

審査の結果の要旨

氏名 チャン ゴック リン

本論文は、「Production of value-added lignin-derived chemicals from rice straw and their adsorptive separation using zeolites (稲わらからのリグニン由来付加価値物質の生産とゼオライトを用いた吸着分離)」と題し、リグニン由来付加価値物質であるクマル酸 (PCA)、フェルラ酸 (FA) を農業残渣である稲わらから経済的に単離することを目的として、これらを生産するための反応プロセスの開発から、ハイシリカゼオライトを用いた吸着分離プロセスの構築までを一貫して行なったものであり、全6章からなる。

第1章は緒論であり、農業残渣である稲わらの利活用について、その将来的な重要性を指摘し、主要成分のひとつであるリグニンからの機能性物質の回収について広範な知見を整理している。なかでも、PCA、FA は多様な機能を有しており、バイオマテリアルの原料としても期待されることから、本論文における回収対象物質に設定している。しかしながら、植物系バイオマスからこれらを経済的に溶出させ、高精度に分離する方法については、既往の研究ではほとんど検討されていないことを指摘している。このため、本論文の目的を、上記の要素技術を開発し、稲わらからの PCA、FA の製造プロセスを確立することであると示し、本論文の構成を示している。

第2章では、稲わら中のエステル結合由来のPCA、FAに着目し、経済的な溶出反応プロセスの構築を目的として、稲わらのアルカリ処理におけるPCA、FAの溶出速度について実験的に検討し、整理している。その結果、エステル結合由来のPCA、FAについては、温和な条件 (NaOH 0.2M、60°C、7h) でもほぼ100%溶出可能であることを明らかにしている。しかし、アルカリ処理液中には、PCA、FAが極低濃度 (濃度0.1wt%以下) でしか含まれておらず、また、構造や性質が類似するリグニン由来芳香族が多く共存するため、PCA、FAをアルカリ処理液から単離するには、従来の分離法では対応できず、新規分離プロセスの開発の重要性を指摘している。

第3章では、ハイシリカゼオライト (silicalite-1、zeolite beta) を用いた吸着分離プロセスを開発するために、リグニン由来芳香族について、ゼオライトへの液相吸着挙動を体系的に整理している。PCA、FA などのリグニン由来芳香族は一般的にカルボキシル基を有するものが多いが、そのような芳香族化合物については特異的な吸着平衡および吸着速度の挙動が現れることを見出しており、そのような特性に基づいた新規分離方法を提案している。また、ゼオライトのサイズ排除特性と上記の特性を適切に組み合わせて利用することで、選択的に PCA や FA をゼオライトの細孔内に吸着・濃縮することが可能であることを実験的に示している。

第4章では、ゼオライトに吸着したPCAやFAを経済的に脱着・回収するために、脱着溶媒や脱着条件について検討している。経済性の観点から、pH10前後のアルカリ溶媒が脱着溶媒として最適であると結論づけており、吸着剤から99%以上の回収率で回収可能であり、また、アルカリ溶媒中に高度に濃縮できることを実験的に示している。最終的には、脱着溶液（アルカリ溶媒）のpHを2程度まで下げることによって、脱着溶媒中のPCAを晶析により固体として回収可能なことを実証している。

第5章では、第2~4章で得られた結果に基づき、製造プロセスの枠組みを決定し、実際に稲わらからのPCA、FAの製造を試みている。その結果、PCAについては99%以上の純度での単離に成功している。一方で、FAについてはプロセスの最適化を試みたものの、製品純度は40%程度にとどまっている。FAの純度を改善するためには、プロセスの改善だけでなく、吸着剤の性能の向上が必要であると結論付けており、具体的な吸着剤の候補やその合成方法について展望を述べている。PCAについては、製造コストの試算を行うことによって、提案プロセスの経済性が十分に成り立つことを明らかにしている。また、本プロセスをバイオエタノール製造プロセスと融合することにより、更に経済的な複合生産プロセスの構築が可能であると結論づけている。

第6章は結論であり、本論文の内容を総括した上で、今後の研究課題の整理と将来展望を行っている。

以上要するに本論文は、稲わらからのPCA、FAの経済的な製造プロセスを構築したものであり、工学的に高い価値を有し、吸着工学および化学システム工学への貢献は大きい。

よって、本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。