九州大学学術情報リポジトリ
Kyushu University Institutional Repository

Study on the application of graphite nanomaterials for laser desorption/ionization-mass spectrometry in food analysis

リュウ, タクヒ

https://hdl.handle.net/2324/7443529

出版情報：Kyushu University, 2025, 博士（農学）, 課程博士
バージョン：
権利関係：Public access to the fulltext file is restricted for unavoidable reason (3)

KYUSHU UNIVERSITY

氏　　名	劉　卓非（リュウ　タクヒ）
論 文 名	Study on the application of graphite nanomaterials for laser desorption/ionization-mass spectrometry in food analysis （食品分析のためのレーザー脱離イオン化−質量分析法におけるグラファイトナノ材料の応用に関する研究）
論文調査委員	主　査　　九州大学　　准教授　　田中　充 副　査　　九州大学　　教授　　松井 利郎 副　査　　九州大学　　教授　　廣瀬 直人

論 文 審 査 の 結 果 の 要 旨

本論文は、マトリックス剤を使用しない新たなレーザー脱離イオン化−質量分析（LDI-MS）法を提案し、これを食品分析法へと展開しようとしたものである。マトリックス支援 LDI-MS（MALDI-MS）法ではマトリックス剤等に由来するバックグラウンドノイズとの重複により低分子領域（主に、500 Da 以下）における目的物質の検出が困難とされる。そこで、本研究では分子構造組成の均一性（単一元素結晶）と高い導電性、さらにはレーザー照射光波長（355 nm）を吸収領域に持つグラファイトナノ材料に着目し､シート材ならびにナノ粒子のイオン化特性を検討している。

まず、ポリイミドフィルムを焼結して作製したグラファイトシートを用いて、イオン化特性を評価している。作製したシート材は凹凸構造およびレーザー光エネルギーを即座に熱エネルギーに変換できる基材特性を有していることを明らかにしている。ポリエチレングリコール（100–10,000 Da）をスポットしたシート材を用いて MS 検出領域を検討し､正/負イオンモードともに 2,000 Da までの物質を検出できることを示している。さらに、アミノ酸、糖、脂肪酸等をスポット（500 pmol/0.5 μL）したシート材を用いてイオン化特性を検討し、本シート材によるイオン化はレーザー照射によって気化した分子のプロトン親和性や気相酸性度に依存していることを明らかにしている。また、市販しょうゆをスポットしたシート材では、MALDI-MS 法と比較して約 10 倍のピーク数の増大が認められたことから、本シート材を用いると大幅に検出力が向上することを突き止めている。

次いで、食品素材中の成分分布情報を可視化評価できる MS イメージング法へのグラファイトナノ粒子の適用を試み、従来法（MALDI-MS イメージング法）との比較を行っている。グラファイトカーボンブラック（GCB）粒子（平均粒子径：24 nm）を 50%の 2-プロパノール水溶液に分散させ（5 mg/mL）、LED スキャナによる輝度値を指標としてバナナ切片に GCB 粒子を均一噴霧させたところ、従来法では検出できなかった低分子成分の MS 検出に成功し、アミノ酸や糖類などの栄養成分は可食部、フェノール酸類は果皮に偏在していることを可視化実証するに至っている。

以上要するに、本研究は導電性結晶であるグラファイトナノ材料がイオン化支援材として適用可能であり、簡便性、迅速性、網羅性を兼備した LDI-MS 法の基盤技術として展開できることを明示したものである。また、本法は低分子物質の MS 検出に威力を発揮するイオン化支援法であることから、食品分析学分野ならびに分析化学分野の発展に寄与する価値ある業績と認める。

よって、本研究者は博士（農学）の学位を得る資格を有するものと認める。