

令和 3 年 4 月 14 日現在

機関番号：17102

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2018～2020

課題番号：18K19233

研究課題名（和文）森と海の構造多糖ナノ触媒が切り拓く不均一系触媒反応の新機軸

研究課題名（英文）New Frontier in Heterogeneous Catalysis on Forest and Marine Glyco-nanofibers

研究代表者

北岡 卓也（KITAOKA, Takuya）

九州大学・農学研究院・教授

研究者番号：90304766

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 4,900,000円

研究成果の概要（和文）：樹木由来セルロースナノファイバー（CNF：林産物）や甲殻類由来キチンナノファイバー（ChNF：海産物）の固体界面を触媒反応場とする様々なグリーン合成化学に挑戦し、（1）TEMPO酸化CNFによるアセタールの高効率加水分解、（2）表面脱アセチル化ChNFによる高選択的Knoevenagel縮合、（3）TEMPO-CNFとプロリンの組み合わせによる不斉アルドール反応、（4）CNF安定化ピッカリングエマルジョンを反応場とするリグニン合成、（5）TEMPO-CNF被覆型人工リグニン真球微粒子の合成と化粧品応用など、萌芽的かつ独創的な多くの研究成果を得た。天然多糖ナノファイバーの新機能開拓に成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

持続的発展可能社会において、天然多糖資源に大きな注目が集まっているが、従来型利用では限界があり、新たな機能開拓の機運が高まっている。本研究は、森と海の天然多糖であるセルロースナノファイバーとキチンナノファイバーのナノ界面構造に着目し、触媒反応場として利用することで、新奇な有機分子触媒反応を見出した。さらに、固体界面活性剤としての機能を活かした表面修飾や微粒子合成により、木質模倣真球微粒子の合成にも成功した。近年、マイクロプラスチックによる海洋汚染問題が深刻化しているが、木質成分は太古の昔より深海微生物が分解してきた安心・安全な素材であり、地球環境問題の解決にも資する新材料として期待が持たれる。

研究成果の概要（英文）：A novel concept in organocatalysis using wood-derived cellulose nanofiber (CNF) and crustacean-derived chitin nanofiber (ChNF) has been investigated through focusing on their unique nanoarchitectures. In this project, we successfully achieved the following five issues: (1) highly-efficient acetal hydrolysis on crystalline TEMPO-oxidized CNF with carboxylic acids aligned at the interface, (2) highly-selective Knoevenagel condensation by surface-deacetylated ChNF to eliminate transesterification, (3) asymmetric aldol reaction in combination of prolines and TEMPO-CNF with regulated chiral interfaces, (4) lignification-inspired surface modification of CNF in a Pickering emulsion system, and (5) enzymatic synthesis of spherical microparticles composed of TEMPO-CNF and artificial lignin. Advances in green catalysis and wood-mimetic nanomaterials will open up a new phase in glyconanoarchitectonics, and are expected to unlock the key to the Sustainable Development Goals (SDGs).

研究分野：木質科学・多糖ナノマテリアル科学

キーワード：セルロース ナノファイバー 有機分子触媒反応 ピッカリングエマルジョン リグニン合成 真球微粒子 グリーンケミストリー

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。

1. 研究開始当初の背景

(1) 林産系ナノ素材として注目されている樹木由来セルロースナノファイバーや、水産資源のキチン由来マリンナノファイバーは、豊富に存在する天然多糖類であるが、従来の安価が売りのバルク素材や廃棄物利用ではなく、合成高分子に性能的に敵わない代替素材としてでもなく、ナノメートルオーダーの明確な規則的構造を持つ「人工合成不可能な」天然新素材としてのポテンシャルがある。しかしながら現状では、透明フィルムや補強用填料、保湿効果を利用した化粧品添加物など、既存素材との競合で勝ち目のない状況である。これを打開するためには、天然バイオナノファイバーに特異的な未知機能を見出し、材料利用する新たな途を切り拓くしかない。

(2) 天然バイオナノファイバー研究の進展にともない、セルロースナノファイバー (CNF) やキチンナノファイバー (ChNF) が、TEMPO 触媒酸化や表面脱アセチル化処理により、結晶界面に規則的にカルボン酸や一級アミンを導入できることが明らかになった。この特異性を触媒に利用する試みはあったものの、既存の単なる触媒担体としての利用では優位性がなく、また材料利用する場合でも合成高分子を上回る性能は達成されていない。CNF や ChNF を使って初めて発現する未知機能の発見と、新しいマテリアル設計戦略が強く希求されていた (図 1)。

