

令和 4 年 10 月 27 日現在

機関番号：12102

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2017～2020

課題番号：17K15354

研究課題名(和文) 散乱特性とスペクトロミクスによる食品の熟成モニタリング手法の開発

研究課題名(英文) Monitoring of the maturation process of food using light scattering and spectromics

研究代表者

粉川 美踏 (KOKAWA, Mito)

筑波大学・生命環境系・助教

研究者番号：10732539

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円

研究成果の概要(和文)：本研究では、様々な光学手法を組み合わせ、対象の化学・物理的性質を網羅的に計測するスペクトロミクス手法を開発した。加えて、計測対象の微細構造や物理的特性を計測するレーザー散乱測定装置を開発し、農産物や食品の貯蔵・熟成中の微細構造変化や物性を非破壊的に計測・評価した。物理的特性を計測する光散乱特性と、化学的特性を計測する近赤外吸収および蛍光を組み合わせ、食品や農産物の時間的変化(熟成、発酵、鮮度低下、劣化)や機能性成分含有量を網羅的に計測した。そして最終的には食品加工プロセスに対応したモニタリングシステムを開発することを目指し、加工の各工程で取得したスペクトルデータと対象物の品質の関連性を調べた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

食品や農産物の加工プロセスでは多くの化学的・物理的変化が起こり、食品の品質は多面的な要素がお互いに関連しあっている。そのような複雑な計測対象を正確に把握するために、本研究では様々な光学的計測法を組み合わせ、情報を統合し解釈する手法を開発した。本研究で開発した計測・解析手法は様々な生物資源に応用可能であるとともに、情報化社会において複雑な対象をデジタル情報として把握する上でのツールになると期待される。

研究成果の概要(英文)：In this research, a novel measurement method which comprehensively measures the chemical and physical properties of food and agricultural products by combining various optical methods was developed. In addition, a laser scattering measuring device that measures the microstructural and physical characteristics of the sample was developed, and the microstructural changes and physical properties during storage and aging of agricultural products and foods was non-destructively measured and evaluated. By combining light scattering characteristics with near-infrared absorption and fluorescence, changes occurring to foods and agricultural products with time (aging, fermentation, freshness reduction, deterioration) could be measured. Finally, with the aim of developing a monitoring system that can be used in the food processing process, we investigated the relationship between the spectral data acquired in each processing process and the quality of the sample.

研究分野：非破壊評価

キーワード：散乱分光 近赤外分光法 多変量解析 食品の熟成 モニタリング

## 様式 C-19、F-19-1、Z-19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

光計測は、迅速に非破壊で対象を計測する手法として学術的・産業的に大きな意義があるが、近赤外分光法のように試料の化学成分を対象に計測する手法が多い。しかし試料によっては化学成分の違いよりも物理構造の違いの方が重要である場合があり、特に食品は「食感」の違いが人間の認識や嗜好性に大きく影響すると言われている。これに対し、物理的特性の計測手法は定量化が難しく、開発が進んでいない。また、従来の光計測法では計測する波長帯や光現象を限定してしまうため、一面的な情報しか得られず、様々な成分変化や構造変化を伴う食品の熟成のような複雑な現象を捉えるには不十分である。

近年、生命現象を包括的に解析・解明しようとするオミックス (-omics) 研究、例えばゲノミクス、プロテオミクス、メタボロミクス等が盛んに行われている。特定の遺伝子や代謝物に着目するのではなく、偏りなく網羅的な計測を行うことにより、様々な遺伝子や代謝物の情報を得ることができ、遺伝子同士・代謝物同士の関係も特徴づけられるという利点がある。

本研究ではオミックス研究に着想を得て、様々な波長の光や計測法を組み合わせ、計測対象の光特性 (スペクトル) を網羅的に計測する手法、すなわちスペクトロミクス手法を構想した。そして計測対象として従来の光計測では捉えきれなかった、食品の熟成や発酵など、時間経過に伴う複雑な変化に着目した。食品の熟成過程は食品内部の酵素、酵母や細菌、温度や湿度など様々な因子に影響を受け、現代でも、熟成度の判断は経験や勘による「職人の技」に頼ることが多い。このように様々な変化が互いに関係し合う現象を総合的に把握し、科学的に解明する手法はまだ開発されていない。

