

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 19 日現在

機関番号：82111

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2013

課題番号：24658220

研究課題名(和文) 蛍光指紋情報による食品の判別技術の開発

研究課題名(英文) Development of identification technology on food using fluorescence fingerprint

研究代表者

杉山 純一 (Sugiyama, Junichi)

独立行政法人農業・食品産業技術総合研究機構・食品総合研究所・食品工学研究領域・上席研究員

研究者番号：20353972

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,000,000円、(間接経費) 600,000円

研究成果の概要(和文)：蛍光指紋による非破壊・非接触の産地判別技術を開発するため、台湾産・宮崎産・沖縄産マンゴの果皮および果肉の蛍光指紋を計測した。正準判別分析を行い、蛍光指紋から産地を推定する判別基準を得た。(1)バリデーションの誤判別率は、2010年度データのみを解析した場合は3.2～19.2%、2010年度および2011年度データを合わせて解析した場合は7.7～13.6%であった。(2)果皮を測定する場合において果肉の場合よりも低い誤判別率が得られたことから、果皮の方が果肉よりも判別に適していることが分かった。

研究成果の概要(英文)：A new method using fluorescence fingerprint (FF) to determine the geographic origin of mangoes was developed. Mangoes harvested in 2010 and 2011 from Taiwan, Miyazaki and Okinawa were examined. Canonical discriminant analysis was applied to separate the two nationalities or three localities of geographic origin. This analysis was carried out for two datasets, i.e., "data of 2010" and "data of 2010 + 2011". The misclassification rates of validation samples were 3.2-19.2% and 7.7-13.6%, respectively. We found that because of lower misclassification rates, FF is more suitable for skin than pulp. It is suggested that FF can be a practical method to determine geographic origin of mangoes.

研究分野：農学

科研費の分科・細目：農業工学・農業情報工学

キーワード：蛍光指紋 産地判別 非破壊計測 多変量解析

1. 研究開始当初の背景

近年、消費者の食に対する嗜好の多様化や、国内外の産地間競争の激化に対応するため、農産物をブランド化する動きが活発化している。一方で、農産物のブランド化が進むにつれ、産地偽装などによるブランド偽装も相次ぐようになってきた。例えば、様々な産地・品種のコメを混合した米を「魚沼産コシヒカリ 100%」と表示する、台湾産のウナギを「国産」と称して販売する、台湾産のマンゴーに「沖縄県産」と表示したラベルを貼る等の事例が報道されている。

また、農産物だけでなく、加工食品に対する偽装も問題になっている。例えば、そばの乾麺は、通常、そば粉だけではなく、小麦粉などの「つなぎ」が配合されている。配合割合の表示に関しては、JAS法等により決められているが、小麦粉の価格は、そば粉の価格より安価なため、規定量を超える小麦粉を原材料に混入した麺類を「そば」と表示し、不正に販売する事例が後を絶たない。

2. 研究の目的

食品の表示偽装を防止および抑制するために、食品の産地や加工履歴を正確に判別し、その表示の真偽を科学的に判別する技術の開発を目的とする。

3. 研究の方法

(1)マンゴーの産地判別

国産品としてブランド化をすすめる宮崎産 62 サンプルと国内生産量 1 位の沖縄産 60 サンプルを、農協を通して購入した。また、輸入品として偽装前例のある台湾産 56 サンプルを空輸により直接購入した。生産者の違いが結果に影響を与えることを防ぐため、産地内の複数の生産者から試料を集めた。これらは産地の出荷基準に合致した熟度のものを数回に分けて入手し、到着後 1 週間以内に実験に供した。各マンゴーは水分の蒸散を避けるため新聞紙で包装し、冷蔵庫内に同一条件で保管した。

計測部位には果皮を用いた。赤道上の果皮に対して 2 通りの計測方法を行った。一つは、F7000 専用の固体専用セルに試料を封入する方法で、計測面が石英板に押しつけられるため表面の凹凸が軽減される。もう一つの計測方法は、セルに封入せず直接計測する方法で、より簡便に計測できるため実用的に扱いやすい。以下、果皮(セル) 果皮(直接)と称する。

蛍光指紋計測には F7000 を用いた。励起波長・蛍光波長側のスリット幅と計測波長間隔はいずれも 10 nm に設定し、計測範囲は励起波長・蛍光波長とともに最大波長範囲である 200-900 nm とした。また、ホトマル電圧は 400 V、スキャンスピードは 30,000 nm/min、レスポンスは 0.002 s に設定した。

