

【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15日(2008.5.15)

【公表番号】特表2003-529572(P2003-529572A)

【公表日】平成15年10月7日(2003.10.7)

【出願番号】特願2001-572442(P2001-572442)

【国際特許分類】

C 07 C	13/547	(2006.01)
C 07 F	7/00	(2006.01)
C 07 F	7/28	(2006.01)
C 07 F	17/00	(2006.01)
C 08 F	4/62	(2006.01)

【F I】

C 07 C	13/547	
C 07 F	7/00	A
C 07 F	7/28	F
C 07 F	17/00	
C 08 F	4/62	

【手続補正書】

【提出日】平成20年3月21日(2008.3.21)

【手続補正1】

【補正対象書類名】明細書

【補正対象項目名】特許請求の範囲

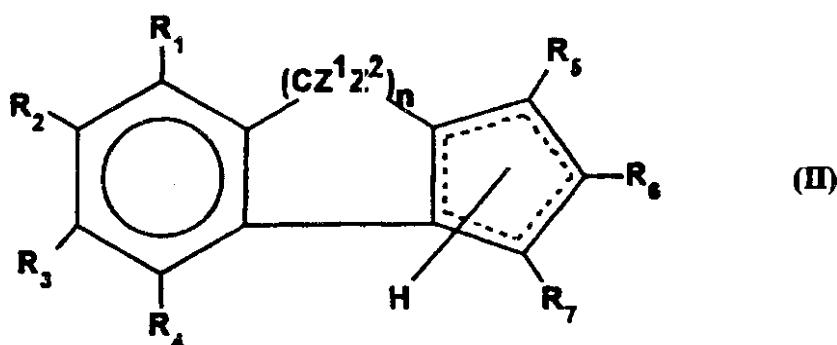
【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】下記の式(I)を有する多環式シクロペニタジエニル化合物又は式(II)を有する前記化合物の混合物。

【化1】



(式中、記号R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub>、R<sub>5</sub>、R<sub>6</sub>、R<sub>7</sub>、Z<sup>1</sup>及びZ<sup>2</sup>の夫々は、独立して水素又は1~15個の炭素原子を有する有機置換基を表し、及び、

前記R基又はZ基のいずれか一つは、5~20個の炭素原子を有し、かつシクロペニタジエニル基を含む別の有機基に更に結合している2価の有機基であってもよく、及び

“n”は1~10(極値が含まれる)の整数値のいずれかを有する。)

【請求項2】前記記号R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub>、R<sub>5</sub>、R<sub>6</sub>、R<sub>7</sub>、Z<sup>1</sup>及びZ<sup>2</sup>の夫々が水素又は1~6個の炭素原子を有する線状又は分岐アルキル基を表し、かつ“n”が1~3の値を有する請求の範囲第1項記載の化合物。

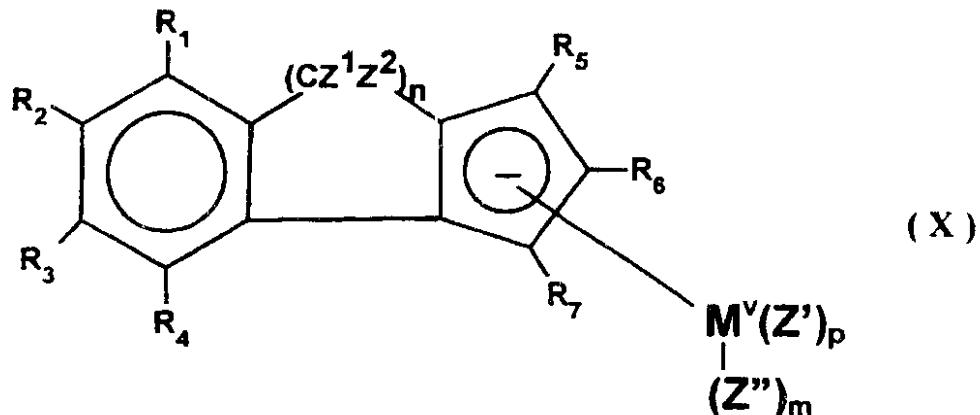
【請求項3】式(II)中、記号R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub>、Z<sup>1</sup>及びZ<sup>2</sup>が全て水素を表し、及び記

号R<sub>5</sub>、R<sub>6</sub>又はR<sub>7</sub>の少なくとも一つが独立にメチル又はエチルを表す請求の範囲第1項又は第2項記載の化合物。

【請求項4】 式(II)中、基R<sub>5</sub>、R<sub>6</sub>又はR<sub>7</sub>の一つが、2～6個の炭素原子を有する2価の炭化水素基又はシラン基であり、5～20個の炭素原子を有する第二シクロペンタジエニル基に更に結合している、請求の範囲第1項～第3項のいずれか記載の化合物。

【請求項5】 シクロペンタジエニル環からH<sup>+</sup>酸イオンを引き抜くことにより、請求の範囲第1項記載の式(II)を有する化合物から外形上由来する、下記の一般式(X)を有する少なくとも一つの多環式シクロペンタジエニル陰イオンを含む塩類化合物又は錯体。

