

令和 5 年 6 月 21 日現在

機関番号：84407

研究種目：若手研究

研究期間：2019～2022

課題番号：19K19426

研究課題名（和文）ソルバトクロミズムを利用した食品添加物の新規迅速検出法の開発

研究課題名（英文）Development of novel and rapid analysis method of food additives using solvatochromism

研究代表者

松井 啓史（Matsui, Hiroshi）

地方独立行政法人 大阪健康安全基盤研究所・衛生化学部・研究員

研究者番号：40827284

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 3,200,000円

研究成果の概要（和文）：本研究では、ケモメトリックスの手法を用いて分析における試料精製工程を大幅に簡素化することで、迅速・簡便な食品添加物の多成分一斉分析方法の開発に成功した。従来の手法では、類似した多成分の一斉分析には煩雑な試料精製が必要であった。研究を通じて、溶媒種に依存した光学スペクトルの変化（ソルバトクロミズム）を利用することで、分析対象物質への選択性の向上が可能であることを実証した。また研究の過程で、従来の手法では困難であった、予期しない妨害物質の微分スペクトルの推定方法を新たに開発した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で得られた成果は、より迅速簡便な食品添加物の分析を可能とし、社会における食の安全の維持をより効率的に行うことにつながる。開発した分析法は、対象とした食品添加物の分析を高速化・簡便化するだけでなく、そのデータ解析手法の汎用性から、食品添加物のみならず他の様々な物質や測定手法に応用が可能であり、広範な分野への波及効果が期待される。

研究成果の概要（英文）：This project succeeded developing a simple analysis method for simultaneous determination of food additives by using chemometric techniques. Conventional methods have required complicated and time-consuming purification processes for analysis of multicomponents similar each other. Through this project, it is found that use of change of absorption spectra depending on solvent (solvatochromism) and derivative-spectra on a chemometric method enables enhancement of specificity of an analysis method. In addition, a novel method to estimate derivative-spectra of unexpected interferants was developed by using basis set expansion.

研究分野：分析化学

キーワード：ケモメトリックス 食品分析 微分スペクトル 着色料 MCR

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

食品添加物は、食品の品質の維持や向上を目的に様々な品目に広く頻用されており、食品産業に不可欠な物質となっている。一方で、その乱用は健康被害を引き起こしかねず、使用対象や用法・容量は法令によって規定されている。食の安全の維持の観点からは、食品添加物が適正に使用されているかをモニターする必要がある、その手段はなるべく簡便であることが望ましい。現在、食品添加物の定量分析にはガスクロマトグラフィーや液体クロマトグラフィーを利用する手法が広く用いられている。これらの手法は精度や分析対象物質への選択性の高さなどの点で優れている一方で、分析の過程で複雑な精製作業を行う必要がある、多量の有機溶媒を使用する、分析装置の操作に熟達した人員が必須である、分析装置が高額であるといった課題があった。これらの課題を克服するための手法の一つとして注目されてきたのがケモメトリックスであった。ケモメトリックスの手法を用いれば混合物の測定データを各成分に分離できるため、煩雑な精製工程を省略した分析が可能となることが期待されていた。しかしながら、互いに類似した分析対象物質への選択性や同時分析可能な成分数には課題があった。

2. 研究の目的

本研究では、ケモメトリックスの手法と溶媒による分光スペクトルの変化(ソルバトクロミズム)を利用して、簡便な食品添加物の分析法の開発を目的とした。分析対象物質への選択性を向上させるためには物質間の差異を捉えることが肝要である。ソルバトクロミズムは分子の性質を反映するため、適切な組み合わせの溶媒を選択、測定データを統合することで、物質間のスペクトルの差異を捉え、選択性の向上が可能になると期待された。

3. 研究の方法

様々な溶媒で分光スペクトルを測定し、分析対象物質間で差異が大きくなる溶媒種を探索した。その上で複数の溶媒中でのデータを統合することで、すべての分析対象物質について選択性を備えるような溶媒の組み合わせを探索した。加えて、使用する波長範囲の選択や数値計算によって算出される微分スペクトルの利用といった測定データの処理によって選択性のさらなる向上が可能かを検討した。データ解析に使用するケモメトリックスの手法についても複数の手法を試行し、適切な性能を有するか検討した。

