

# 紅麹製焼酎の特徴香氣成分の探索と生成メカニズムの解明

吉崎 由美子

鹿児島大学農学部附属焼酎・発酵学教育研究センター

〒890-0065 鹿児島市郡元 1-21-24

TEL: 099-285-3547

## 要旨

新しい酒質の焼酎および高付加価値焼酎粕を同時に生産することを目的に、高機能性二次代謝産物を生成する紅麹菌を用いた焼酎の製造研究を行い、その特徴香氣成分の探索および生成メカニズムの解明を行った。紅麹焼酎は白麹焼酎よりも多くの揮発成分においてその含有量が多い、または特異的な成分が多いことが分かった。これら特徴香氣成分の候補と考えられる 27 成分は、エステル類 14 成分、アルコール類 10 成分、ケトン類 3 成分であった。特に検出されたすべてのケトン類は紅麹焼酎において著しく多いもしくは特異的に検出されており、重要な香氣成分であることが示唆された。紅麹焼酎のもうみ発酵過程における経時変化を調べたところ、エステル類とアルコール類の成分は発酵経過と共に増加すること、一方ケトン類は発酵期間に関わらずほぼ一定、もしくは減少することが明らかになった。以上のことから、エステル類とアルコール類は酵母により生成されており、紅麹に含有されるアミノ酸や有機酸等の含有量が影響していることが示唆された。ケトン類は、主に紅麹菌が米粒上で培養される間に生成されており、本菌の生合成経路が亢進していることが示唆された。

## 1. 緒言

本格焼酎は、約 500 年の歴史を有する南九州の地域伝統発酵食品の一つであり、鹿児島においても古くから経済の牽引役としても重要な地域産業である。鹿児島では主にサツマイモを主原料とした芋焼酎が製造されているが、近年大分県産麦焼酎や宮崎県産芋焼酎が台頭しており、鹿児島産芋焼酎はやや押される形となっている。そこで、我々は鹿児島県産焼酎に新たな可能性を見出すために、新しい酒質を有する焼酎の製造および高付加価値焼酎粕の同時生産を目的に、そのストラテジーとして紅麹菌 (*Monascus* sp.) に着目してきた。

2003 年頃より日本国内、特に都市部を中心として芋焼酎を中心とした本格焼酎ブームが起き、広く本格焼酎が飲まれるようになってきた。この時のブームは、本格焼酎の風味に対する再評価と共に、焼酎に科学的に報告された血栓溶解活性<sup>1)</sup> や二日酔いしにくいというイメージが大きな推進力となったと考えられる。このことからも機能性を有した焼酎に対する需要が高いことが分かる。一方、紅麹菌 (*Monascus* sp.) は抗高脂血症薬に用いられるモナコリン K や GABA を生成する微生物として良く知られて

いる<sup>2),3)</sup>。本菌を焼酎製造に利用することができれば、これまでの麹菌 (*Aspergillus* sp.) とは異なる酒質を有する焼酎が製造でき、さらに抗肥満作用やコレステロール低下作用を有する焼酎粕を同時に産出することができる。また紅麹焼酎製造のメリットとして、現在使用している白麹菌や黒麹菌を紅麹菌に置き換えるだけで利用可能な技術であり、新しい施設や機器の導入を一切必要としないことが挙げられる。

このように紅麹を食品製造分野に利用することには多くの利点が期待される一方、実際には利用はほとんど進んでおらず、沖縄県の伝統発酵食品である豆腐ようなど一部の発酵食品に限られている。この理由として、紅麹菌の生育の遅さやそれに伴う雑菌汚染の可能性、そして何よりも発酵食品の製造に重要な酵素力価の低さが挙げられてきた。我々は、これまでに紅麹菌の培養条件と生育および酵素生産性との関係解明を目指した研究を進め、焼酎製造に利用可能なレベルまで紅麹菌の生育速度および酵素力価を向上させることを試みてきた<sup>4)</sup>。その一方で、実際の焼酎製造への利用を考えた上で、新たな問題も提示された。その問題点が、紅麹焼酎独特の香氣である。製造した紅麹焼酎の官能評価を行った結果、紅麹焼酎の香りの特徴は、これまでの麹菌(白麹菌、黒麹菌、黄麹菌)とは異なる酒質を有することが確認できた。しかしながら、紅麹焼酎において甘いやイチゴ様等の良い香氣印象もあれば、チーズやムレ臭などの欠点臭を有することが明らかになった。これらの特徴香は紅麹の食品利用においてプラスに影響する面があるものの、利用を妨げる要因となり得る。そこで紅麹由来特徴香気成分の増強や軽減等のコントロールが可能となれば、広く食品製造に紅麹が用いられることが期待される。本研究では紅麹焼酎を製造し、その特徴香と寄与する成分の検索およびその生成メカニズムを明らかにすることを目指した。

