

【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19年8月30日(2007.8.30)

【公表番号】特表2007-505176(P2007-505176A)

【公表日】平成19年3月8日(2007.3.8)

【年通号数】公開・登録公報2007-009

【出願番号】特願2006-525654(P2006-525654)

【国際特許分類】

**C 0 8 F 297/08 (2006.01)**

**C 0 8 F 4/6592 (2006.01)**

【F I】

C 0 8 F 297/08

C 0 8 F 4/6592

【手続補正書】

【提出日】平成19年7月6日(2007.7.6)

【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】

次の工程：

a) プロピレンと、任意に、エチレン及び式 $\text{CH}_2=\text{CHT}^1$ （ここで、 $\text{T}^1$ は $\text{C}_2 \sim \text{C}_{20}$ アルキル基である）の-オレフィンから選択される1種以上のモノマーとを、

i) シクロペンタジエニル骨格を有する配位子を含有する遷移金属化合物と、

ii) アルモキサン又はアルキルメタロセンカチオンを形成し得る化合物

とを含む、不活性担体上に担持された触媒系の存在下に重合させ、

b) 重合条件下で、気相において、エチレンを式 $\text{CH}_2=\text{CHT}^1$ （ここで、 $\text{T}^1$ は $\text{C}_2 \sim \text{C}_{20}$ アルキル基である）の1種以上の-オレフィンと、任意に非共役ジエンと、工程a)で得られたポリマーの存在下かつ水素の存在下（水素/エチレンの重量比が1 ppmより高い）に接触させるを含む、

工程a)で得られるポリマーの量が、方法全体で得られるポリマーの5重量%～90重量%の範囲であり、工程b)で得られるポリマーの量が、方法全体で得られるポリマーの10重量%～95重量%の範囲である

多段方法。

【請求項2】

工程b)が、追加の有機アルミニウム化合物の存在下で行われる請求項1に記載の方法。

【請求項3】

触媒系が、iii) 有機アルミニウム化合物をさらに含む請求項1又は2に記載の方法。

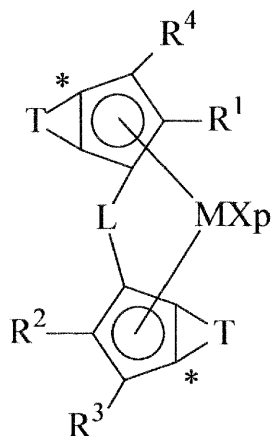
【請求項4】

工程b)の重合反応中に存在する水素/エチレンの重量比が、5～2000 ppmの範囲である請求項1～3のいずれか1つに記載の方法。

【請求項5】

シクロペンタジエニル骨格を有する配位子を含有する遷移金属化合物が、式(1)：

## 【化 1】



(I)

[式中:]

Mは元素周期表の3、4、5、6族又はランタニド若しくはアクチニド族に属するものから選択される遷移金属原子であり；

pは0～3の整数であって金属Mの見かけの酸化状態マイナス2に等しく；

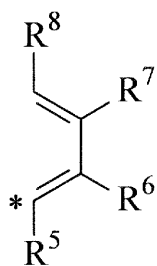
Xは同一又は異なって、水素原子、ハロゲン原子又はR、OR、OSO<sub>2</sub>CF<sub>3</sub>、OCOR、SR、NR<sub>2</sub>若しくはPR<sub>2</sub>基(ここで、Rは、元素周期表の13～17族に属するヘテロ原子を任意に含有してもよい直鎖又は分枝鎖状で飽和又は不飽和のC<sub>1</sub>～C<sub>20</sub>アルキル、C<sub>3</sub>～C<sub>20</sub>シクロアルキル、C<sub>6</sub>～C<sub>20</sub>アリール、C<sub>7</sub>～C<sub>20</sub>アルキルアリール又はC<sub>7</sub>～C<sub>20</sub>アリールアルキル基である)であるか、あるいは2つのXは、置換又は非置換のブタジエニル基又はOR'O基(ここで、R'は、C<sub>1</sub>～C<sub>20</sub>アルキリデン、C<sub>6</sub>～C<sub>40</sub>アリーリデン、C<sub>7</sub>～C<sub>40</sub>アルキルアリーリデン及びC<sub>7</sub>～C<sub>40</sub>アリールアルキリデン基から選択される2価の基である)を任意に形成することができ；

