

論文内容の要旨

博士論文題目： Design and synthesis of new transition metal complex catalysts for synthesis of new polyolefins

(新規オレフィン系ポリマーの創製を可能とする高性能分子触媒の設計・創製)

氏名： 板垣 浩司

(論文審査結果の要旨)

【背景】遷移金属触媒を用いる配位重合は、高分子製品の生産量の半分を占めるポリオレフィンの基幹製造技術で、近年では従来の触媒で合成できない新規高分子材料の創製を可能とする高性能錯体触媒の開発が注目を集めている。

【目的】本博士論文では、配位子の異なる非架橋型の第4族遷移金属錯体の合成と構造解析、及び同錯体触媒によるエチレン重合や共重合における触媒活性やオレフィンの相対反応性への配位子効果の解明、触媒の特徴を生かした新しいエチレン系共重合体の精密合成と熱物性・構造解析に取り組み、高機能材料の創製に有効な高性能分子触媒の設計指針の確立を目的とした。

【結果】非架橋型のフェノキシ配位ハーフチタノセン錯体触媒を用い、エチレンと2置換オレフィンや嵩高い1置換オレフィンとの共重合体の精密合成に成功した。また、使用する錯体の中心金属や配位子が、触媒活性種の安定化や置換オレフィンとの反応性に強く影響を与えることを明らかにした。さらにエチレンと非共役ジエンとの共重合とつづくエポキシ化により、温和な条件下での極性官能基を有するポリオレフィンの効率的な精密合成に成功した。

トリス(ピラゾリル)ボレート配位子を有する各種フェノキシ配位チタン錯体を合成・同定し、エチレン重合における触媒活性への配位子効果を解明した。また、単離したカチオン性のメチル錯体が重合における触媒活性種となり、助触媒なしでも触媒反応が進行することを明らかにした。

【結論】非架橋型のチタン錯体触媒を用いるオレフィン重合における触媒活性やオレフィンの反応性への配位子効果を基に、新規ポリマーの創製に有効な高性能分子触媒の設計指針に関する基礎的かつ有用な知見を得た。さらにその特長を生かした新しいオレフィン系ポリマーの創製に成功した。

(論文審査結果の要旨)

遷移金属触媒を用いる配位重合は、高分子製品の生産量の半分を占めるポリオレフィンの基幹製造技術で、近年、従来の触媒で合成できない新規高分子材料の創製を可能とする高性能錯体触媒の開発が活発に行われている。

本博士論文では特に高性能分子触媒の設計指針の確立を目的に、(1) 配位子や配位子上の置換基の異なる非架橋型の第4族遷移金属錯体の合成と構造解析、及び同錯体触媒によるエチレン重合や共重合における触媒活性やオレフィンの相対反応性への配位子効果の解明、(2) 錯体触媒の特徴を生かした新しいエチレン系共重合体の精密合成と熱物性・構造解析に取り組み、以下の成果を得た。

1. 非架橋型のフェノキシ配位ハーフチタノセン錯体触媒を用いると、従来の触媒では報告例の希少な分子量・組成の均一なエチレンと2置換オレフィンや嵩高い1置換オレフィンとの共重合体が効率よく精密合成でき、使用する配位子が触媒活性種の安定化や置換オレフィンとの反応性に強く影響を与えることを明らかにした。さらにエチレンと非共役ジエンとの共重合による側鎖オレフィンを有するポリマーの精密合成とつづくエポキシ化により、温和な条件下での極性官能基を有するポリオレフィンの効率的な精密合成に成功した。
2. フェノキシ配位子上に嵩高い置換基を有する各種4族ハーフメタロセン錯体を合成・構造決定し、同錯体触媒によるエチレン重合での触媒活性や共重合におけるオレフィンの相対反応性が中心金属や配位子上の置換基の影響を強く受けることを明らかにした。
3. トリス(ピラゾリル)ボレート配位子を有する各種フェノキシ配位チタンジクロロ錯体やジメチル錯体を合成し、その構造を決定するとともに、エチレン重合への配位子効果に関する知見を得た。また、単離したカチオン性メチル錯体がエチレン重合の触媒活性種となることを明らかにした。

以上の様に、本博士論文では、高性能分子触媒の設計指針の確立とその特徴を生かした新しい高分子機能材料の創製に成功し、その成果は実用的のみならず学術的に極めて有用な知見である。よって、審査委員一同は本論文が博士(工学)の学位論文として価値あるものと認めた。