技術論文

ウンシュウミカンでの β -クリプトキサンチンの 可視・近赤外分光法による非破壊計測法

久永絢美¹, 阪中達幸², 吉岡照高¹, 杉浦 実^{1,3*}

¹ 国立研究開発法人農業・食品産業技術総合研究機構 果樹茶業研究部門カンキツ研究領域

² 一般財団法人雑賀技術研究所事業開発推進室

³ 同志社女子大学生活科学部食物栄養科学科

Method for Nondestructive Measurement of β -cryptoxanthin in Satsuma Mandarins (*Citrus Unshiu* Marcow.) Using Visible and Near-infrared Spectroscopy

Ayami Hisanaga¹, Tatsuyuki Sakanaka², Terutaka Yoshioka¹ and Minoru Sugiura^{1,3*}

¹ Okitsu Citrus Research Station, NARO Institute of Fruit and Tea Science, National Agriculture and Food Research Organization (NARO), 485-6 Okitsunaka-cho, Shimizu, Shizuoka 424-0292

² Saika Technological Institute Foundation, 2-1-20 Kuroda, Wakayama 640-8341

³ Department of Food Science and Nutrition, Doshisha Women's College of Liberal Arts, 602 Teramachi Nishi-iru, Imadegawa, Kamigyo, Kyoto 602-0893

Satsuma mandarins (*Citrus unshiu* Marcow.) are one of the most commonly eaten domestic fruits in Japan, and recent studies have shown that the β -cryptoxanthin present in Satsuma mandarins might provide benefits to bone health. In this study, we examined whether the use of visible and near-infrared (VIS-NIR) spectroscopy, and a new simplified measuring system for β -cryptoxanthin in satsuma mandarins, which has recently been developed as an alternative method of HPLC, permit us to rapidly quantify β -cryptoxanthin in single intact fruits. Satsuma mandarins, harvested in 2016, were subjected to VIS-NIR radiation, and spectra were collected from 600–970 nm at 1-nm intervals, with an integration time of 10 ms. β -cryptoxanthin contents of each sample were then measured by a newly developed simplified measuring system. We then examined the associations between VIS-NIR spectra data and β -cryptoxanthin contents obtained from the simplified measuring system. Calibration models were prepared using partial least squares regression (PLSR) on pre-treated spectra in the ranges 0.52–3.44 mg/100 g (β -cryptoxanthin) of 340 samples. External validation was carried out with 340 new samples. The PLSR models for intact satsuma mandarins were able to predict β -cryptoxanthin with $R^2=0.897$, RMSEP=0.169, and RPD=3.01. The results allow for the market valorization of this fruit. (Received Aug. 26, 2018; Accepted Oct. 2, 2018)

Keywords : Nondestructive measurement, Visible and Near-infrared spectroscopy, Satsuma mandarin, carotenoids, beta-cryptoxanthin

キーワード : ウンシュウミカン, カロテノイド, β -クリプトキサンチン, 非破壊推定, 可視・近赤外分光法

β -クリプトキサンチンはウンシュウミカン（以下、ミカン）に特徴的に多く含まれているカロテノイド色素の一種であり、これまでに様々な生活習慣病に対する予防効果が明らかにされている^{1)–6)}。これら β -クリプトキサンチンに関する機能性研究の成果により、2015 年 9 月に生鮮農産物では初めて、JA みっかびの“三ヶ日みかん”が骨の健康維持に役立つ機能性表示食品として登録された⁷⁾。機能性表示食品では、1 日当たりの摂取目安量を示すとともにその機能性関与成分の含有量を表示しなくてはならないが、サ

プリメントや加工食品とは異なり、特に生鮮農産物では品種や栽培条件、更には栽培地域、収穫時期などの影響で機能性関与成分の含有量にばらつきが生じることが予想される。消費者庁に機能性表示食品として届出の際には、果実中の β -クリプトキサンチン含有量を HPLC で化学分析した結果を添付資料として提出しなくてはならず、そのための分析費用は届出事業者にとっては大きな負担となっている。

