

〒240-8501 横浜市保土ヶ谷区常盤台 79-1

コーヒー粕の多糖類から 2 nm 幅の ホロセルロースナノファイバーを 得ることに成功

～食品添加剤等への応用が期待されるアップサイクル技術～

本研究のポイント

- コーヒー粕の主要な多糖類であるホロセルロース（セルロース + ヘミセルロース）から、高圧下で機械的にナノ化を行った。
- コーヒー粕から 50%以上の収率で、食品添加物としての利用に適した 2 nm 幅の高度に微細化されたホロセルロースナノファイバーが得られた。
- 凍結乾燥させたホロセルロースナノファイバーは、ハンドシェイクのみで水への部分的な再分散性が確認され、輸送コストの削減が期待される。

【研究概要】

横浜国立大学 大学院工学研究院の川村 出 教授、大学院環境情報研究院の金井 典子 助教らの研究グループは、コーヒー粕に豊富に含まれる多糖類のセルロースとヘミセルロースが両方含まれた状態（ホロセルロース）から、高圧下物理的衝撃を使って微細化することで、コーヒー粕から 52%の高収率で 2-3 nm 繊維幅のホロセルロースナノファイバーを分離しました。

本研究成果は、高分子多糖類の専門誌である *Carbohydrate Polymer Technologies and Applications* に受理され、オンライン版が 2024 年 6 月 25 日に公表されました。

本研究は、JST 共創の場形成支援プログラム(COI-NEXT) リスペクトでつながる「共生アップサイクル社会」共創拠点（JPMJPF2111）および科研費の支援により実施されました。

<発表雑誌>

雑誌名: *Carbohydrate Polymer Technologies and Applications* 2024 年 6 月 25 日オンライン版

DOI: 10.1016/j.carpta.2024.100539 (オープンアクセス)

論文題目: Mannan-rich holocellulose nanofibers mechanically isolated from spent coffee grounds: structure and properties (コーヒー粕から機械的に分離したマンナンを豊富に含むホロセルロースナノファイバーの構造と特性)

論文著者: Noriko Kanai, Kohei Yamada, Chika Sumida, Miyu Tanzawa, Yuto Ito, Toshiki Saito, Risa Kimura, Miwako Saito-Yamazaki, Toshiyuki Oyama, Akira Isogai, Izuru Kawamura*

(金井 典子, 山田 浩平, 澄田 智香, 丹沢 美結, 伊藤 佑斗, 齊藤 俊樹, 木村 莉沙, 山崎 美和子, 大山 俊幸, 磯貝 明, *川村 出)

本件に関するお問い合わせ先 : 横浜国立大学大学院工学研究院 機能の創生部門
教授 川村 出 e-mail : kawamura-izuru-wx@ynu.ac.jp

コーヒー粕の多糖類から 2 nm 幅の ホロセルロースナノファイバーを 得ることに成功

～食品添加剤等への応用が期待されるアップサイクル技術～

<研究背景>

食品廃棄物である使用済みコーヒー粕は、世界中で年間 600 万トン以上が排出され、伝統的に燃料として燃やされるか埋め立て処分されています。コーヒー粕の持続可能なアップサイクル技術^{注1)}の開発が求められていますが、実用化に至った例は数例に留まります。コーヒー粕は、細胞壁の主要な成分であるヘミセルロース約 40%、リグニン約 30%、セルロース約 10%を含む高純度のセルロース系廃棄物資源であり、焙煎度や種類による違いはほとんどありません。そのため、コーヒー粕の細胞壁抽出物を有効利用する研究が近年盛んに提案されています。

細胞壁成分のセルロースは、ナノメートルスケールに細かくすることで、超極細の繊維であるセルロースナノファイバー (CNF) が得られます。CNF は植物由来の環境に優しい樹脂やプラスチックの補強材として自動車部材への実装や、増粘・分散安定性として、ボールペンインクや化粧品への応用がなされています。CNF を製造するには、セルロース分子鎖間の強固な水素結合を切断する必要があり、非常に大きい物理的な圧力を加える必要があります。2020 年に川村教授らは TEMPO 触媒酸化法^{注2)}を用いることで、大掛かりな機械を用いずに、コーヒー粕由来の CNF を作ることを達成しました。しかし、コーヒー粕に元々含まれるセルロース量が約 10%と低いことから、低収率でしか CNF を得られないことが課題でした。

