東海大農紀要 40：１－８（2021）

ウンシュウミカンにおける二倍体と四倍体の果実品質と抗酸化能の比較

佐藤真衣[1]・安田喜一[1]・菊池紘平[2]・戸村大河[2,3]・八幡昌紀[3]・國武久登[4]

Comparison of fruits quality and antioxidant activity between diploid and tetraploid in Satsuma mandarin

Mai Sato, Kiichi Yasuda, Kohei Kikuchi,
Taiga Tomura, Masaki Yahata and Hisato Kunitake

（Received 3 December 2020; accepted 22 December 2020）

Abstract

To clarify the time-dependent change of fruit quality and health functional components in the tetraploid Satsuma mandarin（*Citrus unshiu* Marcow.）, the fruits were measured the coloring fruit skin, sugar and organic acid contents, total polyphenol content and antioxidant activities by ABTS cation radical scavenging activity. As a result, the tetraploid fruit skin indicated the deeper and redder color than that of the diploid at harvesting stage. There was no significant difference in the sugar contents between the diploid and tetraploid. The organic acid content generally continued to be flat in the tetraploid pulp（juice sac）, whereas it was normally decreased in the diploid pulp with maturation of fruits. For the last period, this value of the tetraploid was significantly higher than the diploid. Furthermore, the antioxidant activity the flavedo and/or albedo in the tetraploid was significantly higher than the diploid during some investigation periods, although there was no significant difference between the two in the total polyphenol content, expect for some investigation periods. Thus, it was considered that the tetraploid Satsuma mandarin was difficult to use as a fresh fruit, but it was useful as a processed food such as marmalade, dried fruit and juice whose raw material was pericarp.

緒　言

カンキツ類は，一般にカンキツ（*Citrus*）属，キンカン（*Fortunella*）属およびカラタチ（*Poncirus*）属の3つを指し，我が国では，西南暖地を中心に栽培されている常緑果樹である．特に，我が国のカンキツ類において最も栽培面積が広いウンシュウミカン（*C. unshiu* Marcow.）は，鹿児島県長島町で400～500年前に発生したと考えられており（1），近年の DNA マーカーを用いた研究により，キシュウミカン（*C. kinokuni* hort. ex Tanaka）とクネンボ（*C. nobilis* Lour.）との雑種であると推察されている（2）．ウンシュウミカンが全国に広まったのは，明治時代以降であり，九州地方では200年以上前から伝播したと言われている（3）．ウンシュウミカンは，カンキツの中では樹勢が比較的弱いものの，耐寒性が強いため，我が国では関東より以西で栽培が盛んに行われている．また，雌雄性不稔で単為結果性があるため基本無核果を生じ，さらに剥皮性が優れ，柔軟多汁で甘酸相和した食味を有する．特に，‘宮川早生’はウンシュウミカンの中でも比較的大果・薄皮で，食味が濃厚で，裂果，日焼けおよび炭疽病が少なく栽培しやすいため，早生ウンシュウの代表品種となった．その後，‘宮川早生’からは芽条変異や珠心胚実生を通じて‘日南1号’や‘興津早生’など様々な品種が選抜され，ウンシュウミカンの各産地で普及した（1）．しかしながら，我が国におけるウンシュウミカンの生産量は，1975年の366.5万トンをピークに年々減

[1] 東海大学農学部応用植物科学科
[2] 元東海大学農学部応用植物科学科
[3] 静岡大学大学院総合科学技術研究農学専攻
[4] 宮崎大学農学部応用生物科学科
連絡先：安田喜一　e-mail: yk964422@tsc.u-tokai.ac.jp

少傾向にあり，2019年では74.67万トンに激減している（4, 5）．

近年，我々の生活における健康志向の高まり，食生活の見直しが進められるとともに，果実の持つ健康機能性成分の効果が注目されている．抗酸化作用をもつ物質としてブルーベリー等に含まれるポリフェノールが有名であるが，それ以外にもカロテノイド類，フラボノイド類，ビタミンC・Eなどが挙げられ，カンキツ類はこれらを多く含む果実として知られている（6）．特に，カンキツ属であるウンシュウミカンには，β-クリプトキサンチンとよばれる健康機能性成分が豊富に含まれている（7）．β-クリプトキサンチンとは，野菜や果実に含まれるカロテノイド色素の一種であり，その栄養特性は，体内にビタミンAとして代謝されるプロビタミンAとしての働きにより生活習慣病の予防に効果があると言われている（8）．そのため，2015年には食品表示法に基づく新たな機能性表示食品の成分として，ウンシュウミカンについてβ-クリプトキサンチンの機能性表示が生鮮食品で初めて登録された（9）．このように，カンキツ類，特にウンシュウミカンでは健康に良い食品としての機運が高まっている．

