

【公報種別】特許法第 17 条の 2 の規定による補正の掲載

【部門区分】第 3 部門第 3 区分

【発行日】平成23年3月10日(2011.3.10)

【公表番号】特表2011-500901(P2011-500901A)

【公表日】平成23年1月6日(2011.1.6)

【年通号数】公開・登録公報2011-001

【出願番号】特願2010-529215(P2010-529215)

【国際特許分類】

C 0 8 F 4/654 (2006.01)

C 0 8 F 10/00 (2006.01)

【F I】

C 0 8 F 4/654

C 0 8 F 10/00 5 1 0

【手続補正書】

【提出日】平成23年1月20日(2011.1.20)

【手続補正 1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

マグネシウム化合物担持非メタロセン触媒を製造する方法であって、

マグネシウム化合物に、化学的処理剤および非メタロセン配位子の 2 者のうちの一方を接触させて接触生成物を得る接触工程（ここで化学的処理剤は、第 IVB 族金属化合物の群から選ばれる）；ならびに

前記接触生成物を、化学的処理剤および非メタロセン配位子の 2 者のうちの他方によって処理して、マグネシウム化合物担持非メタロセン触媒を得る処理工程を含む方法。

【請求項 2】

前記接触工程の前に、マグネシウム化合物を、アルミノキサン、アルキルアルミニウムおよびその組合せからなる群から選ばれる予備処理剤によって予備処理することを特徴とする請求項 1 に記載の方法。

【請求項 3】

マグネシウム化合物が、テトラヒドロフランおよびアルコールからなる混合溶媒中のマグネシウム化合物の溶液に沈殿剤を添加することによって沈殿させて生成する変性マグネシウム化合物であることを特徴とする請求項 1 または 2 に記載の方法。

【請求項 4】

マグネシウム化合物が、マグネシウムハロゲン化物、エトキシマグネシウムハロゲン化物、エトキシマグネシウムおよびブトキシマグネシウムからなる群から選ばれる 1 種またはそれ以上の化合物であることを特徴とする請求項 1 に記載の方法。

【請求項 5】

第 IVB 族金属化合物が、第 IVB 族金属ハロゲン化物であることを特徴とする請求項 1 に記載の方法。

【請求項 6】

第 IVB 族金属ハロゲン化物が、チタンテトラクロリドおよびジルコニウムテトラクロリドからなる群から選ばれる 1 又はそれ以上であることを特徴とする請求項 5 に記載の方法。

**【請求項 7】**

接触工程を、非メタロセン配位子を用いて行う場合に、非メタロセン配位子のマグネシウム化合物（Mg基準）に対するモル比が1対1 - 10であり、化学的処理剤（第IVB族金属基準）の非メタロセン配位子に対するモル比が1対0.1 - 1であることを特徴とする請求項1に記載の方法。

**【請求項 8】**

非メタロセン配位子のマグネシウム化合物（Mg基準）に対するモル比が1対3 - 7であり、化学的処理剤（第IVB族金属基準）の非メタロセン配位子に対するモル比が1対0.3 - 0.9であることを特徴とする請求項7に記載の方法。

**【請求項 9】**

接触工程を、化学的処理剤を用いて行う場合に、化学的処理剤（第IVB族金属基準）のマグネシウム化合物（Mg基準）に対するモル比が1対0.1 - 100であり、非メタロセン配位子の接触生成物に対する比（質量基準）が0.01 - 0.50対1であることを特徴とする請求項1に記載の方法。

**【請求項 10】**

化学的処理剤（第IVB族金属基準）のマグネシウム化合物（Mg基準）に対するモル比が1対0.5 - 50であり、非メタロセン配位子の接触生成物に対する比（質量基準）が0.10 - 0.30対1であることを特徴とする請求項9に記載の方法。

**【請求項 11】**

アルコールが脂肪族アルコールであることを特徴とする請求項3に記載の方法。

**【請求項 12】**

脂肪族アルコールが、エタノールおよびブタノールからなる群から選ばれる1種又はそれ以上であることを特徴とする請求項11に記載の方法。

**【請求項 13】**

マグネシウム化合物（Mg基準）のテトラヒドロフランに対するモル比が1対5 - 100であり、マグネシウム化合物（Mg基準）のアルコールに対するモル比が1対0.5 - 20であることを特徴とする請求項3に記載の方法。

