

地球環境と調和する物質変換の基盤科学の創成
2022 年度採択研究代表者

2022 年度
年次報告書

永島 裕樹

産業技術総合研究所 材料・化学領域触媒化学融合研究センター
主任研究員

固体触媒を対象とした固体 DNP-NMR 表面構造解析の基盤技術開発

研究成果の概要

固体触媒の DNP-NMR 構造解析を実施するための各要素技術である ^{17}O 同位体ラベル処理法の構築、新規パルスシーケンスの開発の検討を始めた。

^{17}O 同位体ラベル処理については、メカノケミカル法とスラリー法について検討を開始した。ジルコニア製のボールと粉碎ジャーでは衝撃力が高いため、ゼオライト(NaY 型)では ^{29}Si と XRD の結果からほとんどの結晶性が失われることがわかった。さらにジルコニア製粉碎ジャーとテフロン製ボールを組み合わせた場合でも結晶性成分の低下が見られた。一方、粉碎ジャーとボールの両方をテフロン製にしたところ、結晶性の低下はあまり見られなかった。今後、ボールミルの周波数条件を小さくして衝撃力をより小さくして検討する。スラリー法ではゼオライト試料(NaY)、シリカアルミナ試料ともに既報と同様のラベル処理ができていることを確認し、 ^{29}Si と XRD によって構造は変化がないことを確認した。これら試料に対して、DNP による ^{17}O MQMAS スペクトルの取得を達成した。この他にメカノケミカル ^{17}O ラベル処理した基本的な固体触媒担体の DNP による ^{17}O MQMAS スペクトルを取得した。

新規パルスシーケンス開発では D-RINEPT-FSLG-QCPMG シーケンスを構築し、DNP-NMR 測定において、 ^1H - ^{17}O 二次元相関スペクトルの測定を達成することができた。MQMAS 測定の要素技術である MQ 励起方法についての検討が論文化した¹⁾。今後、D-RINEPT-MQMAS 法に上記方法を組み込むことができる。

【代表的な原著論文情報】

1) A. Sasaki, J. Tréboss, H. Nagashima, J.-P. Amoureux, On the applicability of cosine-modulated pulses for high-resolution solid-state NMR of quadrupolar nuclei with spin $> 3/2$, *Solid State Nucl. Magn. Reson.* 2023, 125, 101863.