

【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】平成17年11月17日(2005.11.17)

【公表番号】特表2002-533483(P2002-533483A)

【公表日】平成14年10月8日(2002.10.8)

【出願番号】特願2000-589580(P2000-589580)

【国際特許分類第7版】

C 0 8 F 4/64

C 0 8 F 10/00

// C 0 8 F 2/34

【F I】

C 0 8 F 4/64

C 0 8 F 10/00

C 0 8 F 2/34

【誤訳訂正書】

【提出日】平成16年4月6日(2004.4.6)

【誤訳訂正1】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】発明の名称

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【発明の名称】オレフィン重合触媒組成物、重合プロセス及びそれらからのポリマー

【誤訳訂正2】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】特許請求の範囲

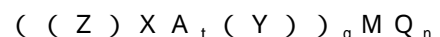
【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】 少なくとも一種の触媒活性剤と下記の内の少なくとも一種とを含むオレフィン重合触媒組成物：

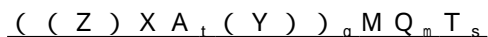
a) 第一触媒化合物及び第二触媒化合物を含む少なくとも二種の異なる遷移金属化合物であって、それらの各々は下記式によって表されるもの：



式中、Mは、元素の周期表の4族から選ぶ金属であり；QはMに結合されかつ各々のQは一価、二価又は三価アニオンであり；X及びYはMに結合され；X及びYは、それぞれ窒素原子及びピリジル基であり；ZはXに結合されかつアリール基であり；tは1であり；Aは、X又はYの内の少なくとも一つに結合されたブリッジング基であり；qは1又は2であり；Qが一価アニオンであるならば、nはMの酸化状態 - qであり、Qが二価アニオンであるならば、nは(Mの酸化状態 - q) / 2であり又はQが三価アニオンであるならば、nは(Mの酸化状態 - q) / 3である；或は

b) a) における式によって表される遷移金属化合物と、アセトン、ベンゾフェノン、メチルエチルケトン、ジエチルケトン、メチルイソブチルケトン、メチルイソプロピルケトン、ジイソプロピルケトン、メチル t - ブチルケトン、アセトフェノン、シクロヘキサノン、シクロペンタノン、ベンズアルデヒド、ピバアルデヒド、エチル n - プロピルケトン、及びエチルイソプロピルケトンからなる群より選ぶ一種又はそれ以上の添加物との生成物；或は

c) 下記式によって表される化合物：



式中、Mは、元素の周期表の4族から選ぶ金属であり；TはMに結合されかつアルコキシド基であり；QはMに結合されかつ各々のQは一価、二価又は三価アニオンであり；X及びYはMに結合され；X及びYは、それぞれ窒素原子及びピリジル基であり；Zはアリール基であり；tは1であり；Aは、X又はYの内の少なくとも一つに結合されたブリッジング基であり；qは1又は2であり；Qが一価アニオンであるならば、mはMの酸化状態 - q - sであり、Qが二価アニオンであるならば、mは(Mの酸化状態 - q - s) / 2であり又はQが三価アニオンであるならば、mは(Mの酸化状態 - q - s) / 3であり、sは1、2又は3であり；触媒活性剤と化合物とを少なくとも15分間反応させており；或は

d) a) において表される一種の化合物とc) において表される一種の化合物との組合せ

。【請求項2】 nが2又は3であり、第二触媒化合物が、1つのQ基がヒドロカルボキシ基、ボロネート又はアミドである他は、第一触媒化合物と同じである請求項1の組成物。

【請求項3】 nが2又は3であり、第二触媒化合物が、1つのQ基がアルコキシド、フェノキシド、アセチルアセトネート、カルボキシレート、シクロペンタジエニル、フルオレニル又はインデニル基である他は、第一触媒化合物と同じである請求項1の組成物。

【請求項4】 nが2又は3であり、第二触媒化合物が、第二触媒の1つのQ基がQ基のヒドロカルボキシ付加物を含む他は、第一触媒化合物と同じである請求項1の組成物。

【請求項5】 ヒドロカルボキシ付加物が、アルコキシド付加物、ボロネート又はアミド付加物、フェノキシド付加物、アセチルアセトネート付加物、又はカルボキシレート付加物である請求項4の組成物。

【請求項6】 各々のQを、独立にボロネート、ハロゲン、水素、炭素原子1～20を有するアルキル、アリール、アルケニル、アルキルアリール、アリールアルキル、ヒドロカルボキシ又はフェノキシラジカル、アミド、ホスフィド、スルフィド、シリルアルキル、ジケトネート、及びカルボキシレートからなる群より選ぶ請求項1の組成物。