<今回の成果>

今回、工学研究院 川村教授と環境情報研究院 金井助教らの研究グループは、セルロースと同じ多糖類に分類されますが、構造の異なるヘミセルロースに着目しました。そこで、鎌倉市内のオフィスやカフェで出たコーヒー粕を原料として、コーヒー粕乾燥重量の約半分を占めるヘミセルロースとセルロースのみからなる成分であるホロセルロースまで処理した後、高圧下物理的な衝撃によって水中で微細化した結果、52%という高収率でホロセルロースナノファイバー (HCNF) を得ることに成功しました。原子間力顕微鏡^{注3)}で観察した HCNF は、平均 2-3 nm の繊維幅と平均 0.7-1 μm 繊維長に分離されており、これは最も微細な CNF が得られる TEMPO 触媒酸化法から得たのと同水準の微細化度でした。一般的に機械的なナノ化処理で得られる CNF は、強固で不均一な水素結合が原因で数十 nm 幅程度ま

でしか細かくすることができないと考えられています。しかし、コーヒー粕に含まれるヘミセルロースが水に膨潤しやすい性質をもっていたことから、2-3 nm への微細化が促進されたと考えています。X線回折法^{注4)}と固体核磁気共鳴分光法^{注5)}を用いて構造解析を行った結果、HCNF 上にはコーヒー粕の主要なヘミセルロースであるマンナンが結晶化した状態で含まれ、コーヒー粕由来 HCNF がこれまでに報告のない新しい特徴をもつことが明らかになりました。本研究で水とコーヒー粕ホロセルロースのみから得られた高度に微細化された HCNF は、植物由来の環境にやさしい乳製品、肉製品、ケーキ生地等の食品添加剤や化粧品等への利用が期待されます。

さらにコーヒー粕由来 HCNF を凍結後乾燥させると、発泡スチロールのような形状となりました。これに再度水を加え、手で振とう（ハンドシェイク）させると、ナノメートルスケールである 30-50 nm 幅まで再び分散することも確認されました。凍結乾燥させた HCNF には、ハンドリングが容易であること、保存料フリーで長期的な保存が可能であること、輸送時の容量を飛躍的に少なくできることなどの特長が挙げられます。以上の成果をまとめた研究論文が、高分子多糖類の専門誌である *Carbohydrate Polymer Technologies and Applications* 誌に 2024 年 6 月 25 日にオンライン版オープンアクセスで公開されました。

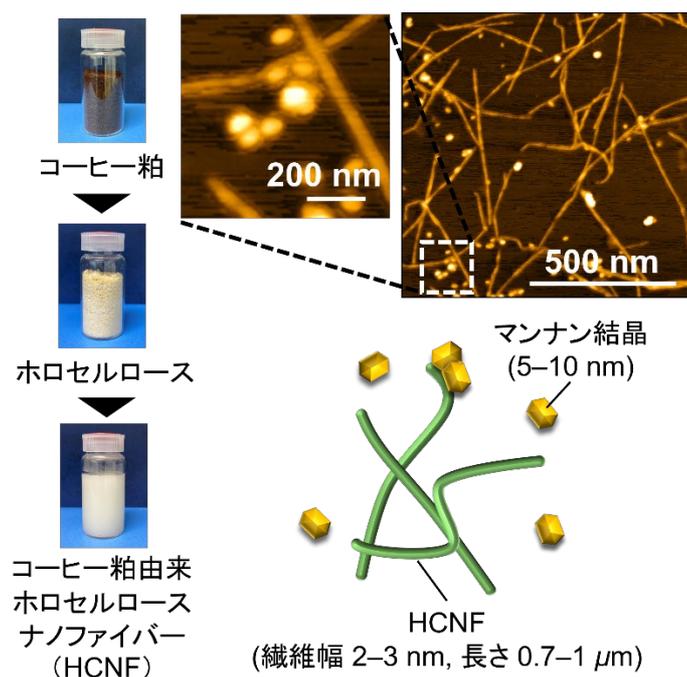


図 1. (左) コーヒー粕から分離したホロセルロースナノファイバー (HCNF) の生成スキーム (右) HCNF の原子間力顕微鏡画像で 2-3 nm の繊維幅と 0.7-1 μm の長さであることが確認された。顕微鏡画像で白い球状に見えるのは、コーヒー粕のヘミセルロースであるマンナンが結晶化したものである。

