

未来社会創造事業（探索加速型）
「地球規模課題である低炭素社会の実現」領域
年次報告書（探索研究）

令和 3 年度採択研究開発代表者

[研究開発代表者名:北岡 卓也]

[所属:国立大学法人 九州大学 大学院農学研究院・教授]

[研究開発課題名:ナノセルロースの界面触媒反応による木質模倣微粒子の創出]

実施期間:令和 5 年 4 月 1 日～令和 6 年 3 月 31 日

§1. 研究開発実施体制

(1)「木質模倣微粒子開発」グループ(九州大学)

① 研究開発代表者:北岡 卓也 (九州大学 大学院農学研究院・教授)

② 研究項目

- ・ピッカリングエマルション鋳型法による木質微粒子の合成
- ・コア-シェル型ナノ構造体および人工リグニンの構造解析
- ・化粧品用途適性評価および海洋分解性評価の計画策定

§2. 研究開発成果の概要

自然生態系において長期間炭素貯留が可能で、海洋微生物により安全に生分解される木質模倣真球微粒子の開発を引き続き実施した。昨年度の課題であった粒径制御について、樹木由来セルロースナノファイバー(CNF)を用いて詳細に検討した。リグニン前駆体アナログとして植物油のイソオイゲノールを選択し、乳化方法(二枚刃・超音波ホモジナイザー)、乳化温度(氷冷・40℃)、油水比(油相濃度:5%~20%)、酵素量および酸化剤添加量・添加方法を精査した結果、氷冷条件での超音波乳化により、油相 5~20%を含む安定なピッカリングエマルションの調製に成功した。西洋わさびペルオキシダーゼを用いて酵素重合したところ、過酸化水素の多段階添加法により、直径 2.1~5.2 μm (昨年度の約3倍増径)、真球度 0.99 以上、最大収率 80%を達成した。微粒子表面にはナノファイバー形状の物質が多数観察され、CNF のネットワーク構造がシェル層を形成していることが示された。コアの重合成分は天然リグニンの構造である β -O-4 および β -5 構造を有しており、最大で 12 量体を形成した。コアの構造多様化を目指し、イソオイゲノール(G型リグニンの構造アナログ)のホモログ 3 種類と、H型リグニン・S型リグニンの構造アナログのホモログ化(4 種類)を試み、計 11 種類のリグニン前駆体アナログの有機合成に成功した。今後、これらの基質を用いて、ピッカリングエマルションを鋳型とする真球微粒子合成機構の解明と様々な酵素反応系における合成法のさらなる改良、および化粧品用途微粒子としての機能化を図る。また、微粒子形状以外の成形体についても検討する。樹木の二大成分の CNF とリグニンを用いて、CNF のナノ形状と界面特性に着目した新規複合化手法により、天然の木質構造を模倣した真球微粒子・成形体を開発し、多方面に用途展開することで、脱炭素社会の実現と SDGs 達成に貢献する。

【代表的な原著論文情報】

- 1) Yuna Tanaka, Qi Li, Mayumi Hatakeyama, Takuya Kitaoka, Synthesis and Structural Design of Microspheres Comprising Cellulose Nanofibers and Artificial Lignin Polymer by Enzyme-mediated Pickering Emulsion Templating, *RSC Sustainability*, **2**(5), 1580-1589 (2024). DOI: 10.1039/D4SU00067F