

【公報種別】特許法第17条の2の規定による補正の掲載  
 【部門区分】第3部門第3区分  
 【発行日】令和7年3月21日(2025.3.21)

【国際公開番号】WO2024/004882  
 【出願番号】特願2024-530788(P2024-530788)

【国際特許分類】

C 0 8 F 2 3 2 / 0 8 ( 2 0 0 6 . 0 1 )  
 C 0 8 F 8 / 0 0 ( 2 0 0 6 . 0 1 )  
 C 0 8 F 2 1 0 / 0 0 ( 2 0 0 6 . 0 1 )  
 B 3 2 B 2 7 / 0 0 ( 2 0 0 6 . 0 1 )  
 B 3 2 B 1 5 / 0 8 5 ( 2 0 0 6 . 0 1 )  
 C 0 8 J 5 / 2 4 ( 2 0 0 6 . 0 1 )  
 H 0 5 K 1 / 0 3 ( 2 0 0 6 . 0 1 )

10

【 F I 】

C 0 8 F 2 3 2 / 0 8  
 C 0 8 F 8 / 0 0  
 C 0 8 F 2 1 0 / 0 0  
 B 3 2 B 2 7 / 0 0 A  
 B 3 2 B 1 5 / 0 8 5 Z  
 C 0 8 J 5 / 2 4  
 H 0 5 K 1 / 0 3 6 1 0 H

20

【手続補正書】

【提出日】令和6年12月24日(2024.12.24)

【手続補正1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

30

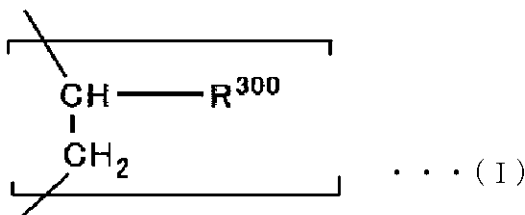
【特許請求の範囲】

【請求項1】

環状オレフィン系共重合体を製造する方法であって、  
 前記環状オレフィン系共重合体は、  
 (A) 下記一般式(I)で表される1種以上のオレフィン由来の繰り返し単位と、  
 (B) 下記一般式(III)で表される1種以上の環状非共役ジエン由来の繰り返し単位と、  
 (C) 下記一般式(V)で表される1種以上の環状オレフィン由来の繰り返し単位と  
 を含み、