一般に，二倍体植物は四倍体化することにより，色素体やアルカロイドなどの化学成分含量が大きく変化することが知られている（10）．例えば，スイカ（*Citrullus lanatus*（Thunb.）Matsum & Nakai）の四倍体では，二倍体と比較して果肉中の糖，β-カロテンおよびリコピンの含量が（11），ブドウ（*Vitis* spp.）では，‘巨峰’と‘マスカット・ハンブルグ’の交雑より得られた二倍体，三倍体および四倍体後代において，倍数性が上がるごとに果皮中の総アントシアニン含量が増加することが報告されている（12）．一方，カンキツに関しては，二倍体と四倍体の果実中の糖度および酸度について調査した報告はいくつかあるものの（13–16），ポリフェノール類などの化学成分含量やその食品機能性を比較した報告はほとんどない．我々の研究グループでは，早生ウンシュウミカンにおいて珠心胚実生から四倍体の選抜に成功し，この四倍体の形態的特徴と生殖機能を明らかにしているが（16），果実中の糖と有機酸の組成や抗酸化能の経時的な変化は未解明である．

そこで，本研究では四倍体ウンシュウミカンに関する栄養学および生理学的知見を得るために，成熟期の果皮色，全糖含量，全有機酸含量，総ポリフェノール含量および抗酸化能を経時的に測定し，二倍体ウンシュウミカンと比較した．

材料および方法

植物材料

静岡大学農学部地域フィールド科学教育研究センター植栽の接ぎ木10年生の二倍体（2n＝2x＝18）の‘宮川早生’ウンシュウミカンと早生ウンシュウミカンの珠心胚実生から選抜した四倍体（2n＝4x＝36）を用いた．2018年10月3日，11月2日および12月1日の3回にかけてそれぞれの植物材料から中庸な果実を15果ずつ収穫し，それらを以下の調査および解析に供試した（Fig. 1）．

果皮色の調査

収穫した果実15果の中から5果を無作為に選び，果皮色（L^*値，a^*値，b^*値）を色彩色差計（CR-321，コニカミノルタジャパン株式会社）で測定した．さらに，測定で得られた果皮色の値と以下の式を用いて色相角度（h）を求めた．

$$色相角度(h) = \tan^{-1}(b^*/a^*) \times 180/\pi$$

果実中の糖・有機酸含量の測定

残りの10果実から9果のうち3果を混ぜたものを1サンプルとして，3反復で測定を行った．各果実をフラベド，アルベドおよび果肉に可能な限り分離し，果肉は5.0g，フラベドとアルベドは2.5 gずつ測り，抽出に用いるまで－30℃で冷凍保存した．

これらのサンプルの糖・有機酸含量を一部改変した執行ら（17）の方法で測定した．サンプルをホモジナイザー（ULTRA-DISPERSER，ヤマト科学株式会社）を用いて，80％エタノール中で13,500 rpmで1～2分ホモジナイズした．その溶液を三角フラスコに移して沸騰水中で1時間温浴し，吸引ろ過後，蒸留水で50 mLに定容し，分析に使用するまで－30℃で冷凍保存した．

サンプル抽出液を蒸留水で希釈し，ミニザルト（孔径0.2 μm）に通したものを分析液として使用した．なお，糖分析用のフラベドとアルベドを5倍，果肉を10倍に，有機酸分析用のフラベドを2倍，アルベドと二倍体の果肉を5倍，四倍体の果肉を10倍に希釈した．糖分析では，HPLC［ポンプ（LC-20AD，株式会社島津製作所），カラム（SCR-101N，株式会社島津製作所），流速：0.5 mL/min，カラムオーブン（CTO-20AC，株式会社島津製作所），カラム温度：40° C，検出器：示差屈折計検出器（RID-20A，株式会社島津製作所），移動相：超純水］で測定し，スタンダードには，ショ糖（試薬特級，ナカライテスク株式会社），ブドウ糖（試薬特級，ナカライテスク株式会社）および果糖（試薬特級，関東化学株式会

社）を用いた．また，有機酸分析にはHPLC［ポンプ（LC-20AD，株式会社島津製作所），カラム（SCR-101H，株式会社島津製作所），流速：0.8 mL/min，カラムオーブン（CTO-20AC，株式会社島津製作所），カラム温度：45℃，検出器：電気伝導度検出器（CDD-10A，株式会社島津製作所），移動相：5 mM p-トルエンスルホン酸水溶液，緩衝液：5 mM p-トルエンスルホン酸および100 mM EDTA 含有20 mM Bis-Tris 水溶液］で測定し，スタンダードには，クエン酸（試薬特級，ナカライテスク株式会社），リンゴ酸（試薬特級，ナカライテスク株式会社）およびキナ酸（SIGMA-ALDRICH）を用いた．測定後，新鮮重100 g 当たりの糖含量と有機酸含量を算出した．

果実中の総ポリフェノール含量の測定

4％酢酸含有50％メタノール水溶液中で糖・有機酸含量の測定と同様にホモジナイズを行い，高速冷却遠心機（Suprema21，株式会社トミー精工）で4℃，15,000 rpm，20分間遠心分離を行った．遠心後，上清を三角フラスコに移し，抽出を完全にするために同様の操作を2回行った．その後，50 mL メスフラスコに移し，4％酢酸含有50％メタノール水溶液で定容し，分析に使用するまで－30℃で冷凍保存した．