## 2. 材料と方法

### 2.1. 使用菌株および試薬

紅麹菌 (*Monascus anka*)は(株)秋田今野商店より購入した。白麹菌は(株)河内源一郎商店より購入した河内菌白麹の種麹を用いた。酵母は鹿児島5号酵母を使用した<sup>5)</sup>。一般成分分析に使用した試薬類は、特に明記しない限り、市販の特級試薬を使用した。

### 2.2 紅麹および白麹の作製

麹米は市販の食用精白米を使用した。白麹の製麹は、一般焼酎製造場にて行われる定法と同様に行った。紅麹の製麹は以下の手順で行った。麹米 5 kg を洗米し、20 分間浸漬させた後、水切りを1時間行い、1時間蒸煮した。この蒸米を約 40°C まで冷却後、種麹 50 g を添加し、均一になるまで混合した(植菌)。製麹全工程は自動製麹機(ヤエガキフード&システム(株)、兵庫)で 35°C にて温度管理を行った。植菌から 66 時間後、米の表面全体が紅麹菌の菌糸に覆われていることを確認し、温度制御の解除および送風のみによる麹の乾燥(12 時間)を行った。植菌から 78 時間後のサンプルを各種試験に使用した。

### 2.3 全麹仕込み焼酎の製造

全麹仕込み焼酎のもろみ (2 L) は汲み水歩合 180% とした。麹は紅麹および白麹を用いた。各麹は生米量を一定 (750 g) とし、それぞれ麹の水分含量から加える水分量を算出した。もろみは 30°C の恒温水槽中で保温した。仕込み直後にもろみ容器全体の重量を測定した。その後、毎日全体重量を計測することで重量変化を追跡した。白麹は 10 日間、紅麹は 12 日間発酵させた。発酵終了後のもろみ (1.5 kg) をガラス製単式蒸留器を用いて常圧蒸留を行った。マントルヒーターによって加熱された丸底フラスコ中の脱塩水から発生した蒸気をもろみに導入することでもろみを加熱し、蒸留した。蒸留の終点は蒸留液のアルコール度数が約 37% に到達した時点とした。アルコール度数は酒精度浮ひょうを用いて測定した。得られた焼酎は、オムニメンブレン、フィルター孔径 1.0 μm を用いてろ過後、蒸留水を加えてアルコール度数 25% に調整して保存した。焼酎のアルコール度数は、酒精度用振動式密度計 (DA-155, 京都電子工業 (株), 京都) を用いて測定した。

#### 2.4. 官能評価試験

官能評価は酒類のアルコール度数を 25% に統一して行った。テイスティングサンプルは紅麹焼酎ならびに白麹製焼酎を用いた。官能評価法としてプロファイル法を用いた。官能評価試験は、室温の官能評価室にて 2 段階の評価を実施した。始めに紅麹焼酎に対応する香り表現を選出するために、男性 8 名、女性 7 名、計 15 名のパネルより紅麹製焼酎に対する香り表現 (用語) を集めた。得られた用語を整理し、それぞれ個別に認知されうる香味特性に用語を対応させ、8 つの表現 (フローラル、フルーティ、酸臭、青臭、甘香、ムレ臭、チーズ様、穀物臭) を選んだ。次に各香り用語の見本との比較による採点法による評価を実施した。香り見本は、それぞれ対応する標品を香りを弱く感じる程度にまで希釀したものを使用した。採点法による評価は男性 5 名、女性 7 名、計 12 名のパネルにより行った。香り見本をパネルに記憶してもらい、テイスティンググラスに入った約 70 ml の焼酎サンプルの香りの強弱を 0~5 の評点によって評価した。同時にパネルに香りのコメントを記述してもらった。

#### 2.5. ヘッドスペースガスの捕集とガスクロマトグラフィー (GC-MS) 分析

全麹仕込み焼酎 10 ml と内部標準物質である 10 mg/L 1-ペンタノール 1 ml を専用 250 ml 容ボトルに入れた。サンプルのヘッドスペースガス成分は、ヘッドスペース自動濃縮装置 Entech 7100A (Entech Instruments inc.) により捕集および濃縮した。サンプルが入ったボトルを自動濃縮装置に連結し、30°C 恒温水槽内で 30 分間保温した後、ヘッドスペースガスの捕集を行った。ボトル内のヘッドスペースガス部を 100 ml 吸引し、捕集・濃縮に供した。全麹仕込み焼酎の揮発成分の同定および定量分析は GC-MS (GC; Agilent 6890, MS; Agilent 5979B; アジレント・テクノロジー (株)) により行った。成分の一時同定は Agilent ChemStation ソフトウェアと NIST05a マススペクトルライブラリーによって行った。また標準物質の保持時間 (RT) およびマススペクトルパターンとの比較により成分を同定した。