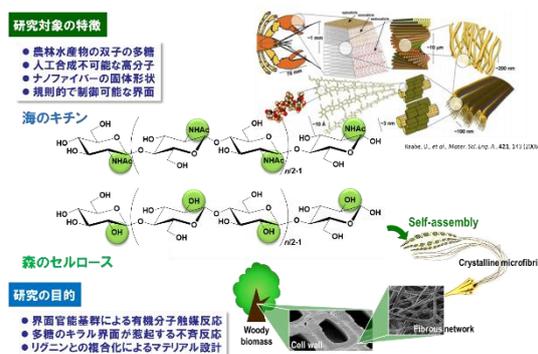


図 1 本研究対象の概要と研究構想

2. 研究の目的

(1) 本研究では、TEMPO 酸化 CNF (TOCNF) や ChNF を脱アセチル化したキトサンナノファイバー (CsNF) の結晶界面に集積したカルボン酸や一級アミンを、そのまま有機分子触媒として利用することで、アセタールの加水分解反応や Knoevenagel 縮合における触媒反応化学を検討した。また、低活性が課題の有機分子触媒であるアミノ酸のプロリンとの組み合わせを検討した。

(2) CNF は樹木細胞壁を構成するセルロースマイクロフィブリルを単離したナノマテリアルであり、樹木中ではヘミセルロースやリグニンと複合体を形成している。これに着目し、CNF を固体界面活性剤とする Pickering エマルション系で人工リグニン (Dehydrogenative polymer: DHP) を酵素合成し、CNF 表面の疎水化を試みた。さらに、この DHP が水系で微粒子形状になる現象を利用して、TOCNF で被覆した DHP の真球微粒子を合成し、化粧品用途への応用を検討した。

3. 研究の方法

(1) 物理解繊 CNF を TEMPO 酸化し、塩酸によりプロトン化 TOCNF (COOH: 0.39–1.81 mmol/g) を得た (図 2)。pH を調節した TOCNF 水分散液とジオキササンを混合し、dimethoxymethylbenzene などの様々なアセタール基質を加え、室温で 2 時間、酸加水分解反応を行った。

(2) 脱アセチル化 ChNF の CsNF (NH₂: 4.35 mmol/g) (図 2) にメタノールと脱イオン水を加え、benzaldehyde と様々な活性メチレンを添加し、40°C で 4 時間、Knoevenagel 縮合を行った。

(3) TOCNF を DMF 等の有機溶媒に分散させ、触媒にプロリン、4-nitrobenzaldehyde 等のアルデヒド基質と cyclopentanone を加え、0°C または 40°C で 2–24 時間、不斉アルドール反応を行った。

(4) 物理解繊 CNF と 30% H₂O₂ の水懸濁液に coniferyl alcohol を溶解した DCM 溶媒を加え、超音波ホモジナイザーで Pickering エマルションを調製した。西洋わさび由来ペルオキシダーゼ HRP を加えて、室温で 2 時間、酵素重合反応を行った。

(5) 所定濃度の TOCNF 水分散液に HRP, 30% H₂O₂, coniferyl alcohol を加えて、室温で 24 時間、酵素重合反応を行い、真球微粒子を合成した。

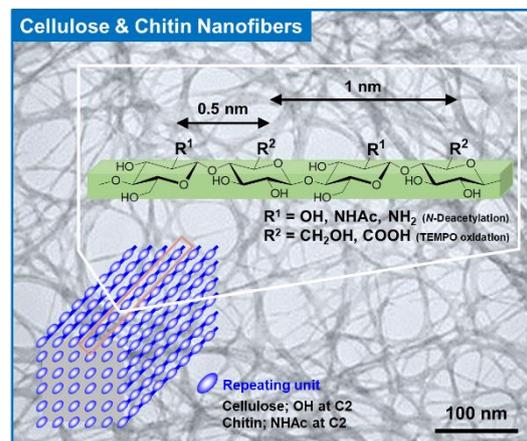


図 2 多糖ナノファイバーの模式図

4. 研究成果

(1) TOCNF 自身が固体酸として働くアセタールの酸加水分解反応

アセタールの酸加水分解物は benzaldehyde のみで、副反応は生じなかった。均一系触媒の塩酸や TOCNF 除去後の上清と比べて、TOCNF 添加による著しい転化率の向上が認められた (図 3)。カルボキシ基を持たない CNF では効果がなく、酢酸を添加した場合もほとんど反応が進行しなかったことから、TOCNF が酸触媒として均一系触媒よりも優れた触媒活性を示すことが明らかとなった。次に、結晶界面を持たない高分子電解質のカルボキシメチルセルロースとポリアクリル酸を添加したところ、ほとんど反応が進行しなかった。これは、柔軟な分子構造の高分子酸は、疎水性溶媒であるジオキサンの影響を受けて凝集し、活性点が減少するためと考えられる。一方、TOCNF は結晶性を有しているため、ジオキサン添加後も凝集による活性点の減少が抑えられ、結果、結晶界面に露出したカルボン酸が反応を促進したと考えられる。また、セルロース II 型の結晶構造を持つマーセル化 TOCNF を添加したところ、もとの TOCNF と比べて反応効率が明瞭に低下したことから、TOCNF の結晶構造の違いが触媒活性に影響を与えることも示唆された。