一部改変したFolin-Chiocalteu 法（18）で総ポリフェノール含量を測定した．試験管にサンプル抽出液200 μL，蒸留水800 μL，0.2 N Folin-Chiocalteu 反応液5 mL および75 g/L 飽和炭酸ナトリウム水溶液4 mL の順に加えて攪拌した後，室温で約1時間静置した．その後，分光光度計（U-5100，日立製作所）を用いて吸光度を測定し，総ポリフェノール含量を求めた．なお，スタンダードには没食子酸を用い，新鮮重100 g 当たりの没食子酸当量として算出した．測定は，3反復で行った．

果実の抗酸化能の測定

果実中の総ポリフェノール含量の測定と同様のサンプル抽出液を使用した．サンプル抽出液を遠心エバポレーター（CVE-3000，東京理化器械株式会社）で乾固後，ジメチルスルホキシド（DMSO）で溶解して試料溶液とした．抗酸化能は，Thaipong ら（19）を一部改変したABTS カチオンラジカル消去活性法で評価した．7.4 mM ABTS 水溶液とペルオキソ二硫酸カリウムを等量で混合し，ABTS 混合溶液を作成後，暗黒下で14時間攪拌した．そして，ABTS 混合溶液と100％メタノールを1：19の割合で混合させ，これを ABTS 反応液とした．スタンダード（DMSO で溶解した Torolox）と試料溶液をマイクロチューブに10 μL ずつ分注し，ABTS 反応液190 μL を加えて転倒混和し，暗黒室温条件下で2時間静置した．その後，これらの混合液をそれぞれ180 μL マイクロプレートに注入し，マイクロプレートリーダー（iMark，バイオ・ラッドラボラトリーズ株式会社）を用いて，波長750 nm における吸光度を測定し，抗酸化能を新鮮重100 g 当たりの Trolox 当量として算出した．測定は，3反復で行った．

結　果

果皮色の調査

二倍体と四倍体の果皮色を色彩色差計で測定した結果（Table 1, Fig. 1），二倍体と四倍体ともに熟期が進むにつれて緑色から黄色になり，赤色味を帯びた．値は11月に収穫した果実の a^* 値を除きすべてで二倍体の方が四倍体より有意に高かった．

また，これらの値を用いて色相角度（h）を求めた結果，二倍体と比較して四倍体において，10月に収穫した果実は緑色味が強く，11月以降に収穫した果実では赤色味が強かった（Table 1）．さらに，これらの値と $L^*a^*b^*$ 色空間色度図を用いて成熟期の変化を調査した結果（Fig. 2），四倍体の方が二倍体より中央に位置付けられ，深みのある色味を示した．

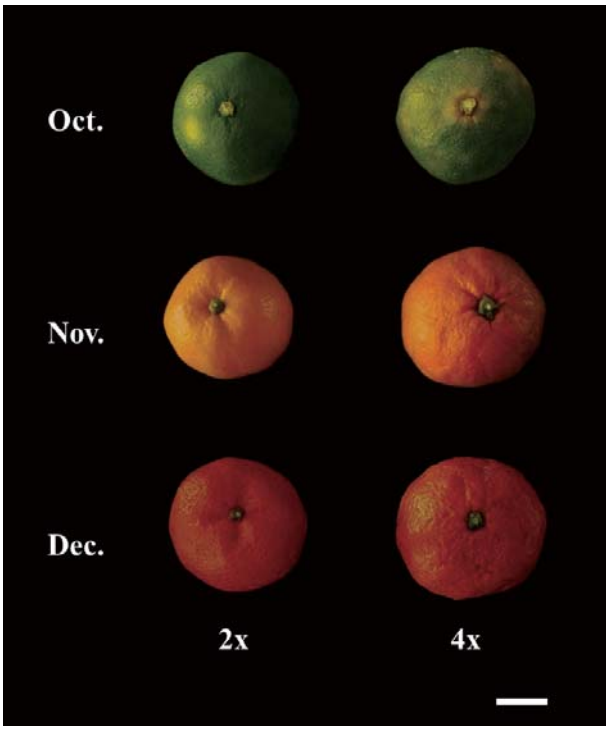

Fig.1. Photographs of the diploid and tetraploid Satsuma mandarin fruits. Harvest dates; Oct.: 2018/10/3, Nov.: 11/2, Dec.: 12/1. Left: diploid, Right: tetraploid. Bar = 3.0 cm.

Table 1. The difference of the pericarp color and hue angle h between the diploid and tetraploid Satsuma mandarin

Harvest date	Ploidy	Pericarp color			Hue angle h (°)[z]	Symbols[y]
		L*	a*	b*		
2018/10/3	2X	60.2 **[x]	-18.1 **	49.2 **	110.2	A
	4X	44.1	-14.6	36.1	112.0	B
2018/11/2	2X	62.6 **	17.9 ns	69.5 **	75.6	C
	4X	55.4	17.4	56.6	72.9	D
2018/12/1	2X	59.4 **	24.0 **	67.4 **	70.4	E
	4X	54.5	21.3	54.4	68.6	F

[z] Hue angle h (°) = $\tan^{-1}(b^* / a^*) \times 180 / \pi$

[y] The symbols indicate the positions on the hue space in Figure 2.

