

【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 20 年 5 月 1 日 (2008.5.1)

【公表番号】特表 2004-527581 (P2004-527581A)

【公表日】平成 16 年 9 月 9 日 (2004.9.9)

【年通号数】公開・登録公報 2004-035

【出願番号】特願 2003-500099 (P2003-500099)

【国際特許分類】

C 0 7 F 19/00 (2006.01)

C 0 7 F 17/00 (2006.01)

【 F I 】

C 0 7 F 19/00

C 0 7 F 17/00

【誤訳訂正書】

【提出日】平成 20 年 3 月 3 日 (2008.3.3)

【誤訳訂正 1】

【訂正対象書類名】特許請求の範囲

【訂正対象項目名】全文

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

生成物として少なくとも 1 種の有機遷移金属化合物と、副生成物として少なくとも 1 種の有機金属副生成物及び少なくとも 1 種の無機副生成物を含む混合物から無機副生成物及び有機金属副生成物を分離する方法であって、

以下の工程：

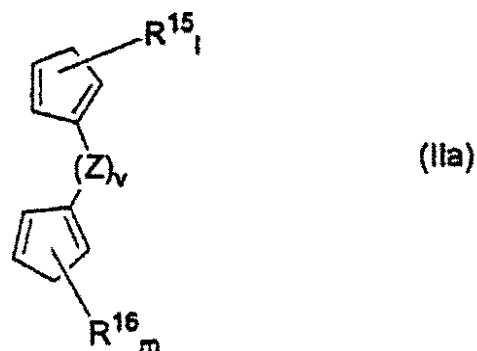
A) 生成物、有機金属副生成物及び無機副生成物を含む混合物を、少なくとも 1 種の有機極性抽出剤及び水を含み且つ有機極性抽出剤の水に対するモル比が 10 : 1 ~ 1 : 10 の混合物と混合し、未溶解残留物を分離する工程、

B) 工程 A) からの残留物を、有機非極性抽出剤又は少なくとも 1 種の有機非極性抽出剤及び少なくとも 1 種の非プロトン性の有機極性溶媒を含む混合物で洗浄する工程、及び

C) 工程 B) で洗浄され、且つ有機遷移金属化合物を含む残留物を乾燥する工程、

D) 工程 B) から得られ、所定のメタロセンの有機リガンド組成物を含む液相から、析出により、式 (II a)、

【化 1】



[但し、Z、v、l、m、R¹⁵、R¹⁶が式 (II) のものと同義である。]

で表されるリガンド組成物又はこれらの二重結合異性体を単離する工程、
を含み、且つ

前記工程（A）で使用される有機極性抽出剤が、

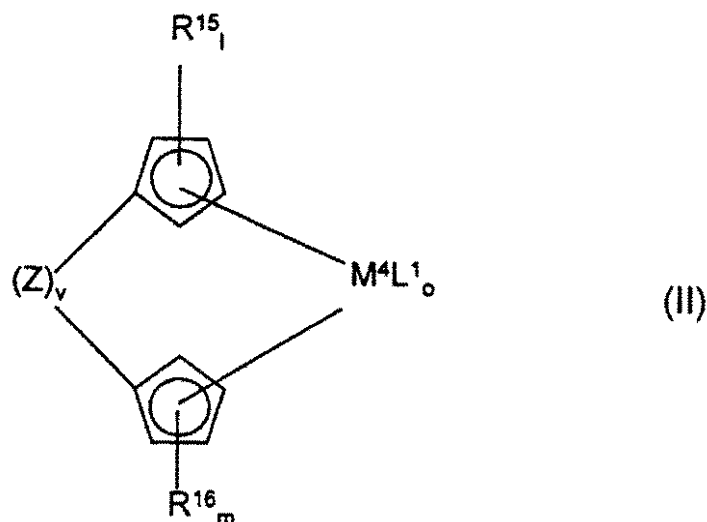
メタノール、エタノール、1 - プロパノール、2 - プロパノール、1 - ブタノール、2 - ブタノール、イソブタノール、tert - ブタノール、1 - ペンタノール、2 - ペンタノール、3 - ペンタノール、アミルアルコール、イソアミルアルコール、1 - ヘキサノール、2 - ヘキサノール、3 - ヘキサノール、2 - メチル - 2 - ペンタノール、2 - メチル - 3 - ペンタノール、3 - メチル - 3 - ペンタノール、1 - ヘプタノール、2 - ヘプタノール、3 - ヘプタノール、4 - ヘプタノール、2 - メチル - 2 - ヘキサノール、3 - メチル - 3 - ヘキサノール、4 - メチル - 4 - ヘキサノール、2 - メチル - 4 - ヘキサノール、4 - メチル - 2 - ヘキサノール、2 - エチルヘキサノール、ベンジルアルコール、フェノール、レソルシノール、1 - フェニルエタノール、2 - フェニルエタノール、1 - フェニル - 2 - ブタノール、3 - フェニル - 1 - ブタノール、1, 2 - プロパンジオール、1, 3 - プロパンジオール、1, 2 - ブタンジオール、1, 3 - ブタンジオール、1, 4 - ブタンジオール、エチレングリコール、又はグリセロール、エタノールアミン、プロパノールアミン、メチルアミン、ジメチルアミン、トリメチルアミン、エチルアミン、ジエチルアミン、トリエチルアミン、メチルエチルアミン、メチルブチルアミン、プロピルアミン、ジプロピルアミン、トリプロピルアミン、ジイソプロピルアミン、トリイソプロピルアミン、tert - ブチルアミン、1, 2 - エチレンジアミン、N, N, N', N' - テトラメチル - 1, 2 - エチレンジアミン、ジ(n - ブチル)アミン、トリブチルアミン、アニリン、N - メチルアニリン、N, N - ジメチルアニリン、トルイジン又はN, N - ジメチルトルイジン、アセトアルデヒド、ブチルアルデヒド、ヘキサノール、又はプロピオンアルデヒド、ブタノン、アセトン、メチルプロピルケトン又はジエチルケトン、蟻酸、酢酸、プロピオン酸、ブチル酸、イソブチル酸、ペンタン酸又はヘキサン酸、蟻酸メチル、蟻酸エチル、蟻酸プロピル、蟻酸ブチル、酢酸メチル、酢酸エチル、酢酸プロピル、酢酸ブチル、プロピオン酸メチル、プロピオン酸ブチル、ジメチルエーテル、ジエチルエーテル、メチルエチルエーテル、ジブチルエーテル、ジイソプロピルエーテル、ジオキサン、トリオキサン、テトラヒドロフラン、フラン、ピロール、ピリジン、又はチオフエン、フォルムアミド、ジメチルフォルムアミド、ジエチルフォルムアミド、ジメチルアセトアミド、ジエチルアセトアミド、又はN - メチルピロリドン、アセトニトリル、プロピオニトリル、ブチロニトリル、クロロベンゼン、1, 2 - ジクロロベンゼン、1, 3 - ジクロロベンゼン又はプロモベンゼン、臭化エチル、塩化エチル、フッ化エチル、臭化ブチル、塩化ブチル、塩化メチル、又はジクロロメタン、ニトロメタン、ニトロエタン、1 - ニトロプロパン、2 - ニトロプロパン、1 - ニトロブタン、2 - ニトロブタン、ニトロベンゼン、2 - ニトロトルエン、又は3 - ニトロトルエン、及びこれらの混合物からなる群から選ばれ、