**【請求項 14】**

マグネシウム化合物（Mg基準）のテトラヒドロフランに対するモル比が1対10 - 30であり、マグネシウム化合物（Mg基準）のアルコールに対するモル比が1対1 - 8であることを特徴とする請求項13に記載の方法。

**【請求項 15】**

沈殿剤のテトラヒドロフランに対する体積比が1対0.5 - 6であることを特徴とする請求項3に記載の方法。

**【請求項 16】**

沈殿剤のテトラヒドロフランに対する体積比が1対1 - 4であることを特徴とする請求項15に記載の方法。

**【請求項 17】**

沈殿剤が、アルカンおよび環式アルカンからなる群から選ばれる1種又はそれ以上のものであることを特徴とする請求項3に記載の方法。

**【請求項 18】**

沈殿剤が、ペンタン、ヘキサン、ヘプタン、デカンおよびシクロヘキサンからなる群から選ばれる1種又はそれ以上のものであることを特徴とする請求項17に記載の方法。

**【請求項 19】**

予備処理剤が、メチルアルミノキサン、イソブチルアルミノキサン、トリエチルアルミニウムおよびトリイソブチルアルミニウムからなる群から選ばれる1種又はそれ以上のものであることを特徴とする請求項2に記載の方法。

**【請求項 20】**

マグネシウム化合物（Mg基準）の予備処理剤（Al基準）に対するモル比が、1対0.5 - 8であることを特徴とする請求項2に記載の方法。

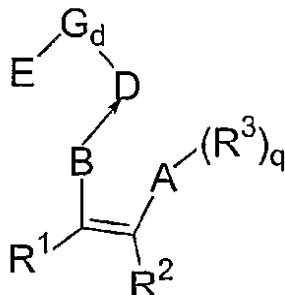
## 【請求項 2 1】

マグネシウム化合物（Mg基準）の予備処理剤（Al基準）に対するモル比が、1対1 - 2であることを特徴とする請求項 2 0 に記載の方法。

## 【請求項 2 2】

前記非メタロセン配位子が、以下の構造：

## 【化 1】



[ 式中、

qは0もしくは1であり；

dは0もしくは1であり；

A は、酸素原子、硫黄原子、セレン原子、 $\begin{array}{c} \diagup \\ \text{NR}^{22} \\ \diagdown \end{array}$ 、 $-\text{NR}^{23}\text{R}^{24}$ 、 $-\text{N}(\text{O})\text{R}^{25}\text{R}^{26}$ 、 $\begin{array}{c} \diagdown \\ \text{PR}^{27} \\ \diagup \end{array}$ 、 $-\text{PR}^{28}\text{R}^{29}$ 、 $-\text{P}(\text{O})\text{R}^{30}\text{OR}^{31}$ 、スルホン基、スルホキシド基および $-\text{Se}(\text{O})\text{R}^{39}$  からなる群から選ばれる基であり；

B は、窒素含有基、リン含有基および  $\text{C}_1-\text{C}_{30}$  炭化水素基からなる群から選ばれる基であり；

D は、酸素原子、硫黄原子、セレン原子、窒素含有  $\text{C}_1-\text{C}_{30}$  炭化水素基、リン含有  $\text{C}_1-\text{C}_{30}$  炭化水素基、スルホン基、スルホキシド基、 $\begin{array}{c} \diagup \\ \text{NR}^{22} \\ \diagdown \end{array}$ 、 $-\text{N}(\text{O})\text{R}^{25}\text{R}^{26}$ 、 $\begin{array}{c} \diagdown \\ \text{PR}^{27} \\ \diagup \end{array}$ 、および  $-\text{P}(\text{O})\text{R}^{32}(\text{OR}^{33})$  からなる群から選ばれる基（ここで、N、O、S、Se および P はそれぞれ配位原子を表わす）であり；

