

令和 3 年 6 月 16 日現在

機関番号：12102

研究種目：基盤研究(A)（海外学術調査）

研究期間：2017～2019

課題番号：17H01625

研究課題名（和文）インドネシアにおける海藻産業の高度持続的発展のための生産・加工・開発経済的戦略

研究課題名（英文）Production, Processing, and Business Strategies for Sustainable Development of Seaweed Industry in Indonesia

研究代表者

中嶋 光敏（NAKAJIMA, Mitsutoshi）

筑波大学・生命環境系（特命教授）・特命教授

研究者番号：30150486

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 32,580,000円

研究成果の概要（和文）：インドネシアの南スラウェシ州における海藻産業の高度化をめざして、主な海藻多糖類の  $\gamma$ -カラギーナンに高い界面活性が存在すること、また乳化安定性を強化したドデセニルコハク酸修飾カラギーナンの調製と特性解析、*Euchema* sp. および *Gracilaria* sp. に対して海藻多糖類分離後の色素成分、クロロフィルやフィコビリプロテイン、また機能性成分としてカロテノイド等の抽出と特性解析、さらに、抽出残渣からのセルロースナノファイバーの調製技術の開発とそれを用いた安定なエマルション作出とその安定性を明らかにした。これまで多糖類のみが利用されてきたのに対して、残渣の有用な利用法を示すことが示された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

インドネシアとの海藻に関わる共同研究を進め、海藻多糖類として知られるカラギーナンを用いた乳化安定系を作出できること、またさらに乳化性を強化した修飾カラギーナンを調製し、多用途が図れること、海藻中の色素成分や機能性成分の抽出と利用法、さらに、海藻からのセルロースナノファイバーの調製技術を開発し、それを用いた乳化系の安定化を明らかにして、天然乳化安定剤として有用であることが示された。これまで多糖類のみの生産が主だったが、含有成分の抽出や利用法を示すことができ、廃棄物低減への貢献が期待できる。

研究成果の概要（英文）：With the aim of upgrading the seaweed industry in Indonesia, we have studied the existence of high surfactant activity in the seaweed polysaccharides of  $\gamma$ - and  $\delta$ -carrageenan, the preparation and characterization of dodecenylsuccinic acid-modified carrageenan with enhanced emulsification stability, the extraction and characterization of pigment components, chlorophyll and phycobiliprotein, and carotenoids as functional components after separation of seaweed polysaccharides from *Euchema* sp. and *Gracilaria* sp. In addition, we have developed a technology for the preparation of cellulose nanofibers from the extraction residue, and clarified the stability of the emulsions produced using the technology. In contrast to the conventional use of only polysaccharides, this study shows that the residues can be used in a useful way.

研究分野：食品科学工学

キーワード：海藻生産 海藻加工 海藻ビジネス インドネシア 持続的発展 海藻多糖類 海藻色素 海藻セルロースナノファイバー

科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

海洋は、地球上の70%を占めるが、その海洋から生産される食料は1.5%にとどまる。海洋産物のひとつである、海藻栽培は、より大きな食糧安全保障への代替手段となり得る。海藻栽培は巨大な可能性をもつ。海藻を将来の大きな食料源とするには、(1)統合された多栄養型栽培技術を開発すること、(2)「海野菜」としての海藻栽培を促進すること、(3)動物飼料として海藻を使用すること、の3つの手段がある。海藻には約60種類のミネラル、12種類以上のビタミン、20種類のアミノ酸、不飽和脂肪酸、アルギン酸、マンニトール、フコイダン、ラミナリンなどが含まれ、海のスーパーフードともよばれている。持続的な食システムの開発には、海藻栽培に必要な要素として、経済、環境、及び社会的な視点を検討することが必要である。経済的な視点では、海藻製品の市場需要が非常に大きいことが挙げられる。特に、食品ハイドロコロイド市場は、2009年に11億USD(1,000億円)を超え、その後も増加し続けている。また、海藻由来の多様な食品の製品開発が可能であり、経済的な地域開発につながる。環境の視点では、海藻栽培は環境負荷が低いことが知られている。特にインドネシアでは約780種の海藻が存在し、生物多様性が高いこと、農作物の栽培と異なり、農業用水などに影響を与えないため、水不足の心配がないこと、さらに、沿岸の天然資源の乱獲を防ぐことができる。最後に、社会的な視点では、海藻産業が沿岸および国境地域の人々にとってビジネスや雇用のチャンスにもなることのほか、社会への健康食品の提供にも繋がることから、健康への意識も高めることができる。こうした背景のもと、インドネシアの代表的な海藻生産地域の南スラウェシ州・ハサヌディン大学水産海洋科学部のAmbo Tuwo教授グループと共同研究を推進することにした。

