

氏名	木村 優輝
学位の種類	博士（食産業学）
学位記番号	第50号
学位授与年月日	令和6年3月19日
学位授与の条件	学位規程第3条第4項該当
学位論文題目	近赤外分光法を用いた水産物品質の非破壊評価に関する研究
論文審査委員	主査 西川 正純 副査 白川 愛子、石川 伸一

論文の要旨

水産物の品質項目は、外部品質項目（見た目の品質）として、サイズ、色、キズの有無などがある。内部品質項目（見た目では分からない栄養成分や物性などの品質）として、脂質（脂乗り）、鮮度、ヒスタミン、香り、菌ごたえなどがある。これらの品質項目は、高品質であるほど価格が向上する項目もあれば、一定値以上が当然とされ、基準以下のものは規格外とされる場合がある。農業における生産物の品質検査法としての非破壊計測技術は、ミカン、モモなどの糖度や酸度の評価について、数十年前に普及し、糖度が示された商品が小売店に並んでいる状況である。一方、水産物においては、未だに市場でデータ化されているのは重量のみであり、品質保証は市場関係者の目利きに頼る傾向がある。また、水産物品質の非破壊計測技術としては、様々な魚類で脂質含量の計測技術開発の取り組みがなされているものの、導入事例が少なく、また、脂質以外の研究事例は少ない。

そこで本研究では、第1章において、サバ類脂質含量の非破壊評価について記述した。第2章は、事例の少ない脂質以外の品質評価として、サバ類の凍結・解凍状態の非破壊評価について記述した。第3章は、キタムラサキウニ生殖巣重量および生殖巣指数の非破壊評価を記述した。第4章は、同じ殻を持つ水産物として貝類を対象に、アカガイの歩留の非破壊評価について記述した。

キーワード: 近赤外分光法, Partial Least Squares 回帰分析, サバ類, キタムラサキウニ, アカガイ

第1章 近赤外分光法によるサバ類脂質含量の非破壊評価

サバ類は日本国内でも漁獲量の多い魚種の一つであり、まき網、定置網、底引き網、一本釣りといった漁法で獲られている。近年多くのブランドサバが誕生しているが、「八戸前沖さば」は、化学分析値を目安に認定を実施されてきた。しかし、ブランド品を購入する消費者がたまたま品質の劣る商品を手にした場合は、そのブランド名を見てももう二度と選ばない可能性がある。期待した品質に満たない所謂「ハズレ」の混入はブランド価値を損なうことから、天然魚であっても、ブランド価値維持のためには一定の品質を保證することが重要となる。そこで本章では、ブランド認定に最も重要な要素の一つである脂質含量を対象に、化学分析値に基づいて作製した非破壊計測技術について2種類の装置の特性と精度について検証した。

ハンディ型近赤外分光装置(PiPiTORO, 相馬光学社)を用いたサバ類脂質含量の評価について、測定条件を検討した後、サバ類144個体(マサバ124個体, ゴマサバ20個体)を試料とし、その脂質含量の化学分析値を目的変数、近赤外スペクトルに2次微分処理: サビツキー-ゴレイ法、平滑化データ点数11を行ったうえで説明変数とし、Partial Least Squares (PLS: 部分的最小二乗)回帰分析を行い、検量線を作成した。

検量線の精度はフィレの脂質含量を目的変数とした場合で相関係数0.95、標準誤差2.10、測定部位直下肉の脂質含量を目的変数とした場合で相関係数0.94、標準誤差2.48であった。いずれの検量線も、わずかに2つの主成分で目的変数の分散のうち約85%が説明されており、未知試料に適合しない現象であるオーバーフィットが起きにくいと考えられた。精度の高かったフィレ全体の検量線による脂質含量推定値と実測値の関係をみると、PiPiTOROで得られるサバ類背側中央部(B部)の近赤外スペクトルから、フィレ全体の脂質含量を精度よく推定

できることが分かった。また、PLS 回帰分析で得られた同検量線の回帰係数には、脂質の吸収帯である 930 nm 付近に大きな重みが認められたことから脂質の多寡をスペクトルの変化として捉え、そのスペクトル変化が検量線による脂質含量推定に大きく寄与していることを示している。サバ類の脂質含量情報の活用を考えた場合、「ある特定の部位に脂が乗っていることを示したい」という場面は想定しにくいことから、フィレ全体の脂質含量を推定できる技術は、現場に即した手法であると考えられた。

コンベア型近赤外分光装置(QG100, ニレコ社)を用いたサバ類脂質含量の評価について、サバ類 1240 個体(マサバ 671 個体, ゴマサバ 569 個体)について、脂質含量を測定し、これを目的変数、近赤外スペクトルに 2 次微分処理:サビツキー-ゴーレイ法、平滑化データ点数 21 を行っただけで説明変数とし、PLS 回帰分析を行い、検量線を作成した。