前記工程（B）で使用される有機非極性抽出剤が、プロパン、ブタン、イソブタン、ペンタン、2 - メチルブタン、ネオペンタン、シクロペンタン、ヘキサン、2 - メチルペンタン、3 - メチルペンタン、ヘプタン、2 - メチルヘキサン、3 - メチルヘキサン、シクロヘキサン、オクタン、イソオクタン、ノナン、イソノナン又はデカン、ベンゼン、トルエン、キシレン又はこれらの混合物からなる群から選ばれ、

前記工程（B）で使用される非プロトン性の有機極性溶媒が、前記工程（A）で 사용되는有機極性抽出剤から水素結合を形成できない有機極性溶媒として選ばれ、

生成物としての有機遷移金属化合物が式（II）：

【化 2】



[但し、

M^4 が元素周期表の第3族、第4族、第5族又は第6族の金属であり、

R^{15} が同一又は異なるものであり、それぞれ水素原子又は $Si(R^{17})_3$ (R^{17} が同一又は異なるものであり、それぞれ水素原子又は $C_1 - C_{40}$ 基である。)であり、又は R^{15} が $C_1 - C_{30}$ 基であり、又は

2個以上の基 R^{15} 基が互いに結合して、基 R^{15} 及びこれらに結合するシクロペンタジエニル環の原子が、置換されても良い $C_4 - C_{24}$ 環を形成し、

R^{16} が同一又は異なるものであり、それぞれ水素原子又は $Si(R^{18})_3$ (R^{18} が同一又は異なるものであり、それぞれ水素原子又は $C_1 - C_{40}$ 基である。)であり、又は R^{16} が $C_1 - C_{30}$ 基であり、又は

2個以上の基 R^{16} が互いに結合して、基 R^{16} 及びこれらに結合するシクロペンタジエニル環の原子が、それぞれ置換されても良い $C_4 - C_{24}$ 環を形成し、

l が4であり、

m が4であり、

L^1 が、同一又は異なるものであり、それぞれ水素原子、 $C_1 - C_{10}$ -炭化水素基、ハロゲン原子、 OR^{19} 、 SR^{19} 、 $OSi(R^{19})_3$ 、 $Si(R^{19})_3$ 、 $P(R^{19})_2$ 又は $N(R^{19})_2$ (R^{19} が $C_1 - C_{10}$ -アルキル基、ハロゲン化 $C_1 - C_{10}$ -アルキル基、 $C_6 - C_{20}$ -アリール基、 $C_7 - C_{20}$ -アルキルアリール基又はハロゲン化 $C_6 - C_{20}$ -アリール基である。)であり、又は L^1 がトルエンスルホニル、トリフルオロアセチル、トリフルオロアセトキシル、トリフルオロメタン-スルホニル、ノナフルオロブタンスルホニル又は2, 2, 2-トリフルオロエタンスルホニル基であり、

o が1~4の整数であり、

Z が2個のシクロペンタジエニル環の間の架橋構造要素であり、そして v が1である。

]

で表されるラセミ形のメタロセン化合物であり、且つ以下の、

ジメチルシランジイルビス(インデニル)ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイルビス(テトラヒドロインデニル)ジルコニウムジクロライド、

エチレンビス(インデニル)ジルコニウムジクロライド、

エチレンビス(テトラヒドロインデニル)ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイルビス(2-メチルインデニル)ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイルビス(2-イソプロピルインデニル)ジルコニウムジクロライド

