



(19)  
Bundesrepublik Deutschland  
Deutsches Patent- und Markenamt

(10) **DE 60 2005 005 334 T2** 2009.03.26

(12) **Übersetzung der europäischen Patentschrift**

(97) **EP 1 769 030 B1**

(21) Deutsches Aktenzeichen: **60 2005 005 334.4**

(86) PCT-Aktenzeichen: **PCT/EP2005/052688**

(96) Europäisches Aktenzeichen: **05 760 920.8**

(87) PCT-Veröffentlichungs-Nr.: **WO 2006/008211**

(86) PCT-Anmeldetag: **10.06.2005**

(87) Veröffentlichungstag  
der PCT-Anmeldung: **26.01.2006**

(97) Erstveröffentlichung durch das EPA: **04.04.2007**

(97) Veröffentlichungstag  
der Patenterteilung beim EPA: **12.03.2008**

(47) Veröffentlichungstag im Patentblatt: **26.03.2009**

(51) Int Cl.<sup>8</sup>: **C08L 23/18** (2006.01)

**C08L 23/20** (2006.01)

**C08F 10/08** (2006.01)

**C08F 210/08** (2006.01)

**C08F 4/642** (2006.01)

(30) Unionspriorität:

**04103525**      **22.07.2004**      **EP**

**592346 P**      **28.07.2004**      **US**

(73) Patentinhaber:

**Basell Polyolefine GmbH, 50389 Wesseling, DE**

(84) Benannte Vertragsstaaten:

**AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB,  
GR, HU, IE, IS, IT, LI, LT, LU, MC, NL, PL, PT, RO,  
SE, SI, SK, TR**

(72) Erfinder:

**RESCONI, Luigi, I-44100 Ferrara, IT; PELLICONI,  
Anteo, I-45030 Occhiobello - Rovigo, IT; SPATARO,  
Stefano, I-44100 Ferrara, IT; MOSCARDI, Gilberto,  
I-44100 Ferrara, IT**

(54) Bezeichnung: **1-BUTENPOLYMERZUSAMMENSETZUNG**

Anmerkung: Innerhalb von neun Monaten nach der Bekanntmachung des Hinweises auf die Erteilung des europäischen Patents kann jedermann beim Europäischen Patentamt gegen das erteilte europäische Patent Einspruch einlegen. Der Einspruch ist schriftlich einzureichen und zu begründen. Er gilt erst als eingelegt, wenn die Einspruchsgebühr entrichtet worden ist (Art. 99 (1) Europäisches Patentübereinkommen).

Die Übersetzung ist gemäß Artikel II § 3 Abs. 1 IntPatÜG 1991 vom Patentinhaber eingereicht worden. Sie wurde vom Deutschen Patent- und Markenamt inhaltlich nicht geprüft.

**Beschreibung**

**[0001]** Die vorliegende Erfindung betrifft eine 1-Butenpolymerzusammensetzung, die ataktisches 1-Butenpolymer, das unter Verwendung eines Katalysatorsystems auf Single-Site-Basis erhältlich ist, und ein isotaktisches 1-Butenpolymer enthält. Die vorliegende Erfindung betrifft ferner das Verfahren zur Herstellung der Zusammensetzung.

**[0002]** Isotaktisches 1-Butenpolymer ist in der Technik gut bekannt. In Anbetracht seiner guten Eigenschaften in Bezug auf Druckbeständigkeit, Kriechbeständigkeit und Schlagfestigkeit wird es weitverbreitet beispielsweise zur Herstellung von Rohren, die Metallrohre ersetzen sollen, für Aufreißverpackungen und Folien verwendet. Isotaktische 1-Buten(co)polymere können beispielsweise erhalten werden, indem die Monomere in Gegenwart eines stereospezifischen Katalysators polymerisiert werden, der (A) eine feste Komponente, die eine Ti-Verbindung und eine Elektronendonoverbindung auf einem  $MgCl_2$ -Träger, (B) eine Alkylaluminiumverbindung und gegebenenfalls (C) eine externe Elektronendonoverbindung umfasst. Ein Verfahren dieses Typs ist in EP-A-172 961 und WO 99/45043 offenbart. In neuerer Zeit sind isotaktische 1-Butenpolymere unter Verwendung von Katalysatorsystemen auf Metallocenbasis nach dem Verfahren hergestellt worden, das beispielsweise in WO 02/100908, WO 02/100909 und WO 03/014107 offenbart ist.

**[0003]** Es besteht bei einigen Anwendungen jedoch der Bedarf an einem viel weicheren Material, um entweder den ästhetischen Aspekt des fertigen Harzes zu verbessern oder um bestimmte mechanische Charakteristika, wie den Elastizitätsmodul, zu verbessern, so dass das Material beispielsweise zur Extrusion, für Spritzguss, Schalguss oder Rotationsformen verwendet werden kann.

**[0004]** Ataktisches 1-Butenpolymer mit enger Molekulargewichtsverteilung ist in Beispiel 17 von EP 604 908 beschrieben. In diesem Beispiel wird unter Verwendung von Dimethylsilandiylbis(9-fluorenyl)zirkoniumdimethyl ein Polymer mit einer Strukturviskosität von 1,29 dl/g erhalten. US-A-6,288,192 beschreibt ein ataktisches 1-Butenpolymer mit einem  $M_w/M_n$  von 2,5 oder weniger und einem sehr hohen Molekulargewicht.

**[0005]** In den obigen Dokumenten wird kein Gemisch von isotaktischem 1-Butenpolymer und ataktischem 1-Butenpolymer beschrieben.

**[0006]** US-A-4,298-722 beschreibt ein fraktionierbares elastomeres 1-Butenpolymer. Das Polymer enthält 30 bis 80 Gew.% einer in Diethylether löslichen Fraktion. Diese Fraktion hat einen Infrarotkristallinitätswert von 1% bis 15%. Dieser Wert ist, verglichen mit dem Infrarotkristallinitätswert des ataktischen 1-Butenpolymers, das für die erfindungsgemäße Zusammensetzung verwendet wird, recht hoch.

**[0007]** WO 2004/050713 betrifft ein Verfahren zur Herstellung eines isotaktischen 1-Butencopolymers, das bis zu 30 Mol.% andere  $\alpha$ -Olefine enthält. Dieses Dokument sagt gar nichts über ataktische Polymere auf 1-Butenbasis.

**[0008]** In Macromolecules, Band 33, Nr. 6, 2000, ist ein Verfahren zur Herstellung eines 1-Butenhomopolymers beschrieben. Das Verfahren verwendet rac- und meso-Mischungen von Dimethylsilylbis(2-methyl-4-phenylindenyl)zirkoniumdichlorid, Dimethylsilylbis(indenyl)zirkoniumdichlorid oder Dimethylsilylbis(2-methyl-4,5-benzoindenyl)zirkoniumdichlorid. Die Molekulargewichte des ataktischen 1-Butenpolymers sind recht niedrig, sie liegen im Bereich von 200 kg/Mol bis 40 kg/Mol, das entspricht einer in Decahydronaphthalin gemessenen Strukturviskosität im Bereich von 0,95 dl/g bis 0,27 dl/g gemäß den Parametern der Mark-Houwink-Gleichung, die in dem Dokument selbst beschrieben ist. Diese Werte entsprechen einer in Decahydronaphthalin gemessenen Strukturviskosität (IV), die im Bereich von 0,83 dl/g bis 0,23 dl/g liegt. In der erfindungsgemäßen 1-Butenpolymerzusammensetzung ist die Strukturviskosität des 1-Butenpolymers höher als der in jenem Dokument beschriebene Wert von 0,83 dl/g. Das höhere Molekulargewicht (d. h. der höhere Wert der Strukturviskosität) macht die Zusammensetzungen weniger klebrig, wodurch sie leichter verarbeitbar werden.

**[0009]** Eine Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist daher eine 1-Butenpolymerzusammensetzung, umfassend

- a) 5 Gew.-% bis 95 Gew.-% ataktisches Polymer auf 1-Butenbasis ausgewählt aus: ataktischem Homopolymer von 1-Buten oder einem ataktischen Copolymer von 1-Buten, das bis zu 50 Mol.% von einem oder mehreren  $\alpha$ -Olefinen ausgewählt aus Ethylen, Propylen und  $\alpha$ -Olefinen mit der Formel  $CH_2=CHZ$  enthält, wobei Z eine  $C_3$ - bis  $C_{10}$ -Alkylgruppe ist, mit den folgenden Merkmalen:
  - i) Molekulargewichtsverteilung  $M_w/M_n$  gleich oder kleiner als 4, gemessen mittels GPC;

- ii) rr-Triaden zwischen 5% und 50%, gemessen mittels  $^{13}\text{C}$ -NMR;
  - iii) keine Schmelzenthalpie nachweisbar im Differentialscanningkalorimeter (DSC);
  - iv) Strukturviskosität (IV) zwischen 0,85 dl/g und 5,0 dl/g, gemessen in Tetrahydronaphthalin (THN) bei  $135^\circ\text{C}$ ; und
  - v) Infrarotkristallinität kleiner als 0,5%,
- b) 5 Gew.-% bis 95 Gew.-% eines isotaktischen Polymers auf 1-Buten-Basis ausgewählt aus isotaktischem Homopolymer von 1-Buten, isotaktischem Copolymer von 1-Buten, das bis zu 5 Mol.% von Ethylen abgeleitete Einheiten enthält, isotaktischem Copolymer von 1-Buten, das bis zu 50 Mol.% von Propylen abgeleitete Einheiten enthält, oder einem isotaktischen Copolymer von 1-Buten und einem oder mehreren  $\alpha$ -Olefinen der Formel  $\text{CH}_2=\text{CHZ}$ , wobei Z eine  $\text{C}_3$ - bis  $\text{C}_{10}$ -Alkylgruppe ist, das bis zu 20 Mol.% der von den  $\alpha$ -Olefinen abgeleiteten Einheiten enthält, mit den folgenden Merkmalen:
- i) isotaktische Pentaden (mmmm) von mehr als 80%. Gemessen mittels  $^{13}\text{C}$ -NMR;
  - ii) Schmelzpunkt höher als  $80^\circ\text{C}$  und
  - iii) Strukturviskosität (IV) zwischen 0,10 dl/g und 5,0 dl/g, gemessen in Tetrahydronaphthalin (THN) bei  $135^\circ\text{C}$ .

**[0010]** In der ataktischen Polymerkomponente a) auf 1-Butenbasis der Zusammensetzung ist die Verteilung des Molekulargewichts vorzugsweise niedriger als 3, insbesondere ist sie niedriger als 2,5. In der Komponente a) machen die rr-Triaden, gemessen mittels  $^{13}\text{C}$ -NMR, vorzugsweise zwischen 10% und 40% aus, insbesondere liegen die rr zwischen 20% und 30%. In der Komponente a) liegt die Strukturviskosität (IV), gemessen in Tetrahydronaphthalin (THN) bei  $135^\circ\text{C}$ , vorzugsweise zwischen 1,0 dl/g und 5,0 dl/g, vorzugsweise zwischen 1,0 dl/g und 3,0 dl/g, insbesondere zwischen 1,0 dl/g und 2,5 dl/g.

**[0011]** In der Komponente a) ist die Infrarotkristallinität vorzugsweise niedriger als 0,3%, insbesondere niedriger als 0,1%, besonders bevorzugt niedriger als 0,05%.

**[0012]** In dem ataktischen Copolymer der 1-Butenkomponente a) liegt der Gehalt an Ethylen, Propylen oder den  $\alpha$ -Olefinen vorzugsweise zwischen 0,1 Mol.% und 20 Mol.%, insbesondere liegt er zwischen 0,1 Mol.% und 10 Mol.%, besonders bevorzugt liegt er zwischen 0,1 Mol.% und 5 Mol.%.

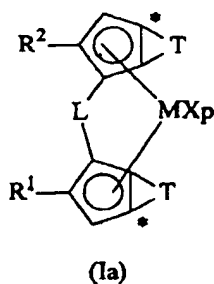
**[0013]** Komponente a) ist in Xylol bei  $0^\circ\text{C}$  vollständig löslich, wobei die Löslichkeit gemäß dem nachfolgend beschriebenen Verfahren gemessen wird.

**[0014]** Das ataktische Homopolymer von 1-Buten wird vorzugsweise als Komponente a) verwendet.

**[0015]** Die als Komponente a) verwendete ataktischen 1-Butenpolymere können vorzugsweise erhalten werden, indem 1-Buten und gegebenenfalls Ethylen, Propylen oder ein oder mehrere der  $\alpha$ -Olefine mit der Formel  $\text{CH}_2=\text{CHZ}$  (wenn 1-Butencopolymere verwendet werden) in Gegenwart eines Katalysatorsystems auf Single-Site-Basis polymerisiert werden. Die 1-Butenpolymerkomponente a) kann beispielsweise gemäß den Verfahren erhalten werden, die in US-A-6,288,192; EP-A-604 908; Journal of Polymer Science, Teil A: polymer chemistry (2001), 39(23), 4068; Journal of Polymer Science, Teil A: polymer chemistry (1999), 37(24), 4497; Polymer International (2001), 50(1), 45–48 beschrieben sind.

