



Title	Catalytic Conversion of Biomass-Derived Sugars to Renewable Chemicals [an abstract of dissertation and a summary of dissertation review]
Author(s)	楊, 程
Citation	北海道大学. 博士(理学) 甲第14910号
Issue Date	2022-03-24
Doc URL	http://hdl.handle.net/2115/85579
Rights(URL)	https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/
Type	theses (doctoral - abstract and summary of review)
Additional Information	There are other files related to this item in HUSCAP. Check the above URL.
File Information	YANG_Cheng_review.pdf (審査の要旨)



[Instructions for use](#)

学位論文審査の要旨

博士の専攻分野の名称 博士（理学） 氏名 楊 程

	主査	教授	長谷川 淳也
	副査	教授	向井 紳
審査担当者	副査	教授	清水 研一
	副査	准教授	中島 清隆
	副査	教授	福岡 淳

学位論文題名

Catalytic Conversion of Biomass-Derived Sugars to Renewable Chemicals
(バイオマス由来糖から再生可能化学品への触媒変換の研究)

バイオマスは再生可能な炭素資源として注目されている。本論文では、食品廃棄物に含まれる糖化合物を用いて有用化学品である糖アルコールを合成する触媒の開発を目的とした。ターゲットとする化合物は、グルコース由来のイソソルビドとキチン由来の 2-アセトアミド-2-デオキシイソソルビドである。キチン由来糖を用いれば、含窒素化合物を得られる可能性もある。さらに、サトウキビから糖抽出した後の糖蜜からイソソルビドを得る反応も検討している。これらの糖アルコールはポリマー原料としての用途が期待されている。

第 1 章では本論文の背景と目的について述べられている。

第 2 章では、キチン由来の窒素含有糖アルコール (2-アセトアミド-2-デオキシソルビトール、ADS) の縮合 5 員環化合物 (2-アセトアミド-2-デオキシイソソルビド、ADI) への 2 段階脱水について述べられている。脱水反応は、(i) ADS から無水 ADS (AHADS) への反応と (ii) AHADS から ADI への反応からなる。従来研究では、ADS と AHADS の塩基性アミド基がプロトンを強く捕捉して酸触媒の活性が低下するため、大量の超強酸の添加が必要であった。しかし、本論文では、亜リン酸 H_3PO_3 が弱い酸性度にもかかわらず、本反応において非常に高い活性を示すことを示している。機構研究から H_3PO_3 を用いると亜リン酸エステルが生成し、エステルの $P=O$ 基が容易にプロトン化されるため、脱水縮合が促進されることを明らかにした。

第 3 章では、 H_3PO_3 触媒をソルビトールからイソソルビドへの脱水縮合に適用している。この場合も H_3PO_3 は試験した弱酸の中で最も高い活性を示した。反応機構としては、第 2 章と同様に H_3PO_3 エステルを中間体としている。反応生成物として、ソルビタンとイソソルビドの亜リン酸エステルが得られるが、水中での還流により容易に加水分解されイソソルビドが高収率で得られ H_3PO_3 は回収できる。

第 4 章では、糖蜜からソルビトールを得るための前処理と触媒変換について検討が行われている。糖蜜には糖のほかに不純物も多く含まれている。特に有機硫黄化合物は、ラネー Ni 触媒を用いた糖蜜水素化の触媒毒となるが、粘土材料であるモンモリロナイト K10 (MK10) は、この有機硫黄化合物を選択的に吸着し、MK10 前処理によりソルビトールの収量が大幅に増加した。イソソルビドを単離するプロセスについても言及されている。

第 5 章では結果と考察をまとめ研究を総括している。

以上のように本論文ではバイオマス由来の糖からポリマー原料となり得る糖アルコールを合成する反応について、触媒調製法と反応法を検討することにより各種 C6 糖アルコールを合成する新たな高性能触媒の開発に成功している。さらに、反応機構の解析と合理的な推論により各触媒の特徴を明確にしている。これらは高い新規性・独創性を有しており、触媒化学に対して貢献するところ大なるものがある。

よって、著者は北海道大学博士（理学）の学位を授与される資格あるものと認める。