Eは、窒素含有基、酸素含有基、硫黄含有基、セレン含有基およびリン含有基からなる群から選ばれる基（ここで、N、O、S、SeおよびPはそれぞれ配位原子を表わす）；

Gは、 $\text{C}_1-\text{C}_{30}$  炭化水素基、置換 $\text{C}_1-\text{C}_{30}$  炭化水素基、および不活性な官能基からなる群から選ばれる基；

記号→は、単結合または二重結合を表わしており；

記号-は、共有結合またはイオン結合を表わしており；

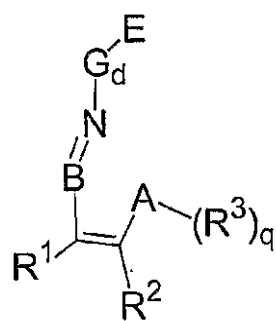
$\text{R}^1 \sim \text{R}^3$ 、 $\text{R}^{22} \sim \text{R}^{33}$  および  $\text{R}^{39}$  は、水素、 $\text{C}_1-\text{C}_{30}$  炭化水素基、ハロゲン原子、置換 $\text{C}_1-\text{C}_{30}$  炭化水素基および不活性な官能基の群からそれぞれ独立して選ばれ、ここでこれらの基は同じであってもよいし、また互いに異なってもよく、隣接するいずれか2つもしくはそれ以上の基は互いに結合しまたは環を形成していてもよい。]

を有する化合物からなる群から選ばれることを特徴とする請求項 1 に記載の方法。

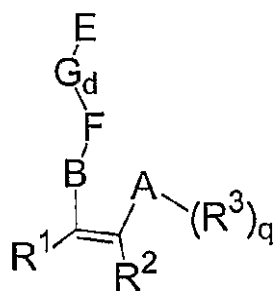
## 【請求項 2 3】

前記非メタロセン配位子が、次の構造（A）および（B）：

## 【化 2】



(A)、および



(B)

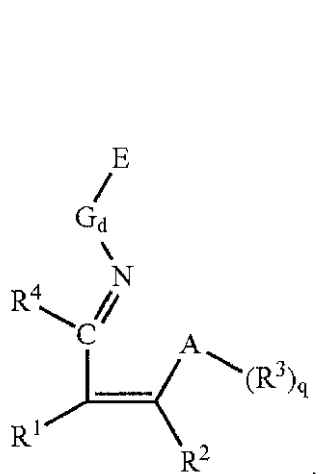
[式中、Fは、窒素含有基、酸素含有基、硫黄含有基、セレン含有基およびリン含有基からなる群から選ばれ、ここでN、O、S、SeおよびPはそれぞれ配位原子を表わし、その他の基は請求項22の規定と同じである。]