**[0016]** Die Komponente a) der ataktischen Polymere auf 1-Butenbasis ist vorzugsweise nach einem Verfahren erhältlich, das die Stufe des Polymerisierens von 1-Buten und gegebenenfalls einem oder mehreren  $\alpha$ -Olefinen ausgewählt aus Ethylen, Propylen und  $\alpha$ -Olefinen mit der Formel  $\text{CH}_2=\text{CHZ}$ , wobei Z eine  $\text{C}_3$ - bis  $\text{C}_{10}$ -Alkylgruppe ist, in Gegenwart eines Katalysatorsystems umfasst, das erhältlich ist durch Kontaktieren von

a) mindestens einer Metallocenverbindung mit der Formel (Ia) in der meso- oder einer mesoartigen Form



worin:

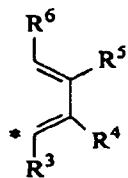
M ein Übergangsmetallatom ausgewählt aus jenen der Gruppe 3, 4, 5, 6 oder der Lanthanid- oder Actinid-

gruppen in dem Periodensystem der Elemente ist; wobei M vorzugsweise Titan, Zirkonium oder Hafnium ist; p eine ganze Zahl von 0 bis 3 ist und gleich dem formalen Oxidationszustand des Metalls M minus 2 ist; X gleich oder unterschiedlich ist und ein Wasserstoffatom, ein Halogenatom oder eine R, OR, OSO<sub>2</sub>CF<sub>3</sub>, OCOR, SR, NR<sub>2</sub> oder PR<sub>2</sub> Gruppe ist, wobei R lineare oder verzweigte, cyclische oder acyclische C<sub>1</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkyl-, C<sub>2</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkenyl-, C<sub>2</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkynyl-, C<sub>6</sub>- bis C<sub>40</sub>-Aryl-, C<sub>7</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkylaryl- oder C<sub>7</sub>- bis C<sub>40</sub>-Arylalkylreste ist, die gegebenenfalls Heteroatome enthalten, die zu den Gruppen 13 bis 17 des Periodensystems der Elemente gehören, wobei R vorzugsweise ein linearer oder verzweigter C<sub>1</sub>- bis C<sub>20</sub>-Alkylrest ist, oder zwei X gegebenenfalls einen substituierten oder unsubstituierten Butadienylrest oder eine OR'O-Gruppe bilden, wobei R' ein zweiwertiger Rest ausgewählt aus C<sub>1</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkyliden, C<sub>6</sub>- bis C<sub>40</sub>-Aryliden, C<sub>7</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkylaryliden und C<sub>7</sub>- bis C<sub>40</sub>-Arylalkylidenresten ist; wobei X vorzugsweise ein Wasserstoffatom, ein Halogenatom oder eine R-Gruppe ist, wobei X insbesondere Chlor oder ein C<sub>1</sub>- bis C<sub>10</sub>-Alkylrest, wie Methyl, oder Benzylreste ist;

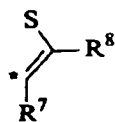
L ein zweiwertiger C<sub>1</sub>- bis C<sub>40</sub>-Kohlenwasserstoffrest ist, der gegebenenfalls Heteroatome enthält, die zu den Gruppen 13 bis 17 des Periodensystems der Elemente gehören, oder ein zweiwertiger Silylidenrest ist, der bis zu 5 Siliciumatome enthält; wobei L vorzugsweise eine zweiwertige Brückengruppe ausgewählt aus C<sub>1</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkyliden, C<sub>3</sub>- bis C<sub>40</sub>-Cycloalkyliden, C<sub>6</sub>- bis C<sub>40</sub>-Aryliden, C<sub>7</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkylaryliden oder C<sub>7</sub>- bis C<sub>40</sub>-Arylalkylidenresten, die gegebenenfalls Heteroatome enthalten, die zu den Gruppen 13 bis 17 des Periodensystems der Elemente gehören, und Silylenrest ist, der bis zu 5 Siliciumatome enthält, wie SiMe<sub>2</sub>, SiPh<sub>2</sub>; wobei L vorzugsweise eine Gruppe (Z(R''))<sub>n</sub> ist, wobei Z ein Kohlenstoff- oder Siliciumatom ist, n 1 oder 2 ist und R'' ein C<sub>1</sub>- bis C<sub>20</sub>-Kohlenwasserstoffrest ist, der gegebenenfalls Heteroatome enthält, die zu den Gruppen 13 bis 17 des Periodensystems der Elemente gehören; wobei R'' vorzugsweise ein linearer oder verzweigter, cyclischer oder acyclischer C<sub>1</sub>- bis C<sub>20</sub>-Alkyl-, C<sub>2</sub>- bis C<sub>20</sub>-Alkenyl-, C<sub>2</sub>- bis C<sub>20</sub>-Alkynyl-, C<sub>6</sub>- bis C<sub>20</sub>-Aryl-, C<sub>7</sub>- bis C<sub>20</sub>-Alkylaryl- oder C<sub>7</sub>- bis C<sub>20</sub>-Arylalkylrest ist, der Heteroatome enthält, die zu den Gruppen 13 bis 17 des Periodensystems der Elemente gehören; insbesondere ist die Gruppe (Z(R''))<sub>2</sub>, Si(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>, SiPh<sub>2</sub>, SiPhMe, SiMe(SiMe<sub>3</sub>), CH<sub>2</sub>, (CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub> und C(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>;

R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> gleich oder voneinander verschieden sind und C<sub>1</sub>- bis C<sub>40</sub>-Kohlenwasserstoffreste sind, die gegebenenfalls Heteroatome enthalten, die zu den Gruppen 13 bis 17 des Periodensystems der Elemente gehören; wobei sie vorzugsweise lineare oder verzweigte, cyclische oder acyclische C<sub>1</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkyl-, C<sub>2</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkenyl-, C<sub>2</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkynyl-, C<sub>6</sub>- bis C<sub>40</sub>-Aryl-, C<sub>7</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkylaryl- oder C<sub>7</sub>- bis C<sub>40</sub>-Arylalkylreste sind, die gegebenenfalls Heteroatome enthalten, die zu den Gruppen 13 bis 17 des Periodensystems der Elemente gehören; wobei R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> insbesondere lineare, gesättigte oder ungesättigte C<sub>1</sub>- bis C<sub>20</sub>-Alkylreste sind und R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> insbesondere Methyl- oder Ethylreste sind;

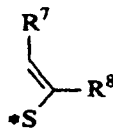
T, die gleich oder voneinander verschieden sind, eine Einheit mit der Formel (IIa), (IIb) oder (IIc) ist:



(IIa)



(IIb)



(IIc)

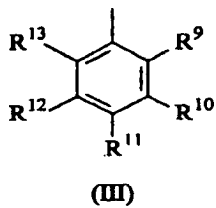
wobei das mit dem Symbol \* markierte Atom an das Atom in der Verbindung mit der Formel (Ia) gebunden ist, welches mit dem gleichen Symbol markiert ist;

R<sup>3</sup> ein C<sub>1</sub>- bis C<sub>40</sub>-Kohlenwasserstoffrest ist, der gegebenenfalls Heteroatome enthält, die zu den Gruppen 13 bis 17 des Periodensystems der Elemente gehören; wobei R<sup>3</sup> vorzugsweise ein linearer oder verzweigter, cyclischer oder acyclischer C<sub>1</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkyl-, C<sub>2</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkenyl-, C<sub>2</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkynyl-, C<sub>6</sub>- bis C<sub>40</sub>-Aryl-, C<sub>7</sub>- bis C<sub>40</sub>-Arylalkyl- oder C<sub>7</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkylarylrest ist, der gegebenenfalls Heteroatome enthält, die zu den Gruppen 13 bis 17 des Periodensystems der Elemente gehören; wobei R<sup>3</sup> insbesondere ein linearer oder verzweigter C<sub>1</sub>- bis C<sub>20</sub>-Alkyl-, C<sub>6</sub>- bis C<sub>40</sub>-Aryl-, C<sub>7</sub>- bis C<sub>40</sub>-Arylalkylrest ist, wobei R<sup>3</sup> besonders bevorzugt ein C<sub>6</sub>- bis C<sub>20</sub>-Arylrest ist, der gegebenenfalls mit einer oder mehreren C<sub>1</sub>- bis C<sub>10</sub>-Alkylgruppen substituiert ist;

R<sup>4</sup> und R<sup>6</sup>, die gleich oder voneinander verschieden sind, Wasserstoffatome oder C<sub>1</sub>- bis C<sub>40</sub>-Kohlenwasserstoffreste sind, die gegebenenfalls Heteroatome enthalten, die zu den Gruppen 13 bis 17 des Periodensystems der Elemente gehören; wobei R<sup>4</sup> und R<sup>6</sup> gleich oder voneinander verschieden sind und Wasserstoffatome oder lineare oder verzweigte, cyclische oder acyclische C<sub>1</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkyl-, C<sub>2</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkenyl-, C<sub>2</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkynyl-, C<sub>6</sub>- bis C<sub>40</sub>-Aryl-, C<sub>7</sub>- bis C<sub>40</sub>-Arylalkyl- oder C<sub>7</sub>- bis C<sub>40</sub>-Arylalkylreste sind, die gegebenenfalls Heteroatome enthalten, die zu den Gruppen 13 bis 17 des Periodensystems der Elemente gehören, wobei R<sup>4</sup> und R<sup>6</sup> vorzugsweise Wasserstoffatome sind;

R<sup>5</sup> ein C<sub>1</sub>- bis C<sub>40</sub>-Kohlenwasserstoffrest ist, der gegebenenfalls Heteroatome enthält, die zu den Gruppen 13 bis 17 des Periodensystems der Elemente gehören; wobei R<sup>5</sup> vorzugsweise lineare oder verzweigte, cy-

clische oder acyclische C<sub>1</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkyl-, C<sub>2</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkenyl-, C<sub>2</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkynyl-, C<sub>6</sub>- bis C<sub>40</sub>-Aryl-, C<sub>7</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkylaryl- oder C<sub>7</sub>- bis C<sub>40</sub>-Arylalkylreste sind, die gegebenenfalls Heteroatome enthalten, die zu den Gruppen 13 bis 17 des Periodensystems der Elemente gehören; wobei R<sup>5</sup> insbesondere ein linearer, gesättigter oder ungesättigter C<sub>1</sub>- bis C<sub>20</sub>-Alkylrest ist und R<sup>5</sup> insbesondere ein Methyl- oder Ethylrest ist; R<sup>7</sup> und R<sup>8</sup> gleich oder voneinander verschieden sind und Wasserstoffatome oder C<sub>1</sub>- bis C<sub>40</sub>-Kohlenwasserstoffreste sind, die gegebenenfalls Heteroatome enthalten, die zu den Gruppen 13 bis 17 des Periodensystems der Elemente gehören; wobei R<sup>7</sup> und R<sup>8</sup> vorzugsweise Wasserstoffatome oder lineare oder verzweigte, cyclische oder acyclische C<sub>1</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkyl-, C<sub>2</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkenyl-, C<sub>2</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkynyl-, C<sub>6</sub>- bis C<sub>40</sub>-Aryl-, C<sub>7</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkylaryl- oder C<sub>7</sub>- bis C<sub>40</sub>-Arylalkylreste sind, die gegebenenfalls Heteroatome enthalten, die zu den Gruppen 13 bis 17 des Periodensystems der Elemente gehören; wobei R<sup>8</sup> vorzugsweise ein Wasserstoffatom oder ein linearer oder verzweigter, gesättigter oder ungesättigter C<sub>1</sub>- bis C<sub>20</sub>-Rest ist; wobei R<sup>8</sup> insbesondere ein Methyl- oder Ethylrest ist; wobei R<sup>7</sup> vorzugsweise ein Wasserstoffatom oder ein C<sub>1</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkyl-, C<sub>6</sub>- bis C<sub>40</sub>-Aryl- oder ein C<sub>7</sub>- bis C<sub>40</sub>-Arylalkylrest ist; wobei R<sup>7</sup> bevorzugter eine Gruppe mit der Formel (III) ist:

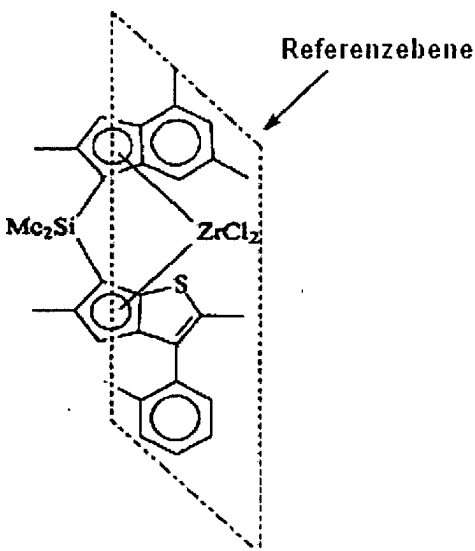


wobei R<sup>9</sup>, R<sup>10</sup>, R<sup>11</sup>, R<sup>12</sup> und R<sup>13</sup> gleich oder voneinander verschieden sind und Wasserstoffatome oder lineare oder verzweigte, cyclische oder acyclische C<sub>1</sub>- bis C<sub>20</sub>-Alkyl-, C<sub>2</sub>- bis C<sub>20</sub>-Alkenyl-, C<sub>2</sub>- bis C<sub>20</sub>-Alkynyl-, C<sub>6</sub>- bis C<sub>20</sub>-Aryl-, C<sub>7</sub>- bis C<sub>20</sub>-Alkylaryl- oder C<sub>7</sub>- bis C<sub>20</sub>-Arylalkylreste sind, die gegebenenfalls Heteroatome enthalten, die zu den Gruppen 13 bis 17 des Periodensystems der Elemente gehören; wobei R<sup>9</sup> und R<sup>12</sup> vorzugsweise Wasserstoffatome sind; R<sup>10</sup>, R<sup>11</sup> und R<sup>13</sup> vorzugsweise Wasserstoffatome oder lineare oder verzweigte, gesättigte oder ungesättigte C<sub>1</sub>- bis C<sub>10</sub>-Alkylreste sind;

b) mit einem Alumoxan oder einer Verbindung, die ein Alkylmetallocenkation bilden kann, und gegebenenfalls

c) einer Organoaluminiumverbindung.