[x] Asterisks* and** indicate a significant difference at each $p < 0.05$ and 0.01 respectively between the diploid and tetraploid fruits with the Student's t-test (n = 5). 'ns' means no significant.

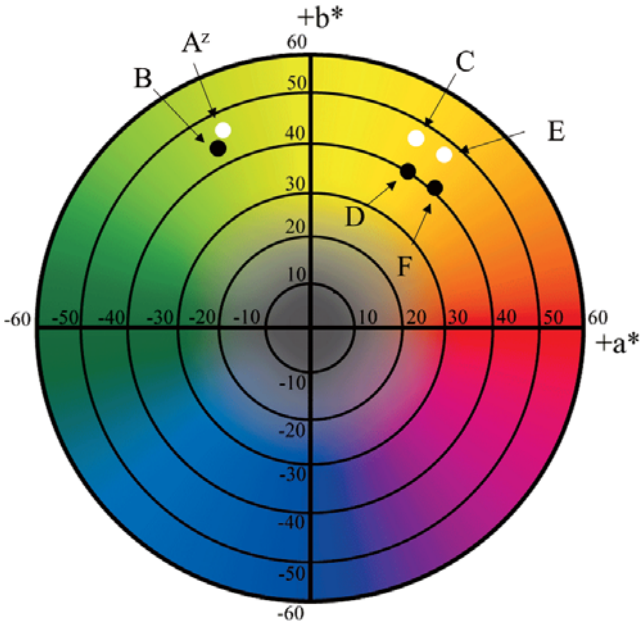

Fig.2. Position of the pericarp color of the diploid and tetraploid Satsuma mandarin in the hue color space. White points: diploid, Black points: tetraploid.
[z] Alphabets match the symbols in Table 1.

果実中の糖・有機酸含量の測定

果実をフラベド，アルベドおよび果肉に分けそれぞれの全糖含量と全有機酸含量を測定した．全糖含量はいずれの植物材料および部位においても10月から11月にかけて急増した（Fig. 3A）．糖組成は両倍数体ともに，果肉ではショ糖が多く含まれており，果皮（フラベドとアルベド）では果糖とブドウ糖が占める割合の方が多い傾向にあった．全糖含量は，10月のフラベドを除き二倍体と四倍体間で差はなかった．一方，全有機酸含量は，果肉に比べ果皮の方が少なかった（Fig. 3B）．いずれの部位も二倍体は成熟が進むにつれて全有機酸含量は減少したが，四倍体はその減少が緩慢な傾向であった．これらが影響し，成熟が進むにつれて二倍体と四倍体の糖酸比の差が大きくなった（Fig. 3C）．なお，有機酸組成において，果肉ではほぼクエン酸であったが，果皮ではキナ酸が多く含まれていた．

果実中の総ポリフェノール含量と抗酸化能の測定

機能性成分として総ポリフェノール含量を測定したところ，二倍体と四倍体ともにフラベド，アルベド，果肉の順であり，果皮に多く含まれていた（Fig. 4A）．しかし，調査したいずれの部位も二倍体と四倍体間に有意な差はほとんど見られなかった．抗酸化能（ABTS カチオンラジカル消去活性）も果肉より果皮の方が高い値を示したが（Fig. 4B），アルベドでは四倍体の方が二倍体よりも高い数値を示す時期が認められた．さらに，本試験で測定した抗酸化能に寄与した化学成分を推察するために，総ポリフェノールと抗酸化能の相関を求めた結果，二倍体と四倍体でそれぞれ $r^2 = 0.9607$（$p < 0.05$）と $r^2 = 0.9641$（$p < 0.05$）と，ともに正の強い相関が見られた（Fig. 5）．

考　察

植物の色彩・色差を表す指標として，一般的に色彩色差計によって測定した L*a*b*値が広く用いられている．本研究ではこの指標を用いてウンシュウミカンの四倍体と二倍体の果皮色を評価したが，色相角度（h）と Fig. 2 のような L*a*b*色空間色度図を用いることで，a*や b*のみでは判断しづらい差を可視化することができ，四倍体は二倍体と比べて赤色味が強く，深みのあることが示された．また，赤色味の強さを表す a*値とカロテノイド含量との間に高い相関があることが報告されている（20）．本研究において，四倍体と二倍体間で果皮色の赤色味と深みに差が見られたことより，四倍体ウンシュウ