### 2. 研究の目的

筑波大学における藻類の生産・加工研究を基礎に、インドネシア南スラウェシ州・ハサヌディン大学水産海洋科学部と共同で、世界第二位の海藻大量生産国のインドネシアの南スラウェシ州における海藻を対象として、海藻多糖類の高付加価値化、含有セルロースの高度利用、また付加価値の高い色素に着目して、製造特性、プロセス開発を通して、開発シナリオを構築し、多糖類や健康機能成分を高度利活用した新産業創出につなげ、日本・インドネシアの連携・協働による海藻産業の高度化と当該地域の持続的発展につなげる。

### 3. 研究の方法

インドネシアの南スラウェシ州における海藻産業の持続的発展のため、海藻産業の調査、海藻養殖と環境を基礎に高度加工研究を中心に推進する。南スラウェシ州の海藻養殖解析や、重要な海藻の種類や生育地の現地調査、海藻産業の持続的発展のためのプロセス改良・開発や、高機能製品開発研究を推進する。すなわち、様々な種類の多糖類、色素等の分離精製を進め、それぞれの機能性を発現できる高機能製品の開発を図る。

現地調査は南スラウェシ州にあるハサヌディン大学水産海洋科学部 Ambo Tuwo 教授の協力を得て行う。南スラウェシ州の海藻の高付加価値化による新規市場の創生をめざす。海藻養殖の時期およびその季節変動における海藻中に含まれる炭水化物等の成分分析・評価を行う。海藻の固形分含量は20%程度と低く、収穫後、腐敗や成分分解を防止するためにできるだけ迅速で効率的な乾燥が求められる。現在の海藻由来の加工生産物としてはほとんど単一成分である。たとえば、寒天、アルギン酸、カラギーナンおよび色素が挙げられる。それらの成分の抽出後の残渣は廃棄物として処理される。抽出技術等を用いて海藻加工残渣からの有用成分の回収を図る。特にゲル化物質や天然乳化剤等を製造することで海藻の高付加価値化を図る。特に、スラウェシ地域における主な海藻である、*Euchema* sp. および *Gracilaria* sp. に対して、成分分析を行い、多糖類および色素の抽出、分離分画について検討し、廃棄ロスが少ない高度プロセス開発のための基礎諸元を明らかにする。*Euchema* sp. の主多糖類であるカラギーナンについて、その利用性の汎用化のため、乳化安定性の解析や他の多糖類との比較検討、さらに含有するタンパク系色素の抽出と抽出成分の特性解析を行う。また海藻成分のセルロースにも着目し、新規素材としてのセルロースナノファイバーの調製技術の開発を行う。

### 4. 研究成果

(1) 海藻多糖類：インドネシアで大量に生産されている紅藻類の *Euchema* sp. から抽出されるカラギーナンの高度利用に関わる安定な O/W エマルションを目指して、乳化・安定化能の高いカラギーナンの探索を進め、これまで界面活性が存在しないと考えられていたカラギーナンに界面活性が存在することを見出し、および -カラギーナンが高い乳化容量を有すること、-カラギーナンは酸性条件で乳化可能であることを示した。しかしながら、長期の乳化安定性は十分でなかったため、さらに、海藻多糖類であるカラギーナン (CRG) 及びアルギン酸 (ALG) に対してドデセニルコハク酸 (DSA) を用いて修飾し、水中油滴型エマルションの調製との安定性を評価した。液滴サイズ、界面張力、電位測定、フーリエ変換赤外分光法 (FTIR) 解析を行い、いずれの修飾多糖類も、安定なエマルションの調製が可能であり、長期保存も可能であった。修飾反応は FTIR 分析によって確認された。比較実験として澱粉についても同様の修飾を行い、同