近年、青果物の可食部中に含有される色素成分を簡易的に測定する技術およびその装置（青果物用機能性成分計キ

¹ 〒424-0292 静岡県静岡市清水区興津中町 485-6, ² 〒640-8341 和歌山県和歌山市黒田 2-1-20,

³ 〒602-0893 京都府京都市上京区今出川通寺町西入玄武町 602

*連絡先 (Corresponding author), msugiura@dwc.doshisha.ac.jp

ノメータ, (一財)雑質技術研究所, 和歌山) が開発された⁸⁾。本装置では, 家庭用のミキサー等で破碎した青果物の可食部対象物をキュベットセルに入れ, 光源から白色又は複数の波長を有する光を照射して透過スペクトルを測定し, 透過スペクトルの透過光強度とあらかじめ測定しておいたリファレンス光の強度を用いて吸収スペクトルを算出することで, 青果物可食部中の色素成分含有量を簡易的に測定することができる。現在, ミカンに含まれる β -クリプトキサンチンやトマトに含まれるリコペンの含有量の測定が可能とされている。

一方, 近赤外分光法は1960年代に開発され, 青果物に應用されたのは1985年以降で, タマネギの乾物測定に関する研究が最初である⁹⁾。その後, 日本国内では, モモ, ミカンなどへの応用試験が行われた¹⁰⁾¹¹⁾。現在, 非破壊光センサー選果機が全国の多くのミカン産地に導入され, 糖度や外観を基準とした選果が行われている。非破壊光センサーによる選果については, それぞれの農協において品質管理マニュアル等が作成されているが, 選果を行う際には必ず糖度の異なる幾つかの果実サンプルを用いて, 実際の糖度と相関する非破壊光センサーデータを回帰分析から求め, 出荷時期ごと, あるいは品種ごとに検量線を作成し, 非破壊光センサーの精度管理を行っている。

このような背景から, β -クリプトキサンチンの簡易測定器であるキノメータで測定したミカン果実中の β -クリプトキサンチン含有量と相関する非破壊光センサーによる波長データが明らかになれば, 実運用面を想定した場合, 本装置は極めて汎用性の高いものとなる。すなわち, キノメータによる測定値と相関する非破壊光センサーによる波長データを明らかにすることで, 新たな β -クリプトキサンチンの非破壊推定システムとしての利用が考えられる。

そこで本研究では, まず β -クリプトキサンチン含有量が異なる様々な品種のミカンを用いて, キノメータで得られるミカン果実中の β -クリプトキサンチン含有量の測定精度をHPLC分析値と比較検証した。そして, キノメータで得られる測定値と相関する非破壊光センサーによる吸収スペクトルを組み合わせることで, ミカン果実中の β -クリプトキサンチン含有量を非破壊推定できるか検証を行った。本システムは, HPLC分析による分析値をキノメータで得られるデータに置き換えることで, より実運用面で有益な手法となることが予想される。

実験方法

1. 分析用果実のサンプリングと果実破碎液の調製

国内の主要なミカン産地である, 東海・近畿・四国地方の4県で2016年に収穫されたハウスミカン, 露地栽培された極早生群, および早生品種群のミカンを用いた。静岡県のハウスミカン(80果実)では7月中旬, 三重県, 和歌山県および静岡県の極早生品種群(400果実)では9月下

旬から10月中旬, 愛媛県, 和歌山県および静岡県の早生品種群(200果実)では11月上旬から中旬にかけてサンプリングを行った。なお各農協でのサンプリング段階では具体的な各品種の割合までは把握出来ていないが, 各県での主要な品種名を表1に示した。各果実サンプルは入手後すぐに全果重(g)を測定し, 非破壊光センサーデータの取得に供した。可視・近赤外線分光光度計によるスペクトルデータの取得が完了した果実サンプルは, 外果皮を剥皮した後に維管束などをできるだけ除去し, じょうのう膜を含む状態を可食部として, β -クリプトキサンチンの分析に供した。なおこれらの供試果実は, 後述するキノメータを用いた簡易測定値と相関する非破壊光センサーの吸収スペクトルから β -クリプトキサンチン含有量を推定するための回帰式作成用試料およびその回帰式を検証するための回帰式評価用試料にグループ分けした。それぞれの果実サンプルは, ホモジナイザー(IKA T25 digital ULTRA-TURRAX®, IKA, 大阪)を用いて粉碎し, 得られた果実ホモジネート液を用いて, 直ちにデジタル式屈折糖度計(ATAGO PAL-1, (株)アタゴ, 東京)で糖度(°Brix)を測定するとともに, キノメータによる簡易測定とHPLC分析用の試料とした。