、

ジエチルシランジイルビス(2-メチルインデニル)ジルコニウムジブROMAイド、

ジメチルシランジイルビス(2-エチルインデニル)ジルコニウムジクロライド、
ジメチルシランジイルビス(2-メチル-4,5-ベンズインデニル)ジルコニウムジクロライド、
ジメチルシランジイルビス(2-エチル-4,5-ベンズインデニル)ジルコニウムジクロライド、
メチルフェニルシランジイルビス(2-メチル-4,5-ベンズインデニル)ジルコニウムジクロライド、
メチルフェニルシランジイルビス(2-エチル-4,5-ベンズインデニル)ジルコニウムジクロライド、
ジフェニルシランジイルビス(2-メチル-4,5-ベンズインデニル)ジルコニウムジクロライド、
ジフェニルシランジイルビス(2-エチル-4,5-ベンズインデニル)ジルコニウムジクロライド、
ジフェニルシランジイルビス(2-メチルインデニル)ハフニウムジクロライド、
ジメチルシランジイルビス(2-メチル-4-フェニルインデニル)ジルコニウムジクロライド、
ジメチルシランジイルビス(2-エチル-4-フェニルインデニル)ジルコニウムジクロライド、
ジメチルシランジイルビス(3-tert-ブチル-5-メチルシクロペンタジエニル)ジルコニウムジクロライド、
ジメチルシランジイルビス(3-tert-ブチル-5-エチルシクロペンタジエニル)ジルコニウムジクロライド、
ジメチルシランジイルビス(2-メチル-4-(1-ナフチル)インデニル)ジルコニウムジクロライド、
ジメチルシランジイルビス(2-エチル-4-(1-ナフチル)インデニル)ジルコニウムジクロライド、
ジメチルシランジイルビス(2-プロピル-4-(1-ナフチル)インデニル)ジルコニウムジクロライド、
ジメチルシランジイルビス(2-i-ブチル-4-(1-ナフチル)インデニル)ジルコニウムジクロライド、
ジメチルシランジイルビス(2-メチル-4-イソプロピルインデニル)ジルコニウムジクロライド、
ジメチルシランジイルビス(2,7-ジメチル-4-イソプロピルインデニル)ジルコニウムジクロライド、
ジメチルシランジイルビス(2-メチル-4,6-ジイソプロピルインデニル)ジルコニウムジクロライド、
ジメチルシランジイルビス(2-メチル-4[p-トリフルオロメチルフェニル]インデニル)ジルコニウムジクロライド、
ジメチルシランジイルビス(2-メチル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデニル)ジルコニウムジクロライド、
ジエチルシランジイルビス(2-メチル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデニル)ジルコニウムジクロライド、
ジメチルシランジイルビス(2-エチル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデニル)ジルコニウムジクロライド、
ジメチルシランジイルビス(2-プロピル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデニル)ジルコニウムジクロライド、
ジメチルシランジイルビス(2-イソプロピル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデニル)ジルコニウムジクロライド、
ジメチルシランジイルビス(2-n-ブチル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデニル)ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイルビス(2-ヘキシル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデニル)ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイルビス(2-イソプロピル-4-フェニルインデニル)ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイル(2-イソプロピルインデニル)-(2-メチル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデニル)ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイル(2-イソプロピルインデニル)-(2-メチル-4-(1-ナフチル)インデニル)ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイル(2-イソプロピルインデニル)-(2-メチル-4-フェニルインデニル)ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイル(2-イソプロピル-4-(1-ナフチル)インデニル)-(2-メチル-4-(1-ナフチル)-インデニル)ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイル(2-イソプロピル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデニル)-(2-メチル-4-フェニルインデニル)ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイル(2-イソプロピル-4-フェニルインデニル)-(2-メチル-4-フェニルインデニル)ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイル(2-イソプロピル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデニル)-(2-メチル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデニル)ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイル(2-シクロヘキシル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデニル)-(2-メチル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデニル)ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイル(2-シクロヘキシル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデニル)-(2-メチル-4-フェニルインデニル)ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイル(2-イソプロピル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデニル)-(2-エチル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデニル)ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイル(2-イソプロピル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデニル)-(2-メチル-4-[3',5'-ビス-tert-ブチルフェニル]インデニル)ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイル(2-イソプロピル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデニル)-(2-メチル-4-[1'-ナフチル]インデニル)ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイル(2-イソプロピル-4-[1'-ナフチル]インデニル-(2-メチル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデニル))ジルコニウムジクロライド、

エチレン(2-イソプロピル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデニル)-(2-メチル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデニル)ジルコニウムジクロライド、

エチレンビス(2-イソプロピル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデニル)ジルコニウムジクロライド、

1,2-エタンジイルビス(2-エチル-4-フェニルインデニル)ジルコニウムジクロライド、

1,2-エタンジイルビス(2-メチル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデニル)ジルコニウムジクロライド、

1,2-エタンジイルビス(2-エチル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデニル)ジルコニウムジクロライド、

1,2-エタンジイルビス(2-n-プロピル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデニル)ジルコニウムジクロライド、

1,2-エタンジイルビス(2-メチル-4-フェニルインデニル)ジルコニウムジク

C₄H₈ - シランジイル (2 - イソプロピル - 4 - [4' - tert - ブチルフェニル] イン

デニル) - (2 - メチル - 4 - [4' - tert - ブチルフェニル] インデニル) ジルコニウムジクロライド、

C_4H_8 - シランジイル (2 - イソプロピル - 4 - [4' - tert - ブチルフェニル] インデニル) - (2 - エチル - 4 - [4' - tert - ブチルフェニル] インデニル) ジルコニウムジクロライド、

C_4H_8 - シランジイル (2 - イソプロピル - 4 - [4' - tert - ブチルフェニル] インデニル) - (2 - メチル - 4 - [3' , 5' - ビス - tert - ブチル - 4' - メトキシフェニル] インデニル) ジルコニウムジクロライド、

C_4H_8 - シランジイル (2 - イソプロピル - 4 - [4' - tert - ブチルフェニル] インデニル) - (2 - エチル - 4 - [3' , 5' - ビス - tert - ブチル - 4' - メトキシフェニル] インデニル) ジルコニウムジクロライド、

