研究ノート

ナス下漬液由来粉末の ORAC 値およびヒアルロニダーゼ 阻害活性に対するナスニンの寄与

伊藤和子^{1*}, 阿久津智美¹, 渡邊恒夫¹, 謝 肖男²,
小松 渡³, 吉澤史昭², 宇田 靖²

¹ 栃木県産業技術センター

² 国立大学法人宇都宮大学

³ 獨協医科大学

Evaluation of Contribution of Nasunin to ORAC Value and Hyaluronidase Inhibitory Activity of Nasunin-containing Powder Obtained from Spent Eggplant Pre-pickling Solution

Kazuko Itoh^{1*}, Satomi Akutsu¹, Tsuneo Watanabe¹, Xiaonan Xie²,
Wataru Komatsu³, Fumiaki Yoshizawa² and Yasushi Uda²

¹ Industrial Technology Center of Tochigi Prefecture, 1-5-20, Yuinomori, Utsunomiya, Tochigi 321-3226

² Utsunomiya University, 350, Mine, Utsunomiya, Tochigi 321-8505

³ Dokkyo Medical University, 880, Kitakobayashi, Mibu, Shimotsuga, Tochigi 321-0293

Nasunin was recovered from spent eggplant pre-pickling solution with 96 % purity by gel-filtration on an LH-20 column and subsequent preparative HPLC. The purified nasunin preparation was analyzed by LC-MS/MS and found to contain a mixture of cis- and trans-isomers of nasunin. The purified nasunin preparation was then examined for antioxidant activity by measuring the H-ORAC value. Hyaluronidase inhibitory activity of the purified nasunin preparation was also determined. H-ORAC value of the purified nasunin preparation was estimated to be 13250 μmol Trolox equivalent/g, corresponding to 1.45 times higher than that of the delphinidin standard. However, the contribution of nasunin to the Trolox equivalent/g of the nasunin-containing powder was estimated to be approximately 26 %, which suggests that constituents other than nasunin, such as chlorogenic acid, play a significant role in the antioxidative activity of the nasunin-containing powder. The purified nasunin preparation showed no inhibitory activity of hyaluronidase, but chlorogenic acid, another component of the nasunin-containing powder, had a strong inhibitory activity. Therefore, the inhibitory activity previously observed with a cyclodextrin-inclusion powder of the nasunin-containing powder from spent eggplant pre-pickling solution appears to be attributable to the activity of the chlorogenic acid-containing constituents other than nasunin therein.

(Received Jul. 22, 2016 ; Accepted Aug. 25, 2016)

Keywords : eggplant, brined eggplant, nasunin, ORAC value, LC-MS

キーワード : ナス, ナス下漬液, ナスニン, ORAC 値, LC-MS

ナス浅漬け加工の際に多量に発生する下漬液の活用を目指し、ナス下漬液からナスニンおよびクロロゲン酸を含む抗酸化性色素粉末¹⁾の調製およびナスニン含有シクロデキストリン包接体 (CD 包接体) の開発²⁾を行ってきた。これらの色素粉末と CD 包接体について、抗酸化性や抗アレルギー性の評価を行ったところ、ORAC 値を指標とした抗酸化性が色素粉末と CD 包接体の両者に、ヒアルロニダーゼ活性を指標とした抗アレルギー活性が CD 包接体に認められた。しかし、ナス下漬液から回収されるナスニン含有

色素粉末 (以下、ナスニン含有粉末) やその CD 包接体の実用化にあたっては、上記の各機能性がどの物質に由来するのかを明らかにする必要がある。特に CD 包接体の材料でもある色素粉末中のナスニンが上記の両機能性の主たる要因物質として作用し得るのかを確認する事は重要であると考えられる。

そこで、ナス下漬液からナスニンを精製し、得られたナスニン精製物を用いて ORAC 値による抗酸化性およびヒアルロニダーゼ活性による抗アレルギー性を評価し、その

¹ 〒321-3226 栃木県宇都宮市ゆいの杜 1-5-20, ² 〒321-8505 栃木県宇都宮市峰町 350, ³ 〒321-0293 栃木県下都賀郡壬生町北小林 880