### 2. 研究の目的

本研究ではスペクトロミクス手法を元に、迅速・非破壊という光計測の利点を生かしつつ、熟成の過程に関わる様々な物質の挙動や微細構造の変化を総合的に把握できる計測手法を開発することを目的とした。

### 3. 研究の方法

#### (1) レーザー散乱測定装置の構築

レーザー光源 (青紫: 405nm 20mW、赤: 635nm 20mW、緑: 532nm 20mW) および CCD カメラ (Orca-R2、浜松ホトニクス) を組み合わせた光散乱測定装置を構築した。モデル散乱物質 (Intralipid 20%) および吸収物質 (アナトー色素) の濃度を変えながら、レーザー光の広がり方を調べることで、光散乱の基礎データを得た。

#### (2) 光散乱計測を用いた農産物・食品の貯蔵・熟成における微細構造変化の計測

(1) で構築したレーザー散乱装置を用い、りんご・梨にレーザーを照射し、レーザーの散乱特性を調べることで貯蔵中の硬さの変化を調べた。

#### (3) 自家蛍光特性・近赤外吸収の計測・解析による食品の熟成・追熟度の推定

アボカドをはじめとする収穫後に追熟を経る農産物や、チーズなどの熟成工程が重要な食品を対象とし、紫外・可視領域の自家蛍光と近赤外領域の吸光特性を調べることによって熟成度合いを推定した。自家蛍光と近赤外スペクトルを組み合わせるにあたり、異なる計測手法間で相関が高い波長領域を抽出する正準相関分析を行った。

#### (4) 食品加工工程における品質モニタリング

リンゴ果汁を対象とし、ポリフェノールの一種であるプロシアニジンの抽出量を最大化する加工方法と加工工程におけるプロシアニン量のモニタリング手法を同時に開発した。プロシアニジンは細胞中の液胞に多く局在していることから、リンゴ果汁の調製には湿式微粉砕手法を用い、粉砕、殺菌、酵素分解、遠心分離、濾過などの加工がプロシアニン量に与える影響を調べた。また、計測対象の自家蛍光を網羅的に把握できる蛍光指紋を用い、これらの加工プロセスを経たリンゴ果汁のプロシアニン量を推定した。

### 4. 研究成果

#### (1) レーザー散乱測定装置の構築

構築したレーザー散乱測定装置にて、光散乱の基礎的データを得た。主に吸収体として作用するアナトー色素の量を一定 (0.001%) とし、散乱体である Intralipid の量を 0.001%、0.01%、0.1%、1% と増やした時のレーザー光の広がり方 (輝度プロファイル) を図 1 に示す。散乱体の濃度によって輝度プロファイルの勾配が変わり、散乱体濃度が高いほど勾配が緩やかになる様子が確認できた。