及び、

ジメチルシランジイル (2 - メチル - 4 - (4' - tert - ブチルフェニル) インデニル) (2 - イソプロピル - 4 - (4' - tert - ブチルフェニル) - インデニル) ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイル (2 - エチル - 4 - (4' - tert - ブチルフェニル) インデニル) (2 - イソプロピル - 4 - (4' - tert - ブチルフェニル) - インデニル) ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイル (2 - メチル - 4 - (4' - tert - ブチルフェニル) インデニル) (2 - イソプロピル - 4 - (ナフチル) インデニル) ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイル (2 - メチル - 4 - (4' - tert - ブチルフェニル) インデニル) (2 - シクロヘキシル - 4 - (4' - tert - ブチルフェニル) - インデニル) ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイル (2 - メチル - 4 - フェニル) インデニル) (2 - イソプロピル - 4 - フェニル) インデニル) ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイルビス (2 - メチル - 4 , 5 - ベンズインデニル) ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイルビス (2 - メチル - 4 - フェニルインデニル) ジルコニウムジクロライド、

からなる群から選ばれることを特徴とする方法。

【請求項 2】

生成物としての有機遷移金属化合物が、

ジメチルシランジイル (2 - メチル - 4 - (4' - tert - ブチルフェニル) インデニル) (2 - イソプロピル - 4 - (4' - tert - ブチルフェニル) - インデニル) ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイル (2 - エチル - 4 - (4' - tert - ブチルフェニル) インデニル) (2 - イソプロピル - 4 - (4' - tert - ブチルフェニル) - インデニル) ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイル (2 - メチル - 4 - (4' - tert - ブチルフェニル) インデニル) (2 - イソプロピル - 4 - (ナフチル) インデニル) ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイル (2 - メチル - 4 - (4' - tert - ブチルフェニル) インデニル) (2 - シクロヘキシル - 4 - (4' - tert - ブチルフェニル) - インデニル) ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイル (2 - メチル - 4 - フェニルインデニル) (2 - イソプロピル - 4 - フェニルインデニル) ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイルビス (2 - メチル - 4 , 5 - ベンズインデニル) ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイルビス (2 - メチル - 4 - フェニルインデニル) ジルコニウムジクロライド、

から成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 3】

無機副生成物が、

LiF、LiCl、LiBr、LiI、NaF、NaCl、NaBr、NaI、KF、KCl、KBr、KI、CaF₂、CaCl₂、CaBr₂、CaI₂、CsF、CsCl、CsBr、CsI、MgF₂、MgCl₂、MgBrCl、BaCl₂、BaI₂、AlF₃、AlCl₃、AlBrCl₂、ZnCl₂、ZnBr₂、CdCl₂、及びCdBrI、及び、元素周期表の第3又は第4族の金属の共有結合金属ハロゲン化物又はこれの酸化物又は酸塩化物から成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 4】

工程A)で使用される有機極性抽出剤がアセトンであることを特徴とする請求項3に記載の方法。

【請求項 5】

工程A)の有機極性抽出剤が、該有機極性抽出剤の全容積に対して、60～100容量%の1種以上の有機極性溶媒及び0～40容量%の1種以上の有機非極性溶媒を含むことを特徴とする請求項1～4の何れか1項に記載の方法。

【請求項 6】

有機非極性溶媒が、プロパン、ブタン、イソブタン、ペンタン、2-メチルブタン、ネオペンタン、シクロペンタン、ヘキサン、2-メチルペンタン、3-メチルペンタン、ヘプタン、2-メチルヘキサン、3-メチルヘキサン、シクロヘキサン、オクタン、イソオクタン、ノナン、イソノナン、デカン、ベンゼン、トルエン、又はキシレンから成る群から選ばれるアルカン及び芳香族炭化水素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】

工程B)の有機非極性抽出剤が、該有機非極性抽出剤の全容積に対して、60～100容量%の1種以上の有機非極性抽出溶媒及び0～40容積%の1種以上の有機極性溶媒を含むことを特徴とする請求項1～6の何れか1項に記載の方法。

【請求項 8】

工程A)と工程B)を結合し、工程A)のための極性抽出剤と、工程B)のための抽出剤とを同時に使用し、液相に溶解している固体を単離し、単離された固体が、工程A)とB)の溶媒を連続して使用することにより、有機金属副生成物を含む工程B)の液相を得、そして工程D)により、式(I Ia)のリガンド組成物又はこの二重結合異性体が工程B)の液相から単離される請求項1～7の何れか1項に記載の方法。

【誤訳訂正 2】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0002

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0002】

メタロセンは、適宜1種以上の助触媒を組み合わせて、オレフィンの重合および共重合の触媒として使用され得る。特に、ハロゲン含有メタロセン鎖体は、例えばアルミノキサンを用いて、重合活性のカチオン性メタロセン鎖体に転化され得る触媒前駆体として使用される(EP-A-0129368)。

【誤訳訂正 3】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0006

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0006】

これらの方法の不利な点は、多くのメタロセンが、従来の有機溶媒に対し中程度の溶解度しか有さず、この理由により大量の溶媒と、大がかりな濾過用機器及び膨大な処理時間が必要とされることである。これに加え、大量の有毒な又は環境上問題のある溶媒がしば

しば使用される。無機副生成物はしばしば極めて微細な形態で得られるので、濾過助剤が加えられ、加圧下で濾過が行われた場合でも濾過時間は非常に長くなる。濾液からメタロセンを可能な限り単離可能とするために、通常、溶媒は蒸留される必要がある。この場合、不純物例えば、微量の水分、塩基、プロトン化合物の存在下及び熱応力によりメタロセン溶液の安定性を制限する問題が生じる。更に、大多数の反応段階が不経済という点で不利である。個々の精製段階で形成される化合物（これは時々開始材料を含有する。）は、互いに分離することが困難である成分の混合物の形態であるため、単離不可能であるという事実が更に状況を不利にする。