40

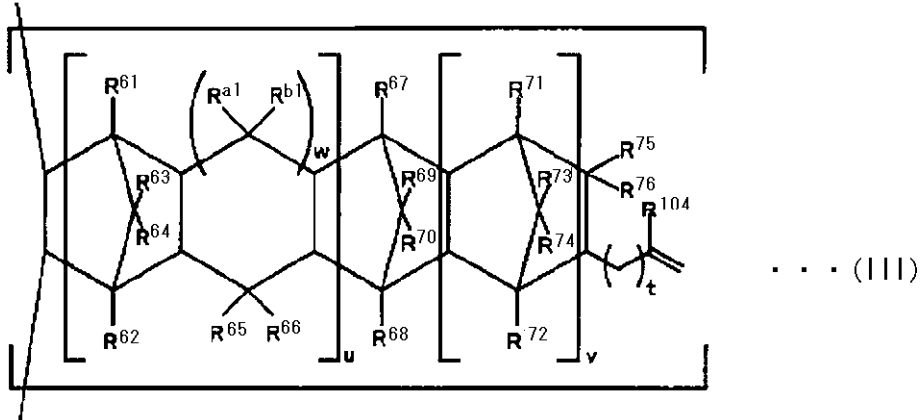
【化1】



〔上記一般式(I)において、R<sup>300</sup>は水素原子または炭素原子数1~29の直鎖状または分岐状の炭化水素基を示す。〕

50

## 【化 2】

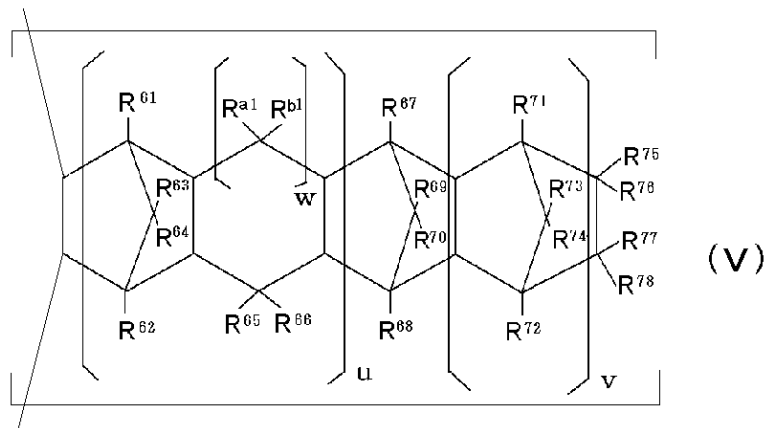


10

〔上記一般式 (III) 中、 $u$  は 0 または 1 であり、 $v$  は 0 または 正の整数であり、 $w$  は 0 または 1 であり、 $R^{61} \sim R^{76}$  ならびに  $R^{a1}$  および  $R^{b1}$  は互いに同一でも異なってもよく、水素原子、ハロゲン原子、炭素原子数 1 ~ 20 のアルキル基、炭素原子数 1 ~ 20 のハロゲン化アルキル基、炭素原子数 3 ~ 15 のシクロアルキル基または炭素原子数 6 ~ 20 の芳香族炭化水素基であり、 $R^{104}$  は水素原子または炭素原子数 1 ~ 10 のアルキル基であり、 $t$  は 0 ~ 10 の正の整数であり、 $R^{75}$  および  $R^{76}$  は互いに結合して単環または多環を形成していてもよい。〕

20

## 【化 3】



30

〔上記一般式 (V) 中、 $u$  は 0 または 1 であり、 $v$  は 0 または 正の整数であり、 $w$  は 0 または 1 であり、 $R^{61} \sim R^{78}$  ならびに  $R^{a1}$  および  $R^{b1}$  は互いに同一でも異なってもよく、水素原子、ハロゲン原子、炭素原子数 1 ~ 20 のアルキル基、炭素原子数 1 ~ 20 のハロゲン化アルキル基、炭素原子数 3 ~ 15 のシクロアルキル基または炭素原子数 6 ~ 20 の芳香族炭化水素基であり、 $R^{75} \sim R^{78}$  は互いに結合して単環または多環を形成していてもよい。〕

40

前記環状オレフィン系共重合体の示差走査熱量計 (DSC) で測定したガラス転移温度が 100 以上であり、

前記方法が、

遷移金属化合物 (A) と化合物 (B) とを含有するオレフィン重合用触媒の存在下において、オレフィンと、環状非共役ジエンと、環状オレフィンとを共重合させる重合工程を備え、