## 2.6 発酵期間における経時的紅麹焼酎もろみサンプルの調製

生米量換算で 500 g となるように麹の水分量を考慮し、必要な紅麹量を算出した。汲み水歩合 180% となるように、脱塩水 900 g を加え、紅麹の米粒が均一に破碎されるまでフードプロセッサーにて、処理を行った。処理後、2 ml の酵母培養液を添加し、よく攪拌した。もろみは 30°C の恒温水槽中で保温した。同様のサンプルをもう一つ準備し、合計 2 つのもろみを作製した。毎日 10 g を GC-MS 分析用捕集ボトルにサンプリングし、10 mg/L 1-pentanol 1 ml を加えて測定用サンプルとした。各もろみより毎日 2 回分の測定用サンプルを準備した。その他の GC-MS の分析条件は、2.5. に準じて行った。

## 3. 結果

### 3.1. 紅麹焼酎および白麹焼酎の作製および官能評価

紅麹焼酎は共に白麹とはまったく異なる香りを有しており、新しい酒質の焼酎となつた。紅麹焼酎と対照である白麹焼酎の官能評価試験を行つたところ、紅麹焼酎に確認された匂いは、ムレ臭とチーズ様であった (Fig.1)。白麹焼酎は酸臭の評点が高く、酢酸含有量が多いことが影響したと考察した。このチーズ臭が生酸菌 (特に乳酸菌) による汚染でないことを生酸菌検出試験より確認しており、以上の官能評価の結果より、紅麹焼酎のチーズ臭は紅麹由来の香りであることが分かつた。

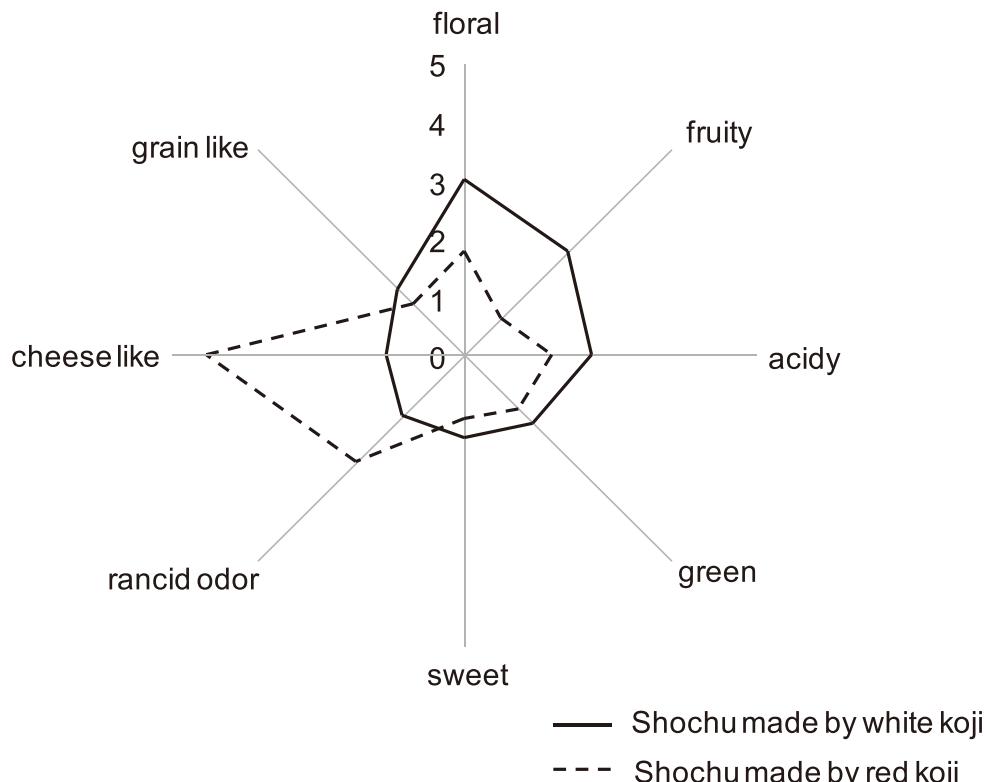


Fig. 1. Aroma profile analysis of shochu made by white koji and red koji

### 3.2. 紅麹焼酎および白麹焼酎揮発成分の GC-MS 分析による比較

紅麹焼酎と白麹焼酎のマススペクトル解析による香気成分の比較を行った。エステル類、アルコール類、アルデヒド類、ケトン類、含硫化物、フラン類、およびエーテル類の 7 群に分類し、比較した (Table1)。