<今後の展望>

本研究で得られた HCNF は、コーヒー粕に豊富に含まれる細胞壁成分を効率的に利用した新しいアップサイクル技術です。高度に微細化され、マンナンを含む他に類をみない構造的特長を活かした食品用乳化安定剤としての利用へ向けたさらなる研究を行っています。一方で、コーヒー粕の回収経路の確立や乾燥工程は解決すべき課題として挙げられます。食品廃棄物由来の HCNF から抽出した付加価値の高い、アップサイクル型の食品用添加物等として将来実用化することで、持続可能な開発目標 SDGs (Sustainable Development Goals) ^{注6)} のゴール 12. つくる責任 つかう責任の達成に貢献し、地域資源を有効に活用する地域循環型経済 (ローカル・サーキュラーエコノミー) の構築に寄与することが期待されます。

<謝辞>

本研究は、JST 共創の場形成支援プログラム(COI-NEXT) リスペクトでつながる「共生アップサイクル社会」共創拠点 (JPMJPF2111) および科研費 学術変革領域研究 (A) 超越分子システム (JP21H05229)、特別研究員奨励費 (JP22KJ1398)、基盤研究 (B) (23H03574) の一部支援を受けて行われたものです。

<発表雑誌>

雑誌名: *Carbohydrate Polymer Technologies and Applications*, 2024 年 6 月 25 日オンライン版
DOI: 10.1016/j.carpta.2024.100539 (オープンアクセス)

論文題目: Mannan-rich holocellulose nanofibers mechanically isolated from spent coffee grounds: structure and properties

コーヒー粕から機械的に分離したマンナンを豊富に含むホロセルロースナノファイバーの構造と特性

論文著者: Noriko Kanai, Kohei Yamada, Chika Sumida, Miyu Tanzawa, Yuto Ito, Toshiki Saito, Risa Kimura, Miwako Saito-Yamazaki, Toshiyuki Oyama, Akira Isogai, Izuru Kawamura*
(金井 典子, 山田 浩平, 澄田 智香, 丹沢 美結, 伊藤 佑斗, 齊藤 俊樹, 木村 莉沙, 山崎 美和子, 大山 俊幸, 磯貝 明, *川村 出)

<用語解説>

- 注1. アップサイクル技術: 3R(リデュース・リユース・リサイクル)を超えた、廃棄物から環境付加価値の高い物質を新しく創り出す取り組み。
- 注2. TEMPO 触媒酸化法: TEMPO は、2,2,6,6 テトラメチルピペリジン-1-オキシルと呼ばれる常温常圧で安定な有機ニトロラジカル。触媒量の TEMPO を含む水溶液中でセルロースを反応させ、軽微な解繊処理をすることでセルロースナノファイバーを生

成することができる。2006年に東京大学の磯貝 明特別教授、齊藤 継之教授らの研究チームが、結晶性のセルロースマイクロファイブリラの表面でカルボキシル化されていることを見出し、静電的な反発により軽微な物理的処理でセルロースをナノ化できることを報告した。

- 注3. 原子間力顕微鏡：鋭い探針で試料の表面をなぞることで、ナノスケールの凹凸を三次元的に観察することのできる顕微鏡。
- 注4. X線回折法：物質中の周期的に並んだ原子にX線が当たり、散乱されたX線が干渉する現象から結晶情報を導くことができる。試料の結晶の形や結晶化度を調査可能。
- 注5. 固体核磁気共鳴分光法：核磁気共鳴分光（NMR）は、強い磁場中に置かれた物質の分子を構成する原子核が有している核スピンの挙動を精密に観測することによって、原子核の周りの電子状態を反映したNMR信号を得ることができる。この信号が化学的な結合状態を知る手がかりになるため、様々な分子構造を調べることができる構造解析技術である。特に、固体核磁気共鳴分光法は試料状態に依存することが少ないため、繊維状のセルロースナノファイバーにおいても解析が可能。
- 注6. SDGs：Sustainable Development Goals 2015年の国連サミットで全加盟国（193ヶ国）が全会一致で採択した2030年までに達成すべき、持続可能でよりよい世界を目指す国際目標。17個の目標と169個のターゲットで構成される。