HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	触媒法による海洋バイオマス変換の研究［論文内容及び審査の要旨］
Author(s)	鉄地河原, 浩太
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(理学)
Dissertation Number	甲第13676号
Issue Date	2019-03-25
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/74101
Rights(URL)	https://creativecommons.org/licenses/by-nc-sa/4.0/
Type	doctoral thesis
File Information	Kota_Techikawara_review.pdf, 審査の要旨

Hokkaido University Collection of Scholarly and Academic Papers : HUSCAP

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　鉄地河原　浩太

審査担当者

主査	教授	佐田 和己
副査	教授	向井 紳
副査	教授	長谷川 淳也
副査	准教授	中島 清隆
副査	教授	福岡 淳

学 位 論 文 題 名

触媒法による海洋バイオマス変換の研究

キチンはカニの甲羅などに含まれ、豊富に存在する海洋バイオマスである。キチンはアセトアミド基をもつ N-アセチルグルコサミン (NAG) のポリマーであり、含窒素化合物の原料としての利用が期待できる。本論文では、触媒法によるキチン分解に関する研究を行っている。

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、酸と機械的な力を利用したキチンの加水分解について記されている。キチンは強固な結晶構造を有し反応性が低いが、少量の酸触媒とボールミルの機械的な力を組み合わせることで部分的な加水分解が進行し、水溶性のオリゴマーに変換できることを見出した。この機械的加水分解法では、機械的な力は長い分子鎖方向に対して張力として働くため、その結節点であるグリコシド結合に力が加えられる。しかし、NAG ユニット内に存在するアミド結合には大きな力は加わらない。そのため、アセチル基を残したままキチンを加水分解することが可能である。これにより水溶性のオリゴマーが高収率で得られている。さらにこのオリゴマーを熱水中で短時間処理することで、単量体がよい収率で得られることを見いだしている。

第 3 章では、含窒素糖アルコールである 2-アセトアミド-2-デオキシソルビトール (ADS) の合成を検討している。第 2 章で得られたキチンオリゴマーを利用し、担持ルテニウム触媒を用いて加水分解水素化することで、ADS の合成を企図した。ADS の収率を向上させるため、加水分解と水素化の工程を分け最適化した。まず、pH 2、175 ℃の高温条件で NAG を収率 61　第 4 章では、NAG からアミノ酸誘導体の合成について検討している。塩基性条件下で NAG のレトロアルドール反応と水素化反応により、まず N-アセチルエタノールアミン (AMEA) が得られる。さらに AMEA を酸素で酸化することで標準アミノ酸誘導体であるアセチルグリシン (AcGly) の合成を企図した。反応条件を検討した結果、NAG を炭酸水素ナトリウム水溶液中、担持ルテニウム触媒によって 120 ℃で水素化することにより、アセチル基の脱離を抑制しながら AMEA を収率 15　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、本論文では触媒によるキチンの分解について、反応機構の考察に基づく反応条件の最適化により、モノマーである NAG を高収率で合成できること、NAG の水素化により対応する糖アルコールが得られること、さらには NAG のレトロアルドール反応と水素化・酸化を組み合わせることにより、アミノ酸誘導体を合成できるという新規性・独創性の高い知見を得ており、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。