*連絡先 (Corresponding author), itouk05@pref.tochigi.lg.jp

ナスニン含有粉末における寄与度を検討したので報告する。

1. 実験方法

(1) 試料

ナス浅漬け工程で生じるナス下漬液¹⁾を用いた。

(2) 試薬

合成吸着剤 (HP-20) は三菱科学(株) 製を, ゲルろ過用担体 (LH-20), フルオレセインナトリウム塩, 6-ヒドロキシ-2,5,7,8-テトラメチルククロマン-2-カルボン酸 (Trolox), ヒアルロニダーゼ (Type IV-S) およびヒアルロン酸ナトリウムはそれぞれ SIGMA 製を用いた。クロロゲン酸は (株)MP バイオ製を用い, アセトニトリルは関東化学(株) 製の HPLC グレードを用いた。柴朴湯は (株)ツムラ製を使用した。その他の試薬は, 関東化学(株) 製の特級試薬を使用した。ナスニン標準品は前報¹⁾ の方法に従ってナス表皮から調製し, -25℃の冷凍庫内に密封保存しておいたものを使用した。

(3) ナス下漬液中のナスニンとクロロゲン酸の分画と精製

合成吸着剤 (HP-20) (長さ 100 cm, 内径 30 mm のガラスカラムに 500 ml 充填) にナス下漬液 40 L を通液 (10 ml/min) してナスニンを吸着させ, 蒸留水 1 L で下漬液に含まれる塩分を流去させた。その後, 1% トリフルオロ酢酸 (TFA) 含有メタノール 350 ml にて溶出させ, 溶出液を 40 ml に減圧濃縮した。その 1 ml をゲルろ過用担体 (LH-20) (長さ 30 cm, 内径 10 mm のガラスカラムに 20 ml 充填) に通液 (0.2 ml/min) し, メタノールで溶出することによりナスニンとクロロゲン酸の分画 (2 ml づつ採取) を行った。ナスニンおよびクロロゲン酸の HPLC 分析は以下の条件で行った。装置: フォトダイオードアレイ検出器 (SPD-M20 A) 付き HPLC (島津製作所製), カラム: Gemini-Nx (4.6×250 mm, Phenomenex 社製), 溶離液: 0.5% (w/v) リン酸: アセトニトリル (85:15), 流速: 1 ml/min, オープン温度: 40℃, 検出波長: ナスニン: 534 nm, クロロゲン酸: 330 nm とした。

(4) HPLC を用いたナスニンの精製

上記 (3) の方法で得られたナスニン含有画分 60 μ l を以下の条件の HPLC に供し, ナスニンピークの分取を繰り返して精製した。装置: 島津製作所 Prominence, カラム: L-column2ODS (10×250 mm), 溶離液: 0.5% (w/v) リン酸: アセトニトリル (85:15), 流速: 3 ml/min, オープン温度: 40℃, 検出器: フォトダイオードアレイ検出器とした。

(5) LC-MS/MS によるナスニン精製物の分析

ナスニンの同定は, UHPLC システム (Nexera X2; 島津製作所製) に接続したエレクトロスプレーイオン化源付トリプル四重極リニアイオントラップ装置 (QTRAP5500; AB Sciex 社製) にて行った。UHPLC 条件は, カラム: Kinetex F5 (2.1×150 mm, Phenomenex 社製), 移動相:

0.1% (v/v) 酢酸水溶液中のアセトニトリル割合を 10 → 50%/1.5 min, 50 → 99%/7min にてグラジエント上昇させ, 99% にて 3min 保持, 流速: 0.2 ml/min, カラムオープン温度: 30℃, 注入量: 2 μ l とした。MS/MS スペクトルはリニアイオントラップ (LIT) によりポジティブイオンモードでのプロダクトイオン (m/z 40~950) を記録した。測定条件として, イオン源: 400℃, カーテングス: 20 psi, 衝突活性化解離 (CAD) ガス: 7 psi, イオン源ガス: 80 psi, イオン源ガス 2: 70 psi, ポジティブイオンモードにおけるイオンスプレー電圧: 5500 V に設定した。ガスはすべて窒素を用いた。また, デクラスタリング, エントランスおよびコリジョンセルイグジット各電位は, 60, 10, 15 V を維持した。クロマトグラムとマススペクトルは AB Sciex Analyst ソフトウェアを用いて解析した。

(6) ORAC 値によるナスニン精製物の抗酸化性評価

上記 4 で得られたナスニン精製物の抗酸化性を前報の方法¹⁾ で測定した。なお, 今回の対象物質はすべて水溶性抗酸化性物質であるため, H-ORAC 値のみで評価³⁾ した。