の群から選ばれることを特徴とする請求項22に記載の方法。

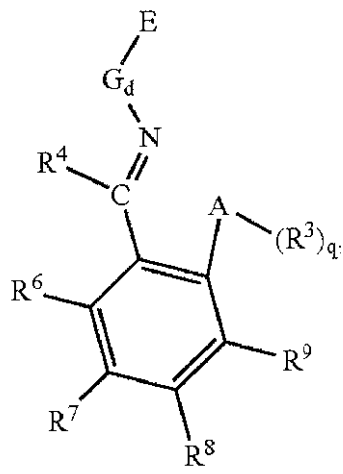
## 【請求項24】

前記非メタロセン配位子が、次の構造A-1～A-4およびB-1～B-4：

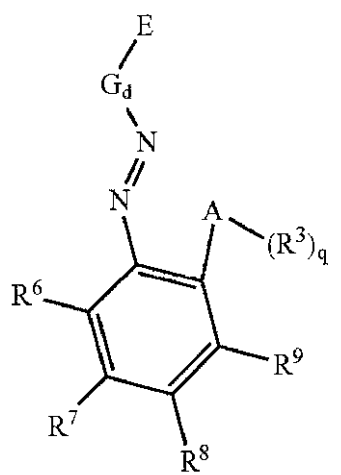
## 【化 3】



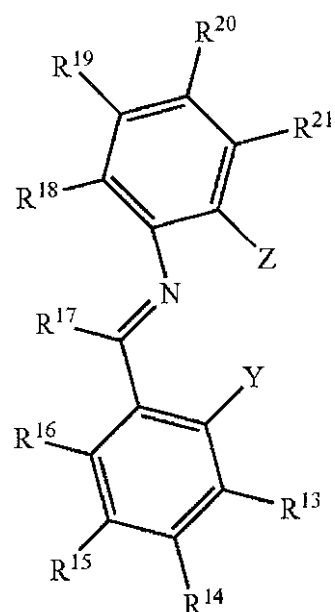
A-1



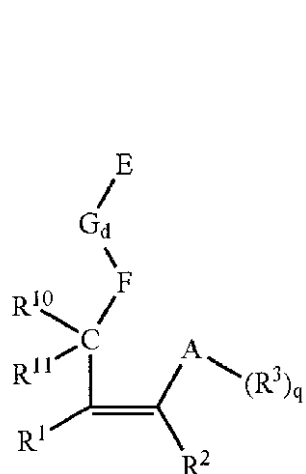
A-2



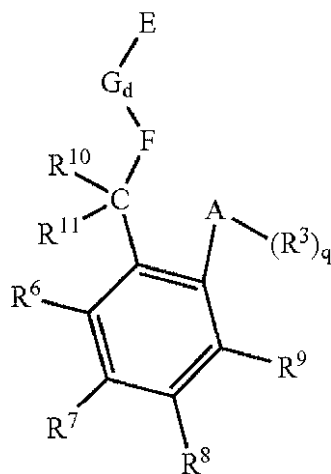
A-3



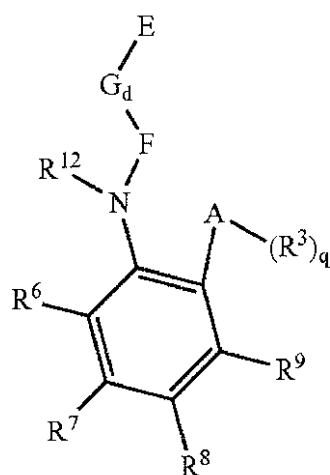
A-4



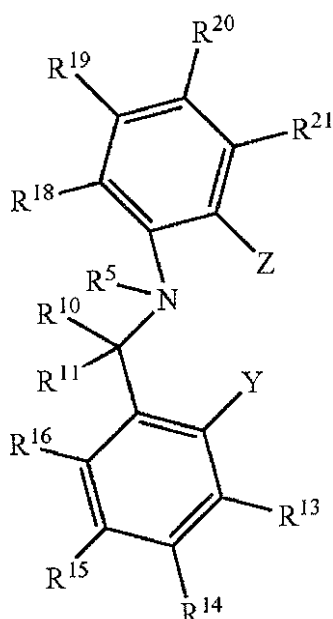
B-1



B-2



B-3



B-4

〔式中、

YおよびZは、窒素含有基、酸素含有基、硫黄含有基、セレン含有基およびリン含有基からなる群からそれぞれ独立して選ばれ、ここでN、O、S、SeおよびPはそれぞれ配位原子を表わし；

R<sup>4</sup>、およびR<sup>6</sup>~R<sup>21</sup>は、水素、C<sub>1</sub>-C<sub>30</sub>炭化水素基、ハロゲン原子、置換C<sub>1</sub>-C<sub>30</sub>炭化水素基および不活性な官能基からなる群からそれぞれ独立して選ばれ、ここでこれらの基は同じであってももしくは互いに異なってもよく、隣接するいずれか2つもしくはそれ以上の基は互いに結合してもまたは環を形成してもよく；


R<sup>5</sup>は、窒素原子上の孤立電子対、水素、C<sub>1</sub> - C<sub>30</sub>炭化水素基、置換C<sub>1</sub> - C<sub>30</sub>炭化水素基、酸素含有基、硫黄含有基、セレン含有基、窒素含有基、およびリン含有基からなる群から選ばれ、R<sup>5</sup>が、酸素含有基、硫黄含有基、窒素含有基、セレン含有基およびリン含有基からなる群から選ばれる場合には、R<sup>5</sup>基中のN、O、S、PおよびSeはそれぞれ配位原子を表わしており、


その他の基は請求項 23 の規定と同じである。]