**[0017]** Diese Art von Verfahren ist in EP 04101912.6 und PCT/EP 2005/004506 beschrieben. Der Begriff "meso-Form" bedeutet für die Zwecke der vorliegenden Erfindung, dass sich die gleichen Substituenten an den beiden Cyclopentadienyleinheiten in Bezug auf die Ebene, die das Zirkonium und die Mitte der Cyclopentadienyleinheiten enthält, auf der gleichen Seite befinden. "Mesoartige Form" bedeutet, dass sich die voluminösen Substituenten der beiden Cyclopentadienyleinheiten an der Metallocenverbindung in Bezug auf die Ebene, die das Zirkonium und die Mitte der Cyclopentadienyleinheiten enthält, auf der gleichen Seite befinden, wie in der folgenden Verbindung gezeigt ist:



**[0018]** Das isotaktische Polymer auf 1-Butenbasis ausgewählt aus isotaktischem Homopolymer von 1-Buten, isotaktischem Copolymer von 1-Buten, das bis zu 5 Mol.% von Ethylen abgeleitete Einheiten enthält, isotakti-

schem Copolymer von 1-Buten, das bis zu 50 Mol.% von Propylen abgeleitete Einheiten enthält, oder isotaktischem Copolymer von 1-Buten und einem oder mehreren  $\alpha$ -Olefinen der Formel  $\text{CH}_2=\text{CHZ}$ , wobei Z eine  $\text{C}_3$ - bis  $\text{C}_{10}$ -Alkylgruppe ist, das bis zu 20 Mol.% der von den  $\alpha$ -Olefinen abgeleiteten Einheiten enthält, welches als Komponente b) verwendet wird, hat vorzugsweise isotaktische Pentaden (mmmm), gemessen mittels  $^{13}\text{C}$ -NMR, von mehr als 85%, insbesondere mehr als 90%, besonders bevorzugt mehr als 95%.

**[0019]** Der Schmelzpunkt von Komponente b) liegt vorzugsweise höher als  $90^\circ\text{C}$ , insbesondere liegt der Schmelzpunkt über  $100^\circ\text{C}$ , besonders bevorzugt über  $104^\circ\text{C}$ .

**[0020]** Die Strukturviskosität (IV), gemessen in Tetrahydronaphthalin (THN) bei  $135^\circ\text{C}$ , liegt zwischen 0,5 dl/g und 4,0 dl/g, vorzugsweise liegt sie zwischen 1,0 dl/g und 3,0 dl/g, bevorzugter liegt die Strukturviskosität (IV) über 1,1 dl/g und unter 2,5 dl/g.

**[0021]** Das Homopolymer von 1-Buten wird vorzugsweise als Komponente b) verwendet.

**[0022]** Das isotaktische Polymer auf 1-Butenbasis, das als erfindungsgemäße Komponente b) brauchbar ist, kann entweder unter Verwendung eines Katalysatorsystems auf Titanbasis auf  $\text{MgC}_2$ -Träger oder unter Verwendung eines Katalysatorsystems auf Single-Site-Basis erhalten werden, wie beispielsweise eines Katalysatorsystems auf Metallocenbasis. Brauchbare Verfahren, um diese Art von Polymeren zu erhalten, sind beispielsweise in WO 99/45043, WO 03/099883, EP 172 961, WO 02/100908, WO 02/100909, WO 03/014107 und EP 03101304.8 beschrieben.

**[0023]** Wenn die erfindungsgemäße Komponente b) unter Verwendung eines Katalysatorsystems auf Single-Site-Basis erhalten wird, vorzugsweise eines Katalysatorsystems auf Metallocenbasis, wird es mit einer Molekulargewichtsverteilung ( $M_w/M_n$ ) gleich oder kleiner als 5, vorzugsweise kleiner als 4, insbesondere kleiner als 3 erhalten.

**[0024]** Wenn Komponente b) unter Verwendung eines Katalysatorsystems auf Titanbasis auf  $\text{MgCl}_2$ -Träger erhalten wird, wird es mit einer Molekulargewichtsverteilung höher als 3, vorzugsweise höher als 4, insbesondere höher als 5 erhalten.

**[0025]** Die Strukturviskosität (IV) von Komponente a) ist in einer Ausführungsform gleich oder höher als 70%, vorzugsweise höher als 80% der Strukturviskosität von Komponente b). Dieses Merkmal verbessert die Verträglichkeit der beiden Komponenten in den erfindungsgemäßen Zusammensetzungen.

**[0026]** Es ist mit dem erfindungsgemäßen Gegenstand der 1-Butenzusammensetzung möglich, die isotaktischen Polymere auf 1-Butenbasis in sehr effizienter Weise weich zu machen, ohne ihren Schmelzpunkt wesentlich herabzusetzen, so dass ein neues Material erhalten werden kann, das für mehrere Anwendungen verwendet werden kann, um beispielsweise Polyvinylchlorid, Polyurethan oder Styrol-Blockcopolymeren zu ersetzen. Da beide Komponenten a) und b) überwiegend auf 1-Buten basieren, sind die beiden Polymere außerdem vollständig mischbar, wodurch ein sehr inniges Gemisch erhalten werden kann. Die Anwesenheit des isotaktischen 1-Butenpolymers hat selbst in sehr geringen Mengen den Vorteil, dass die resultierende Zusammensetzung nicht-klebrig gemacht wird, selbst wenn sie die meisten der Eigenschaften der ataktischen 1-Butenpolymere beibehält, außerdem wird auf diese Weise die Verarbeitbarkeit der Zusammensetzung deutlich verbessert.

**[0027]** In der 1-Butenpolymerzusammensetzung liegt Komponente a) vorzugsweise im Bereich von 20 bis 80 Gew.% und Komponente b) liegt im Bereich von 80 bis 20 Gew.%, insbesondere liegt Komponente a) im Bereich von 30 bis 70 Gew.% und Komponente b) liegt im Bereich von 70 bis 30 Gew.%.

**[0028]** Die folgenden Zusammensetzungen sind ebenfalls möglich:

Komponente a)	Komponente b)
10–20 Gew. %	90–80 Gew. %
20–30 Gew. %	80–70 Gew. %
30–40 Gew. %	70–60 Gew. %
40–50 Gew. %	60–50 Gew. %
50–60 Gew. %	50–40 Gew. %
60–70 Gew. %	40–30 Gew. %
70–80 Gew. %	30–20 Gew. %
80–90 Gew. %	20–10 Gew. %

**[0029]** Der erfindungsgemäße Gegenstand der 1-Butenzusammensetzung kann entweder durch mechanisches Mischen von Komponente a) und b), d. h. beispielsweise durch Coextrudieren von Komponente a) und b) miteinander, durch Mischen der Lösungen von Komponente a) und Komponente b) und anschließendes Entfernen des Lösungsmittels, oder durch Solubilisieren von Komponente b) in Komponente a), die erwärmt wurde, um so die Viskosität herabzusetzen, oder durch ein Reaktorgemisch (Reaktorblend) erhalten werden, wobei die Zusammensetzung in diesem Fall direkt in einem oder mehreren Reaktoren produziert wird, ohne dass mechanisches Mischen erforderlich ist.

**[0030]** Wenn die erfindungsgemäße Zusammensetzung direkt in zwei oder mehreren Reaktoren in Reihe hergestellt wird, sind unterschiedliche Verfahren möglich, wobei berücksichtigt wird, dass Komponente a) unter Verwendung eines Katalysatorsystems auf Single-Site-Basis hergestellt werden kann und Komponente b) entweder unter Verwendung eines Katalysatorsystems auf Titanbasis auf  $MgCl_2$ -Träger oder durch Verwendung eines Katalysatorsystems auf Single-Site-Basis wie zuvor beschrieben hergestellt werden kann. Komponente a) kann beispielsweise in einer ersten Stufe durch Verwendung von einem oder mehreren Reaktoren gemäß den oben beschriebenen Verfahren erhalten werden, und die Polymerisationsmischung kann dann in einer zweiten Stufe in einen zweiten Reaktor oder in eine zweiten Gruppe von Reaktoren in Reihe eingespeist werden, wobei Komponente b) erhalten wird, indem entweder ein Katalysatorsystem auf Titanbasis auf  $MgCl_2$ -Träger oder ein Katalysatorsystem auf Single-Site-Basis verwendet wird. Andererseits kann in einer ersten Stufe Komponente b) in einem oder mehreren Reaktoren erhalten werden, indem ein Katalysatorsystem auf Single-Site-Basis verwendet wird, und die Polymerisationsmischung kann in einer zweiten Stufe in die zweiten Reaktoren oder eine Gruppe von Reaktoren eingespeist werden, in denen Komponente a) hergestellt wird.

**[0031]** Die brauchbaren Verfahren lassen sich in dem folgenden Schema zusammenfassen:

Ausführungsform	erste Stufe		zweite Stufe	
	Komponente	Katalysator system	Komponente	Katalysatorsystem
a)	Komponente a)	Single-Site	Komponente b)	Titanbasis
b)	Komponente a)	Single-Site	Komponente b)	Single-Site
c)	Komponente b)	Titanbasis	Komponente a)	Single-Site
d)	Komponente b)	Single-Site	Komponente a)	Single-Site

**[0032]** Der erfindungsgemäße Gegenstand der 1-Butenpolymerzusammensetzung kann in einer speziellen Ausführungsform in einer Stufe erhalten werden, indem einer oder mehrere Reaktoren und eine Mischung von zwei verträglichen Katalysatorsystemen verwendet werden, wobei eines hiervon die ataktische Komponente a) produziert und das andere die Polymerkomponente b) auf 1-Butenbasis produziert.

**[0033]** Ein Katalysatorsystem auf Single-Site-Basis umfasst vorwiegend eine Übergangsmetallorganoverbindung, wie eine Metallocenverbindung, und einen Cokatalysator, üblicherweise Alumoxane oder Borverbindungen. Wenn beide Komponenten a) und b) der erfindungsgemäßen Zusammensetzung durch Verwendung von Katalysatorsystemen auf Single-Site-Basis erhalten werden, können zwei Übergangsmetallorganoverbindungen und ein Cokatalysator verwendet werden, der in der Lage ist, beide Übergangsmetallorganoverbindungen zu aktivieren. In diesem Fall produziert eine Übergangsmetallorganoverbindung die Komponente a) und, die zweite Übergangsmetallorganoverbindung produziert die Komponente b), und es wird der gleiche Cokatalysator verwendet.

**[0034]** Die in US-A-6,288,192 beschriebene Übergangsmetallverbindung kann beispielsweise zusammen mit der in EP 03101304.8 beschriebenen Metallocenverbindung verwendet werden, wobei beide mit Alumoxanen oder Borverbindungen aktiviert werden.

**[0035]** Ein weiterer Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist somit ein Verfahren zur Herstellung einer Poly(1-buten)-Zusammensetzung wie oben beschrieben, die die Stufe umfasst, in der

a) 5 Gew.-% bis 95 Gew.-% Polymer auf 1-Butenbasis ausgewählt aus: ataktischem Homopolymer von 1-Buten oder einem ataktischen Copolymer von 1-Buten, das bis zu 50 Mol.% von einem oder mehreren  $\alpha$ -Olefinen ausgewählt aus Ethylen, Propylen und  $\alpha$ -Olefinen mit der Formel  $\text{CH}_2=\text{CHZ}$  enthält, wobei Z eine  $\text{C}_3$ - bis  $\text{C}_{10}$ -Alkylgruppe ist, mit den oben beschriebenen Merkmalen erhalten werden, indem ein oder mehrere Monomere unter Polymerisationsbedingungen in Gegenwart eines Katalysatorsystems kontaktiert werden, das mindestens eine Übergangsmetallorganoverbindung enthält; und

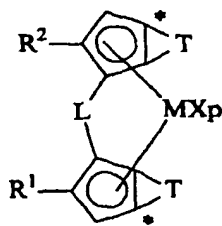
b) 5 Gew.-% bis 95 Gew.-% isotaktisches Polymer auf 1-Buten-Basis ausgewählt aus isotaktischem Homopolymer von 1-Buten, isotaktischem Copolymer von 1-Buten, das bis zu 5 Mol.% von Ethylen abgeleitete Einheiten enthält, isotaktischem Copolymer von 1-Buten, das bis zu 50 Mol.% von Propylen abgeleitete Einheiten enthält, oder isotaktischem Copolymer von 1-Buten und einem oder mehreren  $\alpha$ -Olefinen der Formel  $\text{CH}_2=\text{CHZ}$ , wobei Z eine  $\text{C}_3$ - bis  $\text{C}_{10}$ -Alkylgruppe ist, das bis zu 20 Mol.% der von den  $\alpha$ -Olefinen abgeleiteten Einheiten enthält, mit den oben beschriebenen Merkmalen erhalten werden, indem ein oder mehrere Monomere unter Polymerisationsbedingungen in Gegenwart eines Katalysatorsystems kontaktiert werden, das mindestens eine Übergangsmetallorganoverbindung enthält;

dadurch gekennzeichnet, dass Komponenten a) und b) simultan in demselben Reaktor erhalten werden.

**[0036]** Die in den Stufen a) und b) verwendeten Übergangsmetallorganoverbindungen sind vorzugsweise Metallocenverbindungen.