【誤訳訂正 4】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0008

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0008】

本発明の目的は、メタロセンの合成で得られる生成混合物中の無機及び有機金属副生成物の濃度を減少させるための簡易で、柔軟で且つ効果的な方法を提供することであり、且つ同時に使用される開始材料（特にリガンド）の経済的な回収が可能であり、これにより多数の反応段階を省くことができる方法を提供することにある。

【誤訳訂正 5】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0009

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0009】

上記課題は、生成物として少なくとも1種の有機遷移金属化合物と、副生成物として少なくとも1種の有機金属副生成物及び少なくとも1種の無機副生成物を含む混合物から無機副生成物及び有機金属副生成物を分離する方法であって、

以下の工程：

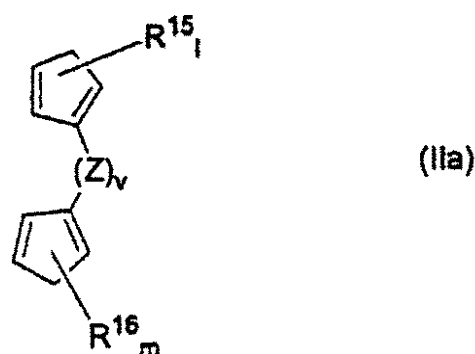
A) 生成物、有機金属副生成物及び無機副生成物を含む混合物を、少なくとも1種の有機極性抽出剤及び水を含み且つ有機極性抽出剤の水に対するモル比が10：1～1：10の混合物と混合し、未溶解残留物を分離する工程、

B) 工程A)からの残留物を、有機非極性抽出剤又は少なくとも1種の有機非極性抽出剤及び少なくとも1種の非プロトン性の有機極性溶媒を含む混合物で洗浄する工程、及び

C) 工程B)で洗浄され、且つ有機遷移金属化合物を含む残留物を乾燥する工程、

D) 工程B)から得られ、所定のメタロセンの有機リガンド組成物を含む液相から、析出により、式(IIa)、

【化4】



[但し、Z、v、l、m、R¹⁵、R¹⁶が式(II)のものと同義である。]

で表されるリガンド組成物又はこれらの二重結合異性体を単離する工程、
を含み、且つ

前記工程（Ａ）で使用される有機極性抽出剤が、

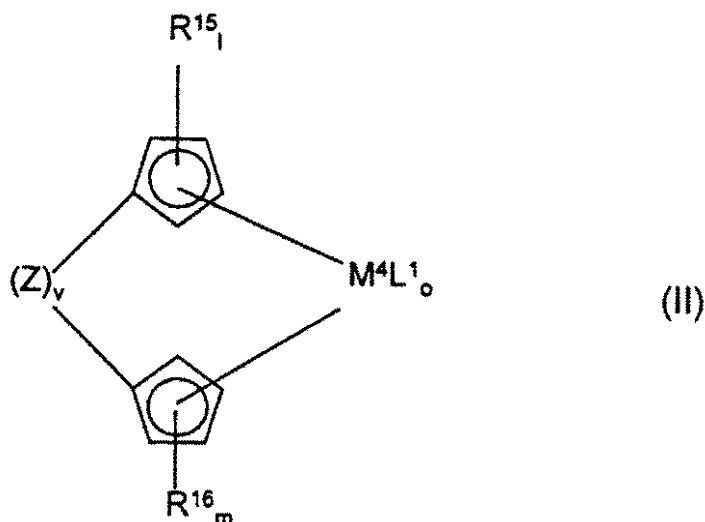
メタノール、エタノール、１－プロパノール、２－プロパノール、１－ブタノール、２－ブタノール、イソブタノール、tert－ブタノール、１－ペンタノール、２－ペンタノール、３－ペンタノール、アミルアルコール、イソアミルアルコール、１－ヘキサノール、２－ヘキサノール、３－ヘキサノール、２－メチル－２－ペンタノール、２－メチル－３－ペンタノール、３－メチル－３－ペンタノール、１－ヘプタノール、２－ヘプタノール、３－ヘプタノール、４－ヘプタノール、２－メチル－２－ヘキサノール、３－メチル－３－ヘキサノール、４－メチル－４－ヘキサノール、２－メチル－４－ヘキサノール、４－メチル－２－ヘキサノール、２－エチルヘキサノール、ベンジルアルコール、フェノール、レソルシノール、１－フェニルエタノール、２－フェニルエタノール、１－フェニル－２－ブタノール、３－フェニル－１－ブタノール、１，２－プロパンジオール、１，３－プロパンジオール、１，２－ブタンジオール、１，３－ブタンジオール、１，４－ブタンジオール、エチレングリコール、又はグリセロール、エタノールアミン、プロパノールアミン、メチルアミン、ジメチルアミン、トリメチルアミン、エチルアミン、ジエチルアミン、トリエチルアミン、メチルエチルアミン、メチルブチルアミン、プロピルアミン、ジプロピルアミン、トリプロピルアミン、ジイソプロピルアミン、トリイソプロピルアミン、tert－ブチルアミン、１，２－エチレンジアミン、N，N，N'，N'－テトラメチル－１，２－エチレンジアミン、ジ（n－ブチル）アミン、トリブチルアミン、アニリン、N－メチルアニリン、N，N－ジメチルアニリン、トルイジン又はN，N－ジメチルトルイジン、アセトアルデヒド、ブチルアルデヒド、ヘキサノール、又はプロピオンアルデヒド、ブタノン、アセトン、メチルプロピルケトン又はジエチルケトン、蟻酸、酢酸、プロピオン酸、ブチル酸、イソブチル酸、ペンタン酸又はヘキサン酸、蟻酸メチル、蟻酸エチル、蟻酸プロピル、蟻酸ブチル、酢酸メチル、酢酸エチル、酢酸プロピル、酢酸ブチル、プロピオン酸メチル、プロピオン酸ブチル、ジメチルエーテル、ジエチルエーテル、メチルエチルエーテル、ジブチルエーテル、ジイソプロピルエーテル、ジオキサン、トリオキサン、テトラヒドロフラン、フラン、ピロール、ピリジン、又はチオフエン、フォルムアミド、ジメチルフォルムアミド、ジエチルフォルムアミド、ジメチルアセトアミド、ジエチルアセトアミド、又はN－メチルピロリドン、アセトニトリル、プロピオニトリル、ブチロニトリル、クロロベンゼン、１，２－ジクロロベンゼン、１，３－ジクロロベンゼン又はプロモベンゼン、臭化エチル、塩化エチル、フッ化エチル、臭化ブチル、塩化ブチル、塩化メチル、又はジクロロメタン、ニトロメタン、ニトロエタン、１－ニトロプロパン、２－ニトロプロパン、１－ニトロブタン、２－ニトロブタン、ニトロベンゼン、２－ニトロトルエン、又は３－ニトロトルエン、及びこれらの混合物からなる群から選ばれ、