**Table I. Comparison of volatile compounds identified by GC/MS analysis.**

Identification	Quantification ions (m/z)	Rel. <i>k<sub>ref</sub></i> Relative peak area	Rel. <i>k<sub>ref</sub></i>	White <i>k<sub>ref</sub></i> Concentration (ppm)
			White <i>k<sub>ref</sub></i>	
<b>esters</b>				
ethyl acetate	MS*, std, RI*	91	51.71	40.16
ethyl propionate	MS, std, RI	57	7.87	5.17
ethyl isobutyrate	MS, std, RI	71	36.61	5.41
ethyl butyrate	MS, std, RI	71	49.59	11.83
ethyl 2-methyl butyrate	MS, std, RI	102	6.74	0.88
ethyl isovalerate	MS, std, RI	88	10.72	0.82
ethyl caproate	MS, std, RI	88	18.87	11.99
ethyl hexanoate	MS, std, RI	88	0.11	3.28
ethyl myristate	MS, std, RI	88	31.03	13.48
ethyl lauroate	MS, std, RI	88	0.033	3.93
ethyl myristoleate	MS, std, RI	88	2.15	17.85
ethyl laurate	MS, std, RI	88	0.18	3.53
isopropyl acetate	MS, std, RI	61	0.72	0.78
propyl hexanoate	MS, std, RI	99	N.D. <sup>4</sup>	3.02
isobutyl acetate	MS, std, RI	56	7.19	1.55
isobutyl acetate	MS, std, RI	56	0.65	0.19
isobutyl isobutyrate	MS, std, RI	71	0.34	0.06
isobutyl hexanoate	MS, std, RI	99	0.07	3.05
Isobutyl butyrate/isobutyl butyrate	MS, std, RI	71	0.25	N.D.
isopentyl acetate	MS, std, RI	70	127.69	43.22
isopentyl hexanoate	MS, std, RI	70	0.11	0.21
isopentyl octanoate	MS, std, RI	70	0.033	3.13
isobutyl octanoate	MS, std, RI	127	0.021	3.07
isooctyl propionate	MS		N.D.	0.07
isooctyl butyrate/Amyl Butyrate	MS, std, RI	71	0.42	3.06
phenethyl acetate	MS, std, RI	104	1.66	0.40
3-methyl-1-butene-2-methylpropanoate	MS, std, RI	70	0.06	3.03
2-ethylhexyl acetate	MS, std, RI	70	0.12	3.03
diethyl succinate	MS, std, RI	101	0.060	0.090
<b>alcohols</b>				
isobutyl alcohol	MS, std, RI	74	15.17	3.04
isooctyl alcohol	MS, std, RI	53	558.38	141.63
phenethyl alcohol	MS, std, RI	91	3.87	1.32
3-methyl-3-butene-1-ol	MS, std, RI	56	0.15	3.04
2-ethyl-1-butanol	MS, std, RI	70	0.04	N.D.
4-methyl-1-pentanol	MS, std, RI	56	0.06	N.D.
2-hexanol	MS, std, RI	55	0.12	N.D.
1-hexanol	MS, std, RI	56	0.28	3.05
2-heptanol	MS, std, RI	59	0.17	N.D.
1-octen-3-ol	MS, std, RI	47	0.03	0.07
2 ethyl-1 hexanol	MS, std, RI	57	0.82	0.15
<b>aldehydes</b>				
2-methylbutyraldehyde	MS, std, RI	57	0.41	1.27
isovaleraldehyde	MS, std, RI	58	0.40	0.85
isovaleraldehyde	MS, std, RI	56	0.49	0.62
nonanal	MS, std, RI	57	0.10	3.083
<b>ketones</b>				
2-pentanone	MS, std, RI	86	0.22	0.05
2 heptanone	MS, std, RI	58	0.89	0.06
2 nonanone	MS, std, RI	58	0.98	N.D.
<b>sulfur compounds</b>				
methyl disulfide	MS, std, RI	94	N.D.	0.18
dimethyl trisulfide	MS, std, RI	126	N.D.	0.003
<b>furan</b>				
2-furulic acid	MS, std, RI	81	0.08	0.66
furan	MS, std, RI	96	N.D.	8.72
<b>ether</b>				
diethylene glycol monobutyl ether	MS, std, RI	57	0.12	0.16
acetal	MS, std, RI	73	63.76	40.97
4-methyl-2-butyl acetal	MS, std, RI	104	0.09	0.30

\* Compounds identified by comparison with the NIST library mass spectral database.