800~950 nm における主成分スコアプロットについて、「装置への投入向きの違い(サバの背側から投光する場合と、腹側から投光する場合)」という要素で読み解いてみると、両者が明らかに区別されていることが分かった。この結果を基に、背側から投光したデータのみで検量モデルを作成したところ、モデル評価時の相関係数は、背側と腹側の両方を用いた場合よりも、0.82 から 0.87、標準誤差は 2.4 から 2.1 と向上するとともに、最適主成分数は 5 から 2 に減少し、より堅牢で良好な検量モデルとなった。このように、「魚の色や形が背側と腹側で違うから、スペクトルに影響を与えるかもしれない」という仮説を基に、装置への投入向きの要素をデータとして残しておいたことが精度向上に結びついた。比較的多くのデータを蓄積した上で解析を行う必要がある近赤外分光法においては、データ取得の際には、結果として使わない場合もあるが、できるだけ多くの周辺データを取得・整理しておくことが重要であることが分かった。

本結果をもとに、将来、水産物品質の非破壊計測技術が導入された巨大な施設で、サバ類をはじめとする様々な魚種が自動で選別されることが期待される。

第2章 近赤外スペクトルによるサバ類の凍結・解凍状態の非破壊評価

第1章では、水産物の非破壊計測技術として、最も多くの研究対象とされている脂質含量について、ハンディ型とコンベア型の2種類の装置での作成した検量線による推定精度と、装置別の特性について検証した。本章では、同じサバ類を対象に、定量的な推定ではなく、サバ類の凍結・半解凍・解凍状態を判定する定性的な評価について検討した。

サバ類 123 個体(マサバ 100 個体, ゴマサバ 23 個体)を用いて、凍結・半解凍・解凍の3つの状態を試験区として設定した。同一個体で、各試験区でのスペクトルを測定した。近赤外スペクトルを説明変数とし、主成分分析に供した。主成分スコアを用いて、設定した凍結、半解凍、解凍の3試験区をクラスとし線形判別分析を行った。

その結果、960 nm の水のピークで、試験区の違いによる顕著な吸収の変化が認められた。凍結区では 960 nm にほとんど吸収が見られず、半解凍区、解凍区の順に吸収が大きくなっていることから、この変化がさば類の解凍過程で生じる魚体内における氷から水への状態変化を捉えていると考えられた。線形判別分析の試験区ごとの判別正答率は、凍結区で 97.6 %、半解凍区で 85.4 %、解凍区で 100 %であった。凍結区の 1 個体を半解凍区、半解凍区の 6 個体を解凍区と誤判別していた。スペクトル形状が、凍結区と他の 2 区で大きく異なるのに対して、半解凍区と解凍区の違いはそれほど大きくないことと整合している。また、誤判別が凍結区の一部を半解凍区、半解凍区の一部を解凍区といずれも実際よりも解凍が進んだクラスへの誤判別であったことから、それらが試験区の中でより解凍が進んだ試料であった可能性や、モデルが解凍を過大評価している可能性が考えられた。

第1主成分と第2主成分のスコアプロットは、試験区ごとにまとまってプロットされるとともに、主に第2主成分軸方向に試験区ごとに分かれていた。半解凍区と解凍区、また凍結区と半解凍区で一部重なり合う試料が存在した。本研究における解凍条件で厳密に解凍状態を制御することは困難であったことから、試料内部の水と氷の存在比などの状態が同程度の試料が試験区間で混在していた可能性が高い。このことから、上述の誤判別も試料の解凍状態に起因する可能性が高いと考えられた。

第1~第3主成分ローディングのうち、第2主成分ローディングにおいて、水の吸収帯である 960 nm に正のピークが認められ、試料中の水の量の違いを反映していると考えられた。第1主成分のローディングは、主に個体差などによるベースラインの変動のようなスペクトルの全体的な変動を反映した結果であり、第3主成分ローディングの脂質の吸収帯である 930 nm 付近に負のピークが認められ、試料中の脂質量の差を反映していると考えられた。第2主成分までのモデルと第3主成分までのモデルで判別精度に大きな差はなかった。また、成分の定量評価では、2次微分処理を行った場合、スペクトルのベースライン変動の軽減やピーク分離の改善などの効果に