**[0037]** Übergangsmetallorganoverbindungen sind für erfindungsgemäße Zwecke Verbindungen, die Polymeren eine enge Molekulargewichtsverteilung ( $M_w/M_n$ ) verleihen können, d. h. eine Molekulargewichtsverteilung unter 5, vorzugsweise unter 4, insbesondere unter 3, welche Single-Site-Katalysatorkomponenten sind. Beispiele für diese Verbindungen sind Metallocenverbindungen oder die in US-A-6,288,192 beschriebene Übergangsmetallverbindung. In einer bevorzugten Ausführungsform ist es zur Durchführung des oben beschriebenen Verfahrens möglich, die racemische oder racemischartige Form und meso- oder mesoartige Form einer speziellen Klasse von Metallocenverbindungen zu verwenden. Ein weiterer Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist daher ein Verfahren zur Herstellung einer zuvor beschriebenen Poly(1-butenzusammensetzung, das die Stufe des Polymerisierens von 1-Buten und gegebenenfalls Ethylen, Propylen oder einem oder mehreren  $\alpha$ -Olefinen mit der Formel  $\text{CH}_2=\text{CHZ}$ , wobei Z eine  $\text{C}_3$ - bis  $\text{C}_{10}$ -Alkylgruppe ist, in Gegenwart eines Katalysatorsystems umfasst, das erhältlich ist durch Kontaktieren von

a) mindestens einer Metallocenverbindung mit der Formel (Ia) in der meso- oder einer mesoartigen Form



(Ia)

12

worin:

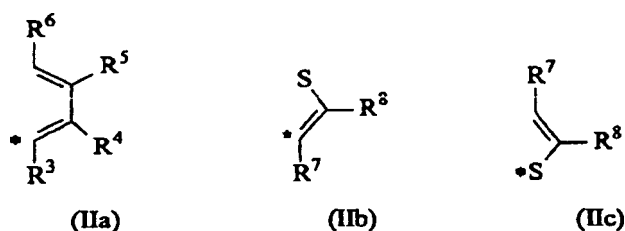
M ein Übergangsmetallatom ausgewählt aus jenen der Gruppe 3, 4, 5, 6 oder der Lanthanid- oder Aktinidgruppen in dem Periodensystem der Elemente ist, wobei M vorzugsweise Titan, Zirkonium oder Hafnium ist; p eine ganze Zahl von 0 bis 3 ist und gleich dem formalen Oxidationszustand des Metalls M minus 2 ist; X gleich oder unterschiedlich ist und ein Wasserstoffatom, ein Halogenatom oder eine R, OR,  $\text{OSO}_2\text{CF}_3$ , OCOR, SR,  $\text{NR}_2$  oder  $\text{PR}_2$  Gruppe ist, wobei R lineare oder verzweigte, cyclische oder acyclische  $\text{C}_1$ - bis  $\text{C}_{40}$ -Alkyl-,  $\text{C}_2$ - bis  $\text{C}_{40}$ -Alkenyl-,  $\text{C}_2$ - bis  $\text{C}_{40}$ -Alkynyl-,  $\text{C}_6$ - bis  $\text{C}_{40}$ -Aryl-,  $\text{C}_7$ - bis  $\text{C}_{40}$ -Alkylaryl- oder  $\text{C}_7$ - bis  $\text{C}_{40}$ -Arylalkylreste ist, die gegebenenfalls Heteroatome enthalten, die zu den Gruppen 13 bis 17 des Periodensystems der Elemente gehören, wobei R vorzugsweise ein linearer oder verzweigter  $\text{C}_1$ - bis  $\text{C}_{20}$ -Alkylrest ist, oder zwei X gegebenenfalls einen substituierten oder unsubstituierten Butadienylrest oder eine OR'O-Gruppe bilden, wobei R' ein zweiwertiger Rest ausgewählt aus  $\text{C}_1$ - bis  $\text{C}_{40}$ -Alkyliden,  $\text{C}_6$ - bis  $\text{C}_{40}$ -Aryliden,  $\text{C}_7$ - bis  $\text{C}_{40}$ -Alkylarylid und C bis  $\text{C}_{40}$ -Arylalkylidenresten ist; wobei X vorzugsweise ein Wasserstoff-

atom, ein Halogenatom oder eine R-Gruppe ist, wobei X insbesondere Chlor oder ein C<sub>1</sub>- bis C<sub>10</sub>-Alkylrest, wie Methyl- oder Ethylreste ist;

L ein zweiwertiger C<sub>1</sub>- bis C<sub>40</sub>-Kohlenwasserstoffrest ist, der gegebenenfalls Heteroatome enthält, die zu den Gruppen 13 bis 17 des Periodensystems der Elemente gehören, oder ein zweiwertiger Silylidenrest ist, der bis zu 5 Siliciumatome enthält; wobei L vorzugsweise eine zweiwertige Brückengruppe ausgewählt aus C<sub>1</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkyliden, C<sub>3</sub>- bis C<sub>40</sub>-Cycloalkyliden, C<sub>6</sub>- bis C<sub>40</sub>-Aryliden, C<sub>7</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkylaryliden oder C<sub>7</sub>- bis C<sub>40</sub>-Arylalkylidenresten, die gegebenenfalls Heteroatome enthalten, die zu den Gruppen 13 bis 17 des Periodensystems der Elemente gehören, und Silylenrest ist, der bis zu 5 Siliciumatome enthält, wie SiMe<sub>2</sub>, SiPh<sub>2</sub>; wobei L vorzugsweise eine Gruppe (Z(R''))<sub>n</sub> ist, wobei Z ein Kohlenstoff- oder Siliciumatom ist, n 1 oder 2 ist und R'' ein C<sub>1</sub>- bis C<sub>20</sub>-Kohlenwasserstoffrest ist, der gegebenenfalls Heteroatome enthält, die zu den Gruppen 13 bis 17 des Periodensystems der Elemente gehören; wobei R'' vorzugsweise ein linearer oder verzweigter, cyclischer oder acyclischer C<sub>1</sub>- bis C<sub>20</sub>-Alkyl-, C<sub>2</sub>- bis C<sub>20</sub>-Alkenyl-, C<sub>2</sub>- bis C<sub>20</sub>-Alkinyl-, C<sub>6</sub>- bis C<sub>20</sub>-Aryl-, C<sub>7</sub>- bis C<sub>20</sub>-Alkylaryl- oder C<sub>7</sub>- bis C<sub>20</sub>-Arylalkylrest ist, der gegebenenfalls Heteroatome enthält, die zu den Gruppen 13 bis 17 des Periodensystems der Elemente gehören; insbesondere ist die Gruppe (Z(R''))<sub>n</sub> Si(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>, SiPh<sub>2</sub>, SiPhMe, SiMe (SiMe<sub>3</sub>), CH<sub>2</sub>, (CH<sub>2</sub>)<sub>2</sub> und C(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>;

R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> gleich oder voneinander verschieden sind und C<sub>1</sub>- bis C<sub>40</sub>-Kohlenwasserstoffreste sind, die gegebenenfalls Heteroatome enthalten, die zu den Gruppen 13 bis 17 des Periodensystems der Elemente gehören; wobei sie vorzugsweise lineare oder verzweigte, cyclische oder acyclische C<sub>1</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkyl-, C<sub>2</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkenyl-, C<sub>2</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkinyl-, C<sub>6</sub>- bis C<sub>40</sub>-Aryl-, C<sub>7</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkylaryl- oder C<sub>7</sub>- bis C<sub>40</sub>-Arylalkylreste sind, die gegebenenfalls Heteroatome enthalten, die zu den Gruppen 13 bis 17 des Periodensystems der Elemente gehören; wobei R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> insbesondere lineare, gesättigte oder ungesättigte C<sub>1</sub>- bis C<sub>20</sub>-Alkylreste sind und R<sup>1</sup> und R<sup>2</sup> insbesondere Methyl- oder Ethylreste sind;

T, die gleich oder voneinander verschieden sind, eine Einheit mit der Formel (IIa), (IIb) oder (IIc) ist:



wobei das mit dem Symbol \* markierte Atom an das Atom in der Verbindung mit der Formel (Ia) gebunden ist, welches mit dem gleichen Symbol markiert ist;

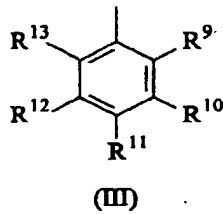
R<sup>3</sup> ein C<sub>1</sub>- bis C<sub>40</sub>-Kohlenwasserstoffrest ist, der gegebenenfalls Heteroatome enthält, die zu den Gruppen 13 bis 17 des Periodensystems der Elemente gehören; wobei R<sup>3</sup> vorzugsweise ein linearer oder verzweigter, cyclischer oder acyclischer C<sub>1</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkyl-, C<sub>2</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkenyl-, C<sub>2</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkinyl-, C<sub>6</sub>- bis C<sub>40</sub>-Aryl-, C<sub>7</sub>- bis C<sub>40</sub>-Arylalkyl- oder C<sub>7</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkylarylrest ist, der gegebenenfalls Heteroatome enthält, die zu den Gruppen 13 bis 17 des Periodensystems der Elemente gehören; wobei R<sup>3</sup> insbesondere ein linearer oder verzweigter C<sub>1</sub>- bis C<sub>20</sub>-Alkyl-, C<sub>6</sub>- bis C<sub>40</sub>-Aryl-, C<sub>7</sub>- bis C<sub>40</sub>-Arylalkylrest ist, besonders bevorzugt ist R<sup>3</sup> ein C<sub>6</sub>- bis C<sub>20</sub>-Arylrest, der gegebenenfalls mit einer oder mehreren C<sub>1</sub>- bis C<sub>10</sub>-Alkylgruppen substituiert ist;

R<sup>4</sup> und R<sup>6</sup>, die gleich oder voneinander verschieden sind, Wasserstoffatome oder C<sub>1</sub>- bis C<sub>40</sub>-Kohlenwasserstoffreste sind, die gegebenenfalls Heteroatome enthalten, die zu den Gruppen 13 bis 17 des Periodensystems der Elemente gehören; wobei R<sup>4</sup> und R<sup>6</sup> gleich oder voneinander verschieden sind und Wasserstoffatome oder lineare oder verzweigte, cyclische oder acyclische C<sub>1</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkyl-, C<sub>2</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkenyl-, C<sub>2</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkinyl-, C<sub>6</sub>- bis C<sub>40</sub>-Aryl-, C<sub>7</sub>- bis C<sub>40</sub>-Arylalkyl- oder C<sub>7</sub>- bis C<sub>40</sub>-Arylalkylreste sind, die gegebenenfalls Heteroatome enthalten, die zu den Gruppen 13 bis 17 des Periodensystems der Elemente gehören, wobei R<sup>4</sup> und R<sup>6</sup> vorzugsweise Wasserstoffatome sind;

R<sup>5</sup> ein C<sub>1</sub>- bis C<sub>40</sub>-Kohlenwasserstoffrest ist, der gegebenenfalls Heteroatome enthält, die zu den Gruppen 13 bis 17 des Periodensystems der Elemente gehören; wobei R<sup>5</sup> vorzugsweise lineare oder verzweigte, cyclische oder acyclische C<sub>1</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkyl-, C<sub>2</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkenyl-, C<sub>2</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkinyl-, C<sub>6</sub>- bis C<sub>40</sub>-Aryl-, C<sub>7</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkylaryl- oder C<sub>7</sub>- bis C<sub>40</sub>-Arylalkylreste sind, die gegebenenfalls Heteroatome enthalten, die zu den Gruppen 13 bis 17 des Periodensystems der Elemente gehören; wobei R<sup>5</sup> insbesondere ein linearer, gesättigter oder ungesättigter C<sub>1</sub>- bis C<sub>20</sub>-Alkylrest ist und R<sup>5</sup> besonders bevorzugt ein Methyl- oder Ethylrest ist;

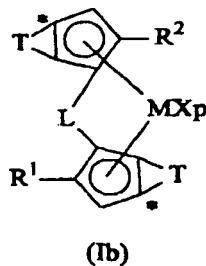
R<sup>7</sup> und R<sup>8</sup> gleich oder voneinander verschieden sind und Wasserstoffatome oder C<sub>1</sub>- bis C<sub>40</sub>-Kohlenwasserstoffreste sind, die gegebenenfalls Heteroatome enthalten, die zu den Gruppen 13 bis 17 des Periodensystems der Elemente gehören; wobei R<sup>7</sup> und R<sup>8</sup> vorzugsweise Wasserstoffatome oder lineare oder verzweigte, cyclische oder acyclische C<sub>1</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkyl-, C<sub>2</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkenyl-, C<sub>2</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkinyl-, C<sub>6</sub>- bis C<sub>40</sub>-Aryl-, C<sub>7</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkylaryl- oder C<sub>7</sub>- bis C<sub>40</sub>-Arylalkylreste sind, die gegebenenfalls Heteroatome enthalten, die zu den Gruppen 13 bis 17 des Periodensystems der Elemente gehören; wobei R<sup>8</sup> vorzugsweise ein Wasserstoff-

atom oder ein linearer oder verzweigter, gesättigter oder ungesättigter C<sub>1</sub>- bis C<sub>20</sub>-Rest ist; wobei R<sup>8</sup> insbesondere ein Methyl- oder Ethylrest ist; wobei R<sup>7</sup> vorzugsweise eine C<sub>1</sub>- bis C<sub>40</sub>-Alkyl-, C<sub>6</sub>- bis C<sub>40</sub>-Aryl- oder eine C<sub>7</sub>- bis C<sub>40</sub>-Arylalkylgruppe ist; wobei R<sup>7</sup> bevorzugter eine Gruppe mit der Formel (III) ist:



wobei R<sup>9</sup>, R<sup>10</sup>, R<sup>11</sup>, R<sup>12</sup> und R<sup>13</sup> gleich oder voneinander verschieden sind und Wasserstoffatome oder lineare oder verzweigte, cyclische oder acyclische C<sub>1</sub>- bis C<sub>20</sub>-Alkyl-, C<sub>2</sub>- bis C<sub>20</sub>-Alkenyl-, C<sub>2</sub>- bis C<sub>20</sub>-Alkynyl-, C<sub>6</sub>- bis C<sub>20</sub>-Aryl-, C<sub>7</sub>- bis C<sub>20</sub>-Alkylaryl- oder C<sub>7</sub>- bis C<sub>20</sub>-Arylalkylreste sind, die gegebenenfalls Heteroatome enthalten, die zu den Gruppen 13 bis 17 des Periodensystems der Elemente gehören; wobei R<sup>9</sup> und R<sup>12</sup> vorzugsweise Wasserstoffatome sind; R<sup>10</sup>, R<sup>11</sup> und R<sup>13</sup> vorzugsweise Wasserstoffatome oder lineare oder verzweigte, gesättigte oder ungesättigte C<sub>1</sub>- bis C<sub>10</sub>-Alkylreste sind;

b) mindestens einer Metallocenverbindung mit der Formel (Ib) in der racemischen (rac) oder racemischartigen Form

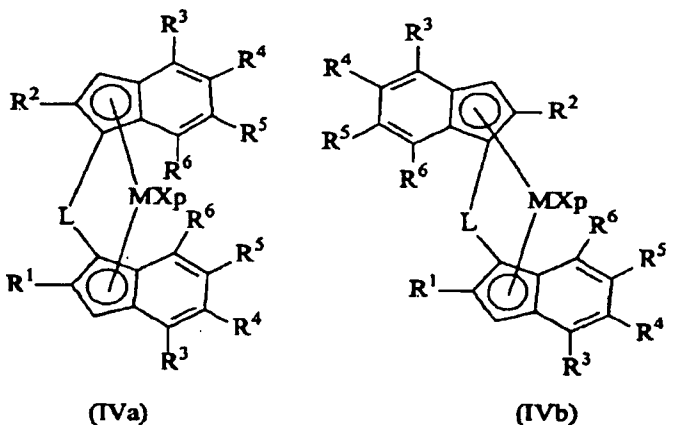


wobei R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, T, L, M, X und p bereits beschrieben wurden und wobei R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, T, L, M, X und p bereits beschrieben wurden und wobei die mit dem Symbol \* markierten Atome an das Atom in den Einheiten mit der Formel (IIa), (IIb) oder (IIc) binden, das mit dem gleichen Symbol markiert ist;

c) einem Alumoxan oder einer Verbindung, die ein Alkylmetallocenkation bilden kann, und gegebenenfalls  
d) einer Organoaluminiumverbindung.