<sup>2</sup> Compounds identified by comparison that mass spectra with those of the authentic compounds.

<sup>3</sup> Compounds identified by comparing their retention indexes with those of the authentic compounds.

<sup>4</sup> Not detected.

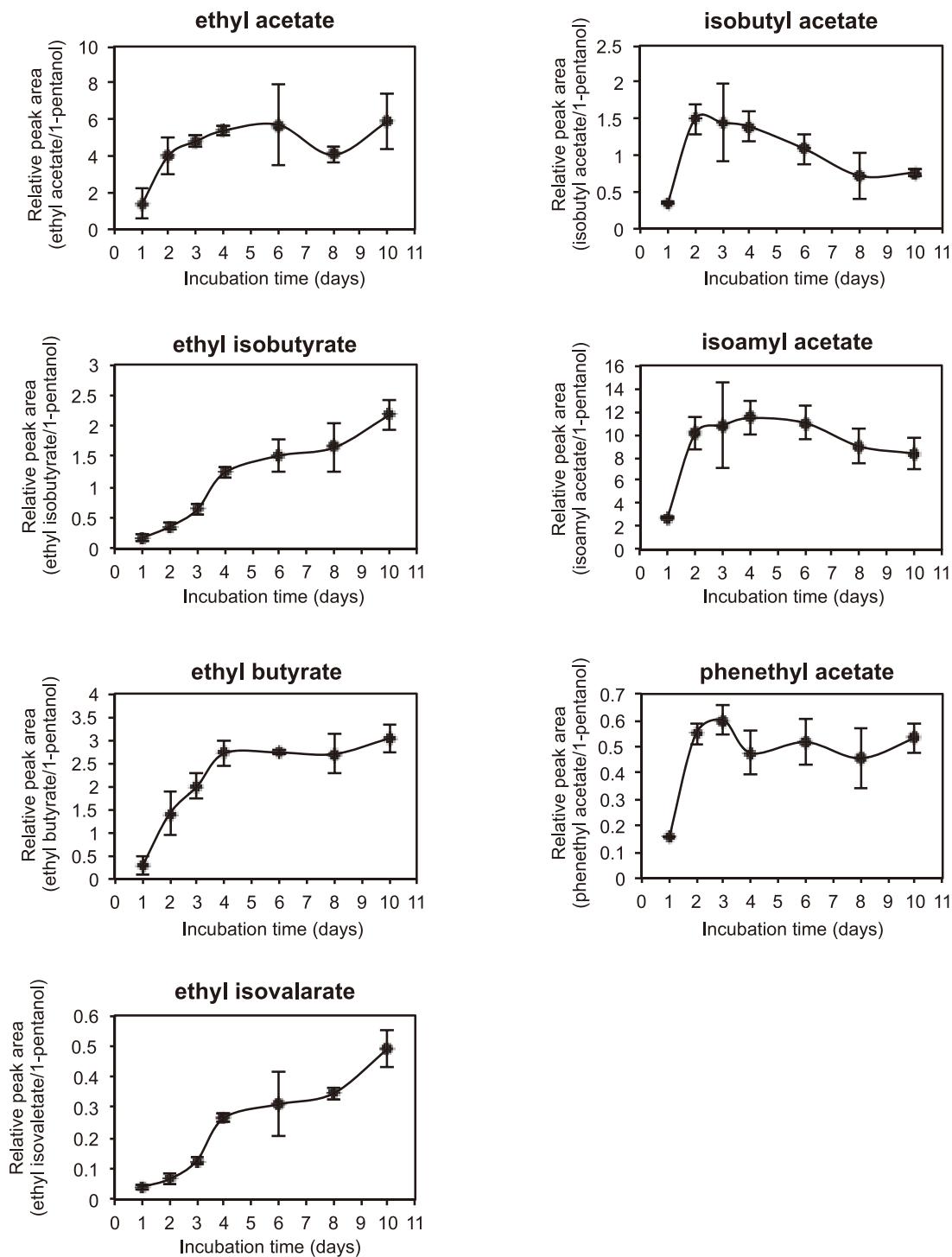
この結果より紅麹焼酎で 49 成分、白麹焼酎で 48 成分を同定した。そのうち紅麹焼酎でのみ検出された成分は 6 成分、白麹焼酎のみ検出された成分は 5 成分であった。共通して検出された 43 成分では、21 成分が紅麹焼酎に多く含有され、白麹焼酎において多く含有される成分は 7 成分であった。このことからも紅麹焼酎は白麹焼酎よりも多様な成分を多量に含有していることが分かる。紅麹焼酎に多い、もしくは紅麹焼酎にのみ検出された 27 成分は、エステル類、アルコール類およびケトン類の 3 分類にすべて分類することができた。これらの 3 分類中エステル類がもっとも多く 14 成分であった。特にイソブタノールやイソアミルアルコールと有機酸より生成されると考えられる短鎖脂肪酸エステルが豊富に含まれており、複雑な香味形成に寄与していることが示唆された。またケトン類はほぼすべてにおいて紅麹焼酎に多いまたは特異的に含有されていた。