より、良好なモデルが得られる場合が多いが、本試験の結果では、むしろ2次微分処理を行っていない吸光度スペクトルを用いた方が凍結・解凍状態の判別精度が高かった。試料の解凍状態の違いが、上述の第1主成分に表されるスペクトルの全体的な変動を与える要因の1つであった可能性があり、2次微分処理によりそれが除かれてしまったのかもしれない。個体数を増加させた場合にも同様の傾向であるか、精度が保たれるか、今後検証する必要がある。また、本研究は3試験区のみでの判定であったが、同一個体での凍結から解凍までに至る過程を連続的に測定した温度やスペクトルデータを取得、解析し、自動処理装置が要求する最適解凍状態が得られるか検討する必要がある。また、水産加工現場での実用につなげるためには、解凍の程度と歩留まりの関係についても定量的データを取得し、明らかにする必要がある。今後、水産加工現場との実証的な取り組みを検討したい。

第3章 近赤外分光法を用いたキタムラサキウニ生殖巣重量および生殖巣指数の非破壊評価

第1章、第2章では、水産物の非破壊評価の主な対象となる魚類について検討した。本章では、殻を持つ水産物としてウニ類を対象とした。

試料はキタムラサキウニ 216 個体を用いた。殻径は 44.1~74.4 mm、全重量は 47.6~155.4 g であった。生殖巣重量は 0.0~29.9 g、生殖巣指数は 0.0~28.8g であった。生殖巣指数は生殖巣重量を全重量で除して 100 を乗じた値から算出した。目的変数は生殖巣重量と生殖巣指数とした。コンベア型近赤外分光装置 (Imes10, ニレコ社) を用いて取得した近赤外スペクトルを説明変数とし、PLS 回帰分析を行い、検量線を作成した。

検量線の精度は、2次微分スペクトルを用いた場合、最適因子数 4 と少なかった。この因子数の低減には、上述の2次微分処理の効果が寄与していると考えられた。2次微分スペクトルを用いた検量線評価時の生殖巣重量の実測値と予測値の関係では、正の相関が認められ、スペクトルから生殖巣重量を予測できることが示唆された。これは、キタムラサキウニ中の脂質の多寡によるスペクトルの変動が反映されているものと示唆された。それが生殖巣の大きさ(重量)に依存することにより、スペクトルに基づく生殖巣重量の予測が可能になったと推察された。生殖巣指数評価時の実測値と予測値の関係では、正の相関が認められ、スペクトルから生殖巣指数も予測できることが示唆されたが、予測値が大きく外れる個体がいくつか認められた。これは、生殖巣指数が生殖巣以外の殻内容物の重量を含む全重量に対する指標であるために、生殖巣の大きさ(脂質の多寡)とは関係のない誤差要因が影響し、一部個体の予測値が大きく外れたものと推察された。

本手法を用いた非破壊評価システムの構築は、天然キタムラサキウニにおいて、身入りが良好で高品質な個体の選別に用いられることで生産性向上や漁業者の収入増加に繋がる。身入りの悪い個体は、出荷せずに海へ放流するあるいは養殖に向けた等の新たな判断を可能にすることで資源の有効利用に繋がると考えられた

第4章 近赤外分光法を用いたアカガイの歩留の非破壊評価

第3章では、殻を持つ水産物であるウニ類についての非破壊評価手法について検討した。本章では、同じく殻を持つ水産物のうち、軟体部にヘムタンパク質由来の色素を持つ貝類であるアカガイを対象とした。

試料は、アカガイ 189 個体を用い、殻長は 56.0~93.1 mm、殻高は、47.4~69.9 mm、殻幅は 41.7~62.7 mm、全重量は 80.0~202.6 g、歩留は 9.0~26.7 % であった。むき身重量を全重量で除した後、100 を乗じたものを歩留として算出し、目的変数とした。コンベア型近赤外分光装置 (Imes10, ニレコ社) を用いて取得した近赤外スペクトルを説明変数とし、PLS 回帰分析を行い、検量線を作成した。

コンベア型装置で取得した全波長範囲 650~1030 nm の吸光度スペクトルでは、760 nm 前後および 930 nm 前後にブロードな吸収ピークが観察された。2次微分スペクトルでは、2次微分処理によりピークは下に凸になり分離が改善された。このうち、760 nm および 930 nm 付近では歩留が高いほど吸収が大きかった。930 nm 付近は脂質の脂肪酸の CH 基に帰属される吸収帯であることが知られており、前章でキタムラサキウニ生殖巣の非破壊評価に有用であることを示した。しかし、アカガイの脂質含量は、最も脂質含量の高い個体で 1% に満たないことから、930 nm 付近の吸収が脂質含量の差を示しているとは考えにくい。760 nm 付近は還元ヘモグロビン、930 nm 付近は酸化ヘモグロビンの吸収帯であることが報告されている。これらのことから、2次微分スペクトルに特徴的な吸収ピークは、ヘムタンパク質に由来するものと考えられた。