等であることを確認している。DSA による改質海藻多糖類が食品、医薬品および他の工業分野における応用のための将来の乳化剤として使用できることを示した。

(2) 海藻色素: クロロフィルやフィコビリタンパク質などの海藻色素は、機能性成分として食品産業で大きな可能性が期待されている。インドネシアは紅藻の最大の生産国であり、2015年の総生産量は1,100万トンに及ぶ。紅藻 *Euchema* sp. および *Gracilaria* sp. のサンプルを南スラウェシ州ジェネポントよりインドネシア側の研究者と共同で採取した。この紅藻からフィコビリプロテイン、クロロフィル、カロテノイドなどの海藻色素を、異なる有機溶媒を用いて温度を変えて抽出し、海藻色素の可能性を調べた。海藻色素の定量分析は紫外-可視分光光度法で行い、その化学的特性 FTIR で構造的に同定した。その結果、フィコビリプロテインはクロロフィルに比べて抽出温度が高い(50 )ほど抽出されやすいことがわかった。また、赤海藻抽出物のクロロフィルは50 でわずかに増加した。これは、温度の上昇に伴い、溶質の液体への溶解度が上昇し、分子の拡散が促進されたためと考えられる。しかし、フィコビリプロテインは室温では安定性が高く、50 では濃度がわずかに低下した。また、温度を上げるとタンパク質の変性が起こり、ヘリックス量が減少して色素の安定性が低下することがわかった。フィコエリスリンの安定性は、低温および室温で長期保存しても比較的維持されていた。海藻由来の天然色素は、食品、化粧品、医薬品の調製において、合成色素に代替できる可能性が示された。

(3) 海藻セルロース: 海藻から多糖類を抽出した後の残渣は、多くのセルロースを含んでおり、海藻残渣から付加価値の高いセルロースナノファイバー(CNF)の生産について検討を試みた。まず、*Euchema* sp. を原料として、多糖類抽出後の残渣を洗浄、切断、乾燥後、アルカリ高温処理を行い、カラギーナンを抽出し、残渣の脱色処理を行った。脱色後、硫酸加水分解、氷冷、洗浄、遠心分離を行い、沈殿物を回収した。回収物の透過型電子顕微鏡観察により、長さ数百 nm、太さ数 nm 程度の繊維状の構造体が観察され、紅藻類から CNF を作製できることが示された。乾燥体産物の収率は29.2%、脱色後の収率は12.8%であった。CNF としての収率は8.7%であることが示された。さらに、得られた CNF を用いたエマルジョン作製を試みた。大豆油40%、CNF を含む水相60%を混合し、高速攪拌乳化処理を行った。得られたエマルジョンを更に高圧乳化処理した。白濁したエマルジョンが得られ、サイズ分布は最頻値13 $\mu$ mに単一のピークを示し、比較的均一なサイズのエマルジョンが調製できることがわかった。50日後も油滴の合一・分相が起らず、紅藻 *Euchema* sp. 由来の CNF を用いて安定なピッカリングエマルジョンを作製できることが示された。