一方、白麹焼酎に多い、もしくは白麹焼酎にのみ検出された成分は、エステル類、アルデヒド類、アルコール類、フラン化合物、含硫化合物、エーテル類の 5 分類に分けることができた。フラン化合物は 5 炭糖より生成されるものが多いことから、白麹の高い糖質分解活性が影響していることが示唆された。エーテル類は各麹の焼酎で特異的なものが含まれていたことから、白麹焼酎の特有の香りに影響していることが示唆された。

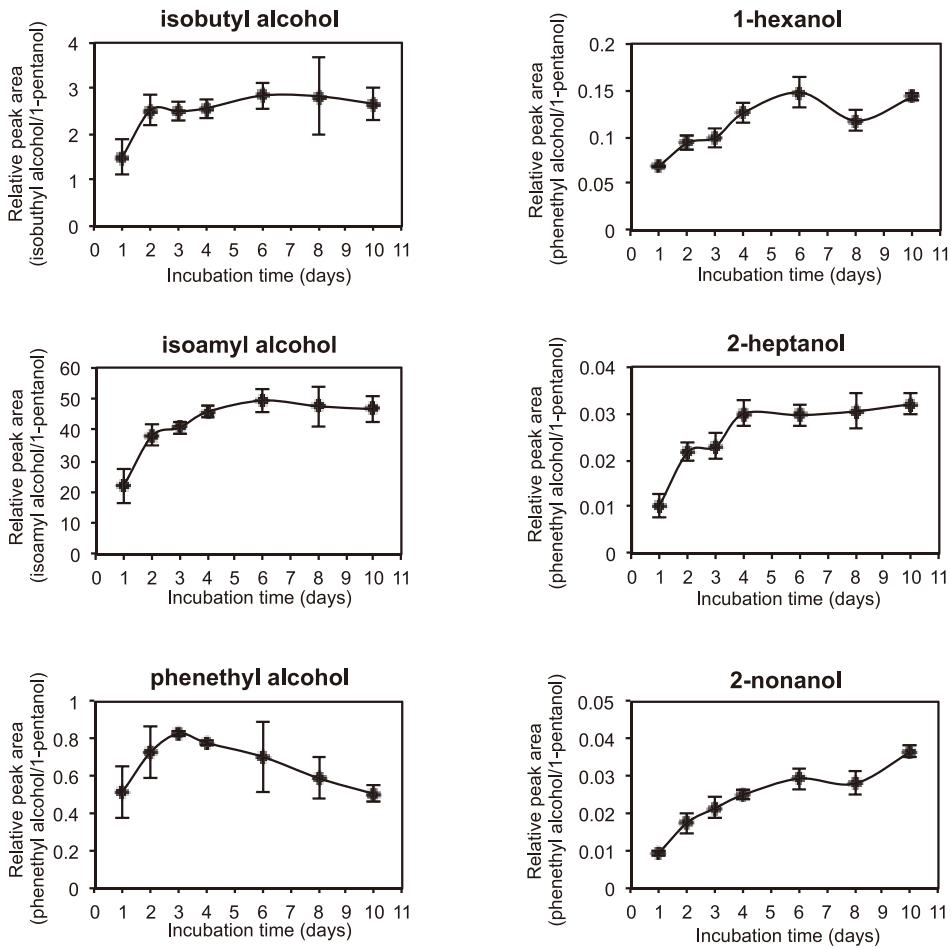
### 3.3. もろみ発酵過程における鍵化合物の増減

紅麹焼酎の特徴香氣鍵化合物として、白麹焼酎よりも多いまたは特異的に含まれる 27 成分が挙げられた。そこでこれら 27 成分について、その生成過程を調べるために、紅麹焼酎もろみの発酵過程における経時変化を調べた。この時、麹作製時における経時変化も同様に分析したが、含有量が少ないと等から解析が非常に困難であった。また通常もろみは米粒状の麹に対して、水および酵母培養液を添加し、そのまま保温することで発酵させるが、今回はサンプリング時の均一性を高めるために、フードプロセッサーによって米粒を細かく破碎し、ほぼ均一の液状となる様にしている。しかしながら、発酵初日においては水と麹が完全に混合し、分散した状態ではないことが目視にて確認できた。