次に、TOCNF 界面に集積しているカルボキシ基の量および密度が反応特性に与える影響を検討した。酸密度の向上と反応速度は比例せず、適切な導入量で反応が加速されており、速度論的解析より、基質の界面吸着の関与が示唆された。すなわち、TOCNF 固体界面の酸点ではなく、疎水面への基質濃縮による高効率化機構が示唆された (データ未掲載)。本反応系は、様々な基質に対しても有効で (図 3)、樹木 CNF に特徴的な有機分子酸触媒反応として、さらなる展開が期待される。

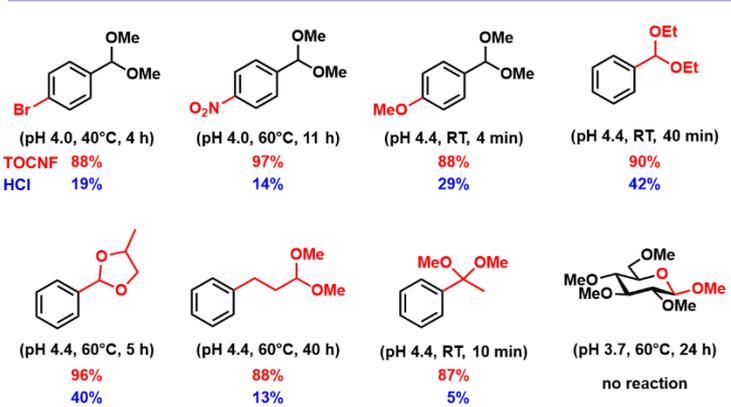
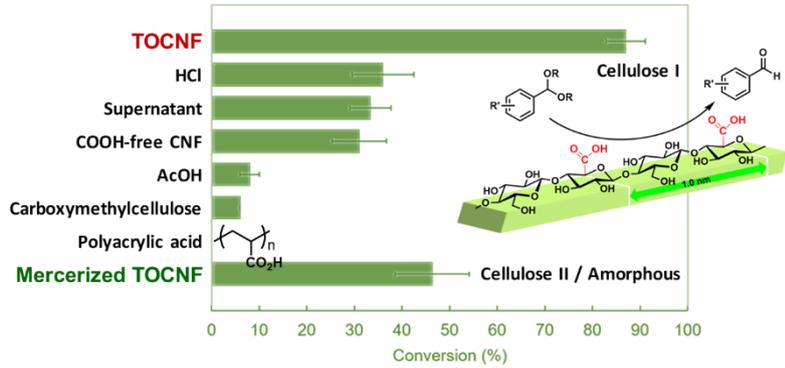


図 3 TOCNF によるアセタールの酸加水分解反応性

(2) CsNF を固体塩基触媒とする高選択的 Knoevenagel 縮合

TEM 観察より、CsNF がナノファイバー形状を有することが確認された (図 4)。メタノール/水混合溶媒中で、CsNF を触媒とする Knoevenagel 縮合が円滑に進行し、目的生成物が 95% 以上の高収率で得られた。一方、低分子のヘキシルアミンを同条件で用いた場合、収率は 40% と低く、溶媒のメタノールとエステル交換したメチルエステルが大量に副生した。また、ナノ化していない粉末状キトサンを用いた場合、メチルエステルは副生しなかったが、主生成物の収率は 32% にとどまった。

続けて、本触媒反応の基質一般性を検討した。側鎖芳香環、二重結合・三重結合、ヘテロ原子などを有する幅広い基質に対しても、CsNF により目的生成物が高選択的に得られた (図 4)。一方で、低分子アミンを用いた場合には、いずれも加溶媒分解によりほとんどがメチルエステルへと変換された。以上の結果より、CsNF を用いることで、側鎖に様々な置換基を有するエステル類の直截的な変換反応が可能であった。CsNF は固体であるため、反応後の回収再利用も可能であった。