の群から選ばれる請求項 2 3 に記載の方法。

## 【請求項 25】

ハロゲン原子は、F、Cl、BrおよびIからなる群から選ばれ、

窒素含有基は、、 $-\text{NR}^{23}\text{R}^{24}$ 、 $-\text{T-NR}^{23}\text{R}^{24}$  および  $-\text{N}(\text{O})\text{R}^{25}\text{R}^{26}$  からなる群から選ばれ、

リン含有基は、、 $-\text{PR}^{28}\text{R}^{29}$ 、 $-\text{P}(\text{O})\text{R}^{30}\text{R}^{31}$ 、 $-\text{P}(\text{O})\text{R}^{32}(\text{OR}^{33})$ 、 $-\text{T-PR}^{28}(\text{OR}^{29})$ 、

$-\text{T-P}(\text{O})\text{R}^{30}\text{R}^{31}$  および  $-\text{T-P}(\text{O})\text{R}^{32}(\text{OR}^{33})$  からなる群から選ばれ、

酸素含有基は、ヒドロキシル基、 $-\text{OR}^{34}$  および  $-\text{T-OR}^{34}$  からなる群から選ばれ、

硫黄含有基は、 $-\text{SR}^{35}$ 、 $-\text{T-SR}^{35}$ 、 $-\text{S}(\text{O})\text{R}^{36}$  および  $-\text{T-SO}_2\text{R}^{37}$  からなる群から選ばれ、

セレン含有基は、 $-\text{SeR}^{38}$ 、 $-\text{T-SeR}^{38}$ 、 $-\text{Se}(\text{O})\text{R}^{39}$  および  $-\text{T-Se}(\text{O})\text{R}^{39}$  からなる群から選ばれ、

前記T基は、 $\text{C}_1 - \text{C}_{30}$ 炭化水素基、置換 $\text{C}_1 - \text{C}_{30}$ 炭化水素基および不活性な官能基からなる群から選ばれ、

前記 $\text{C}_1 - \text{C}_{30}$ 炭化水素基は、 $\text{C}_1 - \text{C}_{30}$ アルキル基、 $\text{C}_2 - \text{C}_{30}$ 環状アルキル基、 $\text{C}_2 - \text{C}_{30}$ アルケニル基、 $\text{C}_2 - \text{C}_{30}$ アルキニル基、 $\text{C}_6 - \text{C}_{30}$ アリール基、 $\text{C}_8 - \text{C}_{30}$ 縮合環基および $\text{C}_4 - \text{C}_{30}$ ヘテロ環基からなる群から選ばれ、

前記置換 $\text{C}_1 - \text{C}_{30}$ 炭化水素基は、ハロゲン化 $\text{C}_1 - \text{C}_{30}$ 炭化水素基、ハロゲン化 $\text{C}_6 - \text{C}_{30}$ アリール基、ハロゲン化 $\text{C}_8 - \text{C}_{30}$ 縮合環基およびハロゲン化 $\text{C}_4 - \text{C}_{30}$ ヘテロ環基からなる群から選ばれ、

前記不活性な官能基は、ハロゲン原子、酸素含有基、窒素含有基、ケイ素含有基、ゲルマニウム含有基、硫黄含有基およびスズ含有基からなる群から選ばれ、

前記ケイ素含有基は、 $-\text{SiR}^{42}\text{R}^{43}\text{R}^{44}$  および  $-\text{T-SiR}^{45}$  からなる群から選ばれ、

前記ゲルマニウム含有基は、 $-\text{GeR}^{46}\text{R}^{47}\text{R}^{48}$  および  $-\text{T-GeR}^{49}$  からなる群から選ばれ、

