

氏名（本籍）	原 理紗		
学位の種類	博 士（ 農学 ）		
学位記番号	博 甲 第 10035 号		
学位授与年月日	令和 3 年 3 月 25 日		
学位授与の要件	学位規則第 4 条第 1 項該当		
審査学術院	理工情報生命学術院		
学位論文題目	Nondestructive Analysis of Carotenoids in Fruits and Vegetables Using Raman Spectroscopy (ラマン分光法による青果物中カロテノイドの非破壊分析)		
主査	筑波大学准教授	博士（農学）	野口 良造
副査	筑波大学准教授	博士（農学）	トファエル アハメド
副査	筑波大学教授	博士（農学）	北川 豊
副査	筑波大学教授	博士（工学）	市川 創作
副査	農研機構主任研究員	博士（農学）	源川 拓磨

## 論 文 の 要 旨

消費者の健康志向の高まりから、青果物に含まれる機能性成分が注目されている。我が国では、2015 年から食品の機能性表示制度が開始されたことから、青果物の機能性成分量を簡易的に測定できる現場分析用のセンサが求められている。複数の青果物に含まれる代表的な機能性成分として、トマトのリコピンやハウレンソウのルテイン等のカロテノイド類がある。カロテノイドは青果物中に数 ppm 程度しか含まれず、直接測定することは困難である。しかしながら、散乱光を用いる分析法であるラマン分光法における共鳴ラマン現象を利用すると、カロテノイド由来のシグナルを増強することができる。このように、ラマン分光法はカロテノイドの非破壊測定に優れた分析法であるが、農業現場から求められる小型かつ安価で測定が迅速なカロテノイドセンサの開発には課題が残されている。本論文は、ラマン分光法を青果物に含まれるカロテノイドの非破壊測定に用いて、現場分析用のカロテノイドセンサの開発に向けた、測定および解析手法の確立を目的としたものである。

著者は第一章において、青果物の品質評価に関する事例調査やラマン分光計の文献調査を通じて、本論文の研究背景と研究目的を述べるとともに、第二章において、迅速な濃度分析のためのスペクトルの測定および解析方法について検討し、新規手法 Product of Mean Intensity Ratio (以下「PMIR」)を提案した。提案された PMIR は、高濃度サンプルのスペクトルにのみピークが出現するように、短い照射時間で測定を行い、ピーク部分とベースライン部分の比から高濃度か否かを判別する手法であり、迅速な濃度判別分析を行うことができる。カロテノイド濃度の異なる野菜ジュース試料を用いて、PMIR の適用可能性を確かめた結果、従来法と比較して測定時間が約 5 分の 1、判別精度 93%の結果を得た。

著者は第三章において、装置設計の観点から、分光計では波数分解能が低く検出器のピクセル数が少ないもののほど小型で安価な装置開発が可能となり、必要最低限の分光性能の導出が必要なことを示した。さらに、波数分解能とピクセル数を少なくしたスペクトルをシミュレーションで合成し、定量および判別分析の精度を検証した。その結果、高 SN スペクトルでの定量分析では、波数分解能およびピクセル数を、8–11  $\text{cm}^{-1}$  および 512 ピクセルから、64  $\text{cm}^{-1}$  および 64 ピクセルまで低くしても、同じ精度が得られることが示唆された。一方で、迅速測定によるスペクトルの判別分析では、64  $\text{cm}^{-1}$  および 64 ピクセルまで低くしても 90%の判別精度が得られることが示唆された。

著者は第四章において、ラマン分光法において励起波長は、共鳴ラマン現象の強度や蛍光強度、ラマン散乱

光の再吸収の有無に関わり、測定精度を大きく左右する要因であることを述べた。さらに、ラマン分光計で用いられる代表的な 532 nm、785 nm、1,064 nm の励起波長を用いてトマトを測定し、定量分析の精度を比較して、最適な励起波長を特定した。その結果、532 nm では最も強い共鳴ラマン効果が得られるが、ラマン散乱光がクロロフィルにより再吸収されるため、ラマンピークとカロテノイド濃度が比例しなくなることが示され、近赤外領域の励起波長 (785 nm、1,064 nm) が推奨されることが明らかとなった。

著者は第五章および第六章において、それぞれトマトとホウレンソウについて、第二章から第四章で得た知見をもとに、カロテノイドの非破壊分析を試みた。その結果、トマトでは 785 nm および 1,064 nm、ホウレンソウでは 1,064 nm の励起波長によって、従来法の 5 分の 1 未満の照射時間でカロテノイド濃度の高い個体を 94%以上の的中率で判別できた。また、1,064 nm 励起のスペクトルを用いたシミュレーションにより、波数分解能およびピクセル数を  $128 \text{ cm}^{-1}$ 、16 ピクセルまで低くしても、トマトでは 90%、ホウレンソウでは 83%の判別精度が得られることが示された。

以上を総括すると、本論文では、青果物中のカロテノイドの非破壊分析のために、迅速分析に向けたスペクトルの測定および解析方法、小型・低価格化のための分光性能、最適な励起波長についての知見が整理され、ラマン分光法による青果物の現場分析用センサ開発の実現可能性が示された。

## 審 査 の 要 旨

本論文は、青果物に含まれるカロテノイドの非破壊分析法として、ラマン分光法の実用化に向けた測定および解析手法を対象とした。迅速な濃度分析のためのスペクトルの測定および解析の新規手法の提案や、小型・低価格化のための分光性能についての検討、最適な励起波長についての知見の整理を行い、ラマン分光法による青果物の現場分析用センサ開発の実現可能性を示した。これらの成果は、農学分野の学術的価値に大きく貢献した。以上から、本論文は、高い学術的価値を有し、博士論文としてふさわしい内容であると判断される。

令和 3 年 1 月 25 日、学位論文審査委員会において、審査委員全員出席のもとに論文の審査及び最終試験を行い、本論文について著者に説明を求め、関連事項について質疑応答を行った。その結果、審査委員全員によって合格と判定された。

よって、著者は博士（農学）の学位を受けるのに十分な資格を有するものとして認める。