(2)サトイモの産地判別

輸入量が多いサトイモを対象とし、蛍光指紋による土物類の産地判別の可能性を明らかにすることを目的とした。

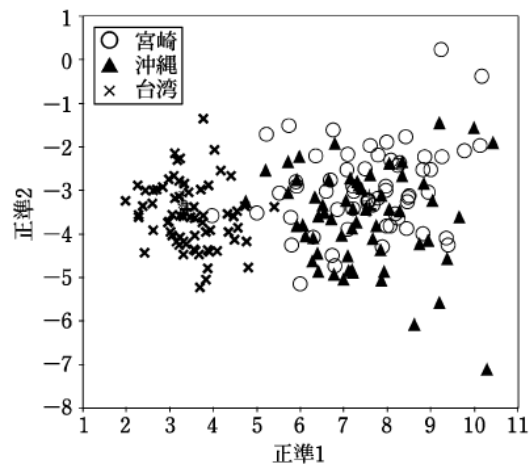
試料には 2008 年度産の生鮮サトイモを用い、日本産 117 サンプル、中国産 23 サンプルを用意した。計測条件を揃えるため、サトイモは購入後に皮をむきハンマーでつぶしてから冷凍保存し、計測直前にマルチピースショッカーを用いてホモジナイズした。サンプルを粉末試料セルに封入し、分光蛍光光度計を用いて各 2 回蛍光指紋を計測した。計測範囲は励起、蛍光波長ともに 200~900nm、波長間隔は 10nm に設定した。解析は各波長の蛍光強度を説明変数、産地を目的変数として正準判別分析を行った。その際データを、判別式を作成するキャリブレーションセットと判別式の有効性を検証するバリデーションセットへとランダムに二分した。

4. 研究成果

(1)マンゴーの産地判別

これらの条件で一回の計測に要する時間は約 4 分であった。

各波長条件における輝度値を説明変数、産地を目的変数として正準判別分析を行った。図 1、図 2 にこのときの正準得点プロットを示す。



(a)果皮(直接) 国の判別

図 1 マンゴーの産地判別(国の判別)

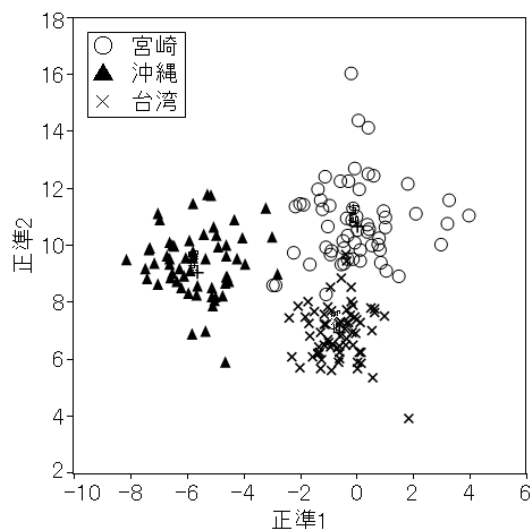


図 2 マンゴーの産地判別(地域の判別)

正準得点は変数の線形結合で、グループ間変動/グループ内変動が最大になるように作られる。地域の判別のプロットにおいて、正準 1 で沖縄グループが分離していることから、今回の三産地の中では沖縄産の特徴が大きかったことが分かる。しかし国の判別で宮崎産と沖縄産を合わせて国産としても精度が落ちなかった。つまり、判別関数作成の際にグループに合わせて波長条件を選択するため、判別精度を低下させる要因を除外することができたと考えられる。

表 1 に 2010 年度および 2011 年度データを合わせて判別分析を行った結果を示す。2010 年度の結果を受けて 2011 年度には果肉の計測を行わず、果皮に対してセルと直接の 2 通りの計測のみを行った。カロテノイド含量に年次変動があるように、生産年度が異なると果実の品質や状態にばらつきが生じると考えられるが、バリデーションの誤判別率は 7.7~13.6% であり十分判別可能であると言える。

表 1 2010 年度および 2011 年度データを用いた判別分析結果

国の判別		誤判別率 (%)	
計測方法	波長条件数	calibration	validation
		果皮 (セル)	3
果皮 (直接)	6	10.3	10.7

地域の判別		誤判別率 (%)	
計測方法	波長条件数	calibration	validation
		果皮 (セル)	3
果皮 (直接)	14	2.9	7.7

つまり適した波長条件を選択することで、多くの情報をもつ蛍光指紋から生産年度の影響を受けずに産地の違いのみを抽出することが可能である。今後、生産年度の異なるデータを蓄積することで、より精度の高い判別基準を得ることができると考えられる。

判別に用いられた波長条件を調べたところ、励起波長 260~290nm、蛍光波長 340~360nm の範囲にある波長条件が共通していることから、マンゴーの産地判別にはこの波長帯の蛍光情報が大きく寄与していると示唆された。

最終的に判別基準と決定した正準判別関数では、3~14 個の波長条件が選択されており、それらは蛍光指紋上におけるピークとは一致していなかった。このことは、つまり、判別には大きな蛍光特性 (=蛍光指紋のピーク) で示される特定成分ではなく、ピークに埋もれている微弱な蛍光特性をもつ成分、あるいは蛍光特性に反映される物理的条件 (表面状態等) などを組み合わせた情報により判別されていることを意味する。逆に言うと蛍光指紋によって得られる産地情報は人為的な操作が難しくなり、その偽装は困難となるメリットにもなり得る。

