

リグノセルロースの成分分離と水素化による物質変換

高田, 依里

<https://doi.org/10.15017/1470628>

出版情報：九州大学, 2014, 博士（農学）, 課程博士
バージョン：
権利関係：全文ファイル公表済

氏 名	高田 依里		
論 文 名	リグノセルロースの成分分離と水素化による物質変換		
論文調査委員	主 査	九州大学 教授 堤 祐司	
	副 査	九州大学 教授 北岡 卓也	
	副 査	宮崎大学 工学教育研究部 教授 田畑 研二	

論 文 審 査 の 結 果 の 要 旨

循環型社会への転換には、再生産可能な有機性資源であるリグノセルロースから燃料や化成品原料を生産する、バイオリファイナリーの研究開発が必須である。総合的なリグノセルロースの利用においては、各構成成分の選択的分解・分離による単糖や芳香族化合物の生成、および標的化合物への変換など、様々な要素技術の開発が希求されている。そこで本研究では、エネルギー作物のひとつであるネピアグラスを原料とし、リグノセルロースバイオリファイナリーの発展に資するリンオキソ酸を用いた成分分離と、分離成分の水素化処理による高付加価値物質への変換を試みた。

リグノセルロースからの単糖生成は、バイオリファイナリーにおける重要なプロセスのひとつである。そこで、従来使用してきた硫酸よりも腐食性が低いリン酸を用い、リン酸水熱処理によるネピアグラスからの単糖生成を試みた。160~280°Cで希リン酸(3.0 wt%)水熱処理を行った場合、160°Cの処理によってキシロースは高収率で生成できるものの、いずれの条件でもセルロースからのグルコース生成はわずかであった。そこで、濃リン酸(85 wt%)を用いた60°Cの1段目処理と、希リン酸水熱処理による組み合わせ処理を試みた。その結果、1段目処理によってセルロースの結晶構造を膨潤させ、続く200°Cの希リン酸水熱処理によってセルロースの加水分解を大きく促進させることで、グルコースを理論収量の50.0%の収率で獲得することに成功した。加えて、1段目の処理では、理論収量に対し77.2%のキシロースを得た。濃リン酸処理でリグノセルロースから選択的にキシロースを得、さらに後段の希リン酸水熱処理でセルロース加水分解の高効率化を達成しうる本処理法は、これまでに報告例のない新規プロセスである。

ヘミセルロースから得られるキシロースやフルフラールは、バイオリファイナリーにおける重要な中間体化合物である。そこで本研究では、リンオキソ酸であるリン酸と亜リン酸を用いた希酸水熱処理を行い、ネピアグラスから選択的かつ高収率にキシロース、あるいはフルフラールを生成可能なプロセスを確立した。また、亜リン酸はリン酸と比べてキシロースの脱水反応を抑制することも明らかにした。さらに、これらキシラン加水分解物を活性炭担持パラジウム触媒存在下で直接水素化することによって、より高付加価値な物質への変換を試み、ネピアグラスキシランに対し51.6%のキシリトールを、また41.4%のテトラヒドロフルフリルアルコールを得ることに成功した。加水分解物の水素化反応では、溶液中のキシロースならびにフルフラールの濃度が標的化合物の収率に大きく影響する因子であることも見出した。

以上要するに、本論文は、リンオキソ酸水熱処理によってリグノセルロースから単糖やフルフラールを選択的に生成可能な条件を明らかにするとともに、得られたリグノセルロース加水分解物を直接水素化することによって高付加価値物質へと高効率に変換する新規プロセスを確立したものであり、森林生物化学およびサステイナブル資源科学の発展に寄与する価値ある業績である。よって、本研究者は博士（農学）の学位を得る資格を有するものと認める。