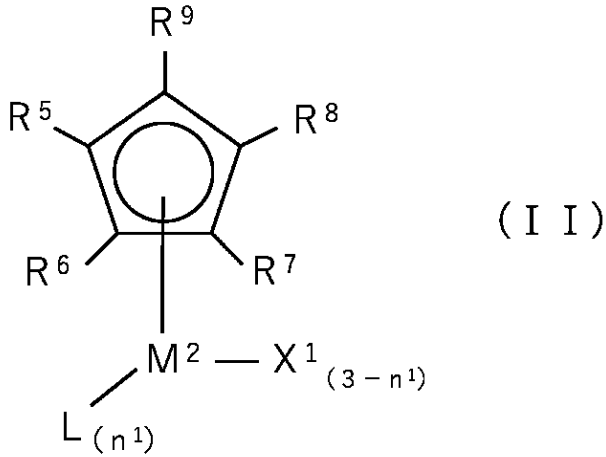
前記遷移金属化合物 (A) は、

下記の式 (II) で示される遷移金属化合物 (A-1)、および

下記の式 (VI) で示される遷移金属化合物 (A-2) からなる群から選択される一種または二種以上を含有し、

50

【化 4】



10

〔前記式 (II) において、

M<sup>2</sup> は、周期律表 4 族の遷移金属原子を示し、n<sup>1</sup> は、1 ~ 3 の整数を示し、

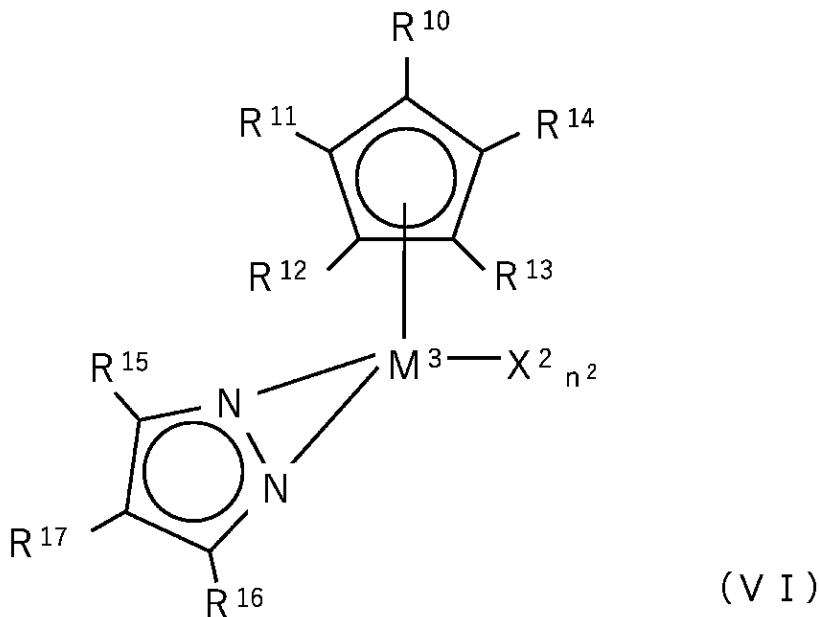
L は、それぞれ独立に、周期律表 15 族の原子が配位原子となる 1 価のアニオン性配位子を示し、

20

X<sup>1</sup> は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、炭化水素基、ハロゲン含有基、酸素含有基、硫黄含有基、窒素含有基、リン含有基、ケイ素含有基、ホウ素含有基およびアルミニウム含有基からなる群、ならびにそれらの置換体からなる群より選択される基または原子を示し、R<sup>5</sup> ~ R<sup>9</sup> は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、炭化水素基、ハロゲン含有基、酸素含有基、硫黄含有基、窒素含有基、リン含有基、ケイ素含有基、ホウ素含有基およびアルミニウム含有基からなる群、ならびにそれらの置換体からなる群より選択される基または原子を示し、R<sup>5</sup> ~ R<sup>9</sup> のうち任意の 2 つまたは 3 つが縮合し環を形成していてもよく、形成される環は共役二重結合を含む芳香族性を有するものでもよい。〕

【化 5】

30



40

〔前記式 (VI) において、

M<sup>3</sup> は、周期律表 4 族の遷移金属原子を示し、n<sup>2</sup> は、1 ~ 4 の整数を示し、

50

$X^2$  は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、炭化水素基、ハロゲン含有基、酸素含有基、硫黄含有基、窒素含有基、リン含有基、ケイ素含有基、ホウ素含有基およびアルミニウム含有基からなる群、ならびにそれらの置換体からなる群より選択される原子または基を示し、

$R^{10} \sim R^{17}$  は、それぞれ独立に、水素原子、ハロゲン原子、炭化水素基、ハロゲン含有基、酸素含有基、硫黄含有基、窒素含有基、リン含有基、ケイ素含有基、ホウ素含有基およびアルミニウム含有基からなる群、ならびにそれらの置換体からなる群より選択される原子または基を示し、 $R^{10} \sim R^{17}$  のうち隣接するもの同士は互いに結合して環を形成していてもよく、形成される環は共役二重結合を含む芳香族性を有するものでもよい。

