平均化して得られた大まかな傾向であるため、次に主成分分析により個々の試料間の差異を検討した。

(2) 主成分スコアプロット

図 2 に主成分分析の結果得られたスコアプロットを示す。第 1, 2 主成分の寄与率はそれぞれ 90.1, 5.8% であり、2 つの主成分で元の蛍光指紋に含まれている試料間の差異に関する情報を再現できたと考えられた。スコアプロット上では第 2 象限方向に新酒 (図中○), 第 1, 4 象限方向に古酒 (図中□) が分布していた。新酒と古酒では 28 種類の香気成分含有量に有意差があることが報告されており⁵⁾、これらの差異が蛍光指紋の等高線パターンや主成分得点の違いに寄与している可能性が考えられた。減圧蒸留の試料は

貯蔵期間によらず新酒に近い位置に分布していた。一方、常圧蒸留の古酒だが新酒に近い位置にある試料（図中a：酒造所F，貯蔵期間3.6年）や新酒だが古酒に近い位置にある試料（図中b：酒造所C，貯蔵期間0.5年）も観察されたが、これらの試料が他と異なる挙動を示す要因は、本研究では明らかにできなかった。なお、主成分スコアプロット上において、酒造所や銘柄毎の特異的なクラスターは観察されなかった。

(3) 主成分ローディングプロット

一般的に、主成分分析のローディングはスコアプロットと同様の散布図として可視化されることが多い。これは、ローディングプロット上において、スコアプロット上の特

図2 主成分スコアプロット

第2象限方向に新酒（図中○）、第1,4象限方向に古酒（図中□）が分布していた。aは古酒だが新酒に近い試料、bは新酒だが古酒に近い試料を示す。

定試料と同じような位置に存在する変数が、その試料を特徴づける変数だと判断できるためである²⁰⁾。しかし、本研究で用いた蛍光指紋には10545の変数があるため、散布図を図示してもその解釈が困難になると考えられた。そこで、図3に主成分分析の結果得られたローディングを蛍光指紋状に変形した等高線図を示す。スコアプロットでは第1主成分得点が正の領域に古酒が、負の領域に新酒および減圧蒸留試料が多く分布していた。したがって、第1主成分のローディングにおける正のピーク（図3左：p1）は古酒に、負のピーク（同n1, n2）は新酒や減圧蒸留試料に多く含まれている成分の蛍光を反映していると考えられた。一方、第2主成分得点が正の領域には新酒、古酒が混在していたが、負の領域にはほぼ古酒のみが分布していた。したがって、第2主成分のローディングにおける負のピーク（図3右：n1, n2, n3）は古酒に多く含まれている成分を反映していると考えられた。また、蒸留方法の違いに着目すると、第2主成分得点が正の領域にはほとんどの減圧蒸留試料が分布していた。したがって、第2主成分のローディングにおける正のピーク（同p1, p2, p3）は減圧蒸留試料に多い成分の蛍光を反映している可能性が示唆された。

(4) 蛍光ピークに対応する成分

図4に、主成分分析のローディングで観察されたピーク位置および標準試料のピーク位置を、泡盛試料の平均的な蛍光指紋の等高線図に重ね書きしたものを示す。図1に示した泡盛試料の蛍光ピーク位置など、複数の位置で異なるデータのピークが近接していることが明らかとなった。そこで、励起・蛍光波長の違いがそれぞれ±20nm以内のピークをグループ化し、励起波長が短いものから順にI～VIと名付けた。

表2に各ピークの励起・蛍光波長と所属グループを示す。

図3 等高線表示した主成分ローディング

図中の数値は該当線上のローディング値を示す。図中のpはローディング値の極大位置（正の値）、nは極小位置（負の値）を示す。

図 4 泡盛、標準試薬の蛍光指紋およびローディングで観察されたピーク

図中のローマ数字は励起・蛍光波長の差が 20 nm 以内のピークグループを示す。図中各記号の意味は以下の通り。○, 泡盛; △, 4-VG; □, バニリン; ×, 第 1 ローディング (p); +, 第 1 ローディング (n); *, 第 2 ローディング (p); +, 第 2 ローディング (n)。