前記工程（Ｂ）で使用される有機非極性抽出剤が、プロパン、ブタン、イソブタン、ペンタン、２－メチルブタン、ネオペンタン、シクロペンタン、ヘキサン、２－メチルペンタン、３－メチルペンタン、ヘプタン、２－メチルヘキサン、３－メチルヘキサン、シクロヘキサン、オクタン、イソオクタン、ノナン、イソノナン又はデカン、ベンゼン、トルエン、キシレン又はこれらの混合物からなる群から選ばれ、

前記工程（Ｂ）で使用される非プロトン性の有機極性溶媒が、前記工程（Ａ）で 사용되는有機極性抽出剤から水素結合を形成できない有機極性溶媒として選ばれ、

生成物としての有機遷移金属化合物が式（ⅠⅠ）：

【化 2】



[但し、

M^4 が元素周期表の第3族、第4族、第5族又は第6族の金属であり、

R^{15} が同一又は異なるものであり、それぞれ水素原子又は $Si(R^{17})_3$ (R^{17} が同一又は異なるものであり、それぞれ水素原子又は $C_1 - C_{40}$ 基である。)であり、又は R^{15} が $C_1 - C_{30}$ 基であり、又は

2個以上の基 R^{15} 基が互いに結合して、基 R^{15} 及びこれらに結合するシクロペンタジエニル環の原子が、置換されても良い $C_4 - C_{24}$ 環を形成し、

R^{16} が同一又は異なるものであり、それぞれ水素原子又は $Si(R^{18})_3$ (R^{18} が同一又は異なるものであり、それぞれ水素原子又は $C_1 - C_{40}$ 基である。)であり、又は R^{16} が $C_1 - C_{30}$ 基であり、又は

2個以上の基 R^{16} が互いに結合して、基 R^{16} 及びこれらに結合するシクロペンタジエニル環の原子が、それぞれ置換されても良い $C_4 - C_{24}$ 環を形成し、

l が4であり、

m が4であり、

L^1 が、同一又は異なるものであり、それぞれ水素原子、 $C_1 - C_{10}$ -炭化水素基、ハロゲン原子、 OR^{19} 、 SR^{19} 、 $OSi(R^{19})_3$ 、 $Si(R^{19})_3$ 、 $P(R^{19})_2$ 又は $N(R^{19})_2$ (R^{19} が $C_1 - C_{10}$ -アルキル基、ハロゲン化 $C_1 - C_{10}$ -アルキル基、 $C_6 - C_{20}$ -アリール基、 $C_7 - C_{20}$ -アルキルアリール基又はハロゲン化 $C_6 - C_{20}$ -アリール基である。)であり、又は L^1 がトルエンスルホニル、トリフルオロアセチル、トリフルオロアセトキシル、トリフルオロメタン-スルホニル、ノナフルオロブタンスルホニル又は2, 2, 2-トリフルオロエタンスルホニル基であり、

o が1~4の整数であり、

Z が2個のシクロペンタジエニル環の間の架橋構造要素であり、そして v が1である。

1

で表されるラセミ形のメタロセン化合物であり、且つ以下の、

ジメチルシランジイルビス(インデニル)ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイルビス(テトラヒドロインデニル)ジルコニウムジクロライド、

エチレンビス(インデニル)ジルコニウムジクロライド、

エチレンビス(テトラヒドロインデニル)ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイルビス(2-メチルインデニル)ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイルビス(2-イソプロピルインデニル)ジルコニウムジクロライド