また分析結果からも、発酵初日は香氣成分量が全てについて低く、おそらく紅麹にすでに含有される香氣成分においても液相や気相への移行が不十分であることが示唆されたために、経時データに加えないこととした（データは示さない）。発酵 2 日目 (incubation for 1 day) より、毎日または 1 日おきにサンプリングしたもろみ試料に含まれる香氣成分を GC-MS によって分析した。紅麹焼酎の特徴香氣鍵化合物 27 成分の中で、比較的もろみ中の含量が多い 16 成分について示す。16 成分のうち、7 成分はエステル類、6 成分はアルコール類であり、残り 3 成分はケトン類である。これら 16 成分は、発酵時間に伴い増加する成分と、発酵後減少する成分の 2 種類に大別できることが分かった (Fig.2,3,4)。主にエステル類およびアルコール類は、発酵時間に従って増加する傾向を示した。一方、ケトン類は 2-pentanone がほぼ一定の値を示し、さらに 2-heptanone および 2-nonanone は発酵後減少することが明らかになっ

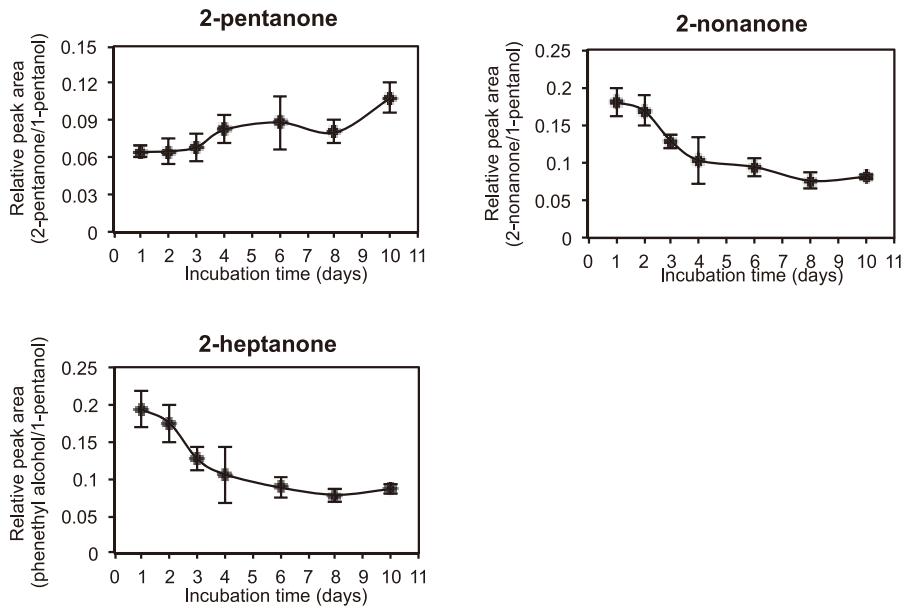
た。以上のことから、エステル類およびアルコール類はおもに発酵時に生成されることが明らかになり、ケトン類は紅麹作製時に生成されていることが示唆された。