Lは、元素周期表の13～17族に属するヘテロ原子を任意に含有してもよいC<sub>1</sub>～C<sub>20</sub>アルキリデン、C<sub>3</sub>～C<sub>20</sub>シクロアルキリデン、C<sub>6</sub>～C<sub>20</sub>アリーリデン、C<sub>7</sub>～C<sub>20</sub>アルキルアリーリデン又はC<sub>7</sub>～C<sub>20</sub>アリールアルキリデン基、及び5つまでのケイ素原子を含有するシリリデン基から選択される2価の橋架け基であり；

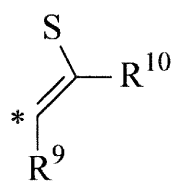
R<sup>1</sup>、R<sup>2</sup>、R<sup>3</sup>及びR<sup>4</sup>は互いに等しいか又は異なって、水素原子、あるいは元素周期表の13～17族に属する1つ又はそれより多いヘテロ原子を任意に含有してもよい直鎖状又は分枝鎖状で飽和又は不飽和のC<sub>1</sub>～C<sub>20</sub>アルキル、C<sub>3</sub>～C<sub>20</sub>シクロアルキル、C<sub>6</sub>～C<sub>20</sub>アリール、C<sub>7</sub>～C<sub>40</sub>アルキルアリール又はC<sub>7</sub>～C<sub>40</sub>アリールアルキル基であり；

Tは互いに等しいか又は異なって、式(IIa)又は(IIb)：

## 【化 2】



(IIa)



(IIb)

(式中、:]

\*印を付した原子は、式(I)の化合物中の同じ印を付した原子と結合し；

$R^5$ 、 $R^6$ 、 $R^7$ 、 $R^8$ 、 $R^9$ 及び $R^{10}$ は互いに等しいか又は異なって、水素原子、あるいは元素周期表の13～17族に属する1つ又はそれより多いヘテロ原子を任意に含有していてもよい直鎖状又は分枝鎖状で飽和又は不飽和の $C_1 \sim C_{40}$ アルキル、 $C_3 \sim C_{40}$ シクロアルキル、 $C_6 \sim C_{40}$ アリール、 $C_7 \sim C_{40}$ アルキルアリール又は $C_7 \sim C_{40}$ アリールアルキル基であるか；あるいは2つ又はそれより多い $R^5$ 、 $R^6$ 、 $R^7$ 、 $R^8$ 、 $R^9$ 及び $R^{10}$ は一緒に、 $C_1 \sim C_{20}$ アルキル置換分を有し得る飽和又は不飽和の4～7員環を形成することができる)

の部分である]

を有する請求項1～4のいずれか1つに記載の方法。

【請求項6】

式(1)の化合物において、Mがチタン、ジルコニウム又はハフニウムであり；pが2であり；Xが水素原子、ハロゲン原子又はR基(ここで、Rは請求項1で定義したとおりである)であり；Lが $Si(CH_3)_2$ 、 $SiPh_2$ 、 $SiPhMe$ 、 $SiMe(SiMe_3)$ 、 $CH_2$ 、 $(CH_2)_2$ 、 $(CH_2)_3$ 及び $C(CH_3)_2$ からなる群より選択され； $R^1$ 及び $R^2$ が互いに等しいか又は異なってメチル、エチル又はイソプロピル基であり；かつ $R^3$ 及び $R^4$ が水素原子である請求項5に記載の方法。

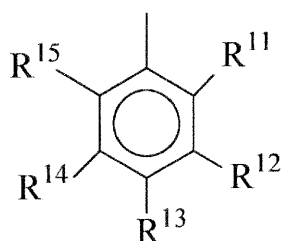
【請求項7】

式(1)の化合物において、 $R^6$ 及び $R^8$ が水素原子であり； $R^7$ が水素原子又は $C_1 \sim C_{20}$ アルキル基であり；かつ $R^{10}$ が直鎖状又は分枝鎖状の $C_1 \sim C_{20}$ アルキル基である請求項5又は6に記載の方法。

【請求項8】

式(1)の化合物において、 $R^5$ 及び $R^9$ が、式(IIIa)：

【化3】



(IIIa)

(式中、 $R^{11}$ 、 $R^{12}$ 、 $R^{13}$ 、 $R^{14}$ 及び $R^{15}$ は互いに等しいか又は異なって、元素周期表の13～17族に属する1つ又はそれより多いヘテロ原子を任意に含有していてもよい直鎖状又は分枝鎖状で飽和又は不飽和の $C_1 \sim C_{20}$ アルキル、 $C_3 \sim C_{20}$ シクロアルキル、 $C_6 \sim C_{20}$ アリール、 $C_7 \sim C_{20}$ アルキルアリール又は $C_7 \sim C_{20}$ アリールアルキル基であるか、あるいは2つまたはそれより多い $R^{11}$ 、 $R^{12}$ 、 $R^{13}$ 、 $R^{14}$ 及び $R^{15}$ は一緒に、 $C_1 \sim C_{10}$ アルキル置換分を有し得る飽和又は不飽和の4～7員環を形成することができる)