**[0038]** Das Verhältnis zwischen der racemischen oder der racemischartigen Form und der meso-Form oder der mesoartigen Form liegt vorzugsweise in den Bereichen von 10:90 bis 90:10, insbesondere 20:80 bis 80:20, besonders bevorzugt 30:70 bis 70:30.

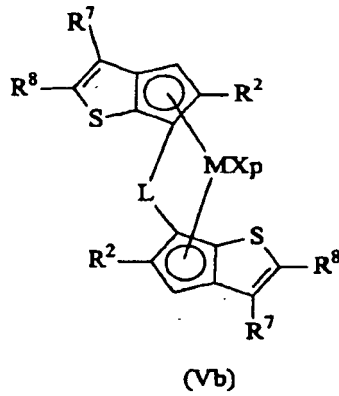
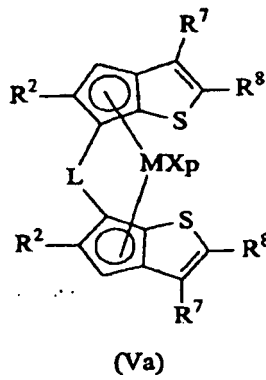
**[0039]** Die Verbindungen der Formeln (Ia) und (Ib) haben in einer Ausführungsform die folgenden Formeln (IVa) beziehungsweise (IVb):



worin:

M, X, p, L, R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>3</sup>, R<sup>4</sup>, R<sup>5</sup> und R<sup>6</sup> die oben beschriebene Bedeutung haben.

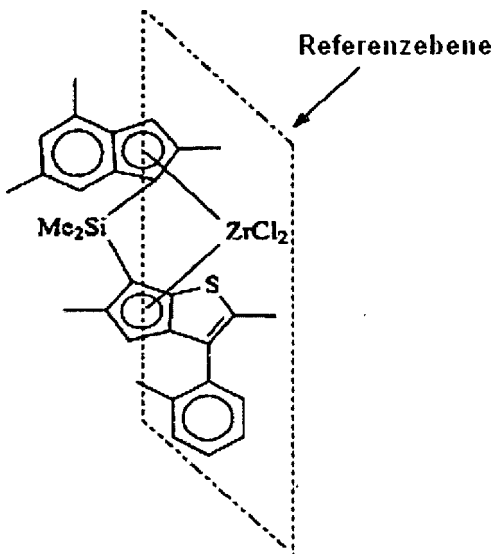
**[0040]** Die Verbindungen der Formeln (Ia) und (Ib) haben in einer alternativen Ausführungsform die folgenden Formeln (Va) beziehungsweise (Vb):



worin M, X, p, L, R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup>, R<sup>7</sup> und R<sup>8</sup> die oben beschriebene Bedeutung haben.

**[0041]** Metallocenverbindungen der Formel (Ia) und (Ib) sind in der Technik gut bekannt, sie können nach bekannten Verfahren hergestellt werden, wie jenen, die in WO 01/44318, WO 03/045964, PCT/EP 02/13552 und DE 10324541.3 beschrieben sind.

**[0042]** Es ist bereits erläutert worden, was mit meso- oder mesoartiger Form gemeint ist. Für die Zwecke der vorliegenden Erfindung bedeutet der Begriff "racemische Form", dass die gleichen Substituenten an den beiden Cyclopentadienyleinheiten sich in Bezug auf die Ebene, die das Zirkonium und das Zentrum der Cyclopentadienyleinheiten enthält, auf entgegengesetzten Seiten befinden. "Racemischartige Form" bedeutet, dass die voluminöseren Substituenten der beiden Cyclopentadienyleinheiten an der Metallocenverbindung sich in Bezug auf die Ebene, die das Zirkonium und das Zentrum der Cyclopentadienyleinheiten enthält, auf entgegengesetzten Seiten befinden, wie in der folgenden Verbindung gezeigt ist:



**[0043]** Es ist mit diesem Verfahren möglich, den erfindungsgemäßen Gegenstand, die Poly(1-buten)zusammensetzung, in leichter und wirtschaftlicher Weise und in hohen Ausbeuten zu erhalten. Die Metallocenverbindungen mit C<sub>1</sub>-Symmetrie, wie die Metallocenverbindung der Formel (Ia), werden in der Tat üblicherweise aus der Synthese in einer Mischung der racemischen und meso-Form erhalten, wobei die meso-Form üblicherweise inaktiv ist oder Polymer mit sehr niedrigem Molekulargewicht produziert. Die Anmelderin hat überraschenderweise gefunden, dass die meso-Form der Verbindung der Formel (Ia) ataktisches Poly(1-buten) mit hohem Molekulargewicht in hoher Ausbeute ergibt. Es ist daher möglich, die racemische und meso-Mischung der Metallocenverbindung als solche zu verwenden, ohne dass eine weitere Reinigung erforderlich ist, um die beiden isomeren Formen zu trennen, um den erfindungsgemäßen Gegenstand, die Zusammensetzung, zu erhalten. Durch Regulierung des racemisch/meso-Verhältnisses der Metallocenverbindung der Formel (Ia) ist es zudem möglich, Poly(1-buten)zusammensetzungen mit unterschiedlichen Mengen der Komponente a) oder b) zu erhalten.

**[0044]** In dem Verfahren haben die Metallocenverbindung der Formel (Ia) und die Metallocenverbindung der Formel (Ib) vorzugsweise die gleiche Struktur und unterscheiden sich nur in der räumlichen Anordnung (race-

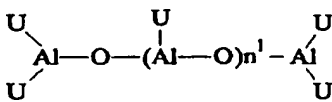
misch oder racemischartig und meso oder mesoartig). Auf diese Weise lässt sich der weitere Vorteil erreichen, dass die Molekulargewichtsverteilung ( $M_w/M_n$ ) der erhaltenen 1-Butenpolymerzusammensetzung niedriger als 3,5, vorzugsweise niedriger als 3, besonders bevorzugt niedriger als 2,5 ist.

**[0045]** Alumoxane, die als Komponente b) oder c) in den obigen Verfahren verwendet werden, können erhalten werden, indem Wasser mit einer Organoaluminiumverbindung der Formel  $H_jAlU_{3-j}$  oder  $H_jAl_2U_{6-j}$  umgesetzt wird, wobei die U-Substituenten, die gleich oder verschieden sind, Wasserstoffatome, Halogenatome,  $C_1$ - bis  $C_{20}$ -Alkyl-,  $C_3$ - bis  $C_{20}$ -Cyclalkyl-,  $C_6$ - bis  $C_{20}$ -Aryl-,  $C_7$ - bis  $C_{20}$ -Alkylaryl- oder  $C_7$ - bis  $C_{20}$ -Arylalkylreste sind, die gegebenenfalls Silicium- oder Germaniumatome enthalten, mit der Maßgabe, dass sich mindestens ein U von Halogen unterscheidet und j im Bereich von 0 bis 1 liegt und auch nicht-ganzzahlig sein kann. Das Molverhältnis von Al/Wasser liegt in dieser Reaktion vorzugsweise zwischen 1:1 und 100:1.

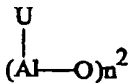
**[0046]** Die in dem erfindungsgemäßen Verfahren verwendeten Alumoxane werden als lineare, verzweigte oder cyclische Verbindungen angesehen, die mindestens eine Gruppe dieses Typs



enthalten, wobei die Substituenten U, die gleich oder verschieden sein können, bereits definiert wurden. Alumoxane mit der Formel



können insbesondere im Fall von linearen Verbindungen verwendet werden, wobei  $n^1$  0 oder eine ganze Zahl von 1 bis 40 ist und die Substituenten wie oben definiert sind, oder es können im Fall der cyclischen Verbindungen Alumoxane mit der Formel:



verwendet werden, wobei  $n^2$  eine ganze Zahl von 2 bis 40 ist und die U-Substituenten wie oben definiert sind.

**[0047]** Beispiele für Alumoxane, die zur erfindungsgemäßen Verwendung geeignet sind, sind Methylalumoxan (MAO), Tetra(isobutyl)alumoxan (TIBAO), Tetra-(2,4,4-trimethylpentyl)alumoxan (TIOAO), Tetra-(2,3-dimethylbutyl)alumoxan (TDMBAO) und Tetra-(2,3,3-trimethylbutyl)alumoxan (TTMBAO).

**[0048]** Besonders interessante Cokatalysatoren sind jene, die in WO 99/21899 und in WO 01/21674 beschrieben sind, wobei die Alkyl- und Arylgruppen spezifische Verzweigungsmuster aufweisen.

**[0049]** Nicht einschränkende Beispiele für Aluminiumverbindungen, die unter Bildung geeigneter Alumoxane (b) mit Wasser umgesetzt werden können, die in WO 99/21899 and WO 01/21674 beschrieben sind, sind: Tris(2,3,3-trimethylbutyl)aluminium, Tris(2,3-dimethylhexyl)aluminium, Tris(2,3-dimethylbutyl)aluminium, Tris(2,3-dimethylpentyl)aluminium, Tris(2,3-dimethylheptyl)aluminium, Tris(2-methyl-3-ethylpentyl)aluminium, Tris(2-methyl-3-ethylhexyl)aluminium, Tris(2-methyl-3-ethylheptyl)aluminium, Tris(2-methyl-3-propylhexyl)aluminium, Tris(2-ethyl-3-methylbutyl)aluminium, Tris(2-ethyl-3-methylpentyl)aluminium, Tris(2,3-diethylpentyl)aluminium, Tris(2-propyl-3-methylbutyl)aluminium, Tris(2-isopropyl-3-methylbutyl)aluminium, Tris(2-isobutyl-3-methylpentyl)aluminium, Tris(2,3,3-trimethylpentyl)aluminium, Tris(2,3,3-trimethylhexyl)aluminium, Tris(2-ethyl-3,3-dimethylbutyl)aluminium, Tris(2-ethyl-3,3-dimethylpentyl)aluminium, Tris(2-isopropyl-3,3-dimethylbutyl)aluminium, Tris(2-trimethylsilylpropyl)aluminium, Tris(2-methyl-3-phenylbutyl)aluminium, Tris(2-ethyl-3-phenylbutyl)aluminium, Tris(2,3-dimethyl-3-phenylbutyl)aluminium, Tris(2-phenylpropyl)aluminium, Tris[2-(4-fluorphenyl)propyl]aluminium, Tris[2-(4-chlorphenyl)propyl]aluminium, Tris[2-(3-isopropylphenyl)propyl]aluminium, Tris(2-phenylbutyl)aluminium, Tris(3-methyl-2-phenylbutyl)aluminium, Tris(2-phenylpentyl)aluminium, Tris[2-(pentafluorphenyl)propyl]aluminium, Tris[2,2-diphenylethyl]aluminium und Tris[2-phenyl-2-methylpropyl]aluminium, sowie die entsprechenden Verbindungen, in denen eine der Kohlenwasserstoffgruppen durch ein Wasserstoffatom ersetzt ist, und jene, in denen eine oder zwei der Kohlenwasserstoffgruppen durch eine Isobutylgruppe ersetzt sind.

**[0050]** Trimethylaluminium (TMA), Triisobutylaluminium (TIBA), Tris(2,4,4-trimethylpentyl)aluminium (TIOA), Tris(2,3-dimethylbutyl)aluminium (TDMBA) und Tris(2,3,3-trimethylbutyl)aluminium (TTMBA) sind von den obi-

gen Aluminiumverbindungen bevorzugt. Nicht einschränkende Beispiele für Verbindungen, die ein Alkylmetallocen bilden können, sind Verbindungen der Formel  $D^+E^-$ , wobei  $D^+$  eine Brönstedt-Säure ist, die ein Proton abgeben und irreversibel mit einem Substituenten X des Metallocens der Formeln (Ia) und (Ib) reagieren kann, und  $E^-$  ein kompatibles Anion ist, das in der Lage ist, die aktive katalytische Spezies zu stabilisieren, die aus der Reaktion der beiden Verbindungen resultiert, und ausreichend labil ist, um durch ein olefinisches Monomer verdrängt zu werden. Das Anion  $E^-$  umfasst vorzugsweise ein oder mehrere Boratome. Das Anion  $E^-$  ist insbesondere ein Anion mit der Formel  $BAr_4^{(-)}$ , wobei die Substituenten Ar, die gleich oder verschieden sein können, Arylreste wie Phenyl, Pentafluorphenyl oder Bis(trifluormethyl)phenyl sind. Tetrakis(pentafluorphenyl)borat ist eine besonders bevorzugte Verbindung, die in WO 91/02012 beschrieben ist. Zweckmäßig können außerdem Verbindungen mit der Formel  $BAr_3$  verwendet werden. Verbindungen dieses Typs sind beispielsweise in der Internationalen Patentanmeldung WO 92/00333 beschrieben. Andere Beispiele für Verbindungen, die ein Alkylmetallocen bilden können, sind Verbindungen mit der Formel  $BAr_3P$ , wobei P ein substituierter oder unsubstituierter Pyrrolrest ist. Diese Verbindungen sind in WO 01/62764 beschrieben. Verbindungen, die Boratome enthalten, können zweckmäßig gemäß der Beschreibung von DE-A-19962814 und DE-A-19962910 geträgert werden. Alle diese Verbindungen, die Boratome enthalten, können in einem Molverhältnis zwischen Bor und dem Metall des Metallocens zwischen 1:1 und 10:1, vorzugsweise 1:1 und 2:1, insbesondere 1:1 verwendet werden.