10

前記化合物 (B) は、

有機金属化合物 (B - 1)、

有機アルミニウムオキシ化合物 (B - 2)、および

前記遷移金属化合物 (A) と反応してイオン対を形成する化合物 (B - 3) からなる群より選択される一種または二種以上を含有することを特徴とする、環状オレフィン系共重合体の製造方法。

【請求項 2】

前記環状オレフィン系共重合体中の繰り返し単位の合計モル数を 100 モル% とした場合に、前記オレフィン由来の繰り返し単位 (A) の含有量が 10 モル% 以上 90 モル% 以下、前記環状非共役ジエン由来の繰り返し単位 (B) の含有量が 1 モル% 以上 40 モル% 以下、および前記環状オレフィン由来の繰り返し単位 (C) の含有量が 1 モル% 以上 50

20

モル% 以下である請求項 1 に記載の製造方法。

【請求項 3】

前記環状オレフィン系共重合体の示差走査熱量計 (DSC) で測定したガラス転移温度が 100 以上 250 以下である、請求項 1 または 2 に記載の製造方法。

【請求項 4】

前記環状非共役ジエン由来の繰り返し単位 (B) を構成する環状非共役ジエンが、5 - ビニル - 2 - ノルボルネンを含む、請求項 1 または 2 に記載の製造方法。

【請求項 5】

前記環状オレフィン由来の構造単位 (C) を構成する環状オレフィンが、テトラシクロ [4.4.0.1<sup>2,5</sup>.1<sup>7,10</sup>] - 3 - ドデセンおよびビシクロ [2.2.1] - 2 - ヘプテンからなる群から選択される少なくとも一種を含む、請求項 1 または 2 に記載の製造方法。

