

e-ASIA JRP(先端融合/代替エネルギー) 2024 年度 年次報告書	
研究課題名（和文）	革新的固体触媒技術によるパーム残渣物の利活用
研究課題名（英文）	Advanced Catalytic Technologies for Utilization of Oil Palm Empty Fruit Bunch
日本側研究代表者氏名	横井俊之
所属・役職	東京工業大学・准教授
研究期間	2023 年 4 月 1 日 ~ 2026 年 3 月 31 日

1. 日本側の研究実施体制

氏名	所属機関・部局・役職	役割
横井 俊之	東京工業大学・科学技術創成研究院・准教授	触媒調製・活性評価
中島 清隆	北海道大学・触媒科学研究所・教授	触媒調製・活性評価
大須賀 遼太	北海道大学・触媒科学研究所・助教	触媒解析・反応機構解析

2. 日本側研究チームの研究目標及び計画概要

2024 年度は、前年度までに選定した有効な触媒の候補を踏まえて高活性な触媒の設計・合成を推進する（WP1, WP3）。ターゲット反応としては、前年度に引き続き、グルコースからの 5-ヒドロキシメチルフルフラール（HMF）およびそのアセタール体の合成を検討する。加えて、金属含有ゼオライト触媒を用いたバイオマス由来フラン化合物の水素化脱酸素反応についても検討を開始する。物性評価・解析班（WP2）は、WP1 が合成した触媒のキャラクタリゼーションを実施する。前年度までに得られた結果も踏まえ、最終年度に向けて、各ターゲット反応に対する明確な触媒設計指針を提案する。

3. 日本側研究チームの実施概要

日本側研究チームは、昨年度に引き続き、3つのワークパッケージ（WP）体制（WP1：触媒調製、WP2：物性評価および反応機構解析、WP3：触媒活性評価）で研究活動を推進した。2年度目となる2024年度は、昨年度までに選定した触媒群を基にした高性能な固体触媒の合成（WP1）、得られた触媒の詳細な構造解析（WP2）および触媒活性評価（WP3）を実施した。具体的には以下の事項に取り組んだ。

WP1: 触媒調製

昨年度までの検討において、グルコースの脱水反応に対して、Snを含有したゼオライト触媒が有望であることが示唆されたため、新規Sn含有ゼオライトの合成に着手した。特に基質の拡散性を考慮し、大細孔ゼオライトの合成に注力した。結果として、Snを骨格内に含有したCON型、MSE型ゼオライトの合成に成功した。また、金属酸化物触媒に関しては、低原子価なニオブ酸化物（ NbO_2 ）の調製に取り組んだ。種々の検討から、非晶質および結晶性 Nb_2O_5 の水素還元により、比較的簡便な手法で NbO_2 が得られることを確認できた。加えて、 NbO_2 は、一度酸化された後でも同様の水素還元で再生できることがわかった。

WP2: 物性評価および反応機構解析

本年度は主にIRを用いた触媒のキャラクタリゼーションについて検討を進めた。特に液相での固体触媒の酸性質評価に注力した。液相中での固体触媒上の酸点のキャラクタリゼーションは、触媒反応の活性化過程を理解する上で重要な情報を与える。本年度は、バイオマス由来糖類であるグルコースの脱水反応に有効な金属酸化物触媒の酸性質評価を中心に検討を進めた。独自のセットアップを用いて、液相（エタノール溶媒中）での Nb_2O_5 へのピリジン（固体酸性質評価における一般的なプローブ分子）吸着IR測定を行ったところ、 Nb_2O_5 のルイス酸点に配位したピリジン種が観測された。このような種は水溶媒中では観測されなかったことから、溶媒の種類によって固体触媒表面のルイス酸点の働きが異なることが示唆された。

WP3: 触媒活性評価

Sn含有ゼオライトおよびメソポーラスシリカを用いたグルコースの脱水反応による5-ヒドロキシメチルフルフラール（HMF）合成、低原子価ニオブ酸化物（ NbO_2 ）によるキシロースの脱水反応、担持金属触媒によるバイオマス由来フラン化合物の官能基変換を中心に検討を行った。グルコースの脱水反応においては、Sn含有メソポーラスシリカが良好な触媒活性を示すことが認められた。また、 NbO_2 はリン酸処理を施すことでキシロースの脱水反応において、特異的なフルフラール選択性を示すことが明らかとなった。フラン化合物の官能基変換については、HMFを中心に検討を行った。HMFの有する反応性の高いホルミル基をアセタールで保護することで、反応基質濃度が10 wt%を超える高濃度系においても高効率に反応が進行することを見出した。HMF-アセタールの酸化的エステル化反応においては、10wt%の基質濃度条件においても80%以上の目的物（2,5-フランジカルボン酸ジメチル）収率が達成された。