本実験では試薬を用いることはなく、前処理を含め一回の測定に要した時間は 15 分ほどであった。また果皮の計測のみを行う場合、本実験で行ったような試料を破壊する前処理を行うことなく、果実をそのまま計測に用いることができる可能性がある。加えて判別に用いられる波長条件のみを計測するとすれば、さらなる時間短縮が期待できる。以上より蛍光指紋は簡便で迅速な手法であると言え、新たな産地判別技術として有効である可能性が示された。

今後、現場で実用的に使うには、目的に合わせて様々な産地の試料を集め、さらなるデータ蓄積を図ることにより、ニーズに合わせた精緻な判別も可能になるとと思われる。

(2) サトイモの産地判別

合計 80 個の蛍光指紋データが得られた。両者には励起波長 80 nm・蛍光波長 350 nm 近傍および励起波長 30 nm・蛍光波長 400 nm 近傍に共通した蛍光ピークが確認され、これらはトリプトファンおよびビタミン B6 によるものと考えられた。しかしながら産地ごとに特徴的なピークはみられなかった。つまり蛍光指紋の目視による判別は困難と考えられる。

変数選択を行い判別に有用な波長条件を抽出した。また得られた正準変数を用いて、中国産を陽性、日本産を陰性として ROC 曲線を描いた。ROC 曲線は判別精度の指標の 1 つで、陰性試料のうち誤判別される割合 (偽陽性率) を横軸に、陽性試料のうち正しく判別される割合 (感度) を縦軸にとり、曲線下の面積で判別精度が算出される。同一サンプルを用いた微量元素および Sr 安定同位体による産地判別結果との精度比較を ROC 曲線で行った。

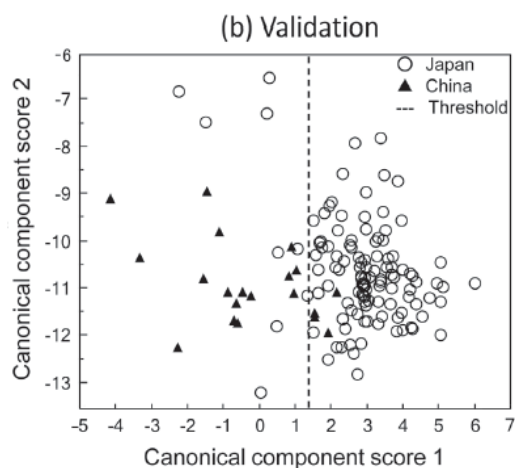


図 3 サトイモの産地判別

変数選択の結果、3 波長条件が選ばれた。この時の誤判別率はキャリブレーションセットで 6.34%、バリデーションセットで 9.42% だった。したがって、サトイモを対象とした場合、本手法により十分に産地を判別するこ

とが可能であることが明らかとなった。また ROC 曲線下の面積は 0.973 だった。ここから、微量元素および安定同位体比分析と同等程度の判別能力を持つことが示された。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 3 件)

杉山純一、蔦瑞樹、蛍光指紋による食品の判別・定量技術、日本食品科学工学会誌、査読有、60 巻、2013、457-465
<http://dx.doi.org/10.3136/nskkk.60.457>

中村結花子、藤田かおり、蔦瑞樹、杉山純二、粉川美踏、吉村正俊、柴田真理朗、鍋谷浩志、荒木徹也、中村 哲、蛍光指紋によるサトイモの産地判別法開発、日本食品工学会誌、査読有、14 巻、2013、125-129

中村結花子、藤田かおり、杉山純一、蔦瑞樹、柴田真理朗、吉村正俊、粉川美踏、蛍光指紋によるマンゴ - の産地判別技術の開発、日本食品科学工学会誌、査読有、59 巻、2012、387-393
<http://dx.doi.org/10.3136/nskkk.59.387>

[学会発表](計 2 件)

中村結花子、藤田かおり、杉山純一、蔦瑞樹、粉川美踏、吉村正俊、柴田真理朗、鍋谷浩志、荒木徹也、中村哲、蛍光指紋によるサトイモの産地判別法開発とその精度検討、日本食品科学工学会第 59 回(2012 年度)大会、2012 年 08 月 29 日、藤女子大学(北海道)

杉山純一、中村結花子、藤田かおり、蔦瑞樹、柴田真理朗、吉村正俊、粉川美踏、蛍光指紋によるマンゴ - の産地判別技術の開発、農業情報学会 2012 年度大会、2012 年 5 月 16 日、東京大学(東京都)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

杉山 純一 (SUGIYAMA, Junichi)
独立行政法人農業・食品産業技術総合研究機構・食品総合研究所・食品工学研究領域・上席研究員
研究者番号：2 0 3 5 3 9 7 2

(2) 研究分担者

蔦 瑞樹 (TSUTA, Mizuki)
独立行政法人農業・食品産業技術総合研究機構・食品総合研究所・食品工学研究領域・主任研究員
研究者番号：8 0 4 2 5 5 5 3