表 2 本研究で観察されたピーク一覧

等高線の種類	ピーク 記号	励起波長 [nm]	蛍光波長 [nm]	グループ
泡盛	a	254.3	290.4	II
	b	254.3	338.0	III
	c	296.2	340.3	IV
4-VG	—	260.5	334.6	III
	—	302.4	334.6	IV
バニリン	—	288.4	421.6	V
第 1 ローディング (+)	p1	254.3	288.1	II
第 1 ローディング (-)	n1	254.3	340.3	III
	n2	298.6	340.3	VI
第 2 ローディング (+)	p1	254.3	281.4	II
	p2	256.6	342.5	III
	p3	298.6	340.3	VI
第 2 ローディング (-)	n1	235.6	425.1	I
	n2	277.6	313.0	IV
	n3	300.9	427.4	V

ピーク記号の a, b, c は図 1, p1-3 および n1-3 は図 3 に示した同じ記号のピークに対応する。

この中で、泡盛試料、4-VG、ローディングの全てでグループ III と VI に所属するピークが観察された。図 1 に示した泡盛試料の蛍光指紋において、貯蔵期間が長い試料ほどグループ III と VI に対応する位置の蛍光強度は低下していた。また、これら位置は第 1 主成分のローディングにおける負のピークと対応しており、これらは前節で考察した通り新酒に多い成分の蛍光を反映していると考えられる。さらに、既報により 4-VG は古酒より新酒に多い⁵⁾ ことから、グ

表 3 各ピークグループに対応する蛍光強度の相関行列

	I	II	III	IV	V	VI
I	1.00					
II	0.26	1.00				
III	-0.53	-0.91	1.00			
IV	0.26	0.05	-0.14	1.00		
V	0.96	0.19	-0.47	0.14	1.00	
VI	-0.48	-0.93	0.99	-0.19	-0.40	1.00

ローマ数字は図 4 および表 2 に示したピークグループに対応する。

ループ III と VI は泡盛試料中の 4-VG が発する蛍光に対応していると考えられた。

また、バニリンと第 2 主成分のローディングには、グループ I と V に所属するピークが共通して観察された。図 1 に示す泡盛試料の蛍光指紋において、これらの位置に明確なピークは観察されなかったが、貯蔵期間が長くなるほど蛍光強度が高くなる傾向が見られた。また、これらの位置は第 2 主成分のローディングにおける負のピークと対応しており、これらは前節で考察した通り古酒に多い成分の蛍光を反映していると考えられる。さらに、バニリンは新酒より古酒に多い⁵⁾ ことから、グループ I と V は泡盛試料中のバニリンが発する蛍光に対応していると考えられた。

(5) ピークグループ間の相関

表 3 に、泡盛試料の各ピークグループに対応する位置の蛍光強度について作成した相関行列を示す。ここで、各ピークグループの励起・蛍光波長には、グループ内に含まれるローディングのピーク位置を用いた。ピークグループ I と V, III と VI にはそれぞれ 0.95 を超える高い正の相関があり、それぞれ同じ成分から発せられる蛍光と考えられた。この結果は前節の考察を支持するものである。また、ピークグループ II は 4-VG に対応する III および VI と強い負の相関を持っており、泡盛の貯蔵中に 4-VG を前駆体として生じる物質の蛍光を反映している可能性が示唆された。しかしながら、本研究ではピークグループ II および IV に対応する成分を特定することはできなかった。

(6) 蛍光強度と貯蔵期間の関係

泡盛試料の 4-VG とバニリンが貯蔵中に増減するのに伴って、対応する波長の蛍光強度も変化するかどうかを確認するために、それぞれに対応する第 1 主成分ローディングのピーク n1, 第 2 主成分ローディングのピーク n3 の位置における泡盛試料の蛍光強度を貯蔵期間に対してプロットした (図 5)。前者においては貯蔵期間と蛍光強度の間に $R = -0.67$ の負の相関が、後者では $R = 0.55$ の正の相関があり、新酒においては 4-VG が、古酒においてはバニリンが多いという先行研究の報告に沿った結果となった。しかしながら、貯蔵期間と蛍光強度の関係は酒造所によって大きく異なった。例えば、4-VG に対応する蛍光強度は酒造

