

【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2区分

【発行日】平成21年12月24日(2009.12.24)

【公表番号】特表2009-514911(P2009-514911A)

【公表日】平成21年4月9日(2009.4.9)

【年通号数】公開・登録公報2009-014

【出願番号】特願2008-539300(P2008-539300)

【国際特許分類】

C 0 7 F 17/00 (2006.01)

C 0 8 F 4/54 (2006.01)

C 0 8 F 4/606 (2006.01)

C 0 8 F 210/00 (2006.01)

C 0 7 F 5/00 (2006.01)

C 0 7 F 7/08 (2006.01)

【F I】

C 0 7 F 17/00 C S P

C 0 8 F 4/54

C 0 8 F 4/606

C 0 8 F 210/00

C 0 7 F 5/00 D

C 0 7 F 7/08 C

【手続補正書】

【提出日】平成21年11月2日(2009.11.2)

【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

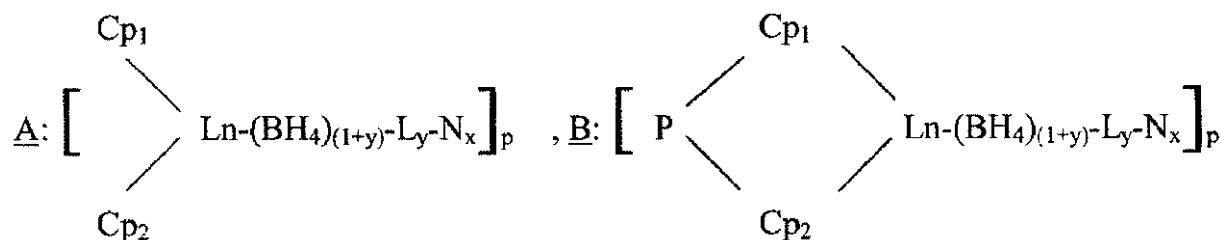
【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】

下記の2つの式AおよびBのうちのどちらかに相応することを特徴とする、ランタニドのホウ化水素メタロセン複合体：

【化1】



(式中、Lnは、包括的に、原子番号57～71を有するランタニドであり；

式Aにおいては、yが1以上であるときは、各々がシクロペンタジエニル基を有するか或いは置換または非置換のシクロペンタジエニル基または置換または非置換のフルオレニル基を有する2つの同一または異なるリガンドCp₁およびCp₂は、ランタニドLnに結合しており、yが0に等しいときは、2つのリガンドCp₁およびCp₂は、各々、置換または非置換のシクロペンタジエニル基または置換または非置換のフルオレニル基をそれぞれ有し；

式Bにおいては、yが0に等しいときは、各々が置換または非置換のシクロペンタジエニ

ル基および置換または非置換のフルオレニル基から選ばれた基からなり且つ式 MR_1R_2 (式中、Mは、元素の周期表のIVa族からの元素であり； R_1 および R_2 は、同一または異なるものであって、1～20個の炭素原子を含むアルキル基を示す)に相応するブリッジPにより互いに結合している2つの同一または異なるリガンド Cp_1 および Cp_2 は、ランタニドLnに結合しており；

Lは、リチウム、ナトリウムおよびカリウムからなる群から選ばれるアルカリ金属を示し；

Nは、エーテルのような複合体化用溶媒分子を示し；

xは、0よりも大きい整数または非整数であり；

yは、0以上の整数であり；そして、

pは、1または2に等しい整数である)。

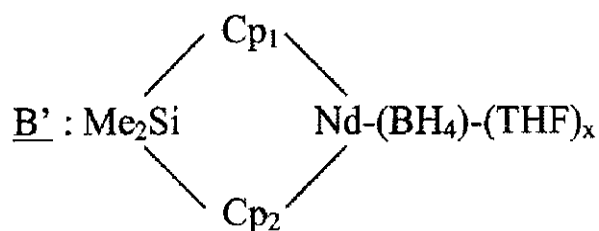
【請求項2】

Nが、テトラヒドロフランを示す、請求項1記載の複合体。

【請求項3】

前記複合体が、下記の式B'に相応する、請求項1または2記載の複合体：

【化2】



(式中、 Cp_1 および Cp_2 は、同一または異なる置換または非置換のシクロペンタジエニル基から選ばれ、さらに、 Cp_2 は、置換または非置換のフルオレニル基を示し得；xは、0よりも大きい整数または非整数である)。