吸光度スペクトルまたは2次微分スペクトルを用いた歩留の検量モデルの作成・評価の結果のうち、モデル評価時の相関係数は、吸光度スペクトルを用いた場合で 0.79、2次微分スペクトルを用いた場合で 0.82 であった。モデル評価時の標準誤差は、吸光度スペクトルを用いた場合で 2.3 %、2次微分スペクトルを用いた場合で 2.1 % であった。最適主成分数は、吸光度スペクトルを用いた場合が 6 であるのに対し、2次微分スペクトルを用いた場

合は4と少なかった。モデル評価時の歩留の実測値と予測値の関係には、正の相関が認められ、スペクトルから歩留を予測できることが示唆された。PLS回帰分析で得られた第1ローディングには930 nm付近、第2ローディングには760 nm付近にピークが認められた。第1主成分は、酸化ヘムタンパク質によるスペクトルの変動を示唆していた。第2主成分は、還元ヘムタンパク質の多寡によるスペクトルの変動を示唆していた。

近赤外分光法を用いた本手法は、アカガイの歩留を非破壊・非接触的に評価できることを示唆し、これは殻内のヘムタンパク質の観測に基づくと考えられた。水産物においてヘムタンパク質の近赤外吸収スペクトルを活用して歩留の推定ができた報告はこれまでに無く、興味深い。今後、アカガイの身色や殻を有する他の水産物の品質の評価技術としての応用可能性について追究していきたい。

本研究による水産物品質の非破壊計測技術開発の試みは、ユーザー側の内部品質の管理のみならず、消費者側へ情報付与した水産物の提供による訴求力向上・付加価値向上に資するものである。しかし、非破壊計測には誤差が一定の生じることを考慮し、供給側の品質と需要する側の求める品質基準を十分把握しておくことが極めて重要である。また、このような新たな取り組みは、現場やメーカー、大学や公的試験研究機関などの間で技術の特性をよく理解し、相互間の理解と協力を心掛けることが望ましい。本研究がその一助となることを期待し、今後も実用化を目指した研究を進めていきたい。

審査結果の要旨

本論文は、水産物の品質管理がデータ化されにくい状況や、品質保証を経験や目利きに頼る傾向があることを課題として抽出し、非破壊計測技術を用いて、様々な水産物の評価手法について研究を取り纏めた。

論文構成としては、序章、第1章 近赤外分光法によるサバ類脂質含量の非破壊評価、第2章 近赤外スペクトルによるサバ類の凍結・解凍状態の非破壊評価、第3章 近赤外分光法によるキタムラサキウニ生殖巣の非破壊評価、第4章 近赤外分光法によるアカガイの歩留の非破壊評価、終章からなる。

第1章では、サバ類を対象に2種類の装置を用いて脂質含量の評価モデルを構築した。測定条件の検討を十分行い、脂質含量・水分量に起因する吸収がモデル構築に寄与していることを示した。ハンディ型装置は現場での目利きの代用、ブランド認定に活用でき、コンベア型装置は、大量処理が可能であり、青果物のように全数またはロットの品質管理に活用できることを提案した。コンベア型装置は、背側を光源に向けて投光することで、精度が向上することを示した。

第2章では、水産加工の原料の多くは凍結原料を解凍して使用されるが解凍程度を評価する手法が無いことに着目し、サバ類の凍結～解凍状態の定性的な評価モデルを構築した。主成分分析のスコアを用いた線形判別分析により、主に水の吸収ピークを状態の変化としてモデル化し、解凍程度を判定していることを明らかにし、原料の解凍工程の効率化やフィレマシンの歩留向上に活用できることを提案した。

第3章では、研究事例の少ない魚類以外の対象として、殻を持つキタムラサキウニを選定し、可食部である生殖巣の非破壊評価モデルを構築した。主成分分析と PLS 回帰分析を用いて、脂質の多寡とサイズの変動をモデル化することで可食部の生殖巣の評価が可能となることを明らかにし、魚価向上、蓄養や放流といった新たな取り組みに活用できることを提案した。

第4章では、貝類であるアカガイの全重量に対するむき身の割合(歩留)の非破壊評価モデルを構築した。アカガイの特徴的な赤色であるヘモグロビン系たんぱく質の吸収を捉え、モデル化することで、歩留の評価が可能となった。これにより、ハズレの無い安定した品質で出荷し、閉上赤貝のブランド存続に活用できることを提案した。

終章では、技術の普及に関する課題や解決策を提起し、今後の研究方針を示した。

以上のことから、本研究による技術は、ユーザー側の内部品質の管理のみならず、消費者側へ情報付与した水産物の提供による訴求力向上・付加価値向上に資することが示された。

審査会においては、テーマの適切性、研究方法の適切性、既存研究との関連の適切性、新規性・有効性、結論の論理性、学会誌等での公表、研究倫理の遵守などが議論され、博士論文として適格であると判断した。

よって本論文は、博士(食産業学)の学位を授与するに十分値するものと認める。