の部分である請求項5～7のいずれか1つに記載の方法。

【請求項9】

式(IIIa)の部分において、 $R^{11}$ 、 $R^{12}$ 、 $R^{13}$ 、 $R^{14}$ 及び $R^{15}$ のうち少なくとも1つの基が、直鎖状又は分枝鎖状で飽和又は不飽和の $C_1 \sim C_{20}$ アルキル基である請求項8に記載の方法。

【請求項10】

式(1)の化合物において、Tが同じでありかつこれらが式(IIa)を有する請求項5～9のいずれか1つに記載の方法。

【請求項11】

式(1)の化合物において、Tが同じでありかつこれらが式(IIb)を有する請求項5～9のいずれか1つに記載の方法。

【請求項12】

式(1)の化合物において、Tが異なりかつこれらが式(IIb)及び(IIa)を有する請求項5～9のいずれか1つに記載の方法。

【請求項13】

触媒系が、多孔性有機ポリマーに担持されている請求項1～12のいずれか1つに記載の方法。

【請求項14】

工程a)が、予備重合工程a-1)をさらに含む請求項1～13のいずれか1つに記載の方法。

【請求項15】

工程a)が水素の存在下で行われる請求項1～14のいずれか1つに記載の方法。

【請求項16】

工程a)において、プロピレンホモポリマー又はエチレン若しくは式 $\text{CH}_2=\text{CHT}^1$ の1種以上の $\alpha$ -オレフィンに由来する単位を20モル%まで含有するプロピレンコポリマー30～70重量%が得られる請求項1～15のいずれか1つに記載の方法。

【請求項17】

工程b)において、式 $\text{CH}_2=\text{CHT}^1$ のコモノマーに由来する単位4モル%～60モル%と任意に非共役ジエンに由来する単位20%までとを有するエチレンコポリマー30～70重量%が得られる請求項1～16のいずれか1つに記載の方法。

【請求項18】

工程a)において、プロピレンホモポリマーが得られる請求項1～17のいずれか1つに記載の方法。

【請求項19】

工程b)において、エチレン 1-ブテンコポリマーが得られる請求項1～18のいずれか1つに記載の方法。

【手続補正2】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0015

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0015】

(式中、：

\*印を付した原子は、式(1)の化合物中の同じ印を付した原子と結合し；

$\text{R}^5$ 、 $\text{R}^6$ 、 $\text{R}^7$ 、 $\text{R}^8$ 、 $\text{R}^9$ 及び $\text{R}^{10}$ は互いに等しいか又は異なって、水素原子、あるいは元素周期表の13～17族に属する1つ又はそれより多いヘテロ原子を任意に含有していてもよい直鎖状又は分枝鎖状で飽和又は不飽和の $\text{C}_1 \sim \text{C}_{40}$ アルキル、 $\text{C}_3 \sim \text{C}_{40}$ シクロアルキル、 $\text{C}_6 \sim \text{C}_{40}$ アリール、 $\text{C}_7 \sim \text{C}_{40}$ アルキルアリール又は $\text{C}_7 \sim \text{C}_{40}$ アリールアルキル基であるか；あるいは2つ又はそれより多い $\text{R}^5$ 、 $\text{R}^6$ 、 $\text{R}^7$ 、 $\text{R}^8$ 、 $\text{R}^9$ 及び $\text{R}^{10}$ は一緒に、 $\text{C}_1 \sim \text{C}_{20}$ アルキル置換分を有し得る飽和又は不飽和の4～7員環を形成することができる)の部分である]

を有する。

【手続補正3】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】0016

【補正方法】変更

【補正の内容】

【0016】

好ましくは、 $\text{R}^6$ 及び $\text{R}^8$ は水素原子であり、 $\text{R}^7$ は水素原子又は $\text{C}_1 \sim \text{C}_{20}$ アルキル基である。

好ましくは、 $\text{R}^{10}$ は直鎖状又は分枝鎖状の $\text{C}_1 \sim \text{C}_{20}$ アルキル基である。

好ましくは、 $\text{R}^5$ 及び $\text{R}^9$ は、式(IIIa)：