氏 名 Fadwa Damak

学 位 の 種 類 博士 (環境制御学)

学位記番号博甲第9305号

学位授与年月 令和元年9月25日

学位授与の要件 学位規則 第4条第1項該当(昭和28年4月1日文部省令第9号)

審 査 組 織 グローバル教育院

学位論文題目 Geographical Traceability of Tunisian Olive Oils Based on the Elemental and Stable Isotope Composition

(元素組成と安定同位体組成に基づくチュニジア産オリーブオイルの地理的トレーサビリティ)

(職名) (学位) (氏名) 主査 筑波大学教授 博士 (農学) 礒田 博子 副査 筑波大学教授 農学博士 田村 憲司 副杳 筑波大学特命教授 工学博士 中嶋 光敏

副查 筑波大学教授(協働大学院) 博士(農学) 小林 正智

# 論文の要旨

著者の研究は、チュニジア産オリーブオイルの産地の特定化、トレーサビリティの手法を確立することを目的としたものである。著者は、他の農作物についてその元素組成の違いから産地の特定化ができるという先行研究を受けて、オリーブオイルについてチュニジア産のものと他国産のものをその元素組成から産地の特定化を可能にした。さらに、その因果関係が明らかになっていないことから、オリーブオイルに影響を及ぼす因子について、特にオリーブの生育している土壌中の元素組成および安定同位体組成に着目し、その因果関係について論究した。

近年、特定の地域から生産される多くの食品を保護、促進、および評価するために EU で広く適用されている強力なマーケティングツールとして、地理的なトレーサビリティ指標が用いられている。しかしながら、多くの製品について産地偽装や不正ブレンド等により品質の保証が危うくなっており、チュニジア産のオリーブオイルについても同様の問題が多く見られるようになってきている。著者の研究は、チュニジア全土より採取したオリーブオイル及び土壌試料中のごく微量元素を含む元素組成を ICP-MS 等を用いて、微量定量分析を行い、チュニジア産のオリーブオイル及び生育地点の土壌中の元素組成を明らかにした。

著者は、まず、オリーブオイル中の元素組成を定量化する最適条件をいくつかの方法を比較することによって導き出した。まず、抽出法を検討した。超音波分散抽出法、マイクロ波分解抽出法、超音波及び

マイクロ波を組み合わせた抽出法を比較し、両者を組み合わせた抽出法が最も検出限界を低くする方法であることを証明した。

次に著者は、XRFとLA-ICP-MS法によって定量したオリーブオイルの元素組成と土壌組成との関連性を調べ、地球化学的因子との関連性について重回帰分析により明らかにし、さらにどの元素の組み合わせに支配されているかについて主成分分析により解析を行った。その結果、チュニジアの地理的な違いが元素組成および安定同位体組成と密接な関係があることを証明した。さらに、土壌中のごく微量元素間の関係性について明らかにし、元素間の挙動の一致性について論究した。

さらに、著者は、チュニジア産のオリーブオイルの地域間の区別を再確認する目的で、主要 11 産地からのチュニジアオリーブオイルにおける多元素の全土データベースの作成をチュニジアで初めて行った。また、オリーブオイルの元素組成とその環境との関係性を明らかにするために、上記のデータベースを元に、これらの 11 地域の地球化学的および地形学的特徴づけを行った。その結果、地球化学的元素(約40 の元素)といくつかの地球化学的プロセスを支配している地形学的特徴との間に高い相関を示した。そして、表層地質が一致している、または類似している地域は、土壌化学特性が一致した傾向を示した。11 の地域のうち、2 つの地域だけが異なる土壌特性を示した。著者は、オリーブオイルの元素組成解析についても同じ傾向を示すことを明らかにした。この事実は、区別され得る地域において同様の正の要因、特に表層地質に支配されている因子が優勢である場合の、多元素プロファイリングに基づくトレーサビリティの手法開発の限界性を示している。さらに、著者は、土壌中の可給態元素組成とオリーブオイルの元素組成との間の関係について、Ti、Fe、Ni および Ba が有意な正の相関関係を示すことを明らかにした。これは、オリーブオイルとその環境との間の有効性、および強力かつ十分なトレーサビリティの手法を確立したことを示しており、著者は、初めて、環境因子との因果関係について証明した上での産地特定技術であることを明らかにした。

最後に著者は、同じ 11 地域からのオリーブオイルの同位体 MS 技術を用いて C と O の同位体組成を明らかにし、国内および国際レベルのためのトレーサビリティツールとして同位体と元素プロファイリングの有効性を比較検討した。 チュニジアのオリーブオイルの同位体組成の特徴を決定する主な気候的および地理的要因を特定し、それら同位体組成の将来の予測を可能にする重要な相関関係を明らかにした。チュニジア国内のオリーブオイルの産地特定に関しては、どちらの同位体も、地域間で気候的因子に影響を受けており同様の傾向を示すことを明らかにした。

# 審査の要旨

#### 【批評】

著者は、北から南、そして東から西にかけての広い範囲の地理的地域から全チュニジアのオリーブオイルの元素および同位体組成の特徴づけを初めて明らかにし、科学文献の中で最も広範な、チュニジア国のデータベースを構築した。このデータベース化は、産地特定化にとって欠くことができないもので、その意義は非常に大きいと判断された。また、結論として、チュニジア産とイタリア産のオリーブオイルを元素組成の解析から、明確に識別することができたこと等により、著者が開発した手法の有効性が位置づけられるものとなった。

以上により、著者の研究は、生物地球化学的分野において大きく貢献する研究であると判断された。

### 【最終試験の結果】

令和元年6月10日、専門委員会において、専門委員会委員の全員出席のもと、著者に論文について説

明を求め、関連事項について質疑応答を行った。その結果、専門委員会委員全員によって、合格と判定された。

### 【結論】

上記の学位論文審査ならびに最終試験の結果に基づき、著者は博士(環境制御学)の学位を受けるのに十分な資格を有するものと認める。