本研究において筑波大学にて3回、インドネシア・ハサヌディン大学にて3回のセミナーやシンポジウムを開催し、成果発表を行い、研究交流を深めることができた。

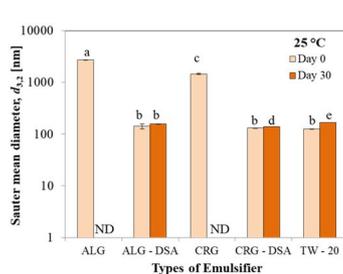


図1. カラギーナンやアルギン酸の DSA 修飾による乳化安定性

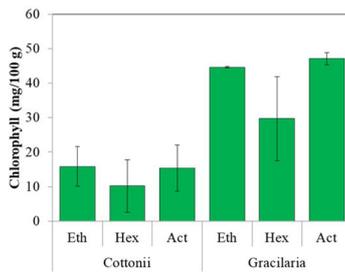


図2. 海藻からの抽出クロロフィル濃度

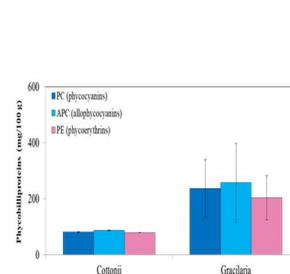


図3. 海藻からの抽出フィコビリプロテイン濃度

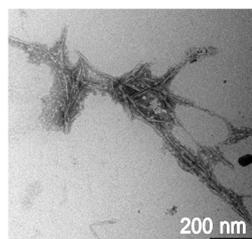


図4. 海藻 *Euchema* sp. 由来のセルロースナノファイバーの電子顕微鏡写真  
長さ122 nm, 径: 4.4 nm (n = 48)  
文献

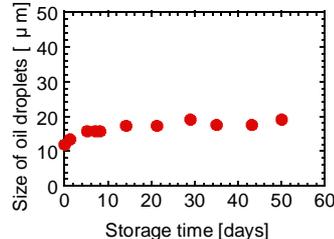


図5. 海藻由来のセルロースナノファイバーを用いて得られたピッカリングエマルジョンの安定性

- Melanie H, Taarji N, Zhao Y, Khalid N, Neves M A, Kobayashi I, Tuwo A, Nakajima M, Formulation and characterisation of O/W emulsions stabilised with modified seaweed polysaccharides, International J Food Science Technology 55, 211-221 (2020)
- 松本悟志、中嶋光敏、Ambo Tuwo、市川創作: 紅藻類 *Cottonii* sp. からのセルロースナノファイバーの作製と特性評価、化学工学会大会 2018

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計5件（うち査読付論文 5件/うち国際共著 5件/うちオープンアクセス 4件）

1. 著者名 Ma Zhaoxiang, Zhao Yiguo, Khalid Nauman, Shu Gaofeng, Neves Marcos A., Kobayashi Isao, Nakajima Mitsutoshi	4. 巻 108
2. 論文標題 Comparative study of oil-in-water emulsions encapsulating fucoxanthin formulated by microchannel emulsification and high-pressure homogenization	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Food Hydrocolloids	6. 最初と最後の頁 105977 ~ 105977
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.foodhyd.2020.105977	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する
1. 著者名 Melanie Hakiki, Taarji Noamane, Zhao Yiguo, Khalid Nauman, Neves Marcos A., Kobayashi Isao, Tuwo Ambo, Nakajima Mitsutoshi	4. 巻 55
2. 論文標題 Formulation and characterisation of O/W emulsions stabilised with modified seaweed polysaccharides	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 International Journal of Food Science & Technology	6. 最初と最後の頁 211 ~ 221
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1111/ijfs.14264	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する
1. 著者名 Ma Zhaoxiang, Khalid Nauman, Shu Gaofeng, Zhao Yiguo, Kobayashi Isao, Neves Marcos A., Tuwo Ambo, Nakajima Mitsutoshi	4. 巻 4
2. 論文標題 Fucoxanthin-Loaded Oil-in-Water Emulsion-Based Delivery Systems: Effects of Natural Emulsifiers on the Formulation, Stability, and Bioaccessibility	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 ACS Omega	6. 最初と最後の頁 10502 ~ 10509
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acsomega.9b00871	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する
1. 著者名 Zhao Yiguo, Khalid Nauman, Shu Gaofeng, Neves Marcos A., Kobayashi Isao, Nakajima Mitsutoshi	4. 巻 86
2. 論文標題 Complex coacervates from gelatin and octenyl succinic anhydride modified kudzu starch: Insights of formulation and characterization	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Food Hydrocolloids	6. 最初と最後の頁 70 ~ 77
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.foodhyd.2018.01.040	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

1. 著者名 Zhao Yiguo, Khalid Nauman, Shu Gaofeng, Neves Marcos A., Kobayashi Isao, Nakajima Mitsutoshi	4. 巻 176
2. 論文標題 Formulation and characterization of O/W emulsions stabilized using octenyl succinic anhydride modified kudzu starch	5. 発行年 2017年
3. 雑誌名 Carbohydrate Polymers	6. 最初と最後の頁 91 ~ 98
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1016/j.carbpol.2017.08.064	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている (また、その予定である)	国際共著 該当する

[学会発表] 計10件 (うち招待講演 0件 / うち国際学会 2件)