2. 非破壊光センサーによる吸収スペクトルの取得

ミカンの可視・近赤外吸収スペクトルの取得にはピアノ鍵盤式コンベアによる搬送部および非破壊光センサー(シトラスセンサー CIT-14, (一財)雑質技術研究所, 和歌山)を用いた。果梗部を上向きとした姿勢で分速60mの速度で搬送しながら赤道部を測定し取得した。測定波長範囲は500~1000nm(1nm間隔)とした。なお可視・近赤外吸収スペクトルはそれぞれのミカンについて向きを変えて2回取得した。ミカンの向きは1回目と2回目で果梗部は上向きのまま90度回転させて吸収スペクトルを取得した。

3. ミカン果実中の β -クリプトキサンチン含有量の簡易測定

ホモジネートしたミカン果実中の β -クリプトキサンチン含有量を簡易的に測定するため, 青果物用機能性成分計(キノメータ, (一財)雑質技術研究所, 和歌山)を用いた。本装置では, キュベットセルに入れた試料に光源から白色光を照射して, 検出器により透過光を受光し, 分光処理することで所要の波長範囲で吸収スペクトルを取得する。本装置には標準検量線が搭載されており⁵⁾, 吸収スペクトルと標準検量線より, β -クリプトキサンチン濃度が算出される。本分析方法の再現性は, 濃度の異なる680サンプルを2回繰り返し測定した結果から, その変動係数は平均0.8%であることを確認した。なおキノメータの測定値は, 2回繰り返し測定した平均値とした。

4. ミカン果実中の β -クリプトキサンチン含有量のHPLCによる分析

ミカン果実100g中に含有される β -クリプトキサンチン量($\text{mg} \cdot 100\text{gFW}^{-1}$)の分析はHPLC(1260 Infinity LC,

表 1 試験に供したウンシュウミカン果実の品種と糖度および β-クリプトキサンチン含有量 (mg/100 gFW)

品種群	品種名	産地県	サンプリング時期	n	糖度 (°Brix)	β-クリプトキサンチン (mg/100 g FW)
ハウス	宮川早生	静岡	7 月中旬	80	13.1 (1.8)	2.39 (0.40)
極早生	高林早生, ゆら早生	静岡, 和歌山	9 月下旬~10 月中旬	220	11.1 (1.5)	1.36 (0.27)
	みえ紀南 1 号	三重	10 月中旬	180	11.3 (1.3)	1.11 (0.26)
早生	宮川早生	静岡, 和歌山, 愛媛	11 月上旬~中旬	200	11.7 (1.3)	1.85 (0.27)

n: 分析数 データはすべて平均値 (標準偏差) で示す。

アジレントテクノロジー株式会社, 東京)により実施した¹²⁾。ガラス製の遠心管にホモジネートしたサンプルとピロガロールを入れた後, エタノールを加えてホモジナイザーで粉碎した。次に 60% 水酸化カリウム溶液を加え, 30 分間 56℃ でケン化処理を行った。ケン化処理を完了した遠心管に, 1% 塩化ナトリウムとヘキサン (0.1% ジブチルヒドロキシトルエン (以下, BHT) 含有) を加え, ボルテックスミキサーで混合抽出を行った。遠心分離により分かれた上層 (有機層) を回収し, さらにヘキサンによる抽出を 3 回行った。回収した有機層をエバポレーターで減圧除去し (40℃ 以下), *t*-ブチルメチルエーテル (以下, TBME): メタノール (以下, MeOH) (0.1%BHT, 1% 酢酸アンモニウム含有) (1:1) 溶液に溶解し, HPLC 試料溶液とした。HPLC のカラムは C30 カラム (YMC Carotenoid S3μ 4.6 mm×100mm i.d., 株式会社ワイエムシィ, 京都) を用いた。溶離液は A 液 (MeOH/アセトニトリル/H₂O 7:1:2) と B 液 (TBME/MeOH 9:1) の 2 種を用い, 流速は 1.0 mL・min⁻¹, A 液:B 液=77.5:22.5 から分析開始 20 分後には A 液:B 液=20:80 となるようにグラジエント溶出を行った。検出波長は 450nm を用いた。HPLC 分析のための検量線は, 標品 (β-Cryptoxanthin ((3R)-β, β-Caroten-3-ol), 和光純薬工業株式会社, 大阪) をヘキサンで溶解し, 光路長が 1cm の石英セルを用いて 449nm での吸光度を測定し, 比吸光係数 (2400) と測定した吸光度を用いて, 次式により β-クリプトキサンチン濃度を算出して作成した。