**[0051]** Nicht einschränkende Beispiele für Verbindungen mit der Formel  $D^+E^-$  sind:

Triethylammoniumtetra(phenyl)borat,  
 Tributylammoniumtetra(phenyl)borat,  
 Trimethylammoniumtetrakis(tolyl)borat,  
 Tributylammoniumtetra(tolyl)borat,  
 Tributylammoniumtetra(pentafluorphenyl)borat,  
 Tributylammoniumtetra(pentafluorphenyl)aluminat,  
 Tripropylammoniumtetra(dimethylphenyl)borat,  
 Tributylammoniumtetra(trifluormethylphenyl)borat,  
 Tributylammoniumtetra(4-fluorphenyl)borat,  
 N,N-Dimethylbenzylammoniumtetrakis(pentafluorphenyl)borat,  
 N,N-Dimethylhexylammoniumtetrakis(pentafluorphenyl)borat,  
 N,N-Dimethylaniliniumtetra(phenyl)borat,  
 N,N-Diethylaniliniumtetra(phenyl)borat,  
 N,N-Dimethylaniliniumtetrakis(pentafluorphenyl)borat,  
 N,N-Dimethylaniliniumtetrakis(pentafluorphenyl)aluminat,  
 N,N-Dimethylbenzylammoniumtetrakis(pentafluorphenyl)borat,  
 N,N-Dimethylhexylammoniumtetrakis(pentafluorphenyl)borat,  
 Di(propyl)ammoniumtetrakis(pentafluorphenyl)borat,  
 Di(cyclohexyl)ammoniumtetrakis(pentafluorphenyl)borat,  
 Triphenylphosphoniumtetrakis(phenyl)borat,  
 Triethylphosphoniumtetrakis(phenyl)borat,  
 Diphenylphosphoniumtetrakis(phenyl)borat,  
 Tri(methylphenyl)phosphoniumtetrakis(phenyl)borat,  
 Tri(dimethylphenyl)phosphoniumtetrakis(phenyl)borat,  
 Triphenylcarbeniumtetrakis(pentafluorphenyl)borat,  
 Triphenylcarbeniumtetrakis(pentafluorphenyl)aluminat,  
 Triphenylcarbeniumtetrakis(phenyl)aluminat,  
 Ferroceniumtetrakis(pentafluorphenyl)borat,  
 Ferroceniumtetrakis(pentafluorphenyl)aluminat,  
 Triphenylcarbeniumtetrakis(pentafluorphenyl)borat und  
 N,N-Dimethylaniliniumtetrakis(pentafluorphenyl)borat.

**[0052]** Organische Aluminiumverbindungen, die als Verbindung c) oder d) verwendet werden, sind jene der Formel  $H_jAlU_{3-j}$  oder  $H_jAl_2U_6$ , die bereits beschrieben wurden.

**[0053]** Das erfindungsgemäße Polymerisationsverfahren kann in der flüssigen Phase durchgeführt werden, gegebenenfalls in Gegenwart eines inerten Kohlenwasserstofflösungsmittels. Das Kohlenwasserstofflösungsmittel kann entweder aromatisch (wie Toluol) oder aliphatisch (wie Propan, Hexan, Heptan, Isobutan, Cyclohexan und 2,2,4-Trimethylpentan) sein. Das erfindungsgemäße Polymerisationsverfahren wird vorzugsweise unter Verwendung von flüssigem 1-Buten als Polymerisationsmedium durchgeführt.

**[0054]** Die Polymerisationstemperatur liegt vorzugsweise im Bereich von 0°C bis 250°C, vorzugsweise zwischen 20°C und 150°C und insbesondere zwischen 40°C und 90°C.

**[0055]** Die Strukturviskosität (IV) wurde in Tetrahydronaphthalin (THN) bei 135°C gemessen.

**[0056]** Die Schmelzpunkte der Polymere ( $T_m$ ) wurden nach dem Standardverfahren durch Differentialscanningkalorimetrie (DSC) auf einem Perkin Elmer DSC-7 Instrument gemessen. Eine aus der Polymerisation erhaltene gewogene Probe (5–7 mg) wurde in Aluminiumpfannen eingesiegelt und mit 10°C/Minute auf 180°C erwärmt. Die Probe wurde 5 Minuten auf 180°C gehalten, damit alle Kristallite vollständig schmelzen konnten, danach wurde sie mit 10°C/Minute auf 20°C abgekühlt. Nachdem sie 2 Minuten bei 20°C stehen gelassen worden war, wurde die Probe das zweite Mal mit 10°C/Minute auf 180°C erwärmt. Bei diesem zweiten Heizdurchlauf wurde die Peak-Temperatur als Schmelztemperatur ( $T_m$ ) und die Fläche des Peaks als Schmelzenthalpie ( $\Delta H_f$ ) genommen.

**[0057]** Die Molekulargewichtparameter und die Molekulargewichtsverteilung aller Proben wurde mit einem Waters 150C ALC/GPC Instrument (Waters, Milford, Massachusetts, USA) gemessen, das mit vier gemischten Gelsäulen PLgcl 20 µm Mixed-A LS (Polymer Laboratories, Church Stretton, Großbritannien) ausgestattet war. Die Abmessungen der Säulen waren 300 × 7,8 mm. Als Lösungsmittel wurde TCB verwendet, und die Durchflussrate wurde auf 1,0 ml/Min gehalten. Die Lösungskonzentrationen waren 0,1 g/dl in 1,2,4-Trichlorbenzol (TCB). Es wurden 0,1 g/L 2,6-Di-*t*-butyl-4-methylphenol (BHT) zugefügt, um Abbau zu verhindern, und das Injektionsvolumen betrug 300 µm. Alle Messungen wurden bei 135°C durchgeführt. Die GPC-Kalibrierung ist kompliziert, da für 1-Butenpolymere keine gut charakterisierten Standard-Referenzmaterialien mit enger Molekulargewichtsverteilung zur Verfügung stehen. Somit wurde eine Universalkalibrierungskurve unter Verwendung von 12 Polystyrol-Standardproben mit Molekulargewichten im Bereich von 580 bis 13.200.000 erhalten. Es wurde angenommen, dass die K-Werte der Mark-Houwink-Beziehung  $K_{PS} = 1,21 \times 10^{-4}$  dl/g für Polystyrol beziehungsweise  $K_{PB} = 1,78 \times 10^{-4}$  dl/g für Poly-1-buten waren. Es wurde angenommen, dass die Mark-Houwink-Exponenten  $\alpha$  für Polystyrol 0,706 und für Poly-1-buten 0,725 waren. Obwohl bei diesem Ansatz die erhaltenen Molekülparameter nur ein Schätzwert des hydrodynamischen Volumens jeder Kette waren, ermöglichten sie doch einen relativen Vergleich.

**[0058]**  $^{13}\text{C}$ -NMR-Spektren wurden auf einem DPX-400 Spektrometer erfasst, das mit 100,61 MHz im Fourier-Transformationsmodus bei 120°C betrieben wurde. Die Proben wurden bei 120°C mit einer Konzentration von 8 Gew.%/Vol. in 1,1,2,2-Tetrachlorethan- $d_2$  gelöst. Jedes Spektrum wurde mit einem 90° Puls, 15 Sekunden Verzögerung zwischen den Pulsen und CPD (Waltz 16) gewonnen, um die  $^1\text{H}$ - $^{13}\text{C}$ -Kopplung zu entfernen. Etwa 3000 Übergänge wurden unter Verwendung eines Spektralfensters von 6000 Hz in 32K-Datenpunkten gespeichert. Die Isotaktizität von Metallocen-produziertem PB wurde mittels  $^{13}\text{C}$ -NMR gemessen und ist definiert als die relative Intensität des mmmm-Triadenpeaks des diagnostischen Methylens der Ethylverzweigung. Dieser Peak bei 27,73 ppm wurde als interne Referenz verwendet. Die Pentadenzuweisungen erfolgten gemäß Macromolecules, 1992, 25, 6814–6817. Der Triadengehalt der ataktischen 1-Butenpolymerkomponente a) wurde erhalten, indem die Fläche der Peaks von 26,92 ppm bis 26,43 ppm integriert wurde.

**[0059]** Der Seitenkettenmethylenbereich des PB-Spektrums wurde mit der Dekonvolutionsroutine angepasst, die zu dem Bruker WIN-NMR-Programm gehörte. Die mmmm-Pentade und die Pentaden, die mit dem Einzeleinheitsfehler (mmmr, mmrr und mrrm) zusammenhängen, wurden unter Verwendung der Lorenz'schen Linienformen angepasst, wobei das Programm die Intensität und die Breite der Linien ändern konnte. Als Ergebnis wurden die relativen Intensitäten jener Signale erhalten. Diese Ergebnisse wurden für die statistische Modellierung von Pentadenverteilungen unter Verwendung eines enantiomorphen Stellenmodells verwendet, um die vollständige Pentadenverteilung zu erhalten, aus der sich die Triadenverteilung ableitet.

**[0060]** Die Infrarotkristallinität wurde aus dem Infrarotabsorptionsspektrum von etwa 1 mm dünnem Polymerfilm durch Verwendung der Absorptionen  $A$  bei  $1221\text{ cm}^{-1}$  und  $1151\text{ cm}^{-1}$  in der folgenden Gleichung bestimmt:

$$\text{Kristallinität} = \frac{\left( \frac{A_{1221}}{A_{1151}} \right)_{\text{Feststoff}} - 0,76}{5,43 - 0,76}$$

**[0061]** Die Gleichung ist in Chem. of High Polymers (Japan) 19, 667 (1962) von Nishioka und Yanagisawa beschrieben worden.

**[0062]** Der erfindungsgemäße Gegenstand, die 1-Butenpolymerzusammensetzung, kann leicht fraktioniert werden, indem die Zusammensetzung Fraktionierung mit Xylol gemäß dem nachfolgend beschriebenen Verfahren (xylollösliche Substanzen bei 0°C) unterzogen wird. Auf diese Weise bleibt die ataktische Komponente a) in Lösung, während die isotaktische Komponente b) bei 0°C unlöslich ist. Wenn die Zusammensetzung einer Extraktion mit Diethylether unterzogen wird, kann die ataktische Komponente a), die allein genommen in diesem Lösungsmittel vollständig löslich ist, nicht vollständig von Komponente b) getrennt werden. Wir nehmen an, ohne uns auf eine Lehre festlegen zu wollen, dass dies durch die Tatsache erklärt werden kann, dass Komponente a) und Komponente b) so innig vermischt sind, dass Diethylether die Lamellen der Komponente b) nicht so aufquellen lassen kann, dass die gesamte in der Zusammensetzung vorhandene Komponente a) kontaktiert und solubilisiert werden kann. Wenn die Zusammensetzung im Unterschied dazu Xylolfraktionierung gemäß dem nachfolgend beschriebenen Verfahren unterzogen wird, ist die Trennung vollständig, da die gesamte Zusammensetzung solubilisiert wird und anschließend Komponente a) ausgefällt wird.

**[0063]** Diese Tatsache bestätigt, dass Komponente a) und Komponente b) der erfindungsgemäßen 1-Butenpolymerzusammensetzung vollständig innig dispergiert sind, wodurch die Zusammensetzung die besten Eigenschaften der beiden Komponenten behalten kann. Die Zusammensetzung behält beispielsweise in der Tat den Schmelzpunkt von Komponente b).

**[0064]** Die folgenden Beispiele werden zu illustrierenden Zwecken gegeben und sollen die vorliegende Erfindung nicht einschränken.

## BEISPIELE

### Xylollösliche Substanzen bei 0°C

**[0065]** Ein Probe von 2,5 der oben hergestellten Reaktorzusammensetzung wurde in 250 ml zuvor destilliertem Xylol suspendiert. Die Mischung wurde erwärmt, um so in etwa 30 Minuten die Temperatur von 135°C zu erreichen, während unter einem leichten Stickstoffstrom gelinde gerührt wurde. Nachdem die Temperatur von 135°C erreicht worden war, wurde die Mischung, um die Probe vollständig aufzulösen, weitere 30 Minuten auf 135°C gehalten.

**[0066]** Nachdem der Auflösungsschritt abgeschlossen war, wurde die Lösung unter Rühren luftgekühlt, bis sie eine Temperatur von etwa 100°C erreichte. Der Kolben, der die Lösung enthielt, wurde dann in einem Dewar-Gefäß mit einem Wasser-und-Eis-Bad angeordnet, so dass die Temperatur im Inneren des Kolbens auf 0°C fiel. Die Lösung wurde unter Rühren eine Stunde auf 0°C gehalten, um so die Kristallisation des unlöslichen Materials abzuschließen.

**[0067]** Die erhaltene Mischung wurde durch einen kurzhalsigen Glastrichter und einen Schnellfilter-Papierfilter filtriert. Wenn das Filtrat nicht vollkommen klar war, wurde die Filtration wiederholt. Die Mischung wurde während der Filtrationsstufe auf 0°C gehalten. Nachdem die Filtration abgeschlossen war, wurde das Filtrat bei 25°C ins Gleichgewicht kommen gelassen, und dann wurden zwei 50 ml-Aliquote in zwei volumetrischen Kolben angeordnet.

**[0068]** Eine der beiden 50 ml-Filtrataliquoten wurde in eine zuvor kalibrierte Aluminiumpfanne überführt (die Aluminiumpfannen müssen 30 Minuten vor Gebrauch in einem Muffelofen bei 500°C aufbewahrt werden). Die Aluminiumpfanne war auf 140°C erwärmt worden, um das Lösungsmittel unter einem leichten Stickstoffstrom zu verdampfen und gleichzeitig die Dämpfe des verdampften Lösungsmittels aufzufangen und zu kondensieren. Nachdem das Lösungsmittelverdampfen abgeschlossen war, wurde die Pfanne in einem Vakuumofen (200 bis 400 mbar) bei 75 bis 80°C und unter einem Stickstoffstrom angeordnet, um den Inhalt bis zum konstanten Gewicht zu trocknen (vollständig löslich). Dieses Verfahren wurde für die zweite 50 ml-Aliquote des Filtrats wiederholt.

**[0069]** Parallel wurde eine Aliquote von 50 ml Xylol dem gleichen Verdampfungsverfahren unterzogen, um einen Blindprobenreferenzwert zu haben.