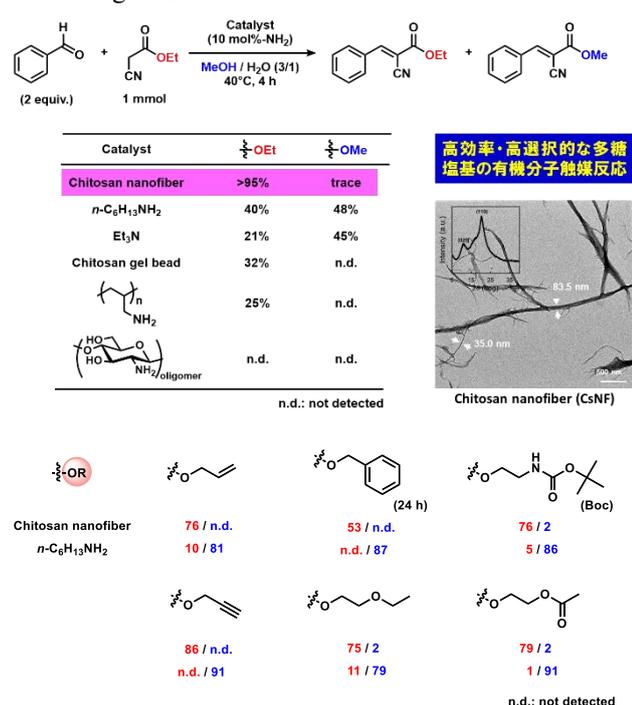


図 4 CsNF による高選択的 Knoevenagel 縮合

(3) CNF 結晶界面を反応場とする不斉アルドール反応

炭素-炭素結合を持つキラル分子を合成可能な重要な有機合成反応である不斉アルドール反応において、TOCNF と低活性が課題のアミノ酸の *S*-プロリンを有機分子触媒に用いて DMF 溶媒中で高分散させることで、4-nitrobenzaldehyde と cyclopentanone の直截的不斉アルドール反応で、収率 99%かつ鏡像異性体過剰率 89%/(*R,R*)を達成した (図 5)。TOCNF 未添加の反応条件では、収率 18%で 60-70% *ee/R* 程度であったため、ナノセルロースによる明瞭な活性増幅と不斉誘起が起きた。面選択性に注目すると、プロリンのみでは(*S,S*)-*syn* 体が 14%であったのに対して、TOCNF 添加では 2%に激減しており、ベンズアルデヒドの *Re* 面への求核攻撃が抑制されていた。また、*anti* 体のエナンチオ選択性も 92%/(*R,S*)と高く、メタノールの添加によって、99% *ee/R* に向上した (データ未掲載)。

本反応のアルデヒドの基質一般性については、反応収率は基質構造に大きく依存したが、いずれも *anti* 選択性が向上する結果となった (データ未掲載)。現状、*syn* 体、*anti* 体、およびエナンチオ選択性の直接的な関係性は明確ではないが、さらなる基質一般性の検討によって要因を突き止める必要がある。また、反応一般性にも興味を持たれる。

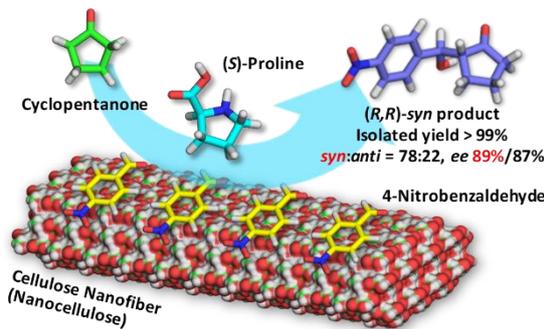


図 5 TOCNF とプロリンの不斉アルドール反応

(4) Pickering エマルションを反応場とする CNF のリグニン表面修飾

CNF とリグニンの複合化は互いに相分離関係にあるため非常に困難であり、単純な成分混合では達成できない。そこで、Pickering エマルションを反応場とすることで、特定箇所でのみリグニンが合成される反応場を設定した (図 6)。TEM 観察により、エマルション系で得られた複合体は、未処理の CNF と同様に、ナノファイバー形状を保っていることが確認できた (図 6)。得られた複合体をフィルム化し、水の接触角を測定することで、DHP による疎水化効果を調べた。基質のコニフェリルアルコールの量が 60 mg のとき (PE-60)、平均で 50.1°まで接触角が増大し、ナノファイバーの疎水度が増大することが分かった。また、二相系で基質 60 mg の条件で DHP 重合を行い、フィルムの接触角を測定したところ (BP-60)、標準偏差がエマルション系のフィルムの値よりも大きくなった。そこで、SPM によりフィルムの二乗平均粗さ (*Rq*) を測定したところ、PE-60 のフィルムの *Rq* はナノセルロース単体フィルムの *Rq* と同等で、BP-60 の *Rq* より有意に小さく、エマルション系での合成により平滑なフィルムを作製できた。さらなる詳細な解析のため、CNF-DHP 複合体の表面物性を SPM 分析することで、CNF に吸着した DHP の表面状態を評価した。位相像に注目すると、エマルション系では二相系に比べて、ナノファイバー表面で位相差の大きな部分が明らかに増大し、均一に CNF 表面を覆っていた (図 6)。位相差の大きな部分はアモルファスで疎水的な DHP を示すと考えられ、Pickering エマルションを反応場とすることで、CNF 界面限定で効率的に DHP の重合反応が進行し、CNF を高被覆することに成功した。DHP の結合組成を定量するために、得られた複合体をセルラーゼで処理し、残渣を HSQC-NMR 分析に供した (図 6)。エマルション系による DHP は、CNF 添加の二相系とほぼ同様の結合組成になることが明らかになった。その一方で、CNF なしでの二相系と比較し、 β -5'結合と β -O-4/ α -OH 結合が増加し、 β - β' 結合が減少、 β -O-4/ α -O-4 結合は検出されなかった。これらの結果から、