$$\beta\text{-クリプトキサンチン}(\mu\text{g/ml}) = (\text{吸光度} \times 10000) \div 2400$$

濃度の異なる 3 種類の標品溶液により検量線を作成した。分析開始から 12.8 分後に溶出されるピークを β-クリプトキサンチンと同定した。本分析方法の再現性は, 濃度の異なる 6 サンプルを 5 回抽出分析行った結果から, その変動係数は, 2.4%~4.5% (平均 3.4%) であることを確認した。

5. 統計解析

キノメータの標準検量線の測定精度は 680 サンプルの HPLC 分析値との標準誤差 (SEP) を β-クリプトキサンチンの HPLC 分析値の標準偏差で割った値である RPD にて評価した。非破壊光センサーで得られた可視・近赤外スペ

表 2 キノメータによる β-クリプトキサンチン含有量 (HPLC 分析値) の測定精度

n ^P	R ²	RMSEP	RPD
680	0.95	0.12	4.19

R²: 決定係数

n^P: 検量線評価用試料のスペクトルデータ数。果実数×2。

RMSEP: 検量線評価用試料の推定誤差の二乗平均平方根

RPD: 検量線評価用試料の標準偏差/推定誤差の標準偏差

クトルデータとキノメータによる β-クリプトキサンチン含有量測定値との回帰分析においては, スペクトルの前処理に二次微分と中心化を適用し, S/N 比を考慮して 600~970nm の波長を解析に採用した。二次微分スペクトルを説明変数, キノメータによる β-クリプトキサンチン含有量測定値を目的変数として部分最小二乗回帰分析 (PLSR: Partial Least Squares Regression) により検量線を作成した。本試験研究に供した 680 果実を各品種群で均等になるように 2 グループに分け, 検量線作成に 680 データ (340 果実をそれぞれ 2 回測定), 評価用に 680 データ (340 果実を 2 回測定) を用いた。検量線は検量線評価群の標準誤差 (SEP) をキノメータによる β-クリプトキサンチン含有量測定値の標準偏差で割った値である RPD にて評価した。スペクトルの前処理および解析には多変量解析ソフト (The Unscrambler X, CAMO Software) を用いた。

実験結果および考察

各品種群における糖度と HPLC 分析した β-クリプトキサンチン含有量の結果を表 1 に示した。分析した果実のうち, 糖度および β-クリプトキサンチン含有量はハウスマカンで最も高い値を示した。キノメータによる測定値と HPLC 分析値との関係を表 2 および図 1 に示した。決定係数 (R²) は 0.95 であり, また推定誤差の二乗平均平方根である RMSEP 値は 0.12, RPD 値は 4.19 となった。RPD 値は 3.0 以上の場合に満足なスクリーニングが可能とされている¹³⁾。このことから, キノメータによるミカン果実中の β-クリプトキサンチン含有量の測定は含有量が異なる様々な品種のミカンでも実用レベルで使用できると考えられた。

非破壊光センサーの PLSR に用いたミカンの全可視・近

赤外スペクトルの β -クリプトキサンチン含有量別 (HPLC 分析値で3グループ化) に平均した吸収スペクトルを図2a, 二次微分スペクトルを図2bに示した。 β -クリプトキサンチン含有量が低値群 (HPLC 分析値で果実100g当たり1.5mg未満, $n=654$, 平均値1.1mg), 中程度群 (同1.5

mg以上, 2.5mg未満, $n=638$, 平均値1.9mg), および高値群 (同2.5mg以上, $n=68$, 平均値2.8mg) として β -クリプトキサンチン含有量別に比較すると, β -クリプトキサンチン含有量に応じて750nm以下の領域で顕著な吸収量の変化が観察された。これは β -クリプトキサンチンだけでなく果肉および果皮に含まれる様々な色素成分の吸収によるものであり, 680nm付近のピークは, 果皮のクロロフィルによるものであると考えられる¹⁴⁾。クロロフィル含有量が多い緑色の果皮のミカンは, 可食部の β -クリプトキサンチン含有量が低くなる傾向が確認できた。