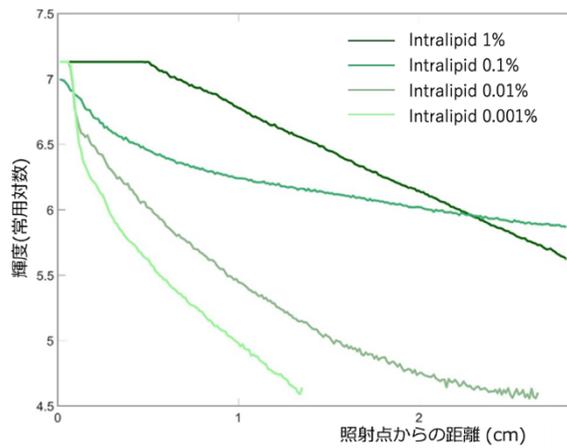


図1 散乱体濃度が輝度プロファイルに及ぼす影響

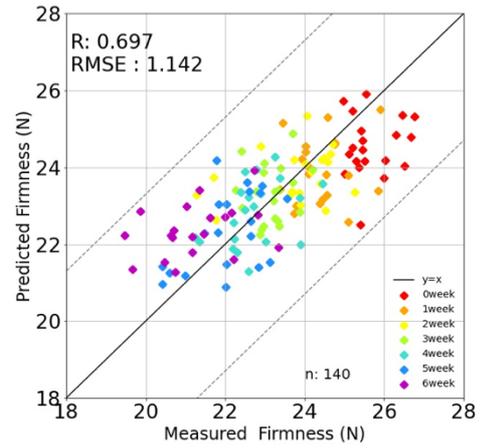


図2 貯蔵中のリンゴの硬さの推定

(2) リンゴの貯蔵中の硬さ変化を輝度プロファイルから推定した結果を図2に示す。25°Cの恒温条件で貯蔵したリンゴに対し、毎週5個のリンゴを計測し、最大で7週間まで貯蔵を行った。輝度プロファイルに対し、Farrelら(1992)が提案した理論式を当てはめて得られた係数、および輝度プロファイルの傾きを説明変数とし、果実硬度計を用いて計測した「硬さ」を目的変数とした。7週目のサンプルは腐敗しているものが多かったためモデルから除外し、モデルには重回帰分析を用いた。モデルの平均誤差は1.38Nであり、貯蔵中の食感変化を簡易的に予測できる可能性が示された。

(3)

①蛍光指紋によるアボカド追熟度合いの推定

アボカドは未熟な状態で収穫され、適切な追熟を経て食されるが、追熟速度は収穫時の状態や追熟温度に影響を受け、食べごろの見極めは難しい。食べごろのアボカドを消費者に提供するためには、アボカドの追熟度を非破壊で正確に知ることが望まれる。アボカドにはクロロフィルやビタミンE等、多くの蛍光物質が含まれていることに着目し、蛍光指紋を用いてアボカドの追熟度を推定し、食べごろ予測を可能にする技術を開発することを目的とした。

図3には、追熟度合いの指標となる硬さ（追熟が進むと硬さは減少）の実際の測定値と、蛍光指紋による推定値をプロットした図を示す。アボカド果皮の蛍光指紋を測定することで、果肉の硬さの推定が可能であることを示している。また、アボカドの追熟に伴い、クロロフィル蛍光の減少が観察され（図4、励起波長540nmの蛍光スペクトル）、この波長帯での簡易測定の可能性が示された。

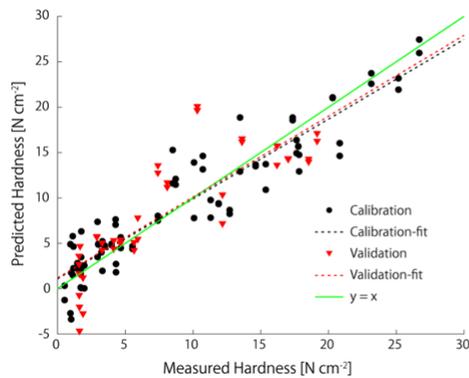


図3 蛍光指紋による硬さ推定

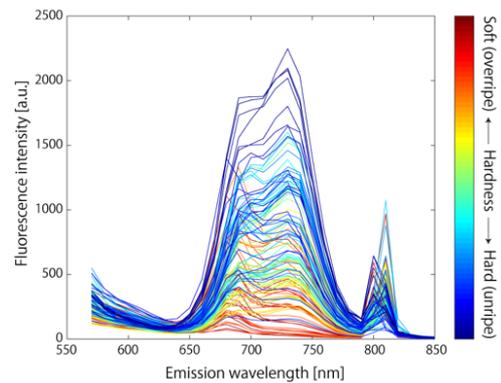


図4 励起波長540nmでの蛍光スペクトル

②近赤外分光法および蛍光指紋を組み合わせたチーズ熟成度合いの推定

チーズの熟成のように複数の化学変化が起こるプロセスでは、蛍光指紋と近赤外吸収の両方の情報を合わせることによって、より複合的な捉え方ができるのではないかと考えた。これを示すために、蛍光指紋、もしくは近赤外吸収スペクトルをそれぞれ個別に用いて解析を行った場合と、二種類のスペクトルを合わせて解析を行った場合を比較した。

その結果、蛍光指紋のみで主成分分析を行った場合は熟成による変化が捉えられなかったが、蛍光指紋と近赤外吸収スペクトルの両方から共通項を探し出す正準相関分析(図3)では、正準2に熟成による影響が現れ、複数の計測手法を組み合わせることで熟成という複雑な過程を正確に把握できる可能性が示唆された。