30

【請求項 6】

前記方法が、前記オレフィン重合用触媒を除去する触媒除去工程をさらに備える、請求項 1 または 2 に記載の製造方法。

【請求項 7】

前記環状オレフィン系共重合体の  $^{13}C$  - NMR スペクトルにおいて、

43.8 ppm 以上 45.0 ppm 以下の範囲のシグナルの積分値を  $X_C$ 、

40.3 ppm 以上 41.3 ppm 以下の範囲のシグナルの積分値を  $Y_A$ 、

38.4 ppm 以上 39.9 ppm 以下の範囲のシグナルの積分値を  $X_B$ 、

としたとき、 $(X_B - X_C) / Y_A$  の値が 0.2 以上 2.0 以下である、請求項 1 または 2 に記載の製造方法。

40

【請求項 8】

請求項 1 または 2 に記載の製造方法により得られた環状オレフィン系共重合体。

【請求項 9】

請求項 8 に記載の環状オレフィン系共重合体を架橋して得られる架橋体。

【請求項 10】

請求項 9 に記載の架橋体を含むフィルムまたはシート。

【請求項 11】

50

請求項 10 に記載のフィルムまたはシートを基材に積層した積層体。

【請求項 12】

請求項 9 に記載の架橋体を含む電気絶縁層と、前記電気絶縁層上に設けられた導体層とを含む回路基板。

【請求項 13】

請求項 12 に記載の回路基板を備えた電子機器。

【請求項 14】

請求項 8 に記載の環状オレフィン系共重合体と、シート状繊維基材と、を含むプリプレグ。

【請求項 15】

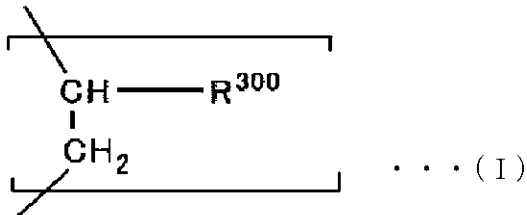
環状オレフィン系共重合体であって、  
前記環状オレフィン系共重合体は、

(A) 下記一般式 (I) で表される 1 種以上のオレフィン由来の繰り返し単位と、

(B) 下記一般式 (III) で表される 1 種以上の環状非共役ジエン由来の繰り返し単位と、

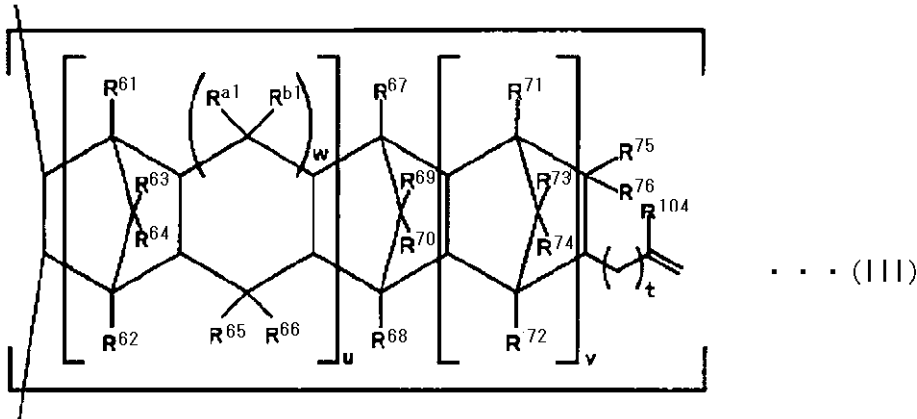
(C) 下記一般式 (V) で表される 1 種以上の環状オレフィン由来の繰り返し単位と、  
を含み、

【化 6】



〔上記一般式 (I) において、 $\text{R}^{300}$  は水素原子または炭素原子数 1 ~ 29 の直鎖状または分岐状の炭化水素基を示す。〕

【化 7】



〔上記一般式 (III) 中、 $u$  は 0 または 1 であり、 $v$  は 0 または正の整数であり、 $w$  は 0 または 1 であり、 $\text{R}^{61} \sim \text{R}^{76}$  ならびに  $\text{R}^{a1}$  および  $\text{R}^{b1}$  は互いに同一でも異なってもよく、水素原子、ハロゲン原子、炭素原子数 1 ~ 20 のアルキル基、炭素原子数 1 ~ 20 のハロゲン化アルキル基、炭素原子数 3 ~ 15 のシクロアルキル基または炭素原子数 6 ~ 20 の芳香族炭化水素基であり、 $\text{R}^{104}$  は水素原子または炭素原子数 1 ~ 10 のアルキル基であり、 $t$  は 0 ~ 10 の正の整数であり、 $\text{R}^{75}$  および  $\text{R}^{76}$  は互いに結合して単環または多環を形成していてもよい。〕

10

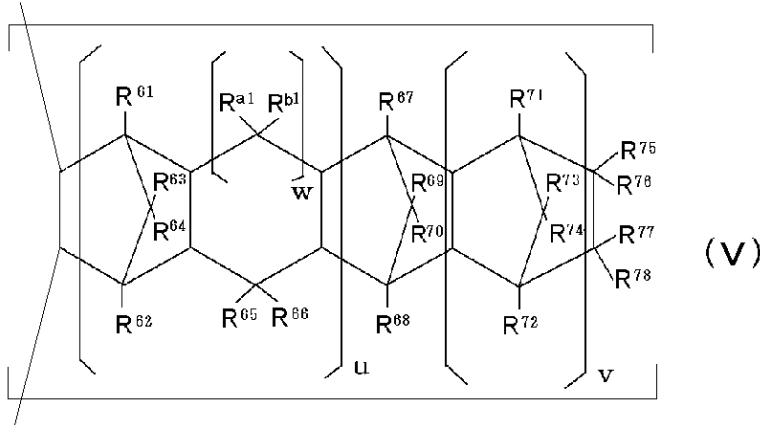
20

30

40

50

## 【化 8】



10

〔上記一般式 (V) 中、 $u$  は 0 または 1 であり、 $v$  は 0 または正の整数であり、 $w$  は 0 または 1 であり、 $R^{61} \sim R^{78}$  ならびに  $R^{a1}$  および  $R^{b1}$  は互いに同一でも異なってもよく、水素原子、ハロゲン原子、炭素原子数 1 ~ 20 のアルキル基、炭素原子数 1 ~ 20 のハロゲン化アルキル基、炭素原子数 3 ~ 15 のシクロアルキル基または炭素原子数 6 ~ 20 の芳香族炭化水素基であり、 $R^{75} \sim R^{78}$  は互いに結合して単環または多環を形成していてもよい。〕