【請求項4】

下記の工程を含むことを特徴とする、請求項1～3のいずれか1項記載の複合体の製造方法：

式 $P-Cp_1Cp_2-L_2$ のリガンド塩と、前記複合体化用溶媒中に溶解させた式 $Ln(BH_4)_3N_3$ で示されるランタニドLnトリス(ホウ化水素)の溶液とを反応させる工程。

【請求項5】

前記リガンド塩が式 $Me_2SiFlu_2-Li_2$ に相応し、前記ランタニドトリス(ホウ化水素)が式 $Nd(BH_4)_3(THF)_3$ に相応し、THFがテトラヒドロフランである、請求項4記載の複合体の製造方法。

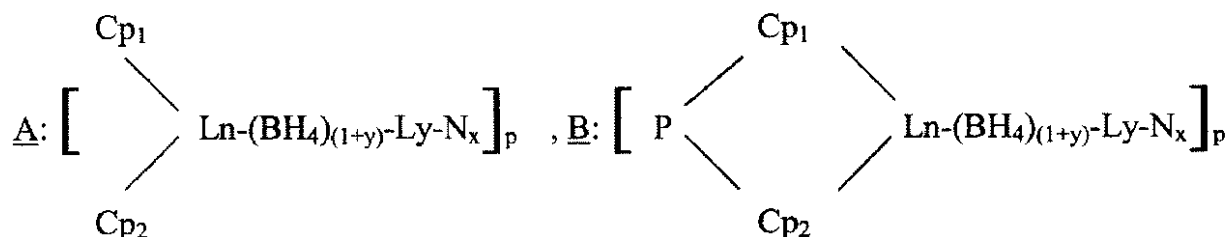
【請求項6】

前記方法が、周囲温度で、ジエチルエーテルのようなもう1つの溶媒中に溶解させた前記リガンド塩を、この他の溶媒中に溶解させた形のランタニドトリス(ホウ化水素)の前記溶液上に流すことを含む、請求項5記載の複合体の製造方法。

【請求項7】

少なくとも2種のオレフィン類の共重合において使用し得、一方で、ランタニドのメタロセン複合体を、他方で、アルキルマグネシウム、アルキルリチウム、グリニャール試薬、およびアルキルリチウムとアルキルアルミニウムの混合物からなる群から選ばれる共触媒を含み、前記複合体が、下記の式AおよびBのうちのどちらかに相応するランタニドのホウ化水素メタロセン複合体であることを特徴とする触媒系：

【化 3】



(式中、Lnは、包括的に、原子番号57～71を有するランタニドであり；

式Aにおいては、各々が同一または異なる置換または非置換のシクロペンタジエニルまたはフルオレニル基から選ばれる2つのリガンドCp₁およびCp₂(但し、Cp₁とCp₂は、2つのフルオレニル基を示し得ない)は、Lnに結合しており；

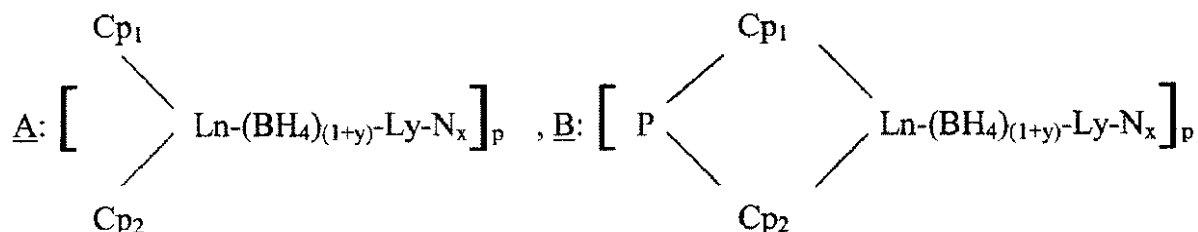
式Bにおいては、同一または異なる置換または非置換のシクロペンタジエニルまたはフルオレニル基から選ばれ(但し、Cp₁とCp₂は、2つのフルオレニル基を示し得ない)、且つ式MR₁R₂(式中、Mは、元素の周期表のIVa族からの元素であり；R₁およびR₂は、同一または異なるものであって、1～20個の炭素原子を含むアルキル基を示す)に相応するブリッジPにより互いに結合している2つの基Cp₁およびCp₂からなるリガンドは、Lnに結合しており；