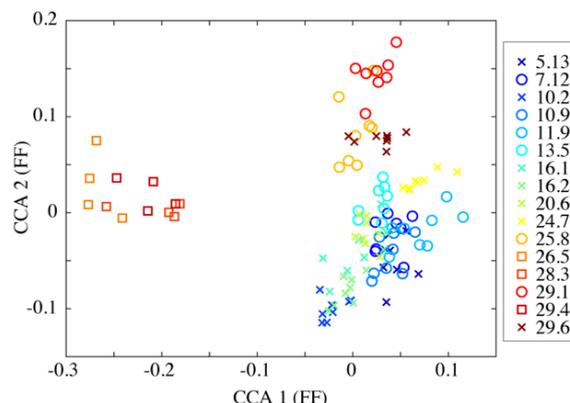


図5 蛍光指紋・近赤外を合わせた正準相関分析

(4)

リンゴ果汁に施す加工によって果汁の濁度や粘度が変化し、蛍光指紋の計測値にも影響を及ぼした。そのため、単一の推定モデルを用いてすべてのリンゴ果汁試料のプロシアニン量を推定することは困難であった。そこで、試料の範囲を限定しながら、推定モデル精度の推移を調べたところ(表1)、濁度が比較的均一なサンプル群にしぼれば、推定精度が向上することが示された。また、より幅広い濁度や粘度を示すサンプルの成分組成を正確に調べるためには、光散乱の影響を取り除くための前処理が必要であることが示唆された。

表1 推定モデルに含めた試料の範囲とプロシアニン量の推定

Model No.	Sample condition (Number of samples)	Processing	Number of LVs	RMSECV	RMSEP	R <sup>2</sup> CV	R <sup>2</sup> P	RPD
Model 1	Both juices (215)	filtration / centrifugation / cellulase	4	2.51	3.47	0.59	0.26	1.16
Model 2	mixer-milled juice (108)	treatment / clarification /	4	2.49	2.93	0.36	0.32	1.21
Model 3	MWM-milled juice (107)	pasteurization	6	2.42	2.79	0.63	0.53	1.46
Model 4	Both juices (191)	filtration / centrifugation / cellulase	5	2.44	3.14	0.63	0.52	1.45
Model 5	mixer-milled juice (96)	treatment / pasteurization	4	2.50	3.05	0.38	0.40	1.29
Model 6	MWM-milled juice (95)		5	2.38	2.74	0.61	0.64	1.66
Model 7	Both juices (167)	filtration / cellulase treatment /	5	2.18	2.92	0.69	0.62	1.62
Model 8	mixer-milled juice (84)	clarification / pasteurization	7	1.52	2.83	0.72	0.68	1.78
Model 9	MWM-milled juice (83)		9	1.64	3.12	0.78	0.56	1.51
Model 10	Both juices (167)	filtration / centrifugation /	6	2.26	3.36	0.68	0.46	1.36
Model 11	mixer-milled juice (84)	pasteurization	6	2.64	3.58	0.44	0.28	1.18
Model 12	MWM-milled juice (83)		7	2.17	3.44	0.69	0.52	1.45
Model 13	Both juices (143)	filtration / cellulase treatment /	3	2.65	4.11	0.56	0.34	1.23
Model 14	mixer-milled juice (72)	pasteurization	9	1.15	2.71	0.84	0.88	2.92
Model 15	MWM-milled juice (71)		8	1.77	3.48	0.69	0.57	1.52
Model 16	Both juices (119)		6	2.03	3.36	0.74	0.69	1.80
Model 17	mixer-milled juice (60)	filtration / pasteurization	9	1.17	2.50	0.85	0.96	5.20
Model 18	MWM-milled juice (59)		7	1.56	4.38	0.69	0.45	1.35

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計15件（うち査読付論文 13件 / うち国際共著 1件 / うちオープンアクセス 2件）

1. 著者名 Kokawa M., Hashimoto A., Li X., Tsuta M., Kitamura Y.	4. 巻 13
2. 論文標題 Estimation of 'Hass' Avocado ( <i>Persea americana</i> Mill.) Ripeness by Fluorescence Fingerprint Measurement	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Food Analytical Methods	6. 最初と最後の頁 892-901
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s12161-020-01705-7	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 -
1. 著者名 Chiba, Akira Kokawa, Mito Tsuta, Mizuki Todoriki, Setsuko	4. 巻 91
2. 論文標題 Predicting sensory evaluation indices of Cheddar cheese texture by fluorescence fingerprint measurement coupled with an optical fibre	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 International Dairy Journal	6. 最初と最後の頁 129-136
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.idairyj.2018.10.001	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 -
1. 著者名 粉川美踏	4. 巻 57
2. 論文標題 近紫外から近赤外の光を用いた食品の非破壊評価	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 化学と生物	6. 最初と最後の頁 78-79
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
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 -
1. 著者名 粉川美踏、千葉啓、蔦瑞樹	4. 巻 28
2. 論文標題 蛍光指紋と近赤外分光法によるチーズの熟成モニタリング	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 日本赤外線学会誌	6. 最初と最後の頁 35-40
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) なし	査読の有無 無
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 -