**[0070]** Die in o-Xylol bei 0°C lösliche Fraktion (vollständig löslich) wird mit der folgenden allgemeinen Formel als Gewichtsprozentsatz angegeben:

$$XS\% = \frac{\left( \left( \frac{M_{r1} + M_{r2}}{2} \right) - \left( M_b \times \left( \frac{V_r}{V_b} \right) \right) \right) \times V_i}{M_i \times V_r} \times 100 \quad (1)$$

wobei die Symbole die folgende Bedeutung haben:

XS%	= Gewichtsprozentsatz der gesamten löslichen Fraktion;
$M_{r1}$	= erster Aliquotenrückstand beim Verdampfen
$M_{r2}$	= zweiter Aliquotenrückstand beim Verdampfen
$M_b$	= Blindprobenrückstand beim Verdampfen
$M_i$	= Ausgangsprobengewicht
$V_r$	= Volumen der verdampften Lösung
$V_b$	= verdampftes Blindprobenvolumen
$V_i$	= Ausgangslösungsmittelvolumen.

**[0071]** Die in o-Xylol bei 0°C unlösliche Fraktion (vollständig löslich) wird mit der folgenden allgemeinen Formel als Gewichtsprozentsatz angegeben:

$$XI\% = 100 - XS\% \quad (2)$$

wobei die Symbole die folgende Bedeutung haben:

XI%	= Gewichtsprozentsatz der unlöslichen Fraktion
XS%	= gesamte lösliche Gewichtsprozent

#### Herstellung der Komponenten a) Allgemeines Verfahren

**[0072]** Meso-Dimethylsilandiylbis-6-[2,5-dimethyl-3-(2'-methylphenyl)cyclopentadienyl-[1,2-b]-thiophen]zirkoniumdichlorid (A-1) wurde gemäß WO 01/44318 hergestellt.

#### Polymerisation

**[0073]** Die Katalysatormischung wurde hergestellt, indem 3 mg des Metallocens (A-1) in 4 bis 8 ml Toluol mit der richtigen Menge der MAO-Lösung (Al(MAO)/Zr-Verhältnisse = 500) gelöst wurden, wobei eine Lösung erhalten wurde, die 10 Minuten bei Raumtemperatur gerührt wurde, bevor sie in den Autoklaven injiziert wurde.

**[0074]** 6 mmol Al(i-Bu)<sub>3</sub> (als 1 M Lösung in Hexan) und 1350 g 1-Buten wurden bei Raumtemperatur in einen ummantelten 4 L-Autoklaven aus rostfreiem Stahl eingebracht, der mit einem magnetisch angetriebenen Rührer und einer 35 ml Ampulle aus rostfreiem Stahl ausgerüstet war und mit einem Thermostat zur Temperaturregelung verbunden war, und zuvor gereinigt wurde, indem er mit einer Al(i-Bu)<sub>3</sub>-Lösung in Hexanen gewaschen und bei 50°C im Stickstoffstrom getrocknet wurde. Der Autoklav wurde dann auf der in Tabelle 1 angegebenen Polymerisationstemperatur thermostatisiert, und das wie oben angegeben hergestellte Katalysatorsystem wurde durch die Ampulle aus rostfreiem Stahl mittels Stickstoffdruck in den Autoklaven injiziert. Die Polymerisation wurde eine Stunde bei konstanter Temperatur durchgeführt. Das Rühren wurde dann abgestellt und der Druck in dem Autoklaven mit Stickstoff auf 20 bar Überdruck erhöht. Das untere Ablassventil wurde geöffnet und die 1-Guten/Poly-1-buten-Mischung in einen geheizten Stahltank abgelassen, der 70°C warmes Wasser enthielt. Die Tankheizung wurde abgeschaltet und ein Stickstoffstrom mit 0,5 bar Überdruck zugeführt. Der Stahltank wurde nach Abkühlen auf Raumtemperatur geöffnet und das feuchte Polymer aufgefangen. Das feuchte Polymer wurde unter reduziertem Druck bei 70°C in einem Ofen getrocknet. Die erhaltenen Polymere wurden nach dem oben beschriebenen Verfahren mit Diethylether extrahiert. Die resultierenden Proben waren in Diethylether vollständig löslich (100%).

**[0075]** Die Polymerisationsbedingungen und die Charakterisierungsdaten der erhaltenen Polymere sind in Tabelle 1 wiedergegeben.

Tabelle 1

Zusammensetzung	T <sub>pol</sub> °C	Aktivität °C (Kg PB/g <sub>Met</sub> ·h)	Strukturviskosität (dl/g, THN)	M <sub>w</sub> /M <sub>n</sub>	rr %	Enthalpie (ΔH <sub>f</sub> )	Kristallinität (IR)
a1	60	86	1,8	2,5	29,1	n. d.	0,026
a2	70	124	13	2,6	28,5	n. d.	0,023

n. d. = nicht nachweisbar

#### Herstellung von Komponente b)

**[0076]** Komponente b1) wurde nach dem in WO 02/100908 beschriebenen Verfahren wie folgt hergestellt.

**[0077]** Rac-Dimethylsilandiylbis-6-[2,5-dimethyl-3-(2'-methylphenyl)cyclopentadienyl-[1,2-b]-thiophen]zirkoniumdichlorid (A-2) wurde gemäß WO 01/44318 hergestellt. Die Katalysatormischung wurde hergestellt, indem 3 mg des Metallocens (A-2) in 4 bis 8 ml Toluol mit der richtigen Menge der MAO-Lösung (Al(MAO)/Zr-Verhältnisse = 200) gelöst wurden, wobei eine Lösung erhalten wurde, die 10 Minuten bei Raumtemperatur gerührt wurde, bevor sie in den Autoklaven injiziert wurde.

**[0078]** 6 mmol Al(i-Bu)<sub>3</sub> (TIBA) (als 1 M Lösung in Hexan) und 1350 g 1-Buten wurden bei Raumtemperatur in einen ummantelten 4 L-Autoklaven aus rostfreiem Stahl eingebracht, der mit einem magnetisch angetriebenen Rührer und einer 35 ml Ampulle aus rostfreiem Stahl ausgerüstet war und mit einem Thermostat zur Temperaturregelung verbunden war, und zuvor gereinigt wurde, indem er mit einer Al(i-Bu)<sub>3</sub>-Lösung in Hexanen gewaschen und bei 50°C im Stickstoffstrom getrocknet wurde. Der Autoklav wurde dann auf der in Tabelle 1 angegebenen Polymerisationstemperatur thermostatisiert, und das wie oben angegeben hergestellte Katalysatorsystem wurde durch die Ampulle aus rostfreiem Stahl mittels Stickstoffdruck in den Autoklaven injiziert. Die Polymerisation wurde eine Stunde bei konstanter Temperatur durchgeführt. Das Rühren wurde dann abgestellt und der Druck in dem Autoklaven mit Stickstoff auf 20 bar Überdruck erhöht. Das untere Ablassventil wurde geöffnet und die 1-Buten/Poly-1-buten-Mischung in einen geheizten Stahltank abgelassen, der 70°C warmes Wasser enthält. Die Tankheizung wurde abgeschaltet und ein Stickstoffstrom mit 0,5 bar Überdruck zugeführt. Der Stahltank wurde nach Abkühlen auf Raumtemperatur geöffnet und das feuchte Polymer aufgefangen. Das feuchte Polymer wurde unter reduziertem Druck bei 70°C in einem Ofen getrocknet.

**[0079]** Die Polymerproben erwiesen sich als vollständig unlöslich in Diethylether (Löslichkeit in Diethylether 0%) gemäß dem wie oben beschrieben durchgeführten Test.

**[0080]** Die Polymerisationsbedingungen und die Charakterisierungsdaten der erhaltenen Polymere sind in Tabelle 2 wiedergegeben.

Tabelle 2

Zusammensetzung	T <sub>pol</sub> °C	Aktivität °C (Kg PB/g <sub>Met</sub> ·h)	Strukturviskosität (dl/g, THN)	M <sub>w</sub> /M <sub>n</sub>	mmmm %	T <sub>m</sub> (°C)
b1	70	132	13	2,2	> 99	108

**[0081]** Komponente b2) wurde gemäß Beispiel 1 von WO 03/099883 hergestellt. Die Charakteristika des erhaltenen 1-Butenhomopolymers sind in Tabelle 3 wiedergegeben.

Tabelle 3

Zusammensetzung	Strukturviskosität (dl/g, THN)	M <sub>w</sub> /M <sub>n</sub>	mmmm	T <sub>m</sub> (°C)
b2	2,3	5,1	> 97%	116

## Herstellung der Zusammensetzungen – Allgemeines Verfahren

**[0082]** Verschiedene Kombinationen der oben beschriebenen Komponenten a) und b) wurden unter Verwendung eines Brandburg-Extruders coextrudiert. Jeder Zusammensetzung wurde 0,1 Gew.% Inorganox™ 1010 als Stabilisator zugegeben. Diese Zusammensetzung wurden gemäß ASTM D 5023, ISO 527, ISO 868 und ISO 178 getestet.

**[0083]** Bei Letzteren wurden die formgepressten Platten in einem Autoklaven bei 2000 bar 10 Minuten lang in einem Ölbad bei Raumtemperatur gealtert. Die Charakterisierung der Zusammensetzungen ist in Tabelle 4 wiedergegeben.

Tabelle 4

	Zusammensetzung 1	Zusammensetzung 2	Zusammensetzung 3	Zusammensetzung 4	Zusammensetzung 5
Komponente a, Gew.% (Art)	50 (a1)	50 (a2)	50 (a1)	60 (a1)	70 (a1)
Komponente b, Gew.% (Art)	50 (b2)	50 (b2)	50 (b1)	40 (b1)	30 (b1)
Zugmodul (MPa)	n. a.	n. a.	78	30	6
Biegemodul (MPa)	n. a.	n. a.	38	16	8
Bruchdehnung (%)	446	399	514	615	796
Bruchfestigkeit (MPa)	9,6	12	11,7	9,9	6
Härte (Shore A) (D)	n. a.	n. a.	70	64	60
Schmelzpunkt (°C)	116	116	108	108	108

n. a. = nicht verfügbar

## Reaktorzusammensetzungen

## Katalysatorsystem

**[0084]** Das Katalysatorsystem wurde nach dem in "Beispiel 1 Herstellung von Katalysatorsystem C-1" von EP 04101020.8 beschriebenen Verfahren hergestellt, indem 4,5 mg einer Mischung von A-1 und A-2 1:1, Al<sub>gesamt</sub>/Zr 200 und ein Verhältnis von Methylalumoxan (MAO)/Triisobutylaluminium (TEBA) 2:1 verwendet wurden.

## 1-Butenpolymerisation, Allgemeines Verfahren

**[0085]** Es wurde ein ummantelter 4 L-Autoklav aus rostfreiem Stahl verwendet, der mit einem magnetisch angetriebenen Rührer und einem Flow Record & Control-System ausgestattet war. Alle Zu- und Abflüsse, Druck und Temperaturen in den Autoklaven wurden mittels DSC-PC gesteuert. Der Autoklav wurde vor jedem Test mit heißem Stickstoff gereinigt (1,5 bar Überdruck N<sub>2</sub>, 70°C, eine Stunde). Danach wurden 1350 g 1-Buten und 6 mmol Al(i-Bu)<sub>3</sub> (als 1 M Lösung in Hexan) bei Raumtemperatur eingebracht. Der Autoklav wurde dann bei der Polymerisationstemperatur thermostatisiert, die Lösung, welche die oben hergestellte Katalysator/Cokatalysator-Mischung enthielt, wurde durch eine Ampulle aus rostfreiem Stahl mittels Stickstoffdruck in den Autoklaven injiziert. Die Polymerisationsreaktionen wurden eine Stunde bei 70°C durchgeführt. Das Rühren wurde dann abgestellt und der Druck in dem Autoklaven mit Stickstoff auf 20 bar Überdruck erhöht.

**[0086]** Die 1-Buten/Poly-1-buten-Mischung wurde aus dem Boden in einen geheizten Stahltank abgelassen, der 70°C warmes Wasser enthielt. Die Tankheizung wurde abgeschaltet und ein Stickstoffstrom mit 0,5 bar Überdruck zugeführt. Der Stahltank wurde nach Abkühlen auf Raumtemperatur geöffnet und das feuchte Po-

lymer aufgefangen. Das feuchte Polymer wurde unter reduziertem Druck bei 70°C in einem Ofen getrocknet.

**[0087]** Die Polymerisationsbedingungen und die Charakterisierungsdaten der erhaltenen Polymere sind in Tabelle 5 wiedergegeben.

Tabelle 5

Zusammensetzung	Aktivität kg/(g <sub>met</sub> h)	Strukturviskosität (dl/g, THN)	M <sub>w</sub> /M <sub>n</sub>	T <sub>m</sub> (II) °C	ΔH <sub>f</sub> (II) (J/g)	ΔH <sub>c</sub> (II) (J/g)
6*	98,7	1,4	2,0	106,5	19,12	-18,3

\* Die Katalysatorlösung wurde 24 Stunden gealtert.

**[0088]** Die wie oben hergestellte Reaktorzusammensetzung wurde gemäß dem oben beschriebenen Verfahren Xylolextraktion bei 0°C unterzogen. Die Charakterisierung der beiden Fraktionen ist in Tabelle 6 wiedergegeben.

Tabelle 6

	Zusammensetzung	NMR %	Strukturviskosität (dl/g, THN)	M <sub>w</sub> /M <sub>n</sub>	Enthalpie (ΔH <sub>f</sub> )	Kristallinität (IR)	T <sub>m</sub> (°C)
Zusammensetzung 6	Zusammensetzung a 43%	rr 29	1,4	2,0	n. d.	0,030	n. d.
	Zusammensetzung b 57%	mmmm 98	1,4	2,0	n. a.	n. a.	106,5

n. d. = nicht nachweisbar

n. a. = nicht verfügbar

**[0089]** Eine Probe der oben erhaltenen Reaktorzusammensetzung wurde 12 Stunden Soxhlet-Extraktion mit Diethylether unterzogen. Der Extrakt wurde eingedampft, um die lösliche Fraktion zu isolieren. Diese etherlösliche Fraktionsmenge von 28 Gew.% war vollständig amorph, im Unterschied zu dem ataktischen Material mit einer Kristallinität (IR) von 0,024%.