(7) ヒアルロニダーゼを用いたナスニン精製物の抗アレルギー性評価

掛川らの方法⁴⁾ により, 前報のように測定した。比較のための陽性対照として柴朴湯を用い, それぞれの IC₅₀ 値を算出して比較した。

2. 実験結果および考察

(1) ナス下漬液からナスニンとクロロゲン酸の分画および分取 HPLC による精製

ナス下漬液には, ナスニンとともにクロロゲン酸のほか, ナスニン以外のアントシアニンも共存している。従って, ナス下漬液から回収されるナスニン含有粉末の機能性に対するナスニンの寄与を正確に評価するには, できるだけ精製度を高めたナスニンを用いて検討する必要がある。そこで, ナスニン含有粉末中で最も含有量の多いクロロゲン酸との分離を目指し, HP-20 樹脂およびゲルろ過クロマトグラフィー用担体である LH-20 カラムを用いて分画を行った。

実験方法 (4) の LH-20 カラムにおけるナスニンおよびクロロゲン酸の分画結果を図 1 に示した。この結果より, ナスニンとクロロゲン酸は互いに分離がなされたと考えられた。両成分の HPLC 分析により, 分画前のナスニン含有粉末中に占めるナスニンとクロロゲン酸のそれぞれの含有割合は, 20.2% と 33.5% であった。

次に, このナスニン画分からさらに分取 HPLC を繰り返して得られた精製ナスニン画分を減圧濃縮後, 真空凍結乾燥して粉末 0.6 mg を得た。この粉末をメタノール 1.5 ml に溶解してフォトダイオードアレイ HPLC で分析した結果を, フォトダイオードアレイ等高線グラフおよび検出波長 534 nm におけるクロマトグラフとして図 2 に示した。534 nm における総ピーク面積値に占めるナスニンピーク

図 1 LH-20 カラムを用いた 100% メタノールによる分画

図 2 フォトダイオードアレイ (上図) および 534 nm におけるクロマトグラフ (下図) によるナスニン精製物分析結果

の割合から、UV-VIS 吸収を持つ物質中の精製度 96% のナスニンが得られた。この精製粉末を以下、ナスニン精製物と呼ぶ。

(2) LC-MS/MS によるナスニン精製物の分析

ナスニン精製物および実験方法 (2) で述べたナスニン標準品の LC-MS/MS 分析を行った。図 3 にナスニン精製物およびナスニン標準品のイオンクロマトグラムを示した。また、図 4 にナスニン精製物から検出された各ピークに対応したプロダクトイオン質量スペクトル (ポジティブモード) を示した。また、得られた質量スペクトルとして記録された各プロダクトイオンに対応すると推定された化学構造を図 5 に示した。なお、ナスニン標準品から得られたプロダクトイオン質量スペクトルについては、ナスニン精製物の質量スペクトルとほとんど差異が認められなかったため、ここには図示しなかった。分析したナスニン精製物およびナスニン標準品からは 4 つのピークが検出され、その

うち、ピーク A と C はまったく同じ質量スペクトルを、またピーク B と D もともに同じ質量スペクトルを示し、これらはいずれも分子イオンに相当する m/z 919 のイオンシグナルを有していた。しかし、ピーク A と C の両ピークと、ピーク B と D の両ピークの質量スペクトルの間には、ナスニン分子中の桂皮酸部分の構造を含むフラグメントイオンと推定された m/z 303, m/z 293 および m/z 147 のシグナル強度において顕著な違いが見られた。これらの結果は、同時並行して分析したナスニン標準品において検出された 4 つのピーク (図 4: A', B', C', D') の質量スペクトルについても全く同じであり、また、質量スペクトルはこれまで報告されているナス果皮色素の LC-MS/MS 分析結果⁵⁾ と一致していた。図 6 に示すようにナスニンには cis, trans 異性体が知られており、光により cis 体が trans 体に変換されること、逆相 HPLC カラムでは cis-ナスニンの方が trans-ナスニンより早く溶出すること

図 3 ナスニン精製物とナスニン標準品のイオンクロマトグラム (TIC)

図 4 ナスニン精製物の LC-MS/MS 分析 : Peak-A, B, C, D のプロダクトイオンスペクトル

図 5 各プロダクトイオンに対応する推定化学構造

図 6 ナスニン (Delphinidin3-[4-(*p*-coumaroyl)-L-rhamnosyl(1,6) glucopyranoside]-5-glucopyranoside) のシスおよびトランス異性体の化学構造