図5 貯蔵期間と4-VG (左) およびバニリン (右) に対応する蛍光強度の関係
凡例のA-Hは酒造所を示す。

所Dにおいては貯蔵期間に対してほぼ単調に減少したが、酒造所Cにおいては貯蔵期間によらずほぼ一定であった。バニリンに対応する蛍光強度についても、貯蔵期間に対して単調に増加する酒造所と、ほとんど変化しない酒造所があった。今後は、酒造所間固有の挙動の検討や、複数波長の蛍光強度を用いた重回帰分析により、泡盛の蛍光指紋に基づいた貯蔵期間推定の可能性を検証する必要がある。

3. 要約

泡盛、4-ビニルグアイアコール (4-VG) およびバニリンの標準試薬の蛍光指紋を測定した。泡盛サンプルの蛍光指紋は、励起/蛍光波長が254.3/290.4, 254.3/338.0および296.2/340.3nmの3つの蛍光ピークを有していた。後二者はサンプルの熟成期間の長いほど減少する傾向があった。励起波長300-350, 蛍光波長400-450nm付近の蛍光強度は弱かったが、熟成期間の長いほど増加する傾向があった。蛍光指紋データの主成分分析により、新酒と古酒が主成分スコアプロット上で明確に分離された。一方、酒造所間の明確な差異は観察されなかった。減圧蒸留で製造されたサンプルは、熟成期間にかかわらず、常圧蒸留された新酒の近くに位置していた。泡盛、標準試薬の蛍光指紋とおよび主成分ローディングのピーク位置を比較すると、これらのピークは6つのグループに分類できることが明らかになった。そのうち、2つのグループは4-VGの、他の2つはバニリンの蛍光に由来することが分かった。これらの結果から、蛍光指紋により貯蔵期間等の泡盛品質を簡易かつ迅速に評価し、消費者への情報提供や工程管理に応用できる可能性が示唆された。

文 献

- 1) Kanauchi, M. (2012). Characteristics and Role of Feruloyl Esterase from *Aspergillus Awamori* in Japanese Spirits, 'Awamori' Production. In "Scientific, Health and Social Aspects of the Food Industry," ed. by Valdez, B., InTech, pp. 145-162.
- 2) Yamaoka, H. (2001). Brewing of Awamori. *Journal of The Brewing Society of Japan, (Nippon Jyozokyoikai Shi)*, **96**, 736-742 (山岡 洋, 泡盛醸造, 日本醸造協会誌)。
- 3) Tamamura, T., Wada, K., Taneoka, F., Takara, K., Ishikawa, N., Nakasone, Y., et al. (2003). The changes in the aroma of awamori during storage. *Journal of the Japanese Society for Food Science and Technology, (Nippon Shokuhin Kagaku Kogaku Kaishi)*, **50**, 90-95 (玉村隆子, 和田浩二, 種岡文恵, 高良健作, 石川信夫, 仲宗根洋子, 知念 功, 泡盛製造工程における香気特性の変化, 日本食品科学工学会誌)。
- 4) Taira, J., Tsuchiya, A., and Furudate, H. (2012). Initial volatile aroma profiles of young and aged Awamori shochu determined by GC/MS/Pulsed FPD. *Food Sci. Technol. Res.*, **18**, 177-181.
- 5) Fukuda, H., Han, J., and Yamada, O. (2016). Characteristics of the volatile composition of commercially available Awamori. *Journal of The Brewing Society of Japan, (Nippon Jyozokyoikai Shi)*, **111**, 261-270 (福田 央, 韓 錦順, 山田 修, 市販泡盛の揮発性成分組成の特性, 日本醸造協会誌)。
- 6) Koseki, T., Ito, Y., Ito, K., Iwano, K., and Tadenuma, M. (1994). Phenolic compounds found in awamori. *Journal of The Brewing Society of Japan, (Nippon Jyozokyoikai Shi)*, **89**, 408-411 (小関卓也, 伊藤康朗, 伊藤 清, 岩野君夫, 蓼沼 誠, 泡盛中に見いだされたフェノール化合物, 日本醸造協会誌)。
- 7) Koseki, T. and Iwano, K. (1998). A mechanism for the formation and meaning of vanillin in Awamori. *Journal of The Brewing Society of Japan, (Nippon Jyozokyoikai Shi)*, **93**, 510-517 (小関卓也, 伊藤康朗, 岩野君夫, 泡盛中のバニリンの意義と生成機構, 日本醸造協会誌)。
- 8) Guth, H. (1997). Quantitation and sensory studies of character impact odorants of different white wine varieties. *J. Agric. Food Chem.*, **45**, 3027-3032.
- 9) Kizaki, Y. (2002). Public needs of information on alcoholic beverages. *Journal of The Brewing Society of Japan, (Nippon Jyozokyoikai Shi)*, **97**, 814-823 (木崎康造, 酒類情報に関する消費者ニーズ, 日本醸造協会誌)。
- 10) Sadecka, J. and Tothova, J. (2007). Fluorescence spectroscopy of vanillin. *J. Fluoresc.*, **17**, 101-106.