、

ジエチルシランジイルビス(2-メチルインデニル)ジルコニウムジブROMAイド、

ジメチルシランジイルビス(2-エチルインデニル)ジルコニウムジクロライド、
ジメチルシランジイルビス(2-メチル-4,5-ベンズインデニル)ジルコニウムジ
クロライド、
ジメチルシランジイルビス(2-エチル-4,5-ベンズインデニル)ジルコニウムジ
クロライド、
メチルフェニルシランジイルビス(2-メチル-4,5-ベンズインデニル)ジルコニ
ウムジクロライド、
メチルフェニルシランジイルビス(2-エチル-4,5-ベンズインデニル)ジルコニ
ウムジクロライド、
ジフェニルシランジイルビス(2-メチル-4,5-ベンズインデニル)ジルコニウム
ジクロライド、
ジフェニルシランジイルビス(2-エチル-4,5-ベンズインデニル)ジルコニウム
ジクロライド、
ジフェニルシランジイルビス(2-メチルインデニル)ハフニウムジクロライド、
ジメチルシランジイルビス(2-メチル-4-フェニルインデニル)ジルコニウムジク
ロライド、
ジメチルシランジイルビス(2-エチル-4-フェニルインデニル)ジルコニウムジク
ロライド、
ジメチルシランジイルビス(3-tert-ブチル-5-メチルシクロペンタジエニル)ジ
ルコニウムジクロライド、
ジメチルシランジイルビス(3-tert-ブチル-5-エチルシクロペンタジエニル)ジ
ルコニウムジクロライド、
ジメチルシランジイルビス(2-メチル-4-(1-ナフチル)インデニル)ジルコニ
ウムジクロライド、
ジメチルシランジイルビス(2-エチル-4-(1-ナフチル)インデニル)ジルコニ
ウムジクロライド、
ジメチルシランジイルビス(2-プロピル-4-(1-ナフチル)インデニル)ジルコ
ニウムジクロライド、
ジメチルシランジイルビス(2-i-ブチル-4-(1-ナフチル)インデニル)ジル
コニウムジクロライド、
ジメチルシランジイルビス(2-メチル-4-イソプロピルインデニル)ジルコニウム
ジクロライド、
ジメチルシランジイルビス(2,7-ジメチル-4-イソプロピルインデニル)ジルコ
ニウムジクロライド、
ジメチルシランジイルビス(2-メチル-4,6-ジイソプロピルインデニル)ジルコ
ニウムジクロライド、
ジメチルシランジイルビス(2-メチル-4[p-トリフルオロメチルフェニル]イン
デニル)ジルコニウムジクロライド、
ジメチルシランジイルビス(2-メチル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデ
ニル)ジルコニウムジクロライド、
ジエチルシランジイルビス(2-メチル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデ
ニル)ジルコニウムジクロライド、
ジメチルシランジイルビス(2-エチル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデ
ニル)ジルコニウムジクロライド、
ジメチルシランジイルビス(2-プロピル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]イン
デニル)ジルコニウムジクロライド、
ジメチルシランジイルビス(2-イソプロピル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]
インデニル)ジルコニウムジクロライド、
ジメチルシランジイルビス(2-n-ブチル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]イ
ンデニル)ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイルビス(2-ヘキシル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデニル)ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイルビス(2-イソプロピル-4-フェニルインデニル)ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイル(2-イソプロピルインデニル)-(2-メチル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデニル)ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイル(2-イソプロピルインデニル)-(2-メチル-4-(1-ナフチル)インデニル)ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイル(2-イソプロピルインデニル)-(2-メチル-4-フェニルインデニル)ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイル(2-イソプロピル-4-(1-ナフチル)インデニル)-(2-メチル-4-(1-ナフチル)-インデニル)ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイル(2-イソプロピル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデニル)-(2-メチル-4-フェニルインデニル)ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイル(2-イソプロピル-4-フェニルインデニル)-(2-メチル-4-フェニルインデニル)ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイル(2-イソプロピル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデニル)-(2-メチル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデニル)ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイル(2-シクロヘキシル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデニル)-(2-メチル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデニル)ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイル(2-シクロヘキシル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデニル)-(2-メチル-4-フェニルインデニル)ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイル(2-イソプロピル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデニル)-(2-エチル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデニル)ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイル(2-イソプロピル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデニル)-(2-メチル-4-[3',5'-ビス-tert-ブチルフェニル]インデニル)ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイル(2-イソプロピル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデニル)-(2-メチル-4-[1'-ナフチル]インデニル)ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイル(2-イソプロピル-4-[1'-ナフチル]インデニル-(2-メチル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデニル))ジルコニウムジクロライド、

エチレン(2-イソプロピル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデニル)-(2-メチル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデニル)ジルコニウムジクロライド、

エチレンビス(2-イソプロピル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデニル)ジルコニウムジクロライド、

1,2-エタンジイルビス(2-エチル-4-フェニルインデニル)ジルコニウムジクロライド、

1,2-エタンジイルビス(2-メチル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデニル)ジルコニウムジクロライド、

1,2-エタンジイルビス(2-エチル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデニル)ジルコニウムジクロライド、

1,2-エタンジイルビス(2-n-プロピル-4-[4'-tert-ブチルフェニル]インデニル)ジルコニウムジクロライド、

1,2-エタンジイルビス(2-メチル-4-フェニルインデニル)ジルコニウムジク

C₄H₈ - シランジイル (2 - イソプロピル - 4 - [4' - tert - ブチルフェニル] イン

デニル) - (2 - メチル - 4 - [4' - tert - ブチルフェニル] インデニル) ジルコニウムジクロライド、

C₄H₈ - シランジイル (2 - イソプロピル - 4 - [4' - tert - ブチルフェニル] インデニル) - (2 - エチル - 4 - [4' - tert - ブチルフェニル] インデニル) ジルコニウムジクロライド、

C₄H₈ - シランジイル (2 - イソプロピル - 4 - [4' - tert - ブチルフェニル] インデニル) - (2 - メチル - 4 - [3', 5' - ビス - tert - ブチル - 4' - メトキシフェニル] インデニル) ジルコニウムジクロライド、

C₄H₈ - シランジイル (2 - イソプロピル - 4 - [4' - tert - ブチルフェニル] インデニル) - (2 - エチル - 4 - [3', 5' - ビス - tert - ブチル - 4' - メトキシフェニル] インデニル) ジルコニウムジクロライド、

