HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	イチゴ果実の品質評価に資するMALDI-TOF MSI技術の改良および応用に関する研究
Author(s)	藤木, 卓巳
Description	この博士論文の全文は利用可能日以降に公開されます。利用可能日以前の閲覧方法は https://www.lib.hokudai.ac.jp/dissertations/copy-guides/ をご参照ください。
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(農学)
Dissertation Number	甲第16765号
Issue Date	2026-03-25
DOI	https://doi.org/10.14943/doctoral.k16765
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/99610
Type	doctoral thesis
File Information	FUJIKI_Takumi_review.pdf, 審査の要旨 https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/

Hokkaido University Collection of Scholarly and Academic Papers : HUSCAP

学 位 論 文 審 査 の 要 旨

博士の専攻分野の名称　博　士（農学）　　氏名　藤　木　卓　巳

審査担当者	主　査	特任教授	鈴　木　卓
	副　査	教　授	志　村　華　子
	副　査	教　授	松　浦　英　幸
	副　査	講　師	実　山　豊

学 位 論 文 題 名

イチゴ果実の品質評価に資する MALDI-TOF MSI 技術の改良
および応用に関する研究

本論文は、図 44、表 12，引用文献 97 を含む総ページ数 112 の和文論文であり、他に参考論文 2 編が添えられている。

イチゴ果実の食味に影響を及ぼす要因として、糖および有機酸の含量および比率（糖酸比）が挙げられ、それらの果実内分布も食味に影響することが報告されている。しかし、高速液体クロマトグラフィー（HPLC）や分光法などの従来の分析方法では、成分分布を詳細に評価することができない。そこで本研究では、組織切片に含まれる様々な化合物の空間分布を、数 μm の分解能で視覚化できるマトリクス支援レーザー脱離イオン化–飛行時間型質量分析イメージング（MALDI-TOF MSI）を用いて果実内成分分布を評価し、高品質果実の生産に資する技術開発に応用しようと考えた 。まず、従来の MALDI-TOF MSI が有する課題を解決し、成分分布の評価に適した方法の確立を目指した。次に、確立した方法（MALDI-TOF q-MSI）に基づき、イチゴ果実の成分分布における品種間差、果実成熟に伴う変動、並びに摘葉処理が成分分布に及ぼす影響を調査し、果実品質評価におけるその有用性を検証した。結果の概要は、以下のとおりである。

１．MALDI-TOF MSI の改良

1）MALDI-TOF MS におけるマトリクスの種類（7 種）、並びに分析条件（正および負イオンモード）を組合せて検討した結果、DAN をマトリクスとして負イオンモードで分析すると、イチゴ果実に含まれる主要な成分（ヘキソース、スクロース、リンゴ酸、クエン酸およびアスコルビン酸）の一斉分析が可能であることを見出した。

2）MSI で使用した切片と連続する切片を HPLC などで定量分析し、そのデータを組合せる定量的 MSI（q-MSI）について検討した結果、糖および有機酸の果実内分布が絶対定量的に視覚化できたほか、計算値である糖酸比（総糖含量/総有機酸含量）の描画も可能になった。さらに、一部のフラボノイド化合物についても、その果実内分布を q-MSI で可視化することに成功した。

3）イチゴ果実中に低濃度で存在する植物ホルモンで、従来 MALDI-TOF MS で検出するこ

とが困難であったアブシジン酸（ABA）を、組織上化学誘導体化法を用いて検出することに成功した。誘導体化およびマトリクス噴霧条件の検討により、高感度で ABA が検出可能となり、イチゴ果実内 ABA 分布の可視化に初めて成功した。

2．イチゴ果実の品質評価における MALDI TOF q-MSI の有用性の検証

1）赤熟果における糖および有機酸分布を品種間で比較した結果、品種を問わずヘキソースは髄部よりも皮層部で、クエン酸は皮層部よりも髄部で高かった。一方、スクロース、リンゴ酸およびアスコルビン酸の分布には、顕著な品種間差が認められた。この場合、部位（髄部、皮層上部、皮層中部および皮層下部）ごとの濃度差を統計解析し、その有意性を検定できたのは q-MSI の絶対定量性に依拠しており、この手法が果実の品質評価に役立つことが実証された。

2）果実成熟に伴う糖および有機酸分布の推移を調査した結果、赤熟果のヘキソースおよびクエン酸分布様式は年次および栽培環境を問わずイチゴ果実に共通する一般的特徴であること、並びにこの部位間差が生じる果実成熟段階は，ヘキソースが白熟果以前，クエン酸が緑熟果または桃熟果以前であることが明らかになった。一方、それ以外の成分については変動のばらつきが大きく、品種間差が認められることが確認された。従って、果実成熟に伴う成分分布の動態を捉える手法として、この手法の有用性が実証された。

3）摘葉処理が糖および有機酸の果実内分布に及ぼす影響を HPLC および MALDI-TOF q-MSI を用いて調査し、無摘葉（対照）のそれと比較した。HPLC 分析の結果、総糖含量は摘葉区で低く、クエン酸含量は摘葉区で高いことが明らかになった。この場合、MALDI-TOF q-MSI の結果から、これらの成分の果実内分布は変化していないことが明らかになった。

以上のとおり、本研究では MALDI-TOF MSI 技術を様々な面から改良し、イチゴ果実の品質評価に応用可能であることを実証した。特に、MSI 画像に定量性を付与した q-MSI は、これまでできなかった試料間比較を容易にし、MALDI-TOF MSI の応用の幅を飛躍的に拡大した。従って、本研究で得られた成果は、イチゴ果実だけでなく、青果物全体の品質評価に資するものと考えられる。

よって、審査員一同は、藤木卓巳が博士（農学）の学位を受けるのに十分な資格を有するものと認めた。