- copy and chemometrics in the food classification - a review. *Czech J. Food Sci.*, **25**, 159-173.
- 11) Tsuta, M. (2016). Research on using fluorescence fingerprints for the evaluation of food quality. *Journal of the Japanese Society for Food Science and Technology*, (*Nippon Shokuhin Kagaku Kogaku Kaishi*), **63**, 377-381 (薦 瑞樹, 蛍光指紋による食品の品質計測に関する研究, 日本食品科学工学会誌).
- 12) Kokawa, M., Sugiyama, J., and Tsuta, M. (2015). Development of the fluorescence fingerprint imaging technique. *Journal of the Japanese Society for Food Science and Technology*, (*Nippon Shokuhin Kagaku Kogaku Kaishi*), **62**, 477-483 (粉川美踏, 杉山純一, 薦 瑞樹, 蛍光指紋イメージング技術の開発, 日本食品科学工学会誌).
- 13) Sohn, M., Himmelsbach, D.S., Barton, F.E., and Fedorka-Cray, P. J. (2009). Fluorescence spectroscopy for rapid detection and classification of bacterial pathogens. *Appl. Spectrosc.*, **63**, 1251-1255.
- 14) Sadecka, J., Tothova, J., and Majek, P. (2009). Classification of brandies and wine distillates using front face fluorescence spectroscopy. *Food Chem.*, **117**, 491-498.
- 15) Yin, C., Li, H., Ding, C., and Wang, H. (2009). Preliminary investigation on variety, brewery and vintage of wines using Three-dimensional fluorescence spectroscopy. *Food Sci. Technol. Res.*, **15**, 27-38.
- 16) Yoshimura, M., Sugiyama, J., Tsuta, M., Fujita, K., Shibata, M., Kokawa, M., et al. (2014). Prediction of aerobic plate count on beef surface using fluorescence fingerprint. *Food Bioprocess Tech.*, **7**, 1496-1504.
- 17) 日本酒造組合中央会 (2013). 泡盛の表示に関する公正競争規約及び同施行規則.
- 18) Guimet, F., Ferré, J., Boqué, R., and Rius, F.X. (2004). Application of unfold principal component analysis and parallel factor analysis to the exploratory analysis of olive oils by means of excitation-emission matrix fluorescence spectroscopy. *Anal. Chim. Acta*, **515**, 75-85.
- 19) Yu, H., Liang, H., Qu, F., Han, Z., Shao, S., Chang, H., et al. (2015). Impact of dataset diversity on accuracy and sensitivity of parallel factor analysis model of dissolved organic matter fluorescence excitation-emission matrix. *Sci. Rep.*, **5**, 10207.
- 20) Wold, S., Esbensen, K., and Geladi, P. (1987). Principal component analysis. *Chemometr. Intell. Lab. Syst.*, **2**, 37-52.

引用 URL

- i) <http://law.e-gov.go.jp/htmldata/S28/S28F03401000011.html> (2017.4.12)
- ii) https://www.nta.go.jp/okinawa/kohyo/press/h27/sake_kazei/index.htm (2017.4.12)
- iii) http://www.okinawa-awamori.or.jp/wp/wp-content/uploads/20161031_keiei.pdf (2017.4.12)

(平成 29 年 4 月 18 日受付, 平成 29 年 7 月 10 日受理)