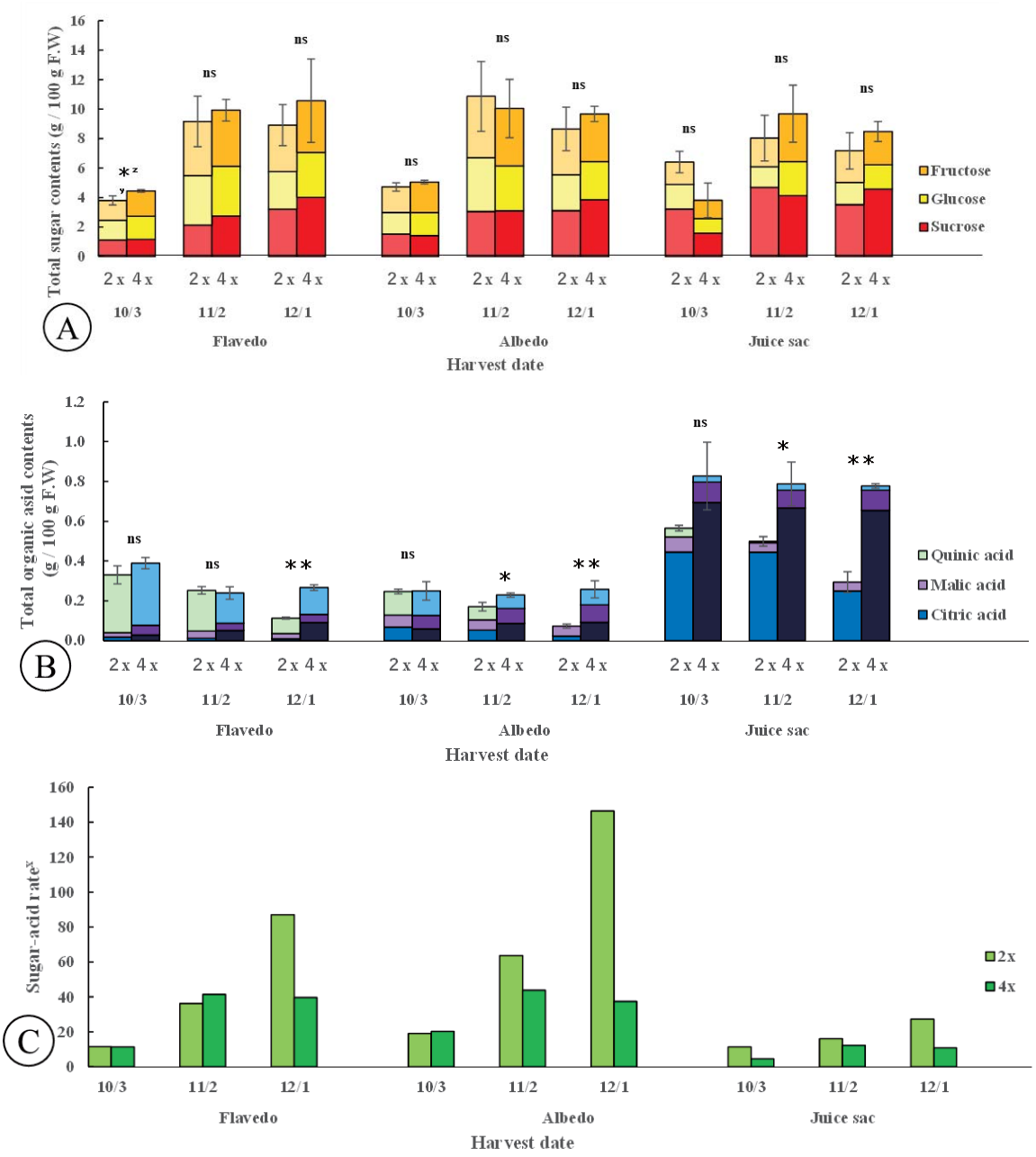

Fig.3. Changes in total sugar content（A）, total organic acid content（B）and sugar-acid ratio（C）at the flavedo, albedo（pericarp）, and pulp（juice sac）of the diploid and tetraploid Satsuma mandarin.

[z] Asterisks * and ** indicate a significant difference at each $p < 0.05$ and 0.01 respectively between the diploid and tetraploid fruits with the Student's t-test（n = 3）. 'ns' means no significant.

[y] Vertical bars indicate standard deviation（S.D.）.

[x] Sugar-acid rate calculated by total sugar / total organic acid contents.

ミカンは主要な色素であるカロテノイド含量が二倍体より増加している可能性が示唆された．近年，β-クリプトキサンチンなど，ウンシュウミカンに豊富に含まれるカロテノイドの健康機能性が注目されているため（7），今後は HPLC を用いたより詳細な分析により，四倍体ウンシュウミカンに含まれるカロテノイド含量と組成，そしてその抗酸化能などの化学特性を明らかにする必要がある．

周藤ら（16）は，本研究材料である四倍体ウンシュウミカンの成熟時における果肉の糖度と酸度を調査し，二倍体と比べ低糖高酸であったことを報告しているが，本研究も同様の結果であった．さらに，四倍体ウンシュウミカンの果肉は成熟ステージが進むにつれ，糖酸比が二倍体より低くなっていくことが本研究で明らかとなった．一般的に，カンキツ類の四倍体は，二倍体と比べて孔辺細胞の大きさや数，器官のサイズ，トゲの発生度合いお