4. 研究成果

頻用される食品添加物の一つである着色料について、シロップ中に含まれる構造の類似した5種類のトリアリールメタン系着色料(BB, PBV, PBVF, FG, GS)の同時分析法を開発した。様々な

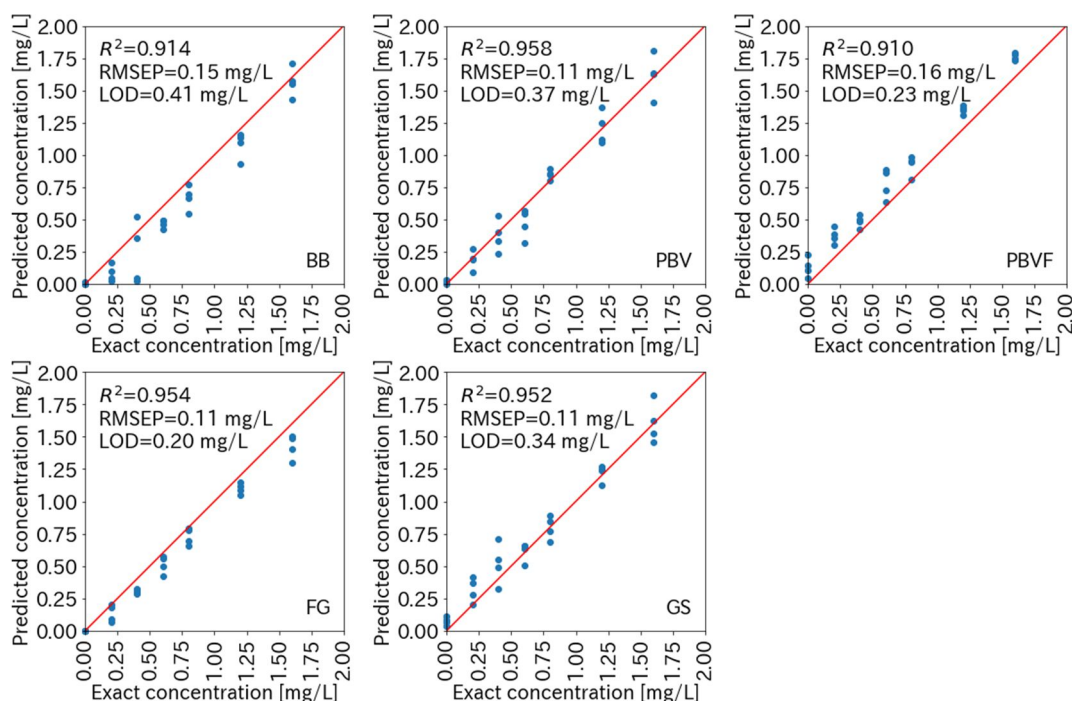


図 1. 開発した分析法の各分析対象物質に対する性能評価

溶媒を検討した結果、クエン酸緩衝液と炭酸緩衝液の 2 種類の緩衝液中での吸光スペクトルを測定することで 5 つの分析対象物すべてへの選択性が得られることを見出した。さらに、吸光スペクトルを直接用いるよりも、2 次微分スペクトルを利用することで選択性が顕著に向上することが明らかとなった。使用する吸収波長の範囲を 550-700 nm とし、データ解析手法には multivariate curve resolution (MCR) 法を採用して、性能を添加回収試験にて評価したところ、5 種の分析対象物質すべてについて決定係数 (R^2) 0.9 以上、予測の平均平方根誤差 (RMSEP) 0.2 mg/L 未満、検出下限値 (LOD) 0.5 mg/L 未満と良好な性能を備えていることが示された。(図 1)