【化2】



(式中、

夫々の記号R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub>、R<sub>5</sub>、R<sub>6</sub>、R<sub>7</sub>、Z<sup>1</sup>及びZ<sup>2</sup>、そしてまた異態の“n”は、請求の範囲第1項～第4項のいずれか記載の式(II)中の対応する記号と同じ意味を有し、

M<sup>v</sup>は、0より大きい酸化状態(又は原子価)“v”を有する元素の周期律表のあらゆる金属を表し、

夫々のZ'は、独立にイオン対の陰イオンとして、又は“”型の共有結合により金属M<sup>v</sup>に結合している陰イオン性の基であり、

Z''は、金属M<sup>v</sup>に配位しているシクロペンタジエニル陰イオンを含む、5～30個の炭素原子を有する有機基を表し、

“m”は、Z''が式(X)を有する化合物中に存在するか否かに応じて1又は0の値を有し、

“p”は、p=(v-m-1)であるような値を有する。)

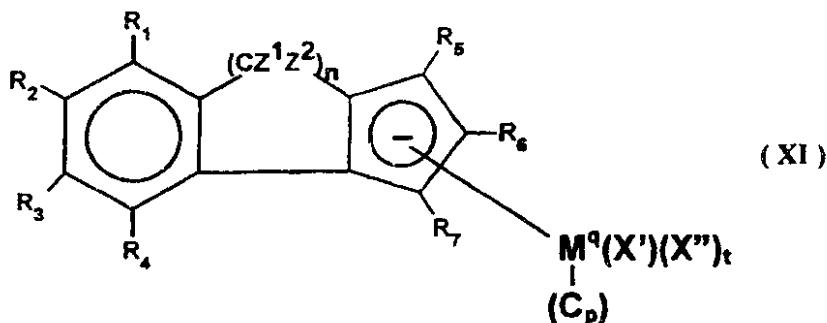
【請求項6】 前記金属M<sup>v</sup>が周期律表の1族又は2族の金属から選ばれる請求の範囲第5項記載の塩類化合物。

【請求項7】 前記金属M<sup>v</sup>がラントニド族の金属を含む、周期律表の3族～10族の遷移金属から選ばれる請求の範囲第5項記載の錯体。

【請求項8】 前記金属M<sup>v</sup>が周期律表の4族～6族の金属から選ばれる請求の範囲第5項又は第7項記載の錯体。

【請求項9】 下記の一般式(XI)を有する請求の範囲第5項記載のビスシクロペンタジエニル錯体。

【化3】



(式中、

夫々の記号R<sub>1</sub>、R<sub>2</sub>、R<sub>3</sub>、R<sub>4</sub>、R<sub>5</sub>、R<sub>6</sub>、R<sub>7</sub>、Z<sup>1</sup>及びZ<sup>2</sup>、そしてまた異態の“n”は、請求の範囲第5項記載の式(X)中の対応する記号と同じ意味を有し、

M<sup>q</sup>は、3又は4に等しい酸化状態(又は原子価)“q”を有するチタン、ジルコニウム及びハフニウムから選ばれる金属を表し、

“t”は、M<sup>q</sup>の原子価“q”が4である場合には1の値を有し、またM<sup>q</sup>の原子価“q”が3である場合には0の値を有し、

X'及びX''は、夫々独立に金属M<sup>q</sup>に結合している1価の陰イオン性の基を表し、

C<sub>p</sub>は、金属M<sup>q</sup>に配位している、陰イオン性の<sup>5</sup>-シクロペントジエニル又は<sup>5</sup>-ヘテロシクロペントジエニル環を含む有機基を表す)

【請求項10】前記記号X'及びX''が、

夫々独立に水素化物、ハライド、C<sub>1</sub>-C<sub>20</sub>アルキル基又はアルキルアリール基、C<sub>3</sub>-C<sub>20</sub>アルキルシリル基、C<sub>5</sub>-C<sub>20</sub>シクロアルキル基、C<sub>6</sub>-C<sub>20</sub>アリール基又はアリールアルキル基、C<sub>1</sub>-C<sub>20</sub>アルコキシリル基又はチオアルコキシリル基、C<sub>2</sub>-C<sub>20</sub>カルボキシレート基又はカルバメート基、C<sub>2</sub>-C<sub>20</sub>ジアルキルアミド基及びC<sub>4</sub>-C<sub>20</sub>アルキルシリルアミド基から選ばれる、金属M<sup>q</sup>に結合している陰イオン性の基を表すか、又は

前記X'基及びX''基が互いに化学結合して、水素とは異なる4~7個の原子を有し、金属M<sup>q</sup>を含む環を形成する、請求の範囲第9項記載の錯体。

【請求項11】式(XI)中のC<sub>p</sub>基が、式(II)を有する化合物に由来する多環式シクロペントジエニル基に共有結合しているか、1~15個の炭素原子を有する2価の炭化水素又はシランにより、式(X)の同化合物において金属M<sup>q</sup>に結合して、所謂“ブリッジ”構造を形成する、請求の範囲第9項又は第10項のいずれか記載の錯体。