次にキノメータで得られる測定値と非破壊光センサーによる吸収スペクトルデータからPLSRによって検量線を作成・評価した結果を表3に示した。また評価用試料のキノメータ測定値と非破壊センサーによる推定値の関係を図3に示した。検量線作成用試料では R^2 が0.88, RMSEC値が0.16に対し, 検量線評価試料では R^2 が0.88, RMSEP値が0.16となり, 推定精度は同等であった。次に評価用試料における非破壊光センサーによる推定値とHPLC分析で得られた化学分析値との関係を表4および図4に示した。 R^2 が0.90, RMSEP値が0.17となり, 非破壊光センサー推定値とキノメータ測定値の予測精度の結果と比較しても, 予測精度の低下は認められなかった。またRPD値が3.01

図1 ミカン果実中の β -クリプトキサンチン含有量: HPLC 分析値とキノメータ測定値との関係

図2 ミカン果実の可視・近赤外スペクトル

a, 原スペクトル; b, 二次微分値

表 3 PLS 回帰分析を用いた非破壊光センサーによる β -クリプトキサンチン含有量（簡易測定値）の検量線作成および評価結果

スペクトル前処理	使用波長 (nm)	因子数	検量線作成用試料			検量線評価用試料		
			n^c	R^2	RMSEC	n^p	R^2	RMSEP
二次微分	600~970 (1 nm 単位)	7	680	0.88	0.16	680	0.88	0.16

 R^2 ：決定係数 n^c ：検量線作成用試料のスペクトルデータ数、果実数 $\times 2$

RMSEC：検量線作成用試料の推定誤差の二乗平均平方根

 n^p ：検量線評価用試料のスペクトルデータ数、果実数 $\times 2$

RMSEP：検量線評価用試料の推定誤差の二乗平均平方根

図 3 ミカン果実中の β -クリプトキサンチン含有量の推定：非破壊推定値とキノメータ測定値との関係 図 4 ミカン果実中の β -クリプトキサンチン含有量の推定：非破壊推定値と HPLC 分析値との関係表 4 非破壊光センサーによる評価用試料果実中の β -クリプトキサンチン含有量（HPLC 分析値）の推定精度

n^p	R^2	RMSEP	RPD
680	0.90	0.17	3.01

 R^2 ：決定係数 n^p ：検量線評価用試料のスペクトルデータ数、果実数 $\times 2$

RMSEP：検量線評価用試料の推定誤差の二乗平均平方根

RPD：検量線評価用試料の標準偏差/推定誤差の標準偏差

表 5 糖度による評価用試料果実中の β -クリプトキサンチン含有量（HPLC 分析値）の推定精度

n	R^2	RMSEP	RPD
340	0.36	0.41	1.24

 R^2 ：決定係数 n ：検量線評価用試料の数

RMSEP：検量線評価用試料の推定誤差の二乗平均平方根

RPD：検量線評価用試料の標準偏差/推定誤差の標準偏差

であったことから、実用レベルで使用できる精度であることが確認された。

一方、果実中の β -クリプトキサンチン含有量が糖度と相関することが近年明らかにされた¹²⁾。この研究結果から、光センサー測定による糖度の値から β -クリプトキサンチン含有量を推定する方法が考えられる。そこで本研究においても、糖度（°Brix）と β -クリプトキサンチン含有量との回帰分析から、非破壊センサーによる β -クリプトキサンチン含有量の推定精度を検証した。検量線作成用の 340 果実を用いて糖度（°Brix）と HPLC 分析による β -クリプトキサンチン含有量との相関分析を行ったところ、相関係数は

は 0.596 ($p < 0.001$) であった。糖度と HPLC 分析による β -クリプトキサンチン含有量の相関分析の結果から得られた回帰式を用いて、検量線評価用の 340 果実における β -クリプトキサンチン含有量を推定した結果を表 5 および図 5 に示した。評価用試料における糖度による推定値と HPLC 分析値との相関分析の結果、 $R^2 = 0.36$ 、RMSEP = 0.41、RPD = 1.24 であった（表 5）。これらの結果から、糖度から β -クリプトキサンチン含有量を推定するためには、 β -クリプトキサンチン含有量と関連する他の要因を考慮した更なる検討が必要であると考えられた。

