

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 29 年 6 月 26 日現在

機関番号：18001

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2014～2016

課題番号：26850162

研究課題名(和文) 可視 - 赤外分光技術による製糖品質評価システムの開発

研究課題名(英文) Development of quality measurement system for sugar process using Vis - IR combined spectroscopy

研究代表者

平良 英三 (TAIRA, Eizo)

琉球大学・農学部・助教

研究者番号：20433097

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：南西諸島地域の基幹産業であるサトウキビ生産では、機械化が進むことでトラッシュの多い原料が増加し、製糖工場では搬入原料にあわせた迅速な工程管理が求められている。本研究では迅速で前処理を必要としない成分分析法として近赤外分光法と中赤外分光法による成分分析法を検討した。圧搾汁、シラップ、白下、蜜のいずれについても、分光法による品質測定は可能であると考えられた。赤外分光法と近赤外分光法による成分分析の測定精度は同等であり、両分光データの融合により、測定精度を改善できる可能性を示唆した。分光法を利用することにより、原料に合わせた運転管理も可能になると考えられ、実用化と効果の実証が必要である。

研究成果の概要(英文)：In sugar production, which is the important industry in the Nansei Arcs, sugar cane with a lot of trash due to mechanization, and sugar factory is required for rapid process control according to the cane quality. In this study, we investigated component analysis method by near infrared spectroscopy and mid-infrared spectroscopy as a rapid component analysis method which does not require pretreatment. The spectroscopic method can be possible for any of milled juice, syrup, massecuite, and molasses. The accuracy of component analysis by infrared spectroscopy and near infrared spectroscopy seems to be no different, suggesting the possibility of improving measurement accuracy by fusion of both spectroscopic data. The efficient optimization of process control in the sugar mill can be expected by the timely feedback of information obtained the spectroscopic measurement system.

研究分野：農産施設工学

キーワード：製糖 サトウキビ 近赤外分光法 赤外分光法

### 1. 研究開始当初の背景

サトウキビは沖縄の基幹作物であり、製糖産業にとって重要な原料作物である。しかし、近年では農家の高齢化や農業就業者の減少により、労働力不足に合わせた機械化が進んでいる。一方、機械化が進むことでトラッシュ(夾雑物)の多い原料が搬入され、原料品質のばらつきが大きくなり、製糖工程のコントロールに支障をもたらしている。そのため、製糖工場では、搬入原料にあわせた迅速な工程管理が求められているが、現行法による品質測定には熟練技術と時間を要するため、測定結果は工程管理に直接利用できず、現行法に代わる新たな品質測定の技術が求められている。そこで現行法に変わる新たな品質測定の手法として近赤外分光法(以下、NIR)を使用した研究が行われてきた。日本においても実際にNIRによって、原料品質の迅速な測定が可能であり工程管理に利用できることが示されたが、NIR装置は、検量線のメンテナンスや、装置価格が高いことから、製糖工場の工程管理に導入されている報告例はまだ少ない現状である。また、圧搾工程以降の濃縮工程や結晶工程のサンプル分析についてはこれまで十分に検討された検量線開発例はない。

### 2. 研究の目的

本研究では安定的なサトウキビ製糖技術の確立をねらいとして、近赤外分光法と中赤外分光法(以下、IR)による迅速な工程サンプル分析技術の開発、ならびに実際の工程におけるサンプルの品質変動に関する調査を行った。

### 3. 研究の方法

(1) 沖縄県の製糖会社(大東糖業株式会社)の協力よりサンプリングした圧搾汁、シラップ(濃縮工程サンプル)、白下(結晶工程サンプル)、蜜(分離工程サンプル)を供試した。

分光分析:

NIR装置(FOSS, DS2500)とIR装置(Thermo, Nicolet iS5)を用いてスペクトルの測定を行った。NIRスペクトルの測定は凍結サンプルを25の室温で解凍し、1時間以上静置したものをを用いた。測定は試料厚さ0.5mmの反射板を用い、透過・反射スペクトルを測定した。IR装置は温度の影響を受けやすいため、25に温度調節し、IRスペクトルの測定を行った。IR測定はATR法による測定を採用し、約1mLの試料を分析に用いた。

糖度およびイオン測定:

