

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]

[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6年4月1日～令和7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ジ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。本研究は、樹木由来セルロースナノファイバー（CNF）の両親媒性を利用して乳化し、それを鋳型とする酵素重合でコア-シェル型微粒子を合成することを特徴としているが、これまでシェルの CNF 層の厚みが不明であった。そこで、超薄切片の高解像度 TEM 観察を実施したところ、約 3  $\mu\text{m}$  径の粒子が  $69.0 \pm 12.6 \text{ nm}$  の CNF 層で覆われていることが明らかとなった。すなわち、直径のわずかに 2.3%の極薄層（定量分析の重量比で 2.8%）の CNF で微粒子を安定化していることが判明した。得られた微粒子はほぼ白色であるにもかかわらず、SPF30 と同程度の日焼け止め効果を示した。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・S型リグニンのホモログ化（4 種類）を試み、計 11 種類のリグニン前駆体アナログの高収率合成に成功した（収率 75-92%）。西洋わさびペルオキシダーゼよりも耐熱性の高いラッカーゼで酵素重合を行ったところ、同様に真球微粒子を得た（H型リグニンを粒径約 2  $\mu\text{m}$  で収率 65.7%を達成）。さらに、白い微粒子に加えて黒いリグニン-CNF フィルムの開発にも着手した。水系でリグニンスルホン酸塩とクラフトリグニンを混合し、pH 制御により微粒子状に析出させ、TEMPO 酸化 CNF と混合して  $\text{Fe}^{3+}$  でゲル化させることで、高いゲル化特性と優れたチキソトロピー性を備えた造膜可能な黒色微粒子の合成に成功し、農業用マルチとしての展開に期待が持たれた。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