1. 著者名 Van Beers Robbe, Kokawa Mito, Aernouts Ben, Watt Rodrigo, De Smet Stefaan, Saeys Wouter	4. 巻 136
2. 論文標題 Evolution of the bulk optical properties of bovine muscles during wet aging	5. 発行年 2018年
3. 雑誌名 Meat Science	6. 最初と最後の頁 50～58
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.meatsci.2017.10.010	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 該当する

1. 著者名 Okino Seiya, Kokawa Mito, Md Zohurul Islam, Kitamura Yutaka	4. 巻 14
2. 論文標題 Effects of Apple Juice Manufacturing Processes on Procyanidin Concentration and Nondestructive Analysis by Fluorescence Fingerprint	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Food and Bioprocess Technology	6. 最初と最後の頁 692-701
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1007/s11947-021-02601-6	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22件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 9件)

1. 発表者名 沖野聖矢、粉川美踏、北村豊
2. 発表標題 蛍光指紋によるリンゴ果汁中プロシアニジンの簡易分析
3. 学会等名 第35回近赤外フォーラム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 山下剛史、粉川美踏、北村豊
2. 発表標題 蛍光指紋を利用したコーヒー豆の熟度判別
3. 学会等名 第35回近赤外フォーラム
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 沖野聖矢、粉川美踏、北村豊
2. 発表標題 飲料化プロセスがリンゴ果実中プロシアニジン抽出量に与える影響
3. 学会等名 2019年農業食料工学会・農業施設学会・国際農業工学会第6部会合同国際大会（国際学会）
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 粉川美踏、高橋怜、薦瑞樹、北村豊
2. 発表標題 蛍光指紋イメージングによるコーヒー未熟豆の判別
3. 学会等名 日本食品工学会第20回（2019年度）年次大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 高橋怜、粉川美踏、薦瑞樹、北村豊
2. 発表標題 蛍光指紋によるコーヒー未熟豆の選別
3. 学会等名 農業環境工学関連5学会2018年合同大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 高橋怜、粉川美踏、薦瑞樹、北村豊
2. 発表標題 紫外-可視-近赤外蛍光イメージングによるコーヒー未熟豆の判別
3. 学会等名 第34回近赤外フォーラム
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 大川真里奈、粉川美踏、北村豊
2. 発表標題 電気インピーダンス測定を用いた熟成牛肉の非破壊分析法の検討
3. 学会等名 2019年農業施設学会 学生・若手研究発表会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 粉川美踏、北村豊、蔦瑞樹
2. 発表標題 蛍光指紋と近赤外によるチーズの熟成モニタリング
3. 学会等名 農業施設学会 2017年度大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 大川真里奈、粉川美踏、北村豊
2. 発表標題 蛍光指紋による明日葉の機能性成分含有量の推定
3. 学会等名 2020年農業施設学会学生・若手発表会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 安慶名夏鈴、粉川美踏、北村豊
2. 発表標題 レーザー散乱を利用した食品の物理的構造の計測法の検討
3. 学会等名 2020年農業施設学会学生・若手発表会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 山下剛史、粉川美踏、北村豊
2. 発表標題 蛍光指紋を利用したコーヒー生豆の熟度判別
3. 学会等名 2020年農業施設学会学生・若手発表会
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 遠藤加奈子、粉川美踏、北村豊
2. 発表標題 蛍光指紋によるオリーブ葉の機能性成分の評価
3. 学会等名 2020年農業施設学会学生・若手発表会
4. 発表年 2020年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

筑波大学 農産食品加工研究室 <a href="http://agrofoodprocess.jp/">http://agrofoodprocess.jp/</a>
---

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
---------	---------