【請求項7】 第一触媒化合物が[1 - (2 - ピリジル) N - 1 - メチルエチル][1 - N - 2, 6 - ジイソプロピルフェニルアミド]ジルコニウムトリベンジルであり、第二触媒化合物が[[1 - (2 - ピリジル) N - 1 - メチルエチル] - [1 - N - 2, 6 - ジイソプロピルフェニルアミド]][2 - メチル - 1 - フェニル - 2 - プロポキシ]ジルコニウムジベンジルである請求項1の組成物。

【請求項8】 触媒活性剤が、アルモキサン、非配位アニオン又は改質メチルアルモキサンである請求項1の組成物。

【請求項9】 一種以上のオレフィンを請求項1～8のいずれかの1に記載の触媒組成物に接触させることを含むオレフィンを重合させる方法。

【請求項10】 オレフィンが炭素原子2～30を有するモノマーを一種又はそれ以上含む請求項9の方法。

【請求項11】 オレフィンがエチレンを単独で又はエチレンをプロピレン、ブテン - 1、ペンテン - 1、4 - メチル - ペンテン - 1、ヘキセン - 1、オクテン - 1、デセン - 1、及び3 - メチル - ペンテン - 1の内の一種又はそれ以上と組み合わせて含む請求項9の方法。

【請求項12】 反応装置温度を変えて温度を変える前に生成されるポリマーに比べて生成されるポリマーのMw / Mnの変化を引き起こす請求項9の方法。

【請求項13】 触媒組成物を反応装置の中に導入する前の触媒組成物の温度を変えて温度を変える前に生成されるポリマーに比べて生成されるポリマーのMw / Mnの変化を引き起こす請求項9の方法。

【請求項14】 触媒活性剤対触媒比を変えて比を変える前に生成されるポリマーに比べて生成されるポリマーのMw / Mnの変化を引き起こす請求項9、10又は11の方

法。

【請求項 1 5】 第一触媒対第二触媒の比が 5 : 9 5 ~ 9 5 : 5 である請求項 9、1 0 又は 1 1 の方法。

【請求項 1 6】 更に、容積  $43\text{ m}^3$  ( $1500\text{ ft}^3$ ) 又はそれ以上を有する気相反応装置内でオンラインで反応温度及び / 又は均質に混合した触媒溶液内の触媒比又は水素濃度又は活性剤対遷移金属比、又はこれらの任意の組合せを変えることを含む、ポリマーの分子量分布 (Mw / Mn)、フローインデックス、又は密度を調節する方法を含む請求項 9 の方法。

【請求項 1 7】 請求項 9 ~ 1 6 のいずれか 一に記載の方法 によって製造されるポリマー。

【誤訳訂正 3】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0 0 0 1

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0 0 0 1】

( 技術分野 )

本発明は、活性剤そしてピリジン又はキノリン部分及びそれらの混合物を含有する二座リガンドを含む遷移金属化合物をベースにした触媒を含むオレフィン重合触媒システム (本明細書以降、触媒システムとは触媒組成物を意味する)、そのような触媒システムを使用する重合プロセス並びにそれらから製造されるポリマーに関する。

【誤訳訂正 4】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0 0 0 2

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0 0 0 2】

( 従来技術 )

メタロセンポリオレフィン触媒のきわめて激しい商業化は、非メタロセン均質触媒のデザインにおける広範囲に及ぶ関心に至った。この分野は、新規な非メタロセン触媒が現在入手可能な生成物への一層容易な経路になり得かつまたメタロセン触媒の能力を超える生成物及びプロセス機会ももたらし得ることから、学究的好奇心以上のものである。加えて、所定の非シクロペンタジエニルリガンドは、種々の置換された類似体の合成が相対的に容易であることにより、一層経済的になり得る。

【誤訳訂正 5】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0 0 0 7

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0 0 0 7】

( 発明の概要 )

本発明は、少なくとも一種の活性剤 (以下、活性剤とは、触媒用活性剤を意味する) 及び下記の内的一种を含むオレフィン重合触媒システムに関する :

- a) 下記に I、II、III 又は IV 式によって表わす通りに記載する、ピリジン又はキノリン部分を含有する二座リガンドをベースにした少なくとも二種の遷移金属触媒、
- b) 反応装置に導入する前に、好ましくは少なくとも 15 分間反応させておいた、活性剤と、III 又は IV 式によって表わす通りに記載するもののような、ピリジン又はキノリン部分を含有する二座リガンドをベースにした遷移金属触媒との組合せの生成物、
- c) 添加物と、I 又は II 式によって表わす通りに記載するもののような、ピリジン又はキノリン部分を含有する二座リガンドをベースにした遷移金属触媒との組合せの生成物、

