



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	Transformation of Sugar-Derived Compounds over Supported Metal Catalysts [an abstract of dissertation and a summary of dissertation review]
Author(s)	Yayati, Naresh Palai; ヤヤティ, ナレシュ パライ
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(理学)
Dissertation Number	甲第14907号
Issue Date	2022-03-24
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/85582
Rights(URL)	https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/
Type	doctoral thesis
File Information	Yayati_Naresh_Palai_review.pdf, 審査の要旨



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 パライ ヤヤティ ナレシユ

審査担当者	主査	教授	長谷川 淳也
	副査	教授	向井 紳
	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

Transformation of Sugar-Derived Compounds over Supported Metal Catalysts
(担持金属触媒による糖化合物の変換)

化成品の原料として非食用リグノセルロース系バイオマスを使用することは、化学プロセスのカーボンニュートラル化の観点から重要である。炭素数 2、3、5、6 の化学品は、バイオマス由来の 5～6 炭糖から容易に合成できるが、炭素数 4 の化学品合成は困難である。本論文では、バイオマス由来糖を炭素数 4 の化学品に変換する触媒の研究を行っている。

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、グルコースからフルクトースへの異性化について記されている。グルコースは最も豊富に存在するバイオマス由来糖であり、フルクトースへの変換は各種化学品合成の最初のステップである。本論文ではグルコース異性化のために、SBA15 の表面にルイス酸点となる Sn 種を高分散担持する手法がとられている。表面 Sn 種は四面体構造をもちルイス酸性を示す。この Sn-SBA15 触媒はグルコースからフルクトースへの異性化において、従来の Sn-Beta 触媒の 2 倍のターンオーバーを示し、高活性を示すことが分かった。

第 3 章では、フルフラールの酸化的 C-C 開裂によるコハク酸合成について述べられている。含浸法で調製したルイス酸性 Sn-ベータ触媒を用いると、フルフラールから良好な選択性でコハク酸が得られることが分かった。また、2(3H)-フラノンが重要な中間体であることが判明し、Sn-ベータはフルフラールのバイヤービリガー酸化により 2(3H)-フラノンの生成を促進する。ルイス酸触媒として TS-1 を使用した場合にはマレイン酸が主生成物となるが、これは M-OOH 種が生成しフルフラールのエポキシ化が促進されるためである。同様に、ブレンステッド酸性 HBeta-38 ゼオライトは、過酸化水素と反応して生成物の混合物を与える。フルフラールを活性化し、過酸化水素とは直接反応しないという性質により、Sn-Beta はこの反応に適した触媒になることが記されている。

第 4 章では、コハク酸から γ -ブチロラクトン (GBL) への触媒変換が述べられている。GBL は、非プロトン性溶媒および中間原料として注目されている C4 化合物である。既存の反応では溶媒として 1,4-ジオキサンが使われている。本論文では、水溶媒中で Ru/V₂O₃ 触媒により反応が加速されることを見いだしている。機構研究から、SMSI 効果により生成した Ru 金属と V₂O₃ の界面でコハク酸が吸着活性化を受けることが示唆されている。

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糖から C4 化合物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、コハク酸や GBL 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、反応機構の詳細な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。