これまでにミカン果実中の β -クリプトキサンチン含有

図5 ミカン果実中の β -クリプトキサンチン含有量の推定：糖度からの推定値とHPLC分析値との関係

量が糖度と有意に相関することが報告されており¹²⁾、現在ミカンの等級選別の重要な指標である糖度を近赤外線光センサーによる非破壊選果機で全数検査することにより、糖度が一定基準より低いミカンを選別して除外することで機能性表示の対象となる商品の β -クリプトキサンチン含有量を担保している⁷⁾。本研究において、糖度とHPLC分析で得られた β -クリプトキサンチン含有量との相関分析を行ったところ、その相関係数は0.596であり有意な正相関を示した ($p < 0.001$)。しかしながら、糖度を用いて β -クリプトキサンチン含有量を検量線評価用の340果実で推定したところ、RMSEP値は0.397、RPD値は1.24であり、ばらつきは大きくその推定精度は低いものであった。そのため、果実中の β -クリプトキサンチン含有量を非破壊光センサーで推定するためには、非破壊光センサーで得られる波長データと相関の強い、糖度以外の新たな指標が必要となる。

一方、本研究で検討した、近年新たに開発された β -クリプトキサンチンの簡易測定法は、 β -クリプトキサンチン含有量が異なる様々な品種のミカンにおいてもHPLC分析とほぼ同程度の値を得られることが確認できた。これは測定対象物がミカンという、測定対象物中のカロテノイド組成が比較的単純である場合にこのような測定が可能になったものと考えられる。ミカン果肉中のカロテノイドの殆どが β -クリプトキサンチンであることがこれまでに報告されている¹⁵⁾。この簡易測定法により得られた β -クリプトキサンチン測定値と非破壊光センサーにより β -クリプトキサンチン含有量を非破壊推定するための検量線を作成し、HPLC分析値の非破壊推定の妥当性を確認したところ、RMSEP値は0.17、RPD値は3.01となり、 β -クリプトキサンチン含有量を非破壊光センサーで実用レベルの精度で推定できることが確認できた。各産地での実運用面を考えた

場合、有機溶媒や特別な実験施設が必要で分析にも時間を要するHPLC法よりも、家庭用ミキサー等で破碎した果実サンプルでも簡便に β -クリプトキサンチン含有量を精度高く測定できる本簡易測定法の方がより簡便で低コストでの導入が可能であり、その波及効果は極めて大きいと考えられる。また非破壊測定においては、従来は糖度との相関関係により、一定量の β -クリプトキサンチンを保証してきたが、本簡易測定法と非破壊光センサーを組み合わせることで、 β -クリプトキサンチン含有量でミカンを選別することが可能になると考えられる。今後、更に晩生品種、貯蔵ミカン、ミカンよりも β -クリプトキサンチンを高含有する“西南のひかり”などの中晩柑類についても同様の検討を行う必要がある。

要 約

ウンシュウミカンは日本国内で最も消費量の多い国産果樹の一つであり、近年、ウンシュウミカンに多く含まれる β -クリプトキサンチンが骨の健康維持に有効であることが示されている。本研究において、可視・近赤外分光法による非破壊光センサーと最近新たに開発された β -クリプトキサンチンの簡易測定法を組み合わせることで、果実中の β -クリプトキサンチン含有量を非破壊で推定できるか検証を行った。2016年度に入手した340個のウンシュウミカン果実について、非破壊光センサーによる吸収スペクトルと簡易測定器による含有量データとの関連についてPLS回帰分析を行った。これらの回帰分析から得られた検量線の妥当性を評価したところ、決定係数 (R^2) は0.897、RMSEP値は0.169、RPD値は3.01であった。これらの結果から、 β -クリプトキサンチン簡易測定器と非破壊光センサーを組み合わせることで、ウンシュウミカン果実中の β -クリプトキサンチン含有量を精度高く非破壊で推定できることが判明した。