また、分析手法の開発の過程で、2 次微分スペクトルを利用した際の MCR 法の新たなスペクトル推定法を開発した。MCR 法の利点の 1 つは予期しない妨害物質のスペクトルを推測できることである。従来の MCR 法では、物理的な要請を満たす解を得るためにスペクトルの値は非負であるという拘束条件(non-negativity constraint)のもとで妨害物質のスペクトルを推測していた。しかしながら、微分スペクトルは負の値をとり得るために、従来の MCR の手法では 2 次微分スペクトルを推測することは困難であった。そこで本研究では基底関数展開によって 2 次微分スペクトルを推測する方法を新たに開発した。基底関数にガウス関数の 2 階導関数を採用し、その展開係数を非負に制限することで、実質的には吸光スペクトルに non-negativity constraint を付与するのと同等の効果が得られることが明らかとなった。開発した方法は試料中に意図的に添加した妨害成分のスペクトルを標準品の情報無しに精度良く推定することに成功した。(図 2)

さらに、5 つの市販品について本研究で開発した分析法を適用したところ、使用されていた着色料を正しく検出したうえ、その含有量も液体クロマトグラフィーを用いる従来の高精度な手法による測定結果と高い精度で一致した(表 1)。

開発した分析法は、ケモメトリックスを用いた従来の分析法よりも多数の成分を同時に分析可能で、現在の主流である液体クロマトグラフィーを用いる分析法よりも迅速性・簡便性で優れている。吸光スペクトルは全ての物質が有しており、開発した手法は着色料のみならず他の様々な物質に応用可能であると期待される。

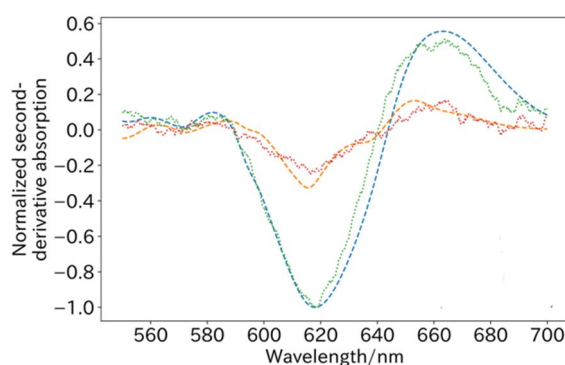


図 2. 基底関数展開により推定された妨害物質のスペクトル(点線)と測定された妨害物質のスペクトル(破線)

表 1 市販品から検出された着色料の含有量の分析法間の比較

	本研究で開発した分析法 [$\mu\text{g/g}$]	液体クロマトグラフィーによる高精度な分析法 [$\mu\text{g/g}$]
試料 1	19.6	19.0
試料 2	6.90	6.41
試料 3	57.8	58.8
試料 4	102	101
試料 5	2.45	2.28

以上の結果より、複数種類の溶媒のデータを統合することで分析対象物質への選択性の向上が可能となることを世界で初めて発見した。また、混合物中における物理的な要請を満たした微分スペクトルの推測方法を新たに開発することに成功した。

< 引用文献 >

Matsui, M; Yamasaki, T. *Anal. Chem.* **2023**, *39*, 77-85.

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Matsui Hiroshi, Yamasaki Tomomi	4. 巻 39
2. 論文標題 Simultaneous determination of five triarylmethane colorants in syrup by applying multivariate curve resolution to second-derivative visible absorption spectra	5. 発行年 2023年
3. 雑誌名 Analytical Sciences	6. 最初と最後の頁 77 ~ 85
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1007/s44211-022-00203-6	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 0件）

1. 発表者名 松井啓史、山崎朋美
2. 発表標題 二次微分UV-VisスペクトルへのMCR-ALSの適用による食品中青色着色料の迅速検出法の開発
3. 学会等名 日本化学会第102春季年会
4. 発表年 2022年

1. 発表者名 松井啓史、内田耕太郎
2. 発表標題 三次元蛍光スペクトルのPARAFAC解析によるレモン中チアベンダゾールのスクリーニング法の開発
3. 学会等名 日本化学会第101春季年会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 MATSUI Hiroshi, KAKUTANI Naoya
2. 発表標題 Rapid and Easy Screening Method for Detection of Thiabendazole in Lemons Using 3D Fluorescence Spectroscopy
3. 学会等名 日本化学会第100春季年会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
--	---------------------------	-----------------------	----

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------