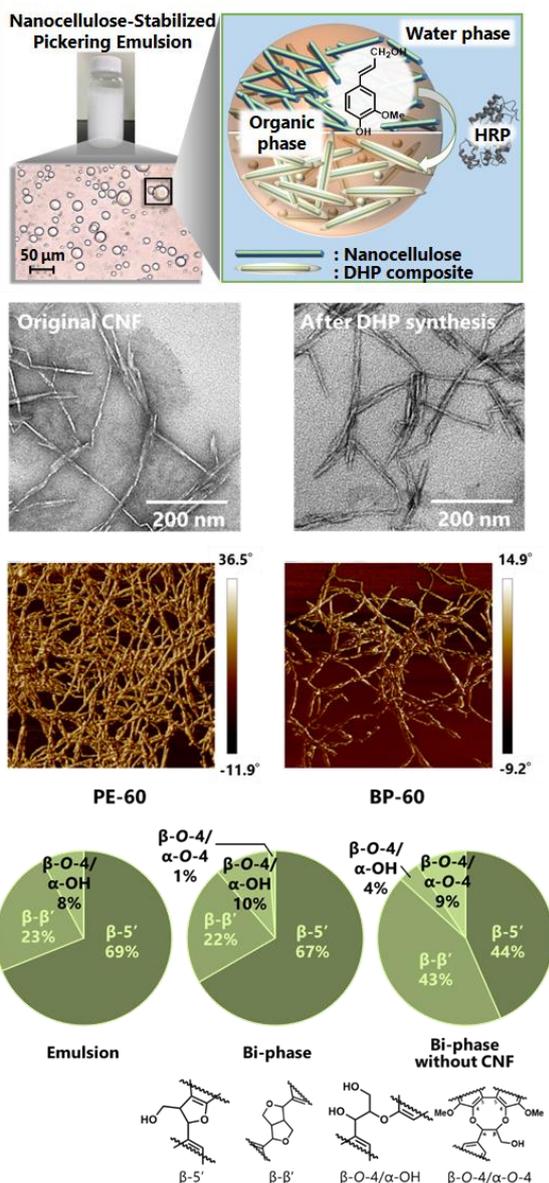


図 6 CNF 表面のリグニン被覆と各種構造解析

CNF の存在が DHP の重合に何らかの作用を及ぼしていることが示唆され、天然の細胞壁中でもセルロースマイクロフィブリルがリグニン重合に構造的な影響を与えている可能性が示唆された。

(5) 木質模倣型真球微粒子の合成

TOCNF 水懸濁液を反応場とし、**coniferyl alcohol** をリグニン前駆体に用いて西洋わさびペルオキシダーゼによる酵素重合を行うことで、人工リグニンをコアに、TOCNF をシェルに持つ真球微粒子の合成に成功した (図 7)。精製した微粒子のゼータ電位を測定したところ、0.5 wt% の TOCNF 水懸濁液を添加して合成した微粒子では -40.7 ± 7.1 mV であり、TOCNF 無添加で合成した場合と比べて強い負電荷を示した。また、微粒子をカルコフロールホワイトにより蛍光染色したところ、TOCNF を添加した系で合成した微粒子では強い蛍光が観察された一方、TOCNF 無添加ではほとんど蛍光が見られなかった (データ未掲載)。このことから、TOCNF を添加して合成した微粒子表面には、TOCNF が吸着していることが示唆された。得られた粒子を SEM により観察したところ、TOCNF 濃度が 0.5 wt% で合成した微粒子は、全体的に真球に近い構造を有していた (図 7)。また、SEM 画像から粒子の真球度を算出したところ、TOCNF の濃度が 0.8 wt% 以下の時、粒子の平均真球度はいずれも 0.95 以上であり、高い真球度を示した。その一方、TOCNF 濃度が 1.0 wt% になると、平均真球度が 0.80 に低下した。CNF 被覆微粒子を凍結乾燥させた場合、TOCNF 濃度が 0.5 wt% 以下の場合には粒子形状を保持していたが、0.8 wt% の条件で合成した微粒子では崩壊が観察された。これは、微粒子内部のナノファイバー量が過剰となり、粒子内部の不均一性が増大したため、粒子強度が低下したことが原因と推察される。また、粒径分布を SEM 画像から算出したところ、TOCNF 濃度が 0.8 wt% 程度までは、いずれも平均粒径が 800 nm 程度であり、化粧品用途微粒子としての利用が可能なサイズであった。化粧品用微粒子には薬用効果が期待されることから、モデル物質としてメチレンブルーとアルギニンの担持挙動を検討したところ、それぞれ 95% および 38% の保持力を示し、高い物質担持能が示唆された。