文 献

- 1) Sugiura, M., Nakamura, M., Ogawa, K., Ikoma, Y., and Yano, M. (2012). High serum carotenoids associated with lower risk for bone loss and osteoporosis in post-menopausal Japanese female subjects: Prospective cohort study. *PLoS One*, **7**, e52643.
- 2) Sugiura, M., Nakamura, M., Ogawa, K., Ikoma, Y., and Yano, M. (2016). High vitamin C intake with high serum β -cryptoxanthin associated with lower risk for osteoporosis in post-menopausal Japanese female subjects: Mikkabi cohort study. *J. Nutr. Sci. Vitaminol.*, **62**, 185-191.
- 3) Sugiura, M., Nakamura, M., Ogawa, K., Ikoma, Y., and Yano, M. (2016). High serum carotenoids associated with lower risk for elevated serum alanine aminotransferase among Japanese subjects: Mikkabi prospective cohort study. *Br. J. Nutr.*, **115**, 1462-1469.
- 4) Sugiura, M., Nakamura, M., Ogawa, K., Ikoma, Y., and Yano, M. (2015). High serum carotenoids associated with lower risk for type 2 diabetes among Japanese subjects: Mikkabi

- prospective cohort study. *BMJ Open Diabetes Res. Care*, **3**, e000147.
- 5) Sugiura, M., Nakamura, M., Ogawa, K., Ikoma, Y., and Yano, M. (2015). High serum carotenoids associated with lower risk for metabolic syndrome and its components among Japanese subjects: Mikkabi prospective cohort study. *Br. J. Nutr.*, **114**, 1674–1682.
- 6) Nakamura, M., Sugiura, M., Ogawa, K., Ikoma, Y., and Yano, M. (2016). Serum β -cryptoxanthin and risk of high brachial-ankle pulse wave velocity: the Mikkabi cohort study. *Nutr. Metab. Cardiovasc. Dis.*, **26**, 808–814.
- 7) <https://www.fld.caa.go.jp/caaks/cssc02/?recordSeq=0IKO41603310760101> (2018. 8. 25).
- 8) 阪中達幸 (2017). 青果物の可食部の機能性色素成分の測定法及び装置. 特開 2017-219536, 12 月 14 日.
- 9) Birth, G.S., Dull, G.G., Renfroe, W.T., and Kays, S.J. (1985). Nondestructive spectrophotometric determination of dry matter in onions. *J. Am. Soc. Hortic. Sci.*, **110**, 297–303.
- 10) Kawano, S., Watanabe, H., and Iwamoto, M. (1992). Determination of sugar content in intact peaches by near infrared spectroscopy with fiber optics in interactance mode. *J. Jpn Soc. Hortic. Sci.*, **61**, 445–451.
- 11) Kawano, S., Fujiwara, T., and Iwamoto, M. (1993). Nondestructive determination of sugar content in Satsuma mandarin using near infrared (NIR) transmittance. *J. Jpn. Soc. Hortic. Sci.*, **62**, 465–470.
- 12) Hisanaga, A., Yoshioka, T., and Sugiura, M. (2018). Differences in Beta-cryptoxanthin content among various kinds of satsuma mandarin (Citrus unshiu Marow.) harvested in major production centers of Japan and the relationship with sugar content. *Journal of the Japanese Society for Horticultural Science (Engeigaku kenkyu)*, **17**, 459–464. (久永絢美, 吉岡照高, 杉浦 実. 主要産地のウンシュウミカンに含有される β -クリプトキサンチン量の品種群間差およびその糖度との関連について, 園芸学研究).
- 13) 薦本淳司, 長谷川薫, 井出 圭, 河野澄夫 (2001). 生・凍結マアジの近赤外分光法による脂肪量の非破壊測定. 日本水産学会誌, **67**, 717–722.
- 14) 中馬 豊, 河野澄夫, キョウセイ (1976). 果実の光学的性質とその選別工程への利用 (第 2 報). 農業機会学会誌, **37**, 587–592.
- 15) Yano, M., Kato, M., Ikoma, Y., Kawasaki, A., Fukazawa, Y., Sugiura, M., Matsumoto, H., Ohara, Y., Nagao, A., and Ogawa, K. (2005). Quantitation of carotenoids in raw and processed fruits in Japan. *Food Science a. Tech. Res.*, **11**, 13–18.
- (平成 30 年 8 月 26 日受付, 平成 30 年 10 月 2 日受理)