が知られている⁶⁾。今回の LC-MS/MS 分析で使用した Kinetex F5 カラムは逆相カラムである。これらのことから、ピーク A と C が cis 体であり、ピーク B と D が trans 体であろうと推察された。また、これらのプロダクトイオンの組成の一致から推定するとそれぞれ 2 つずつの同一質量スペクトルを示すピークのうち、一方はアノマー位の立体異性体の可能性も考えられたが、確認することはできなかった。

しかし、得られた質量スペクトルはナスニンのそれと一致したことから、ナス下漬液から精製された粉末はナスニンであることが確認され、ナス下漬液中においてもナスニンはその構造を保持していた。

(3) ナスニン精製物の抗酸化性の評価

上記のように得られたナスニン精製物の抗酸化性を、ORAC 法で評価した結果を精製前のナスニン含有粉末の H-ORAC 値と合わせて表 1 に示した。また、表 1 にはクロロゲン酸標準品の H-ORAC 値およびデルフィニジン標準品の H-ORAC 値を 1 としたときのそれぞれの相対抗酸化

表 1 デルフィニジンを基準とした精製ナスニンと下漬液由来ナスニン含有粉末の抗酸化性

	H-ORAC (μ mol of TE*/g)	相対活性
ナス下漬液由来ナスニン精製物	13250 $\pm$ 99	1.45
ナス下漬液由来ナスニン含有粉末	10398 $\pm$ 37	1.14
クロロゲン酸標準品	15007 $\pm$ 86	1.64
デルフィニジン標準品	9152 $\pm$ 31	1.00

* TE : Trolox Equivalent

3 回測定値の平均 $\pm$ 標準偏差で示した。

活性も示した。ナスニン精製物は、デルフィニジン標準品の 1.45 倍という強い抗酸化性を示し、ナスニン標準品の値とはほぼ一致した¹⁾。また、上述のようにナスニン含有粉末中に占めるナスニンの割合は 20.2% であり、クロロゲン酸のそれは 33.5% であったことから、ナスニン精製物およびクロロゲン酸標準品の H-ORAC 値にそれぞれの含有率をかけることにより、ナスニン含有粉末の抗酸化性に対するそ

表2 ナス下漬液由来ナスニン含有粉末の抗酸化性に対するナスニンおよびクロロゲン酸の寄与度

	H-ORAC ($\mu\text{mol of TE}^*/\text{g}$)	相対寄与度 (%)
ナス下漬液由来 ナスニン含有粉末	10398 $\pm$ 37	100.0
ナス下漬液由来 ナスニン精製物	2677 $\pm$ 20	25.7
クロロゲン酸	5027 $\pm$ 29	48.3

*TE: Trolox Equivalent

3回測定値の平均 $\pm$ 標準偏差で示した。

れぞれの寄与度を算出し、表2に示した。ナスニン精製物の抗酸化性に対する寄与度は約26%であり、ナスニン含有粉末の抗酸化性にはナスニン以外の成分の寄与が約74%あり、そのうち約48%はクロロゲン酸によるものと考えられた。ナスには、ナスニン・クロロゲン酸以外にも、ポリフェノール⁷⁾、ビタミンC⁸⁾、イソクロロゲン酸⁹⁾といった抗酸化性を持つ成分が含有されていることが知られている。今回の結果から、ナスニン含有粉末の抗酸化性には、ナスニン以外にも上記のような種々の成分の関与が推察された。

(4) ナスニン精製物の抗アレルギー性の評価

前報²⁾で報告したとおり、ナス下漬液由来ナスニン含有色素粉末をCD包接体により色素粉末の水溶性増大および酢酸臭低減化がなされた。その際、CD包接体には、抗アレルギー性製剤として使用されている柴朴湯と同等のヒアルロニダーゼ阻害活性が認められた。この阻害効果はナスニンとクロロゲン酸のどちらによるものかを確認する必要があった。そこで、ナスニン精製物とともに、クロロゲン酸および陽性対照として柴朴湯のヒアルロニダーゼ阻害活性を測定し、それぞれの50%阻害濃度(IC50値)をCD包接体の値とともに表3に示した。