CNF とリグニンは天然の木質成分であり、深海微生物により生分解されることから、これらをナノ複合化した木質模倣微粒子の利用は、マイクロプラスチックによる海洋汚染問題の解決に資すると期待される。

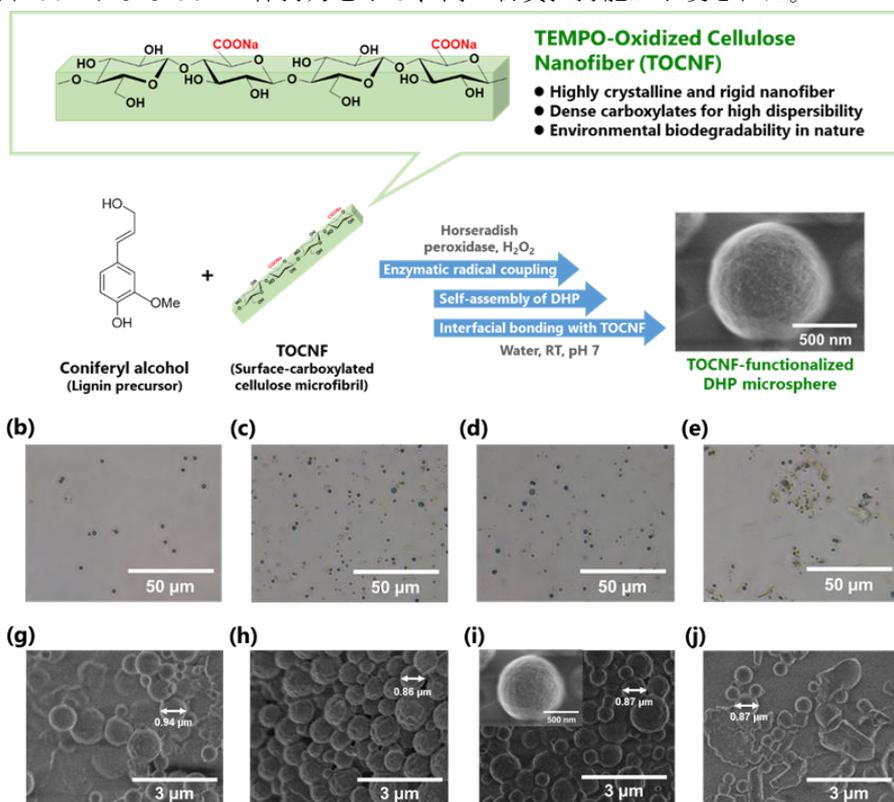


図 7 TOCNF (シェル) と DHP (コア) で構成された木質模倣微粒子の合成と SEM 画像
TOCNF: (a, f) 0.0% (w/v), (b, g) 0.3% (w/v), (c, h) 0.5% (w/v), (d, i) 0.8% (w/v), (e, j) 1.0% (w/v)

本研究により、樹木由来セルロースナノファイバーと甲殻類由来キチンナノファイバーの触媒反応やナノマテリアル合成に成功した。すなわち、固体結晶界面の官能基を利用する有機分子触媒反応や、界面の規則的構造やキラル炭素を利用する不斉反応、さらには、樹木成分の一つであるリグニンとの複合化による CNF の表面疎水化や真球微粒子合成など、基礎から応用に至る様々なグリーン合成化学における新たな可能性が見出された。人工合成不可能な天然構造多糖のナノ界面やナノ形状を利用する生物模倣工学の未踏領域「グライコナノアーキテクトニクス」の研究基盤の構築につながると期待される。