【請求項12】互いに接触している下記の2成分を含有する、エチレン及びその他の-オレフィンの(共)重合用の触媒、又はその反応生成物：

(i) 式(X)を有する錯体中の金属M<sup>v</sup>が周期律表の4族~6族の金属であることを条件とする、請求の範囲第5項~第11項のいずれか記載の少なくとも一種のメタロセン錯体、

(ii) 上で定義した周期律表の2族、12族、13族又は14族の元素から選ばれる、炭素とは異なる元素M'の少なくとも一種の有機金属化合物を含む助触媒。

【請求項13】成分(ii)中の前記元素M'が、ホウ素、アルミニウム、亜鉛、マグネシウム、ガリウム及びスズから選ばれる請求の範囲第12項記載の触媒。

【請求項14】成分(i)中の前記メタロセン錯体が、請求の範囲第9項~第11項のいずれか記載の式(XI)を有する錯体から選ばれる請求の範囲第12項又は第13項の一項記載の触媒。

【請求項15】前記成分(ii)が、ポリマー・アルミノキサンである請求の範囲第12項~第14項のいずれか1項記載の触媒。

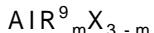
【請求項16】式(X)を有する錯体中の遷移金属M<sup>v</sup>又は式(XI)を有する錯体中のM<sup>q</sup>とアルミノキサン中のAIとの原子比が100から5,000までの範囲である請求の範囲第15項記載の触媒。

【請求項17】前記成分(ii)が、結合している基を成分(i)中の錯体から引き抜くことにより成分(i)中の錯体と反応して、

一方で少なくとも一種の中性化合物を生成し、

他方で金属M<sup>v</sup>又はM<sup>q</sup>を含むメタロセン陽イオンと、その負の電荷が多中心構造で非局在化されている金属M'を含む有機非配位陰イオンとを含むイオン性化合物を生成することができる、M'の少なくとも一種の化合物又は有機金属化合物の混合物を含み、

前記成分(ii)が、前記イオン性イオン化化合物に加えて、下記の式：



(式中、R<sup>9</sup>は線状もしくは分岐C<sub>1</sub>-C<sub>8</sub>アルキル基、又はそれらの混合物の一種であり、

Xはハロゲンであり、かつ

“m”は1～3(極値が含まれる)の範囲の小数である)

により表されるアルミニウムトリアルキル又はアルキルアルミニウムハライドを含み、成分(i)中のM<sup>v</sup>又はM<sup>q</sup>とアルミニウムアルキル中のAlの比が1/10～1/1,000の範囲である

請求の範囲第12項～第14項のいずれか記載の触媒。

【請求項18】 成分(ii)中の金属M'と成分(i)中の金属M<sup>v</sup>又はM<sup>q</sup>との原子比が1から6までの範囲である請求の範囲第17項記載の触媒。

【請求項19】 前記成分(ii)が、下記の式：[(R<sub>c</sub>)<sub>x</sub>NH<sub>4-x</sub>]<sup>+</sup>[B(R<sub>D</sub>)<sub>4</sub>]<sup>-</sup>; B(R<sub>D</sub>)<sub>3</sub>; [Ph<sub>3</sub>C]<sup>+</sup>[B(R<sub>D</sub>)<sub>4</sub>]<sup>-</sup>; [(R<sub>c</sub>)<sub>3</sub>PH]<sup>+</sup>[B(R<sub>D</sub>)<sub>4</sub>]<sup>-</sup>; [Li]<sup>+</sup>[B(R<sub>D</sub>)<sub>4</sub>]<sup>-</sup>; [Li]<sup>+</sup>[Al(R<sub>D</sub>)<sub>4</sub>]<sup>-</sup>の一つを有する化合物の群から選ばれるイオン性イオン化化合物を含み、式中、異態の“x”は0～3の範囲の整数であり、夫々のR<sub>c</sub>基は独立に1～10個の炭素原子を有するアルキル基又はアリール基を表し、及びR<sub>D</sub>基は独立に6～20個の炭素原子を有する、部分的に又は完全にフッ素化されたアリール基を表す、請求の範囲第17項又は第18項記載の触媒。

【請求項20】 連続式又はバッチ式で -オレフィンを(共)重合する方法であつて、低圧(0.1-1.0MPa)、中間の圧力(1.0-10MPa)又は高圧(10-150MPa)下、20から240の範囲の温度において、必要により不活性希釈剤の存在下で、少なくとも一種の -オレフィンと請求の範囲第12項～第19項の一項記載の触媒とを接触させることを特徴とする前記 -オレフィンを(共)重合する方法。

【請求項21】 前記の少なくとも一種の -オレフィンがエチレンである請求の範囲第20項記載の方法。

【請求項22】 エチレンを、3～10個の炭素原子を有する少なくとも第二の -オレフィンと共に重合させる、請求の範囲第20項又は第21項記載の方法。

【請求項23】 前記第二の -オレフィンに加えて、エチレンを、5～20個の炭素原子を有する脂肪族又は脂環式の非共役ジエンと共に重合させる請求の範囲第22項記載の方法。