及び

ジメチルシランジイル (2 - メチル - 4 - (4' - tert - ブチルフェニル) インデニル) (2 - イソプロピル - 4 - (4' - tert - ブチルフェニル) - インデニル) ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイル (2 - エチル - 4 - (4' - tert - ブチルフェニル) インデニル) (2 - イソプロピル - 4 - (4' - tert - ブチルフェニル) - インデニル) ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイル (2 - メチル - 4 - (4' - tert - ブチルフェニル) インデニル) (2 - イソプロピル - 4 - (ナフチル) インデニル) ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイル (2 - メチル - 4 - (4' - tert - ブチルフェニル) インデニル) (2 - シクロヘキシル - 4 - (4' - tert - ブチルフェニル) - インデニル) ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイル (2 - メチル - 4 - フェニル) インデニル) (2 - イソプロピル - 4 - フェニル) インデニル) ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイルビス (2 - メチル - 4, 5 - ベンズインデニル) ジルコニウムジクロライド、

ジメチルシランジイルビス (2 - メチル - 4 - フェニルインデニル) ジルコニウムジクロライド、

からなる群から選ばれることを特徴とする方法によって解決される。

【誤訳訂正 6】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0022

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0022】

本発明の目的に向けて、「有機金属副生成物」という用語は、所望のメタロセンと同一の金属を含む、すべての有機金属化合物を意味し、少なくとも 1 個の炭素を含むリガンド、特に π (パイ) - リガンドがこの金属に結合している。

【誤訳訂正 7】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0036

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0036】

「極性抽出剤」という用語は少なくとも 1 種の有機極性抽出剤及び水の混合物を示す。

【誤訳訂正 8】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0047

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【 0 0 4 7 】

本発明の方法では、工程 A] において、1 種又はそれ以上の無機副生成物（例えば、無機塩又は共有結合金属ハロゲン化物）が選択された抽出剤（これは少なくとも 1 種の有機極性溶媒抽出物及び水を含む混合物であるが、）に溶解する。所望のメタロセンは固体として残存し、及び例えば濾過、遠心分離、傾瀉法(decantation)によって分離できる。これは所望のメタロセンから柔軟な条件(mild condition)下で、短時間で、使用する抽出剤は比較的少量で、）望ましくない無機副生成物を分離することを可能にする。本発明の方法によって得られた空時収率(space-time yield)は高い。これに加え分離時間（例えば、濾過時間）は本発明の方法の手段により大幅に減少され、大量のメタロセンであっても簡単に、迅速に、費用がかからずに精製ができる。

【誤訳訂正 9】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0 0 4 8

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【 0 0 4 8 】

添加される抽出剤のモル比は無機不純物及び有機金属不純物及び有機不純物による汚染の度合に依存する。

【誤訳訂正 1 0】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0 0 5 0

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【 0 0 5 0 】

本発明の方法は、例えばメタロセン合成物中に得られた粗生成物を懸濁(suspend)させることにより実施され、この合成物は少なくとも 1 種のメタロセン及び少なくとも 1 種の無機副生成物を含み、少なくとも 1 種の有機極性抽出剤及び水中で、温度 - 1 0 0 ~ + 2 0 0 、好ましくは - 1 0 ~ + 1 0 0 特に好ましくは 2 0 ~ + 5 0 で混合状態で及び強撹拌されて実施される。有機極性抽出剤は、少なくとも 1 種の有機極性溶媒又は種々の有機極性溶媒混合物又は 1 種以上の有機溶媒と 1 種以上の有機非極性溶媒との混合物を含む。粗生成物は（水と有機極性抽出剤を含有する）極性抽出剤で直接処理されることが可能である。もし、有機極性溶媒及び所望であれば有機非極性溶媒及び水が使用されれば、個々の溶媒は粗生成物と連続的に接触するように扱うことも可能であり、例えば最初に非極性溶媒であり、及びそして有機極性溶媒であり、そして水又はその逆である。極性抽出剤と接触している間、この時間は 1 分から 9 6 時間が可能であり、好ましくは 1 0 分と 8 時間の間であるが、無機副生成物は溶解する。温度は、式 (I I) の有機遷移金属化合物が液相に懸濁する固体として存在、即ちこれらが溶解しないように選択される。続いて起こる温度は好ましくは温度 2 0 ~ 1 5 0 の範囲である。更に、この処理は大気圧で実施可能である。しかしながら、適当な反応器を必要とするが、これは超大気圧(superatmospheric pressure)で実施することも可能である。式 (I I) と式 (I) の化合物が有機極性抽出剤と結合しているモル化学量論比(molar stoichiometric ratio)は 1 : 1 0 0 0 ~ 1 : 0 . 0 1、好ましくは 1 : 1 0 0 ~ 1 : 1 である。

【誤訳訂正 1 1】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0 0 5 2

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【 0 0 5 2 】

式 (I I) の濃縮有機遷移金属化合物の分離が行われた後工程 B) で更なる洗浄工程が

実施される。ここで、有機金属化合物及び望ましくない有機化合物の濃度は有機非極性抽出剤又は（少なくとも１種の有機非極性抽出剤及び少なくとも１種の非プロトン性有機極性溶媒を含有する）混合物によって減少される。

【誤訳訂正１２】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】００５４

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【００５４】

工程Ｂ）における処理は、１分から９６時間の間で実施される。好ましくは、これは１０分から８時間である。抽出剤が加えられた時の、最初のチャージ(charge)の温度は、 $-100 \sim -200$ 、好ましくは $-80 \sim -150$ 、特に好ましくは $20 \sim 100$ である。この温度は、式（ⅠⅠ）の所望の有機遷移金属化合物が液相中に懸濁した固体（即ちこれらが溶解しない）として存在するように選択される。引き続く温度は $20 \sim 150$ の範囲が好ましい。更に、この処理は、大気圧で実施される。しかしながら、適当な反応器が必要であるが、これは超大気圧においてでも実施され得る。式（ⅠⅠ）の化合物と、有機非極性抽出剤又は非プロトン性溶媒と有機非極性抽出剤との混合物が組合せられるモル比は $1 : 1000 \sim 1 : 0.01$ である。 $1 : 100 \sim 1 : 1$ の化学量論比が好ましい。