**Fig. 2. Time course of change in the amount of each alcoholic compounds during the fermentation.**



**Fig. 3. Time course of change in the amount of each ester compounds during the fermentation.**



**Fig. 4. Time course of change in the amount of each ketone compounds during the fermentation.**

#### 4. 考察

白麹焼酎の GC-MS 結果と比較することで、紅麹焼酎の特徴香気成分の探索を行った。その結果、エステル類およびアルコール類、ケトン類の 27 成分が候補として挙がった。これら 27 成分について紅麹焼酎もろみの発酵過程における経時変化を調べたところ、エステル類およびアルコール類は発酵に伴い生成されていること、ケトン類は紅麹の作製時に主に生成され、発酵時においては他の物質に変換されていることが示唆された。イソ酪酸エステル (ethyl isobutyrate) や、酪酸エステル (ethyl butyrate), イソ吉草酸エステル (ethyl isovalarate), 酢酸イソ酪酸 (isobutyl acetate) は独特な甘い香氣を有する化合物であり、紅麹焼酎の特徴香の形成に大きく寄与することが示唆される。またケトン類の多くは、紅麹焼酎において特異的に検出された成分であり、上記エステル類と同様に紅麹焼酎の特徴香の形成に重要であることが考えられる。エステル類やアルコール類の多くは、主に酵母によって生成される成分であることがすでに知られている<sup>6)</sup>。したがって紅麹においてこれらエステル類やアルコール類が多く含有される理由として、これら化合物の基質となる有機酸およびアミノ酸類の生成量が紅麹菌と白麹菌で異なることが考えられた。一方、ケトン類は紅麹菌が特異的に生成する成分であることが示唆される。紅麹において検出されたこれらケトン類は脂肪族メチルケトンであり、微生物を始めとして、植物、昆虫、哺乳動物細胞など自然界に広く存在が確認されている<sup>7)</sup>。これらの化合物は、植物におけるフェロモンや殺虫物質として自然界においても、またチーズ等の日用品における香りつけやエッセンシャルとして商業的にも重要な物質である<sup>7)</sup>。脂肪族メチルケトンは脂肪酸の  $\beta$ -酸化、またはアルケン/アルカン分解の様な生化学的経路によって生成されると考えられており、紅麹菌においてこれら生合成経路が白麹菌と比較して亢進していることが示唆された。今後は、紅麹菌における脂肪族メチルケトンの生合成経路の存在について、詳細な検討を行うこととする。

#### 5. 謝辞

本研究を遂行するにあたり、研究助成をしていただいた公益財団法人サンケイ科学振興財団に深謝いたします。

#### 6. 引用文献

- 1) 須見洋行, 本格焼酎・泡盛の機能性, 日本釀造学会, 96, 8, 513-519 ().
- G.F. Antonious, D.L. Dahlman, and L.M. Hawkins, Insecticidal and acaricidal performance of methyl ketones in wild tomato leaves. *Bull. Environ. Contam. Toxicol.* **71**, 400-407 (2003).
- 2) A. Endo, Monacolin K. A new hypcholesterolemic agent that specifically inhibits 3-hydroxy-3-methylglutaryl coenzyme A reductase. *J. Antibiot. (Tokyo)*, **33**, 334-336 (1980).
- 3) H. Hajaj, A. Klaebe, M.O. Loret, T. Tzedakis, G. Goma, and P.J. Blank, Production and identification of N-glucosylrubropunctamine and N-glucosylmonascorubramine from *Monascus ruber* and occurrence of electron donor-acceptor complexes in these red pigments.

*Appl. Environ. Microbiol.*, **63**, 2671-2678 (1997).

- 4) Y. Yoshizaki, T. Susuki, K. Takamine, H. Tamaki, K. Ito, and Y. Sameshima,** Characterization of glucoamylase and  $\alpha$ -amylase in red koji. *J. Biosci. Bioeng.*, **110**, 670-674 (2010).
- 5) K. Takamine, S. Setoguchi, H. Kamesawa, T. Kamiwatari, S. Ogata, K. Onoue, Y. Hamasaki,** Study on screening of shochu yeast. *Research report of Kagoshima prefectoral institute of industrial technology* , **8**, 1-6 (1994).
- 6) L.A. Hazelwood, J-M. Daran, A.J.A. van Maris, J.T. Pronk, and J.R. Dickinson,** The Ehrlich pathway for fusel alcohol production: a century of research on *Saccharomyces cerevisiae* metabolism. *Appl. Environ. Microbiol.*, **74**, 2259-2266 (2008).
- 7) F.W. Forney and A.J. Markovetz,** The biology of methyl ketones. *J. Lipid Res.*, **12**, 383-395 (1971).

## **The characteristic odor compounds from red *koji***

Yumiko Yoshizaki

Division of Shochu Fermentation Technology, Education and Research Center for  
Fermentation Studies, Faculty of Agriculture, Kagoshima University, 1-21-24 Korimoto,  
Kagoshima City, Japan

Tel/Fax: +81-99-285-3547, E-mail: [obana@ms.kagoshima-u.ac.jp](mailto:obana@ms.kagoshima-u.ac.jp)

The purposes of this study were the production of new shochu which has the different odor from the present manufactured shochu and more functional distillate residues. Thus, we tried to manufacture the shochu made from red koji which is the kind of rice koji made by *Monascus* sp. The shochu made from red koji (red koji shochu) has the characteristic odor compared to the shochu made from the white koji (white koji shochu) which is normally used for shochu manufacturing and made by *Aspergillus* sp. There are 27 compounds of the candidates of key aroma in red koji shochu. Especially, ketone compounds were only detected in red koji shochu. The time course of key compounds during fermentation is separated two types. One was increased according to the fermentation periods: ester and alcohol compounds, another was constant or decreased: ketone compounds.