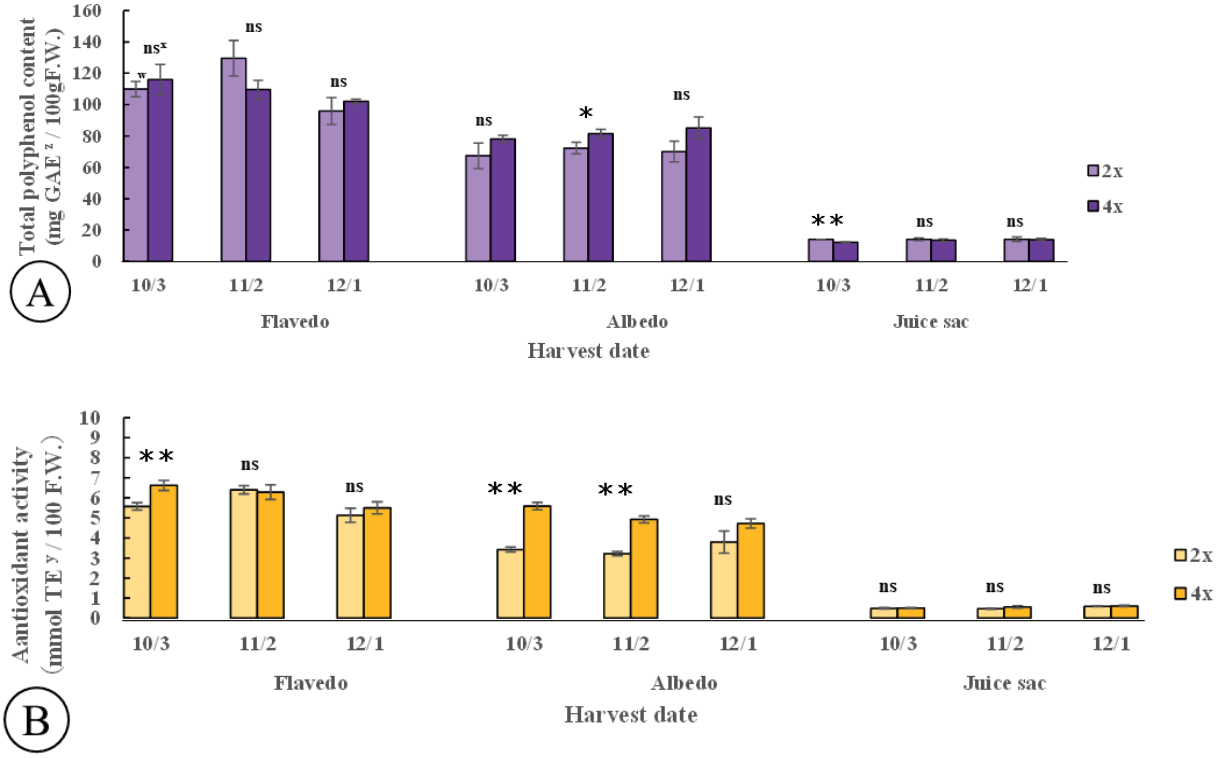

Fig.4. Changes in total polyphenol content（A）and antioxidant capacity（ABTS）（B）at the flavedo, albedo（pericarp）, and pulp（juice sac）of the diploid and tetraploid Satsuma mandarin.
[z] GAE indicate gallic acid equivalent.
[y] TE indicate Trolox equivalent.
[x] Asterisks * and ** indicate a significant difference at each $p < 0.05$ and 0.01 respectively between the diploid and tetraploid fruits with the Student's t-test（n = 3）. 'ns' means no significant.
[w] Vertical bars indicate S.D..

よび成長の程度に差異があることが明らかとなっているものの（21, 22），本研究のように糖や有機酸含量を比較した事例は多くない．近年，Tan ら（23）は，ポンカン（*C. reticulata* Blanco）において二倍体より四倍体の酸度が高いことを報告しており，qRT-PCR 解析の結果から，この要因がクエン酸蓄積に関する遺伝子の発現促進によるものではなく，その分解や利用に関する遺伝子の発現抑制に起因することを明らかにしている．よって，四倍体ウンシュウミカンにおいても同様に，二倍体との酸代謝メカニズムの差異により収穫期まで高い有機酸含量を維持した可能性が考えられる．

カンキツ類の果皮や果実には，多種多量のフラボノイドが含まれていることが知られている（24, 25）．本研究で二倍体と四倍体のウンシュウミカンにおける果実中の総ポリフェノール含量と抗酸化能を測定した結果，総ポリフェノール含量は両倍数体ともに果肉より果皮で高く，特にアルベドでは二倍体より四倍体で高い傾向にあった．また，抗酸化能も同様の結果を示し，両倍数体ともに総ポリフェノール含量と極めて高い相関があることが明らかとなった．このことから，本研究の抗酸化能に寄与している成分は，主にフラボノイドをはじめとするポリフェノール類であることが推察される．カンキツ類には，ノビレチンやタンゲレチンなどの特有のフラボノイドであるポリメトキシフラボノイド（PMFs）が含まれており（26），フラボノイドはカロテノイドより幅広いフリーラジカルに対して抗酸化作用を示すことが知られている（27, 28）．四倍体ポンカンにおいて，果肉では二倍体よりフラボノイド含量が低いことが示されているが，果皮での調査は行われていない（23）．そのため，四倍体ウンシュウミカンのアルベドにおけるフラボノイド含量が二倍体より多いと示唆された結果は興味深く，より詳細な成分分析やその生合成関連遺伝子の発現を調査する必要があると考えられる．