なお、ナスニンとクロロゲン酸の分子量を合わせたものと、 γ -CDの分子量が1:1になるように混合しているため、CD包接体中のナスニン含有粉末の割合は39.9%であり、ナスニンは8.1%、クロロゲン酸は13.4%である。ナスニン精製物はヒアルロニダーゼ阻害活性をまったく示さず、クロロゲン酸が柴朴湯の6.7倍に相当する2mg/mlという強いヒアルロニダーゼ阻害活性を示した。このことから、ナスニンはヒアルロニダーゼの阻害には全く寄与せず、前報²⁾においてナスニン含有粉末のCD包接体に見られたヒアルロニダーゼ阻害活性は、共存していたクロロゲン酸を含むナスニン以外の成分に起因していると考えられた。しかし、抗アレルギー性はヒアルロニダーゼ阻害活性のみで説明できるものではなく、抗原刺激後のカルシウム流入抑制¹⁰⁾や好酸球におけるPPAR(peroxisome proliferator-activated receptor)- γ の発現¹¹⁾等、さまざまな機序で起こると考えられているため、現在、細胞試験等による詳細な

表3 ナスニン精製物およびクロロゲン酸の抗アレルギー性

	IC50 (mg/ml)
CD包接体	20.2 $\pm$ 1.2
ナスニン精製物	N.D.
クロロゲン酸	2.00 $\pm$ 0.6
柴朴湯	13.4 $\pm$ 0.8

注) N.D.: 阻害活性不検出

3回測定値の平均 $\pm$ 標準偏差で示した。

抗アレルギー性はヒアルロニダーゼ阻害活性によって測定し、50%阻害濃度で示した。

検証を進めている。

以上、ナスニン精製物をLC-MS/MSにて分析し、cis体とtrans体が混在していることを確認した。ナスニン含有粉末のH-ORAC値への寄与度は、ナスニンが約26%、クロロゲン酸が約48%であることが明らかとなった。また、ナスニン精製物にはヒアルロニダーゼ阻害活性は認められなかったが、ナスニン含有粉末の他の構成成分であるクロロゲン酸は、強い阻害活性を持つことを確認した。今後、ナス下漬液からのナスニン含有粉末の抗酸化性を活かし、また、天然の着色料としての側面¹²⁾¹³⁾も利用した食品・化粧品への活用が図られることが望まれる。

3. 要 約

ナス下漬液から回収されるナスニン含有色素粉末が示す抗酸化性とその色素粉末のCD包接体に見られたヒアルロニダーゼ阻害活性に寄与する成分およびその寄与度を明らかにするための検討を行った。

まず、回収色素粉末からナスニンを精製するため、HP-20およびLH-20カラムによる分画を行い、ナスニン画分とクロロゲン酸画分を分離した。このナスニン画分からさらに分取HPLCにより、精製度96%のナスニン精製物を得、そのLC-MS/MS分析によりcis体とtrans体の混在したナスニンであることを確認した。

次に、ナスニン精製物のH-ORAC値による抗酸化性評価を行ったところ、1g当たり13250 μmol のTrolox当量であり、デルフィニジン標準品の1.45倍に相当する強い抗酸化性を示した。ナスニン含有粉末におけるナスニンの含有率から算出した寄与度は約26%であり、クロロゲン酸は約48%の寄与が認められた。また、ヒアルロニダーゼ50%阻害率により抗アレルギー性を評価したところ、ナスニン精製物には阻害活性は認められず、前報²⁾に示されたナスニン含有色素のCD包接体が生じた本阻害活性は共存するクロロゲン酸を含むナスニン以外の成分に起因するものと考えられた。