(1) *Scientific Reports*, **8**:5021 (2018) DOI: 10.1038/s41598-018-23381-8; (2) *RSC Advances*, **10**, 26771-76 (2020) DOI: 10.1039/d0ra02757j; (3) *RSC Advances*, **10**, 37064-71 (2020) DOI: 10.1039/d0ra07412h; (4) *ACS Sustainable Chemistry & Engineering*, **8**, 1185-94 (2020) DOI: 10.1021/acssuschemeng.9b06291; (5) *Nanomaterials*, **11**, 917 (2021) DOI: 10.3390/nano11040917 に研究成果の各項目について掲載済み

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計15件（うち査読付論文 10件 / うち国際共著 8件 / うちオープンアクセス 7件）

1. 著者名 Yusaku Hirayama, Kyohei Kanomata, Mayumi Hatakeyama, Takuya Kitaoka	4. 巻 10
2. 論文標題 Chitosan nanofiber-catalyzed highly selective Knoevenagel condensation in aqueous methanol	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 RSC Advances	6. 最初と最後の頁 26771-26776
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/d0ra02757j	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 -
1. 著者名 Naliharifetra Jessica Ranaivoarimanana, Xin Habaki, Takuya Uto, Kyohei Kanomata, Toshifumi Yui, Takuya Kitaoka	4. 巻 10
2. 論文標題 Nanocellulose enriches enantiomers in asymmetric aldol reactions	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 RSC Advances	6. 最初と最後の頁 37064-37071
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1039/d0ra07412h	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 Naoya Fukuda, Mayumi Hatakeyama, Takuya Kitaoka	4. 巻 11
2. 論文標題 Enzymatic preparation and characterization of spherical microparticles composed of artificial lignin and TEMPO-oxidized cellulose nanofiber	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Nanomaterials	6. 最初と最後の頁 917:1-12
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/nano11040917	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 -
1. 著者名 Naliharifetra Jessica Ranaivoarimanana, Kyohei Kanomata, Takuya Kitaoka	4. 巻 24
2. 論文標題 Concerted catalysis by nanocellulose and proline in organocatalytic Michael additions	5. 発行年 2019年
3. 雑誌名 Molecules	6. 最初と最後の頁 1231:1-10
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/molecules24071231	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 Kyohei Kanomata, Naoya Fukuda, Takuma Miyata, Pui Ying Lam, Toshiyuki Takano, Yuki Tobimatsu, Takuya Kitaoka	4. 巻 8
2. 論文標題 Lignin-inspired surface modification of nanocellulose by enzyme-catalyzed radical coupling of coniferyl alcohol in Pickering emulsion	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 ACS Sustainable Chemistry & Engineering	6. 最初と最後の頁 1185-1194
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1021/acssuschemeng.9b06291	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

〔学会発表〕 計43件 (うち招待講演 11件 / うち国際学会 17件)

1. 発表者名 北岡卓也
2. 発表標題 天然構造多糖のナノ・バイオマテリアルの未来探訪
3. 学会等名 紙パルプ技術協会木材科学セミナー (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Takuya Kitaoka
2. 発表標題 Cellulose and Chitosan Nanofibers for Green Organocatalysis
3. 学会等名 EPNOE (European Polysaccharide Network of Excellence) Junior Online Seminar 2020 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 北岡卓也
2. 発表標題 天然構造多糖のナノ・バイオマテリアルの新機能開拓
3. 学会等名 異分野技術の融合によるCNF社会実装促進事業、第3期 (2020年度) ナノセルロース塾 (招待講演)
4. 発表年 2020年