以上より，四倍体ウンシュウミカンは二倍体と比べ，可食部の果肉は低糖高酸であるものの，果皮は色に深みがあり，総ポリフェノール含量と抗酸化能が高いことが明らかとなった．これらの結果は，四倍体ウンシュウミカンの生鮮食品としての有用性を示すものとはならなかったものの，果皮を使用するマーマレードやドライフルーツ，ジュースなどの加工品にすることで，果皮に含

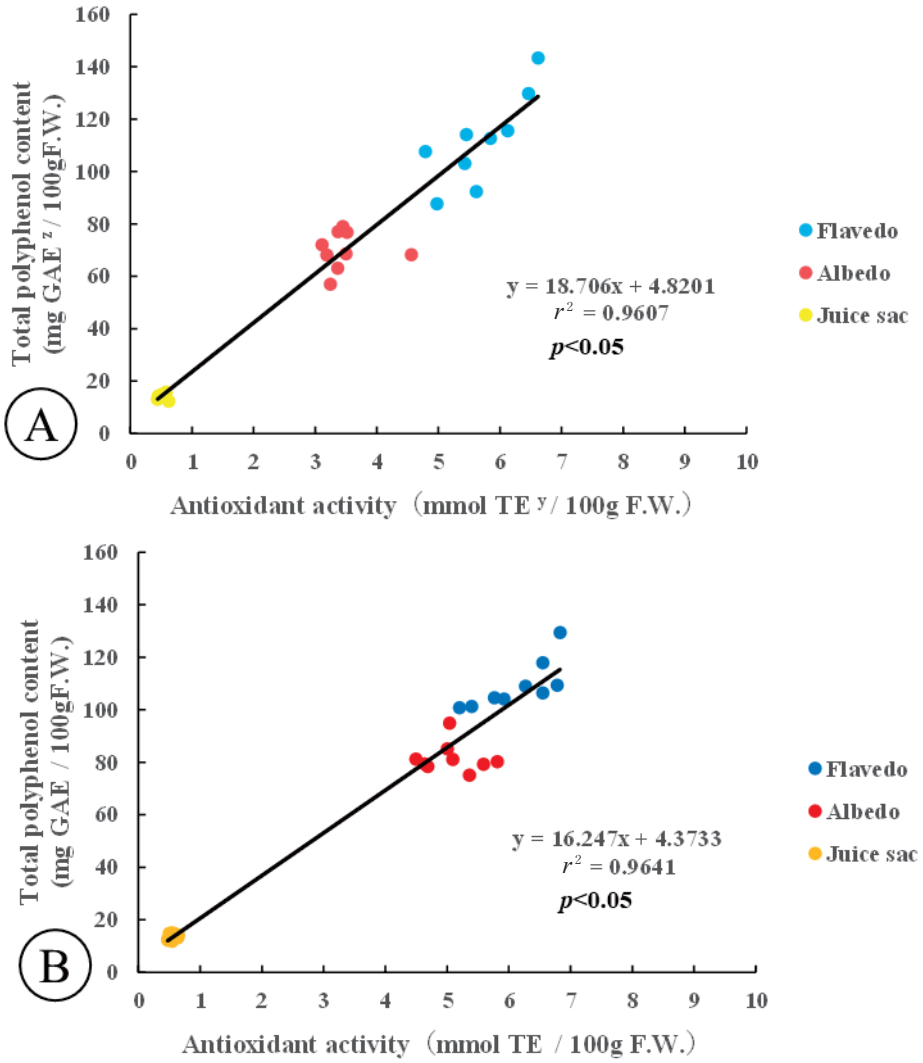

Fig.5. Correlation（n = 27）between total polyphenol content and antioxidant capacity in the diploid（A）and tetraploid（B）Satsuma mandarin.
z GAE indicate gallic acid equivalent.
y TE indicate Trolox equivalent.