本研究を行うにあたり、ナス下漬液を提供いただいた株式会社荒井食品に厚く御礼申し上げます。

文 献

- 1) Itoh, K., Akutsu, S., Oyama, T., Watanabe, T., Yamazaki, K., Kakubari, F., Yosinari, S., Arai, K., Hashimoto, K., and Uda, Y. (2013). Preparation of antioxidative powder containing nasunin and chlorogenic acid from liquid waste of brined eggplant. *Journal of the Japanese Society for Food Science and Technology (Nippon Shokuhin Kagaku Kogaku Kaishi)*, **60**, 30-37 (伊藤和子, 阿久津智美, 大山高裕, 渡邊恒夫, 山崎公位, 角張文紀, 吉成修一, 荒井一好, 橋本 啓, 宇田 靖. ナス下漬液からナスニンおよびクロロゲン酸を含む抗酸化性粉末の調製, 日本食品科学工学会誌).
- 2) Itoh, K., Akutsu, S., Watanabe, T., Yoshizawa, F., and Uda, Y. (2015). Improved water-solubility and decreased acetate-odor of a cyclodextrin-treated nasunin-containing powder obtained from spent eggplant pre-pickling solution. *Journal of the Japanese Society for Food Science and Technology (Nippon Shokuhin Kagaku Kogaku Kaishi)*, **62**, 201-206 (伊藤和子, 阿久津智美, 渡邊恒夫, 吉澤史昭, 宇田 靖. シクロデキストリン包接によるナス下漬液由来ナスニン含有粉末の品質改善および機能性評価, 日本食品科学工学会誌).
- 3) Wakagi, M., Watanabe, J., and Takano-Ishikawa, Y. (2014). Effects of producing area and harvest season on antioxidant capacities of spinach, komatsuna, tomato, and cucumber. *Report of National Food Research Institute*, **78**, 65-71 (若木 学, 渡辺 純, 石川 (高野) 祐子. 産地および収穫時期の違いがホウレンソウ・小松菜・トマト・キュウリの抗酸化能に及ぼす影響, 食品総合研究所研究報告).
- 4) Kakegawa, H., Matsumoto, H., and Sato, T. (1985). Activation of hyaluronidase by metallic salts and compound 48/80, and inhibitory effect of anti-allergic agents on hyaluronidase. *Chem. Pharm. Bull.*, **33**, 642-646.
- 5) Moriyama, H. (2009). Analysis of anthocyanin in the skin of eggplant by using LC-MS. *Reports of Industrial Technology Center of Kochi Prefecture*, **40**, 11-15 (森山洋憲. ナス果皮アントシアニンの LC-MS 分析, 高知県工業技術センター研究報告).
- 6) Ichianagi, T., Kashiwada, Y., Shida, Y., Ikeshiro, Y., Kaneyuki, T., and Konishi, T. (2005). Nasunin from eggplant consists of cis-trans isomers of delphinidin 3-[4-(p-coumaroyl)-L-rhamnosyl (1→6) glucopyranoside]-5-glucopyranoside. *J. Agric. Food Chem.*, **53**, 9472-9477.
- 7) 大庭理一郎, 五十嵐喜治, 津久井亜紀夫編著, (2000). III アントシアニンの原料および食品加工利用, 「アントシアニン—食品の色と健康—」, 初版, 建帛社, 東京, 92-93.
- 8) 文部科学省 科学技術・学術審議会 資源調査分科会編集, (2010). 「日本食品標準成分表 2010」, 全国官報販売共同組合, 東京, 92-93.
- 9) Takeuchi, W., Ohashi, C., Kigaku, R., Sumino, N., and Hirai, N. (2004). Effect of polyphenol contents of eggplant on radical scavenging and antioxidant activity. *Journal of Nagoya Women's University*, **50**, 53-58 (竹内若子, 大橋千浩, 木学 量子, 角野史佳, 平井菜穂子. ナスポリフェノール量がラジカル捕捉活性および抗酸化活性に及ぼす影響, 名古屋女子大学紀要).
- 10) Itoh, T. (2014). Inhibitory effect of OM-X(R), fermented syrup makes from fruits and plants on antigen-stimulated degranulation in rat basophilic leukemia RBL-2H3 cells. *Bio Industry*, **31**, 52-59 (伊藤智広. 植物乳酸発酵エキス OM-X (R) による I 型アレルギー抑制作用, バイオインダストリー).
- 11) Fukui, N. (2014). The effect of eosinophil and PPAR γ in allergic rhinitis. *Clinical Immunology and Allergology*, **61**, 282-284 (福井奈緒子. アレルギー性鼻炎における好酸球と PPAR γ の役割, 臨床免疫・アレルギー).
- 12) 大庭理一郎, 五十嵐喜治, 津久井亜紀夫編著, (2000). II 食品着色料としてのアントシアニン, 「アントシアニン—食品の色と健康—」, 初版, 建帛社, 東京, 45-52.
- 13) 津田孝範, 須田郁夫, 津志田藤二郎編著, (2009). 第 10 章 食品着色料としてのアントシアニンの利用と最近の開発動向, 「アントシアニンの科学—生理機能・製品開発への新展開—」, 初版, 建帛社, 東京, 207-225.

(平成 28 年 7 月 22 日受付, 平成 28 年 8 月 25 日受理)