

DFT 計算による糖変換反応における触媒設計

(株式会社アイシン¹、北海道大学²) ○津田 宗幸¹、東田 憲太郎¹、久世 卓也¹、高野 一史¹、宮崎 玲²、長谷川 淳也²

DFT study on the catalyst design for sugar conversion reactions (¹*AISIN CORPORATION*, ²*Hokkaido University*) ○Muneyuki Tsuda¹, Kentaro Toda¹, Takuya Kuze¹, Kazufumi Kono¹, Ray Miyazaki², Jun-ya Hasegawa²

Polylactic acid (PLA), a type of bioplastic, has higher production costs compared to conventional petroleum-based plastics. To reduce the costs, it is essential to develop catalysts that enhance the yield of lactic acid. This study focuses on the reaction that converts glucose, a monosaccharide, into lactic acid. The conversion reaction can be primarily divided into three steps: (1) the isomerization of glucose, (2) the retro-aldol reaction of fructose, and (3) the isomerization of C3 intermediates. Since steps (1) and (3) are assumed to proceed via similar mechanisms, this study focuses on steps (1) and (2). Quantitative evaluation of lactic acid yield is generally challenging. Therefore, in this study, density functional theory (DFT) calculations of lactic acid and the energetic span model¹⁾ were used to predict trends in yield. As the catalyst, a cluster model of beta-type zeolite supported with metals was adopted. The metals considered were Sn, In, and Pd, which were pre-screened and supposed to be incorporated into the zeolite framework (referred to as Sn-BEA, In-BEA, and Pd-BEA, respectively). The energetic span of Sn-BEA was estimated to be 24.1 kcal/mol for step (1) (involving intramolecular and molecule-catalyst hydrogen transfer) and 33.5 kcal/mol for step (2) (involving C-C bond cleavage and molecule-catalyst hydrogen transfer). The results for In-BEA and Pd-BEA will be discussed during the presentation.

Keywords : *Ab initio calculations, Density functional theory, Energetic span model, Biomass, Catalyst*

バイオプラスチックであるポリ乳酸は、従来の石油由来プラスチックに比べて製造コストが高い。このコストを削減するためには、乳酸の収率を高める触媒の開発が必要である。本研究では、単糖であるグルコースを乳酸に変換する反応に焦点を当てる。この変換反応は主に3つのステップに分けられる：①グルコースの異性化反応、②フルクトースのレトロアルドール反応、③C3 中間体の異性化反応である。①と③は同様のメカニズムで進行すると考えられるため、本研究では①と②に絞って検討を行う。乳酸の収率を定量的に評価することは一般的に困難である。そこで、本研究では乳酸の DFT 計算とエネルギー-spanモデル¹⁾を用いて、収率の傾向を予測した。触媒としては、金属を担持したベータ型ゼオライトのクラスターモデルを採用した。担持する金属としては、事前にスクリーニングされた Sn、In、Pd を考慮し、これらの金属がゼオライトの骨格に組み込まれることを想定している（それぞれ Sn-BEA、In-BEA、Pd-BEA と記載）。Sn-BEA のエネルギー-spanは、①の反応で 24.1 kcal/mol（分子内および分子-触媒間の水素移動）、②の反応で 33.5 kcal/mol（C-C 結合の切断および分子-触媒間の水素移動）と見積もられた。In-BEA および Pd-BEA の結果については、当日議論する予定である。

1) S. Kozuch and S. Shaik, *Acc. Chem. Res.* **2011**, 44, 101-110.