1. 発表者名 Zhaoxiang Ma, Isao Kobayashi, Nauman Khalid, Marcos A. Neves, Mitsutoshi Nakajima
2. 発表標題 Formulation of fucoxanthin-loaded O/W emulsions by microchannel emulsification
3. 学会等名 日本食品工学会第19回 (2018年度) 年次大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Yiguo Zhao, Nauman Khalid, Marcos A. Neves, Isao Kobayashi, Mitsutoshi Nakajima
2. 発表標題 Complex coacervation of gelatin and hydrophobically modified kudzu starch
3. 学会等名 日本食品工学会第19回 (2018年度) 年次大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Potter 優喜, Zhao Yiguo, 小林功, Neves Marcos, 中嶋光敏
2. 発表標題 糊化澱粉分散液を利用した水中油滴型エマルションの調製と特性解析
3. 学会等名 日本食品工学会第19回 (2018年度) 年次大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Hakiki Melanie, Nauman Khalid, Isao Kobayashi, Marcos A. Neves, Mitsutoshi Nakajima
2. 発表標題 Formulation and characterization of O/W emulsions stabilized by modified seaweed polysaccharides
3. 学会等名 日本食品科学工学会第65回大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 松本悟志、中嶋光敏、Ambo Tuwo、市川創作
2. 発表標題 紅藻類Cottonii sp.からのセルロースナノファイバーの作製と特性評価
3. 学会等名 化学工学会 第50回秋季大会
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Hakiki Melanie, Ambo Tuwo, Marcos A. Neves, Mitsutoshi Nakajima
2. 発表標題 Extraction of chlorophylls and phycobiliproteins from Indonesian red seaweed
3. 学会等名 The 30th International Symposium on the Chemistry of Natural Products and the 10th International Congress on Biodiversity (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Zhao Yiguo, Khalid Nauman, Neves Marcos A., 小林 功, 中嶋 光敏
2. 発表標題 Complex coacervation of gelatin and OSA-modified kudzu starch
3. 学会等名 The 19th Gums & Stabilisers for the Food Industry Conference (国際学会)
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Zhao Yiguo, Khalid Nauman, Neves Marcos A., 小林 功, 中嶋 光敏
2. 発表標題 Physicochemical characteristics of octenyl succinic anhydride modified kudzu starch
3. 学会等名 日本食品科学工学会第64回大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 松本颯汰、Marcos A. NEVES、小林功、中嶋光敏
2. 発表標題 カラギーナンの種類がO/Wエマルションの作製と安定性に及ぼす影響
3. 学会等名 日本食品科学工学会第64回大会
4. 発表年 2017年

1. 発表者名 Potter 優喜、Zhao Yiguo、中嶋光敏
2. 発表標題 デンプンゲル分散系を用いた水中油滴型エマルションの調製と特性評価
3. 学会等名 化学工学会 第83年会
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究 分担者	市川 創作  (ICHIKAWA Sosaku)  (00292516)	筑波大学・生命環境系・教授    (12102)	

## 6. 研究組織（つづき）

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	野口 良造 (NOGUCHI Ryozo) (60261773)	筑波大学・生命環境系・准教授  (12102)	
研究分担者	氏家 清和 (UJIE Kiyokazu) (30401714)	筑波大学・生命環境系・准教授  (12102)	
研究分担者	Neves Marcos (NEVES Marcos) (10597785)	筑波大学・生命環境系・准教授  (12102)	
研究分担者	宮村 新一 (MIYAMURA Shinichi) (00192766)	筑波大学・生命環境系・准教授  (12102)	
研究分担者	石田 健一郎 (ISHIDA Kenichiro) (30282198)	筑波大学・生命環境系・教授  (12102)	

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	藤田 大介 (FUJITA Daisuke)	東京海洋大学・海洋生物資源学部門・准教授	
研究協力者	トゥーヴォ アンボ (TUWO Ambo)	ハサヌディン大学・教授	

## 7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計1件

国際研究集会 Japan-Indonesia Seaweed Symposium “High Value Added Seaweed Products with Innovative Cultivation and Processing”	開催年 2017年～2017年
--	--------------------

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関			
インドネシア	Hasanuddin University			