従来法によるサンプルの糖度を測定するため、清澄・ろ過を行い、旋光度から糖度を測定した。また、最初汁については糖以外のイオン類測定の可能性を調査した。イオン含量を測定するために希釈・ろ過を行い、イオンクロマトグラフ(ICS-1600, DIONEX)を用い

て、Na<sup>+</sup>、K<sup>+</sup>等の7イオン含量を測定した。

(2) IRスペクトル分析、NIRスペクトル分析より、取得した成分値とIR・NIRスペクトルを用いて重回帰分析、PLS回帰分析を用いて検量線の作成を行った。また、評価用サンプルを用いて両者の測定精度(SEP)と寄与率(R<sup>2</sup>)を求めて検量線の評価を行った。

### 4. 研究成果

(1) 圧搾汁のVIS・NIRおよびIRスペクトルを図1に示す。最初汁のNIRスペクトルでは-OH基に由来する水の吸収波長6900cm<sup>-1</sup>に強い波長が見られた。IRスペクトルでも同様に水に由来すると考えられる吸収が3300cm<sup>-1</sup>および1630cm<sup>-1</sup>付近で確認できた。さらにNIR領域では5650cm<sup>-1</sup>でショ糖の吸収帯があり、IRでは3270cm<sup>-1</sup>でショ糖の吸収を確認できた。NIRのスペクトルと比べると、IRのスペクトルの方が明確なピークを観察できた。また、可視・近赤外および赤外領域では光の散乱による影響が異なると考えられたため、SNV処理を行い、その影響を低減させて解析を行った。検量線作成時にはさらにサビツキーゴレイ法による2次微分処理を加えた2次微分スペクトルを用いた。

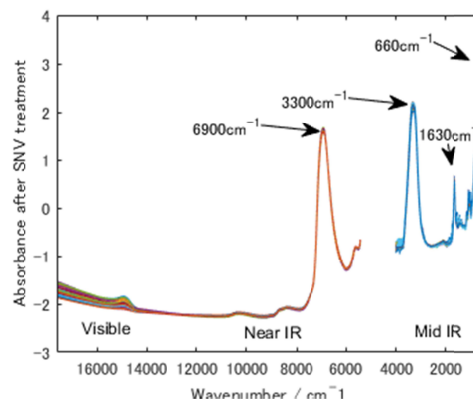


図1. 圧搾汁の可視・近赤外、中赤外スペクトル(SNV処理後)

(2) 圧搾汁中の成分含有量

蔗汁糖度の平均値は17.3%、ブリックスの平均値は19.7°Brixであった。その他のイオン類Na<sup>+</sup>、K<sup>+</sup>、Mg<sup>2+</sup>、Ca<sup>2+</sup>、Cl<sup>-</sup>、SO<sub>4</sub><sup>3-</sup>、PO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の平均値は60.8、2461.2、232.6、224.3、1360.9、469.7、1642.4(mg/L)となった。糖度やブリックスはサトウキビの生育ステージや収穫期間中の天候によっても変動すると考えられる。一方、イオン類ではKが最も多く含有していることが分かった。これは従前の研究報告と同様の傾向であった。

(3) 圧搾汁の検量線作成

圧搾汁の糖度、ブリックス、イオン含量を分光分析法によって推定するため、PLS回帰ぶんせきによる検量線作成を行った。本研究

では、VIS-NIR 領域、IR 領域および VIS-NIR と IR をすべて利用した領域に分け、検量線の

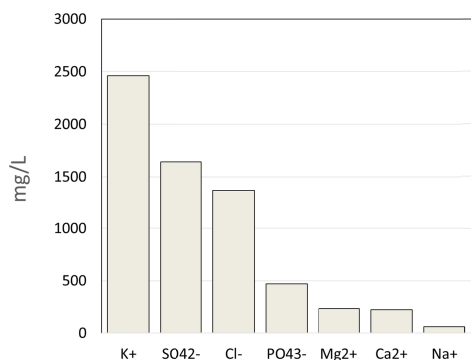


図 2. 圧搾汁中のイオン含量

推定精度を比較した。結果を表 1 に示す。VIS-NIR 領域と IR 領域の検量線を比較すると糖度 (Pol), ブリックス (brix), イオン類の多くで IR 領域のほうが R<sup>2</sup> は高く、精度の高い検量線が作成できた。