### Patentansprüche

1. 1-Butenpolymerzusammensetzung, umfassend:

a) 5 Gew.-% bis 95 Gew.-% ataktisches Polymer auf 1-Butenbasis ausgewählt aus: ataktischem Homopolymer von 1-Buten oder einem ataktischen Copolymer von 1-Buten, das bis zu 50 Mol.% von einem oder mehreren α-Olefinen ausgewählt aus Ethylen, Propylen und α-Olefinen mit der Formel CH<sub>2</sub>=CHZ enthält, wobei Z eine C<sub>3</sub>- bis C<sub>10</sub>-Alkylgruppe ist, mit den folgenden Merkmalen:

i) Molekulargewichtsverteilung M<sub>w</sub>/M<sub>n</sub> gleich oder kleiner als 4, gemessen mittels GPC;

ii) rr-Triaden zwischen 5% und 50%, gemessen mittels <sup>13</sup>C-NMR;

iii) keine Schmelzenthalpie nachweisbar im Differentialscanningkalorimeter (DSC);

iv) Strukturviskosität (IV) zwischen 0,85 dl/g und 5,0 dl/g, gemessen in Tetrahydronaphthalin (THN) bei 135°C; und

v) Infrarotkristallinität kleiner als 0,5%, gemessen aus dem Infrarotabsorptionsspektrum von etwa 1 mm dickem Polymerfilm durch Verwendung der Absorptionen A bei 1221 cm<sup>-1</sup> und 1151 cm<sup>-1</sup> in der Gleichung:

$$\text{Kristallinität} = \frac{\left( \frac{A_{1221}}{A_{1151}} \right)_{\text{Feststoff}} - 0,76}{5,43 - 0,76}$$

b) 5 Gew.-% bis 95 Gew.-% eines isotaktischen Polymers auf 1-Buten-Basis ausgewählt aus isotaktischem Homopolymer von 1-Buten, isotaktischem Copolymer von 1-Buten, das bis zu 5 Mol.% von Ethylen abgeleitete Einheiten enthält, isotaktischem Copolymer von 1-Buten, das bis zu 50 Mol.% von Propylen abgeleitete Einheiten enthält, oder einem isotaktischen Copolymer von 1-Buten und einem oder mehreren  $\alpha$ -Olefinen der Formel  $\text{CH}_2=\text{CHZ}$ , wobei Z eine  $\text{C}_3$ - bis  $\text{C}_{10}$ -Alkylgruppe ist, das bis zu 20 Mol.% der von den  $\alpha$ -Olefinen abgeleiteten Einheiten enthält, mit den folgenden Merkmalen:

- i) isotaktische Pentaden (mmmm) von mehr als 80 %, gemessen mittels  $^{13}\text{C}$ -NMR;
- ii) Schmelzpunkt höher als  $80^\circ\text{C}$ , gemessen mit dem Differentialscanningkalorimeter (DSC), und
- iii) Strukturviskosität (IV) zwischen 0,1 dl/g und 5 dl/g, gemessen in Tetrahydronaphthalin (THN) bei  $135^\circ\text{C}$ .

2. 1-Butenpolymerzusammensetzung nach Anspruch 1, wobei die Komponente a) die folgenden Eigenschaften aufweist:

- i) Molekulargewichtsverteilung ( $M_w/M_n$ ) kleiner als 3;
- ii) rr-Triaden zwischen 20 und 30%;
- iii) Strukturviskosität (IV) zwischen 1,0 dl/g und 5,0 dl/g, gemessen in Tetrahydronaphthalin (THN) bei  $135^\circ\text{C}$ ;
- iv) Infrarotkristallinität kleiner als 0,3%.

3. 1-Butenpolymerzusammensetzung nach Anspruch 1 oder 2, wobei die Komponente b) die folgenden Eigenschaften aufweist:

- i) isotaktische Pentaden (mmmm) von mehr als 85%, gemessen mittels  $^{13}\text{C}$ -NMR;
- ii) einen Schmelzpunkt höher als  $90^\circ\text{C}$  und
- iii) Strukturviskosität (IV) zwischen 0,5 dl/g und 4 dl/g, gemessen in Tetrahydronaphthalin (THN) bei  $135^\circ\text{C}$ .

4. 1-Butenpolymerzusammensetzung nach Anspruch 3, wobei Komponente b) eine Molekulargewichtsverteilung ( $M_w/M_n$ ) gleich oder kleiner als 5 hat.

5. 1-Butenpolymerzusammensetzung nach Anspruch 3, wobei Komponente b) eine Molekulargewichtsverteilung ( $M_w/M_n$ ) größer als 3 hat.

6. 1-Butenpolymerzusammensetzung nach einem der Ansprüche 1 bis 5, wobei Komponente a) ein ataktisches Homopolymer von 1-Buten ist.

7. 1-Butenpolymerzusammensetzung nach einem der Ansprüche 1 bis 6, wobei Komponente b) ein isotaktisches Homopolymer von 1-Buten ist.

8. 1-Butenpolymerzusammensetzung nach einem der Ansprüche 1 bis 6, wobei Komponente a) im Bereich von 20 Gew.-% bis 80 Gew.-% liegt und Komponente b) im Bereich von 80 Gew.-% bis 20 Gew.-% liegt.

9. Verfahren zur Herstellung einer 1-Butenpolymerzusammensetzung, wie in den Ansprüchen 1 bis 8 beschrieben, bei dem in den folgenden Stufen erhalten werden:

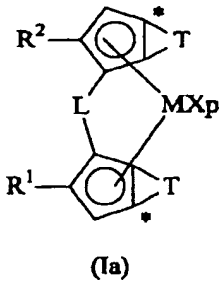
a) 5 Gew.-% bis 95 Gew.-% Polymer auf 1-Butenbasis ausgewählt aus: ataktischem Homopolymer von 1-Buten oder einem ataktischen Copolymer von 1-Buten, das bis zu 50 Mol.% von einem oder mehreren  $\alpha$ -Olefinen ausgewählt aus Ethylen, Propylen und  $\alpha$ -Olefinen mit der Formel  $\text{CH}_2=\text{CHZ}$  enthält, wobei Z eine  $\text{C}_3$ - bis  $\text{C}_{10}$ -Alkylgruppe ist, mit den in Anspruch 1 beschriebenen Merkmalen, indem ein oder mehrere Monomere unter Polymerisationsbedingungen in Gegenwart eines Katalysatorsystems kontaktiert werden, das mindestens eine Übergangsmetallorganoverbindung enthält; und

b) 5 Gew.-% bis 95 Gew.-% eines isotaktischen Polymers auf 1-Buten-Basis ausgewählt aus isotaktischem Homopolymer von 1-Buten, isotaktischem Copolymer von 1-Buten, das bis zu 5 Mol.% von Ethylen abgeleitete Einheiten enthält, isotaktischem Copolymer von 1-Buten, das bis zu 50 Mol.% von Propylen abgeleitete Einheiten enthält oder einem isotaktischen Copolymer von 1-Buten und einem oder mehreren  $\alpha$ -Olefinen der Formel  $\text{CH}_2=\text{CHZ}$ , wobei Z eine  $\text{C}_3$ - bis  $\text{C}_{10}$ -Alkylgruppe ist, die bis zu 20 Mol.% der von den  $\alpha$ -Olefinen abgeleiteten Einheiten enthält, mit den in Beispiel 1 beschriebenen Merkmalen, indem ein oder mehrere Monomere unter Polymerisationsbedingungen in Gegenwart eines Katalysatorsystems kontaktiert werden, das mindestens

eine Übergangsmetallorganoverbindung enthält;  
dadurch gekennzeichnet, dass Komponenten a) und b) simultan in demselben Reaktor erhalten werden.

10. Verfahren zur Herstellung einer 1-Butenpolymerzusammensetzung nach Anspruch 9, das die Stufe des Polymerisierens von 1-Buten und gegebenenfalls Ethylen, Propylen oder einem oder mehreren  $\alpha$ -Olefinen mit der Formel  $\text{CH}_2=\text{CHZ}$ , wobei Z eine  $\text{C}_3$ - bis  $\text{C}_{10}$ -Alkylgruppe ist, in Gegenwart eines Katalysatorsystems umfasst, das erhältlich ist durch Kontaktieren von

a) mindestens einer Metallocenverbindung mit der Formel (Ia) in der meso- oder einer mesoartigen Form



worin:

M ein Übergangsmetallatom ausgewählt aus jenen der Gruppe 3, 4, 5, 6 oder der Lanthanid- oder Actinidgruppen in dem Periodensystem der Elemente ist;

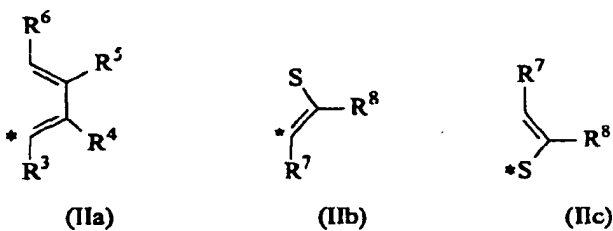
p eine ganze Zahl von 0 bis 3 ist und gleich dem formalen Oxidationszustand des Metalls M minus 2 ist;

X gleich oder unterschiedlich ist und ein Wasserstoffatom, ein Halogenatom oder eine R, OR,  $\text{OSO}_2\text{CF}_3$ , OCOR, SR,  $\text{NR}_2$  oder  $\text{PR}_2$  Gruppe ist, wobei R lineare oder verzweigte, cyclische oder acyclische  $\text{C}_1$ - bis  $\text{C}_{40}$ -Alkyl-,  $\text{C}_2$ - bis  $\text{C}_{40}$ -Alkenyl-,  $\text{C}_2$ - bis  $\text{C}_{40}$ -Alkynyl-,  $\text{C}_6$ - bis  $\text{C}_{40}$ -Aryl-,  $\text{C}_7$ - bis  $\text{C}_{40}$ -Alkylaryl- oder  $\text{C}_7$ - bis  $\text{C}_{40}$ -Arylalkylreste ist, die gegebenenfalls Heteroatome enthalten, die zu den Gruppen 13 bis 17 des Periodensystems der Elemente gehören, oder zwei X gegebenenfalls einen substituierten oder unsubstituierten Butadienylrest oder eine OR'O-Gruppe bilden, wobei R' ein zweiwertiger Rest ausgewählt aus  $\text{C}_1$ - bis  $\text{C}_{40}$ -Alkyliden,  $\text{C}_6$ - bis  $\text{C}_{40}$ -Aryliden,  $\text{C}_7$ - bis  $\text{C}_{40}$ -Alkylaryliden und  $\text{C}_7$ - bis  $\text{C}_{40}$ -Arylalkylidenresten ist;

L ein zweiwertiger  $\text{C}_1$ - bis  $\text{C}_{40}$ -Kohlenwasserstoffrest ist, der gegebenenfalls Heteroatome enthält, die zu den Gruppen 13 bis 17 des Periodensystems der Elemente gehören, oder ein zweiwertiger Silylidenrest ist, der bis zu 5 Siliciumatome enthält;

$\text{R}^1$  und  $\text{R}^2$  gleich oder voneinander verschieden sind und  $\text{C}_1$ - bis  $\text{C}_{40}$ -Kohlenwasserstoffreste sind, die gegebenenfalls Heteroatome enthalten, die zu den Gruppen 13 bis 17 des Periodensystems der Elemente gehören;

T gleich oder voneinander verschieden sind und eine Einheit mit der Formel (IIa), (IIb) oder (IIc) ist:



wobei das mit dem Symbol \* markierte Atom an das Atom in der Verbindung mit der Formel (Ia) gebunden ist, welches mit dem gleichen Symbol markiert ist;

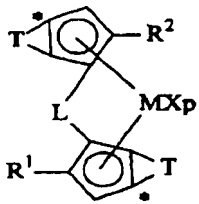
$\text{R}^3$  ein  $\text{C}_1$ - bis  $\text{C}_{40}$ -Kohlenwasserstoffrest ist, der gegebenenfalls Heteroatome enthält, die zu den Gruppen 13 bis 17 des Periodensystems der Elemente gehören;

$\text{R}^4$  und  $\text{R}^6$  gleich oder voneinander verschieden sind und Wasserstoffatome oder  $\text{C}_1$ - bis  $\text{C}_{40}$ -Kohlenwasserstoffreste sind, die gegebenenfalls Heteroatome enthalten, die zu den Gruppen 13 bis 17 des Periodensystems der Elemente gehören;

$\text{R}^5$  ein  $\text{C}_1$ - bis  $\text{C}_{40}$ -Kohlenwasserstoffrest ist, der gegebenenfalls Heteroatome enthält, die zu den Gruppen 13 bis 17 des Periodensystems der Elemente gehören;

$\text{R}^7$  und  $\text{R}^8$  gleich oder voneinander verschieden sind und Wasserstoffatome oder  $\text{C}_1$ - bis  $\text{C}_{40}$ -Kohlenwasserstoffreste sind, die gegebenenfalls Heteroatome enthalten, die zu den Gruppen 13 bis 17 des Periodensystems der Elemente gehören;

b) mindestens einer Metallocenverbindung mit der Formel (Ib) in racemischer (rac) oder racemischartiger Form:



(Ib)

34

wobei  $R^1$ ,  $R^2$ , T, L, M, X und p bereits beschrieben wurden und wobei die mit dem Symbol \* markierten Atome an das Atom in den Einheiten mit der Formel (IIa), (IIb) oder (IIc) binden, das mit dem gleichen Symbol markiert ist;

c) einem Alumoxan oder einer Verbindung, die ein Alkylmetalloccenkation bilden kann.

11. Verfahren nach Anspruch 10, wobei das Katalysatorsystem ferner eine Organoaluminiumverbindung enthält.

12. 1-Butenpolymerzusammensetzung nach einem der Ansprüche 1 bis 8, die nach dem Verfahren von Anspruch 10 erhältlich ist, wobei die Molekulargewichtsverteilung ( $M_w/M_n$ ) der Zusammensetzung kleiner als 3,5 ist.

Es folgt kein Blatt Zeichnungen