Lは、リチウム、ナトリウムおよびカリウムからなる群から選ばれるアルカリ金属を示し；Nは、エーテルのような複合体化用溶媒分子を示し；xは、0よりも大きい整数または非整数であり；yは、0以上の整数であり；そして、pは、1または2に等しい整数である)。

【請求項 8】

一方で、ランタニドのメタロセン複合体を、他方で、アルキルマグネシウム、アルキルリチウム、グリニャール試薬、およびアルキルリチウムとアルキルアルミニウムの混合物からなる群から選ばれる共触媒を含む触媒系の反応による、モノオレフィンおよび/またはジオレフィンのような少なくとも2種のオレフィン系モノマーの共重合方法であって、前記複合体が、下記の2つの式AおよびBのうちのどちらかに相応するランタニドのホウ化水素メタロセン複合体であることを特徴とする共重合方法；

【化 4】



(式中、Lnは、包括的に、原子番号57～71を有するランタニドであり；

式Aにおいては、各々が同一または異なる置換または非置換のシクロペンタジエニルまたはフルオレニル基から選ばれる2つのリガンドCp₁およびCp₂(但し、Cp₁とCp₂は、2つのフルオレニル基を示し得ない)は、Lnに結合しており；

式Bにおいては、同一または異なる置換または非置換のシクロペンタジエニルまたはフルオレニル基から選ばれ(但し、Cp₁とCp₂は、2つのフルオレニル基を示し得ない)、且つ式MR₁R₂(式中、Mは、元素の周期表のIVa族からの元素であり；R₁およびR₂は、同一または異なるものであって、1～20個の炭素原子を含むアルキル基を示す)に相応するブリッジPにより互いに結合している2つの基Cp₁およびCp₂からなるリガンドは、Lnに結合しており；

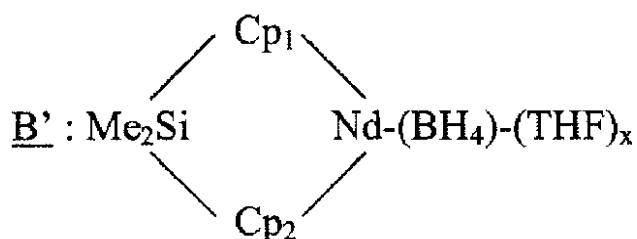
Lは、リチウム、ナトリウムおよびカリウムからなる群から選ばれるアルカリ金属を示し；Nは、エーテルのような複合体化用溶媒分子を示し；xは、0よりも大きい整数または

非整数であり；yは、0以上の整数であり；そして、pは、1または2に等しい整数である）。

【請求項 9】

前記ランタニドメタロセン複合体が、下記の式B'に相応する、請求項8項記載の共重合方法：

【化 5】



（式中、Cp₁およびCp₂は、同一または異なる置換または非置換のシクロペンタジエニル基から選ばれ、さらに、Cp₂は、置換または非置換のフルオレニル基を示し得；xは、0よりも大きい整数または非整数である）。

【請求項 10】

前記共重合方法が、エチレンとブタジエンを共重合させることを含む、請求項8記載の共重合方法。

【請求項 11】

前記共触媒/複合体モル比を、10に等しいように選択する、請求項8～10のいずれか1項記載の共重合方法。

【請求項 12】

下記の工程を含む、請求項8～11のいずれか1項記載の共重合方法：

(i) 前記触媒系の、前記複合体を前記共触媒と反応させることによる予備調製工程；その後の、

(ii) (i)において得られた触媒系の、重合させる前記モノマー類の存在下でのトルエンのような炭化水素溶媒中の懸濁液または溶液中および - 20 ～ 120 の温度での反応工程。

。