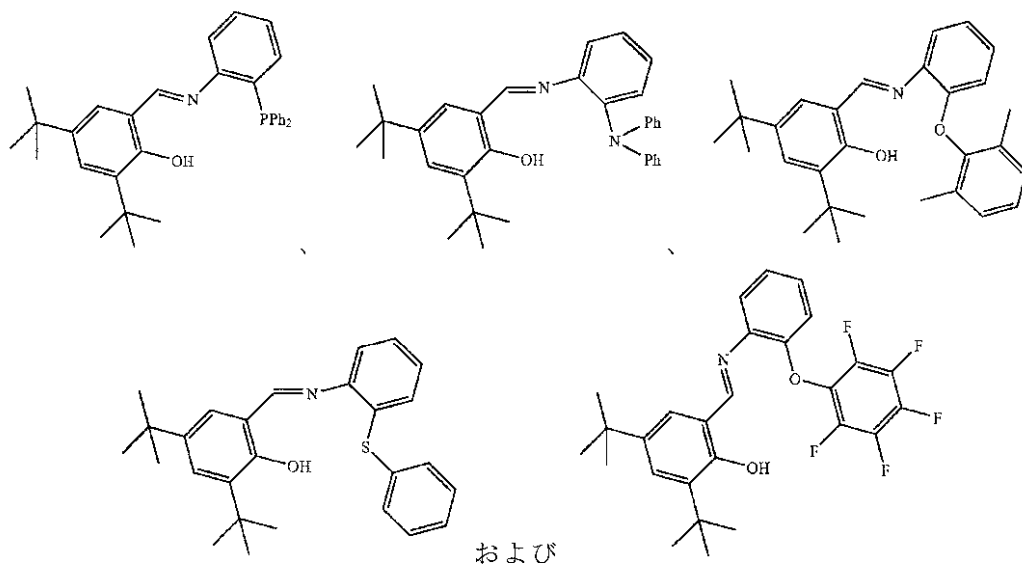
前記スズ含有基は、 $-\text{SnR}^{50}\text{R}^{51}\text{R}^{52}$ 、 $-\text{T-SnR}^{53}$  および  $-\text{T-Sn}(\text{O})\text{R}^{54}$  からなる群から選ばれ、

ならびに  $\text{R}^{34} \sim \text{R}^{38}$  および  $\text{R}^{42} \sim \text{R}^{54}$  は、水素、 $\text{C}_1 - \text{C}_{30}$ 炭化水素基、ハロゲン原子、置換 $\text{C}_1 - \text{C}_{30}$ 炭化水素基および不活性な基からなる群からそれぞれ独立して選ばれる基であることを特徴とする請求項 24 に記載の方法。

## 【請求項 26】

非メタロセン配位子が、以下の化合物：

## 【化 4】

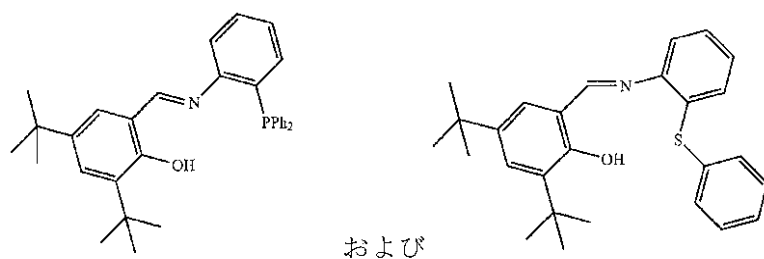


からなる群から選ばれることを特徴とする請求項 22 に記載の方法。

## 【請求項 27】

非メタロセン配位子が、以下の化合物：

## 【化 5】



からなる群から選ばれることを特徴とする請求項 26 に記載の方法。

## 【請求項 28】

マグネシウム化合物および該マグネシウム化合物に担持された非メタロセン配位子を含んでなるマグネシウム化合物担持非メタロセン触媒であって、請求項 1～27 のいずれかに記載の方法によって製造されたものであることを特徴とするマグネシウム化合物担持非メタロセン触媒。

## 【請求項 29】

オレフィンの単独重合 / 共重合方法であって、請求項 28 に記載されたマグネシウム化合物担持非メタロセン触媒が主触媒として使用され、アルミノキサン、アルキルアルミニウム、ハロゲン化されたアルキルアルミニウム、フルオロボラン、アルキルボランおよびアルキルボロンアンモニウム塩からなる群から選ばれる 1 種又はそれ以上のものが助触媒として組み合わされて使用されて、オレフィンの単独重合 / 共重合を触媒する、オレフィンの単独重合 / 共重合方法。