1. 発表者名 Takuya Kitaoka
2. 発表標題 Concept-driven trial and error to find out new functions of nanocellulose
3. 学会等名 257th American Chemical Society National Meeting & Exposition 2019 (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Kyohei Kanomata, Yusaku Hirayama, Yuya Tamura, Takuya Kitaoka
2. 発表標題 Surface-carboxylated nanocellulose as a crystalline polysaccharide catalyst for acetal hydrolysis and acid-base tandem reaction
3. 学会等名 257th American Chemical Society National Meeting & Exposition 2019 (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yusaku Hirayama, Kyohei Kanomata, Takuya Kitaoka
2. 発表標題 Chitosan nanofiber-catalyzed selective Knoevenagel condensation under green conditions
3. 学会等名 2019 TAPPI International Conference on Nanotechnology for Renewable Materials (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Kyohei Kanomata, Yusaku Hirayama, Yuya Tamura, Takuya Kitaoka
2. 発表標題 TEMPO-oxidized nanocellulose for heterogeneous catalysis
3. 学会等名 2019 TAPPI International Conference on Nanotechnology for Renewable Materials (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Xin Habaki, Kyohei Kanomata, Takuya Kitaoka
2. 発表標題 Proline-mediated organocatalytic aldol reaction on cellulose nanofibers
3. 学会等名 2019 TAPPI International Conference on Nanotechnology for Renewable Materials (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Naliharifetra Jessica Ranaivoarimanana, Kyohei Kanomata, Takuya Kitaoka
2. 発表標題 Concerted catalysis with cellulose nanofiber and proline toward highly-efficient organocatalytic Michael additions
3. 学会等名 2019 TAPPI International Conference on Nanotechnology for Renewable Materials (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Naoya Fukuda, Kyohei Kanomata, Takuma Miyata, Pui Ying Lam, Yuki Tobimatsu, Takuya Kitaoka
2. 発表標題 Structurally-regulated dehydrogenative polymerization of coniferyl alcohol on Pickering emulsion stabilized by nanocellulose
3. 学会等名 2019 TAPPI International Conference on Nanotechnology for Renewable Materials (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Takuya Kitaoka
2. 発表標題 Green Catalysis by Nanocellulose
3. 学会等名 International Conference on Adopting the Renewable Bioenergy and Waste Utilization to Support Circular Economy & Sustainable Environment (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Takuya Kitaoka
2. 発表標題 Magical nanocellulose: TEMPO-oxidized cellulose nanofibers for catalytic and advanced applications
3. 学会等名 Cellulose-based Biomaterials Workshop at King Mongkut's University of Technology North Bangkok (招待講演) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 北岡卓也
2. 発表標題 多糖高分子が構造制御する有機分子触媒反応の新機軸
3. 学会等名 高分子学会エコマテリアル研究会 (招待講演)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Yusaku Hirayama, Kyohei Kanomata, Takuya Kitaoka
2. 発表標題 Nanochitosan-catalyzed chemoselective Knoevenagel condensation under green conditions
3. 学会等名 6th International Polysaccharide Conference of EPNOE (European Polysaccharide Network of Excellence) (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 Xin Habaki, Kyohei Kanomata, Takuya Kitaoka
2. 発表標題 Cooperative catalysis with nanocellulose and proline in stereoselective aldol reactions
3. 学会等名 2018 Joint convention, the 61st Society of Wood Science and Technology (SWST) International Convention in cooperation with Japan Wood Research Society (JWRS) (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Naliharifetra Jessica Ranaivoarimanana, Kyohei Kanomata, Takuya Kitaoka
2. 発表標題 Organocatalytic Michael additions under mild conditions with efficient proline-mediated catalysis owing to cellulose nanofibers
3. 学会等名 Joint Seminar at Tainan: Development of Chemical Engineering, National Cheng Kung University and the Seibu-branch, the Cellulose Society of Japan (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 Yusaku Hirayama, Kyohei Kanomata, Takuya Kitaoka
2. 発表標題 Chitosan nanofiber-catalyzed chemoselective Knoevenagel condensation
3. 学会等名 Joint Seminar at Tainan: Development of Chemical Engineering, National Cheng Kung University and the Seibu-branch, the Cellulose Society of Japan (国際学会)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 北岡卓也
2. 発表標題 多糖ナノ界面が構造制御する有機分子触媒反応の開拓
3. 学会等名 第3回ナノセルロース展講演会 (招待講演)
4. 発表年 2018年

1. 発表者名 北岡卓也
2. 発表標題 構造多糖が構造制御する有機分子触媒反応
3. 学会等名 日本化学会第99春季年会Advanced Technology Program (招待講演)
4. 発表年 2019年

〔図書〕 計2件

1. 著者名 鹿又喬平、北岡卓也（分担執筆）	4. 発行年 2020年
2. 出版社 化学同人	5. 総ページ数 196
3. 書名 CSJカレントレビュー34 持続可能社会をつくるバイオプラスチック「セルロースナノファイバーが拓く界面触媒反応」	

1. 著者名 北岡卓也（分担執筆）	4. 発行年 2021年
2. 出版社 海青社	5. 総ページ数 254
3. 書名 木材科学講座4 木材の化学「セルロースナノファイバー」	

〔出願〕 計1件

産業財産権の名称 固体触媒、縮合反応生成物の製造方法、及びエステル交換反応抑制剤	発明者 平山祐作、鹿又喬平、北岡卓也	権利者 国立大学法人九州大学
産業財産権の種類、番号 特許、特願2018-205202	出願年 2018年	国内・外国の別 国内

〔取得〕 計0件

〔その他〕

生物資源化学研究室ホームページ http://bm.wood.agr.kyushu-u.ac.jp/
--

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
研究協力者	畠山 真由美 (HATAKEYAMA Mayumi) (20871437)	九州大学・農学研究院・学術研究員 (17102)	

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0件

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