20

前記環状オレフィン系共重合体の示差走査熱量計 (DSC) で測定したガラス転移温度が 100 以上であり、

前記環状オレフィン系共重合体の  $^{13}\text{C}$ -NMR スペクトルにおいて、

43.8 ppm 以上 45.0 ppm 以下の範囲のシグナルの積分値を  $X_C$ 、

40.3 ppm 以上 41.3 ppm 以下の範囲のシグナルの積分値を  $Y_A$ 、

38.4 ppm 以上 39.9 ppm 以下の範囲のシグナルの積分値の合計を  $X_B$

としたとき  $(X_B - X_C) / Y_A$  の値が 0.2 以上 2.0 以下である、環状オレフィン系共重合体。

## 【請求項 16】

前記環状オレフィン系共重合体中の繰り返し単位の合計モル数を 100 モル% とした場合に、前記オレフィン由来の繰り返し単位 (A) の含有量が 10 モル% 以上 90 モル% 以下、前記環状非共役ジエン由来の繰り返し単位 (B) の含有量が 1 モル% 以上 40 モル% 以下、および前記環状オレフィン由来の繰り返し単位 (C) の含有量が 1 モル% 以上 50 モル% 以下である請求項 15 に記載の環状オレフィン系共重合体。

30

## 【請求項 17】

前記環状オレフィン系共重合体の示差走査熱量計 (DSC) で測定したガラス転移温度が 100 以上 250 以下である、請求項 15 または 16 に記載の環状オレフィン系共重合体。

## 【請求項 18】

前記環状非共役ジエン由来の繰り返し単位 (B) を構成する環状非共役ジエンが、5-ビニル-2-ノルボルネンを含む、請求項 15 または 16 に記載の環状オレフィン系共重合体。

40

## 【請求項 19】

前記環状オレフィン由来の構造単位 (C) を構成する環状オレフィンが、テトラシクロ [4.4.0.1<sup>2,5</sup>.1<sup>7,10</sup>] - 3 - ドデセンおよびビシクロ [2.2.1] - 2 - ヘプテンからなる群から選択される少なくとも一種を含む、請求項 15 または 16 に記載の環状オレフィン系共重合体。

## 【請求項 20】

前記オレフィン由来の繰り返し単位 (A) を構成するオレフィンがエチレンを含み、

前記環状非共役ジエン由来の繰り返し単位 (B) を構成する環状非共役ジエンが 5-ビ

50

ニル - 2 - ノルボルネンを含み、

前記環状オレフィン由来の構造単位 ( C ) を構成する環状オレフィンがテトラシクロ [ 4 . 4 . 0 . 1<sup>2</sup> , 5 . 1<sup>7</sup> , 1<sup>0</sup> ] - 3 - ドデセンを含む、請求項 1 5 または 1 6 に記載の環状オレフィン系共重合体。

【請求項 2 1】

請求項 1 5 または 1 6 に記載の環状オレフィン系共重合体を架橋して得られる架橋体。

【請求項 2 2】

請求項 2 1 に記載の架橋体を含むフィルムまたはシート。

【請求項 2 3】

請求項 2 2 に記載のフィルムまたはシートを基材に積層した積層体。

10

【請求項 2 4】

請求項 2 1 に記載の架橋体を含む電気絶縁層と、前記電気絶縁層上に設けられた導体層とを含む回路基板。

【請求項 2 5】

請求項 2 4 に記載の回路基板を備えた電子機器。

【請求項 2 6】

請求項 1 5 または 1 6 に記載の環状オレフィン系共重合体と、シート状繊維基材と、を含むプリプレグ。

20

30

40

50