まれる健康機能性を手軽に摂取できると考えられる．今後は，本研究で遂行できなかったフラボノイドやカロテノイドを HPLC で詳細に分析するとともに，我々の研究グループが保持する果皮を食用とするキンカンやヒュウガナツなど四倍体カンキツ類で同様の手法で分析を行うことで，四倍体カンキツ類の有用性を明らかにできることが期待される．

要　約

ウンシュウミカンの四倍体における果実品質と健康機能性成分の経時的推移を明らかにするために，果実の着色，糖・有機酸含量，総ポリフェノール含量および抗酸化能（ABTS カチオンラジカル消去活性）を測定した．その結果，収穫期の四倍体の果実の着色は二倍体より深みのある赤色味を示した．糖含量には有意差が見られなかったが，有機酸含量は二倍体では成熟が進むにつれ減少したのに対し，四倍体ではほぼ横ばいで，二倍体より有意に多かった．総ポリフェノール含量はアルベドと果肉の一部期間を除いて有意差が認められなかったものの，抗酸化能はフラベドとアルベドにおいて一部の期間で四倍体の方が有意に高かった．以上より，四倍体ウンシュウミカンは生鮮食品としての利用は難しいものの，果皮を使用するマーマレードやドライフルーツ，ジュースなどの加工品としての有用性があるものと考えられた．

引用文献

1）富永茂人，2015，柑橘類の分類学的研究において大きな業績を残した田中長三郎，果樹園芸学，文永堂，東京，275–277.

2）Fujii, H., Ohta, S., Nonaka, K., Katayose, Y., Matsumoto, T., Endo, T., Yoshioka, T., Omura, M. and Shimada, T., 2016, Breed. Sci., **66**, 683–691.

3）岩政正男，1999，カンキツ栽培品種の分類－温州ミカン－，カンキツ総論，養賢堂，東京，115–117.

4）農林水産省，2020，農林水産統計　令和元年度みかんの結果樹面積，収穫量及び出荷量，＜ https://www.maff.go.jp/j/tokei/kouhyou/sakumotu/sakkyou_kazyu/attach/pdf/index–37.pdf ＞.

5）内山幸久，2013，地理空間，**6**，83–94.

6）小川一紀，1997，果実日本，**52**，30–33.

7）久永絢美，吉岡照高，杉浦 実，2018，園学研，**17**，459–464.

8）Sugiura, M., Nakamura, M., Ikoma, Y., Yano, M., Ogawa, K., Matsumoto, H., Kato, M., Ohshima, M. and Nagao, A., 2006, Diabetes Res. Clin. Pract., **71**, 82–91.

9）杉浦　実，化学と生物，**55**，566–572.

10）佐藤和広，2013，植物の育種－同質倍数性の特徴と利用例－，植物の遺伝と育種，朝倉書店，東京，128–129.

11）Jaskani, M. J., Kwon, S. W. and Kim, D. H., 2005, Euphytica, **145**, 259–268.

12）Liang, Z., Sang, M., Wu, B., Ma, A., Zhao, S., Zhong, G. and Li, S., 2012, Euphytica, **186**, 343–356.

13）Nukaya, T., Yahata, M., Suzuki, K., Yasuda, K., Kunitake, H., Komatsu, H., Mukai, H., Harada, H. and Takagi, T., 2009, Hortic. Environ. Biotechnol., **50**, 188–190.

14）Nukaya, T., Sudo, M., Yahata, M., Nakajo, Y., Ohta, T., Yasuda, K., Tomonaga, A., Mukai, H. and Kunitake, H., 2019, Sci. Hortic., **245**, 210–217.

15）糠谷綱希，太田知宏，安田喜一, 八幡昌紀，國武久登，小松春喜，新居直祐，向井啓雄，原田 久，高木敏彦，2011，園学研，**10**，1–8.

16）周藤美希，八幡昌紀，永嶋友香，成瀬博規，増田幸直，加藤雅也，稲垣栄洋，向井啓雄，原田 久，國武久登，北島宣，2014，園学研（別2），**13**，319.

17）執行みさと，竹馬昂平，國武久登，小松春喜，2013，園学研，**12**，335–342.

18）Singleton, V. L. and Rossi, J. A., 1965, Amer. J. Enol. Vitic., **16**, 144–158.

19）Thaipong, K., Boonprakob, U., Crosy, K., Cisneros-Zevallos, L. and Byrne, D. H., 2006, J. Food Compos. Anal., **19**, 669–675.

20）小林邦彦，長尾和夫，芥田三郎，1977，日本食品工業学会誌，**24**，357–361.

21）河瀬憲次，八幡昌紀，中川匠子，原口加奈，國武久登，2005，園学研，**4**，141–146.

22）生山 巌，1992，果樹試報，特報 **3**，20–52.

23）Tan, F., Zhang, M., Xie, K., Fan, Y., Song, X., Wang, R., Wu, X., Zhang, H. and Guo, W., 2019, Plant Sci., **289**, 110276.

24）Hwang, S., Shih, P. and Yen, G., 2012, J. Agric. Food Chem., **60**, 877–885.

25）Nogata, Y., Sakamoto, K., Shiratsuhi, H., Ishii, T., Yano, M. and Ohta, H., 2014, Biosci. Biotechnol. Biochem., **70**, 178–192.

26）山本雅史，河野留美子，上野景子，橋本文雄，小橋謙史，松本亮司，吉岡照高，冨永茂人，2005，熱帯農業，**49**，280–287.

27）眞岡考至，2007，食品・臨床栄養，**62**，3–14.

28）趙習コウ，李 進才，松井鋳一郎，前澤重禮，2005，植物環境工学，**17**，192–198.