一方、Cl<sup>-</sup>については VIS-NIR 領域のほうが高い測定精度となることが分かった。Cl<sup>-</sup>は OH (水) による吸収領域でその吸収ピークを変化させることが知られている (Tanaka et.al., 1995)。図 2 で示したように、Cl<sup>-</sup>よりも多く含有しているイオンがあるにも関わらず、Cl<sup>-</sup>のみが VIS-NIR 領域で測定精度が高いことがわかった。一般に NIR 領域ではイオンの直接的な吸収現象はおこらないため、Cl<sup>-</sup>を含めたイオン測定の問題メカニズムを明らかにする必要がある。

糖度やブリックス、カリウムなどでは VIS-NIR と IR 領域をそれぞれ用いた検量線よりも、VIS-NIR、IR をすべて用いた検量線のほうが測定精度は最も高くなった。NIR 領域と IR 領域では観測できる分子の基本音から倍音の吸収現象をもとにしており、これらをすべてりようすることで高精度な分析ができる可能性を示した。

SO<sub>4</sub><sup>3-</sup>および PO<sub>4</sub><sup>2-</sup>の検量線では、IR 領域単独のほうが測定精度は高くなった。これらのイオンについては IR 領域で測定が有効であることが分かった。

Na<sup>+</sup>については、いずれの領域を用いても相関係数は 0.3 以下で、その測定精度は低く、これらの分光法による測定は困難であると考えられた。

表 1. Vis-NIR および IR 分光スペクトルによる圧搾汁の検量線作成結果

|                               | VIS-NIR        |       | IR             |       | VIS-NIR and IR |       |
|-------------------------------|----------------|-------|----------------|-------|----------------|-------|
|                               | R <sup>2</sup> | SECV  | R <sup>2</sup> | SECV  | R <sup>2</sup> | SECV  |
| Pol                           | 0.95           | 0.31  | 0.96           | 0.27  | 0.98           | 0.21  |
| Brix                          | 9.96           | 0.25  | 0.94           | 0.32  | 0.98           | 0.20  |
| K <sup>+</sup>                | 0.46           | 518.8 | 0.54           | 479.5 | 0.63           | 428.8 |
| SO <sub>4</sub> <sup>2-</sup> | 0.23           | 374.0 | 0.94           | 103.2 | 0.93           | 109.7 |
| Cl <sup>-</sup>               | 0.72           | 195.2 | 0.44           | 274.7 | 0.48           | 265.5 |
| PO <sub>4</sub> <sup>3-</sup> | 0.27           | 276.2 | 0.85           | 125.6 | 0.77           | 154.2 |
| Mg <sup>2+</sup>              | 0.29           | 60.5  | 0.48           | 51.8  | 0.50           | 51.0  |
| Ca <sup>2+</sup>              | 0.29           | 72.3  | 0.56           | 57.2  | 0.61           | 54.0  |
| Na <sup>+</sup>               | 0.16           | 30.3  | 0.27           | 28.8  | 0.12           | 31.5  |

(4) シラップ、白下、蜜の検量線

シラップ、白下、蜜の各サンプルで作成した Brix および糖度の検量線の SEP はそれぞれ 1%以下で、IR と NIR では同程度の測定精度であることがわかった。また、IR の検量線は、NIR の検量線に比べて少ない波長で検量線を作成することができたため、IR の方が検量線のメンテナンスが容易であると考えられた。

図 3 に白下ブリックスの検量線作成結果を示す。1 番白下の Brix 検量線を作成した結果、VIS-NIR 領域での SEP は 0.54 ° Bx, IR 領域での SEP は 0.42 ° Bx となり、IR のほうが NIR よりも測定精度が高い傾向にあった。これは IR 装置では ATR 法が使用され、少量のサンプルでスペクトルを測定することができ、結晶の影響を受けなかったためだと考えられる。

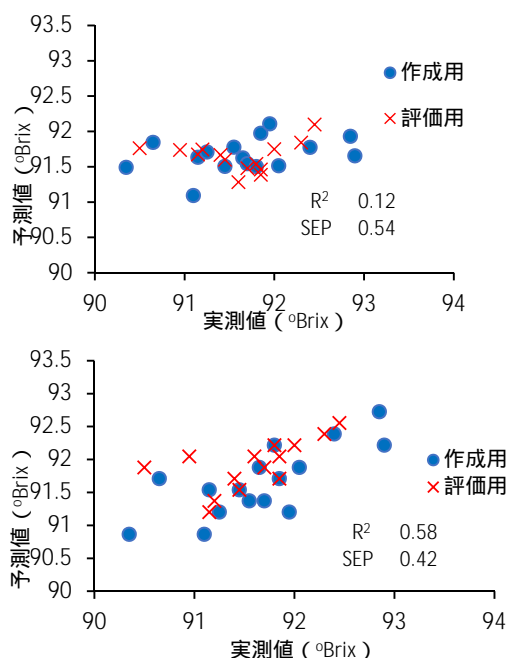


図 3. 白下ブリックスの検量線作成結果 (上図: VIS-NIR スペクトルを用いた検量線, 下図: IR スペクトルを用いた検量線)

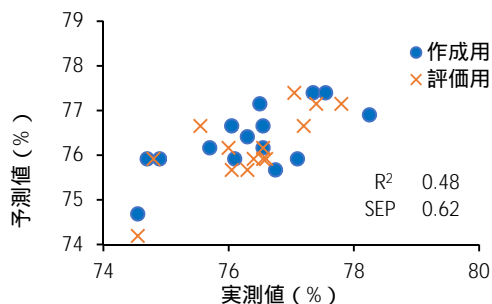


図 4. IR スペクトルを用いた白下糖度の検量線作成結果

図 4 に IR スペクトルを用いた白下糖度の検量線作成結果を示す。測定精度の指標である SEP は 0.62% と良好であり、VIS-NIR 領域の SEP (0.70%) よりも低い値を示した。糖度とブリックスを測定できると劣化や成熟の指標となる純糖率の算出が可能となる。今回の結果では、IR 領域でも NIR 領域と比較して高い測定精度を得ることができた。IR 領域は基本音の吸収が観測される領域であり、少ない波数での検量線が作成できる。また、1 mL 程度の少量サンプルの分析に向いていることから、サンプルや使用目的によって使い分けることで前処理を必要としない迅速な分析技術として利用できることが示唆された。

以上の結果より、今回サンプリングした製糖工程サンプルでは IR でも VIS-NIR に劣らない精度で検量線を作成することができ、工程管理に利用可能であることがわかった。さらに、2 つの分光領域を合わせてデータ解析することにより、測定精度の改善を測れる可能性が示唆された。分光法を利用することにより、原料に合わせた運転管理も可能になると考えられ、実用化と効果の実証が必要である。

#### 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 0 件)

〔学会発表〕(計 3 件)

1. E. Taira, M. Ueno, K. Watanabe, Y. Kawamitsu and K. Yoshimoto: Non-destructive measurement system for process control using combined spectroscopic data, Proceedings of 29th ISSCT Congress, Thailand  
発表年月日 2016 年 12 月 5 日  
発表場所 CHIANG MAI, THAI
2. S. Irei, E. Taira, M. Ueno: Development of rapid measurement system for sugar production process using near infrared spectroscopy, The 5th Asian near-infrared symposium and the 32th Japanese NIR forum  
発表年月日 2016 年 11 月 30 日  
発表場所 城山観光ホテル, 鹿児島県鹿児島市
3. 平良英三・城間力・田崎厚也・上野正実、可視 赤外分光法によるサトウキビ搾汁液の成分評価に関する基礎的研究、第 75 回農業食料工学会年次大会  
発表年月日 2016 年 5 月 29 日  
発表場所 京都大学, 京都府京都市

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況(計 0 件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
出願年月日：  
国内外の別：

取得状況(計 0 件)

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
取得年月日：  
国内外の別：

〔その他〕  
ホームページ等

#### 6. 研究組織

##### (1) 研究代表者

平良 英三 (TAIRA, Eizo )  
琉球大学・農学部・准教授  
研究者番号：20433097

##### (2) 研究分担者

なし ( )

研究者番号：

##### (3) 連携研究者

なし ( )

研究者番号：

##### (4) 研究協力者

なし ( )