及び / 又は

d) 下記に I 及び I I I 式によって表わす通りに記載する、ピリジン又はキノリン部分を含有する二座リガンドをベースにした二種の遷移金属触媒の組合せ。

【誤訳訂正 6】

【訂正対象書類名】明細書

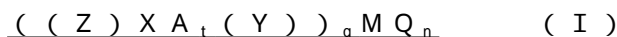
【訂正対象項目名】0 0 1 3

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0 0 1 3】

一実施態様では、ピリジン又はキノリン部分を含有する二座リガンドをベースにした遷移金属化合物は、下記式によって表される：



式中、M は、元素の周期表の 4 族から選ぶ金属であり；Q は M に結合されかつ各々の Q は一価、二価又は三価アニオンであり；X 及び Y は M に結合され；X 及び Y は、それぞれ窒素原子及びピリジル基であり；Z は X に結合されかつアリール基であり；t は 1 であり；A は、X 又は Y の内の少なくとも一つに結合されたブリッジング基であり；q は 1 又は 2 であり；Q が一価アニオンであるならば、n は M の酸化状態 - q であり、Q が二価アニオンであるならば、n は (M の酸化状態 - q) / 2 であり又は Q が三価アニオンであるならば、n は (M の酸化状態 - q) / 3 であり、n は、M の酸化状態に応じて、1 ~ 4 の整数であるのが典型的である。

【誤訳訂正 7】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0 0 1 4

【訂正方法】削除

【訂正の内容】

【誤訳訂正 8】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0 0 2 2

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0 0 2 2】

(I I) 式において、m 及び p は、0 ~ 5 の整数であり、m は、2 であるのが好ましく；Q が一価アニオンであるならば、n は M の酸化状態 - q であり、Q が二価アニオンであるならば、n は (M の酸化状態 - q) / 2 であり又は Q が三価アニオンであるならば、n は (M の酸化状態 - q) / 3 であり、n は、1 ~ 4 の整数であるのが好ましく；q は 1 又は 2 であり、q が 2 である時は、(I I) 式の 2 つの  $\left( (R'_m Z) X A (Y J R''_m) \right)$  は、ブリッジング基を経て互いにブリッジされ、1 4 族元素を含有するブリッジング基であるのが好ましい。

【誤訳訂正 9】

【訂正対象書類名】明細書

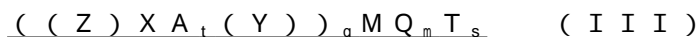
【訂正対象項目名】0 0 2 4

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0 0 2 4】

好適な実施態様では、遷移金属触媒化合物の内の少なくとも一種は、下記式によって表される：



式中、M は、元素の周期表の 4 族から選ぶ金属であり；T は M に結合されかつアルコキシド基であり；Q は M に結合されかつ各々の Q は一価、二価又は三価アニオンであり；X 及び Y は M に結合され；X 及び Y は、それぞれ窒素原子及びピリジル基であり；Z はアリー

ル基であり； $t$  は 1 であり； $A$  は、 $X$  又は  $Y$  の内の少なくとも一つに結合されたブリッジング基であり； $q$  は 1 又は 2 であり； $Q$  が一価アニオンであるならば、 $m$  は  $M$  の酸化状態 -  $q$  -  $s$  であり、 $Q$  が二価アニオンであるならば、 $m$  は  $(M \text{ の酸化状態} - q - s) / 2$  であり又は  $Q$  が三価アニオンであるならば、 $m$  は  $(M \text{ の酸化状態} - q - s) / 3$  であり、 $m$  は、1 ~ 3 の整数であり、 $s$  は 1、2 又は 3 であり；触媒活性剤と化合物とを少なくとも 15 分間反応させている。

【誤訳訂正 10】

【訂正対象書類名】明細書

【訂正対象項目名】0033

【訂正方法】変更

【訂正の内容】

【0033】

(IV) 式において、 $m$  及び  $p$  は、0 ~ 5 の整数であり、 $m$  は、2 であるのが好ましく； $s$  は 1 ~ 3 の整数であり； $q$  は 1 又は 2 であり； $Q$  が一価アニオンであるならば、 $n$  は  $M$  の酸化状態 -  $q$  -  $s$  であり、 $Q$  が二価アニオンであるならば、 $n$  は  $(M \text{ の酸化状態} - q - s) / 2$  であり又は  $Q$  が三価アニオンであるならば、 $n$  は  $(M \text{ の酸化状態} - q - s) / 3$  であり、 $q$  が 2 である場合には、(IV) 式の 2 つの  $(R'_m Z) X A (Y_j R''_m)$  は、ブリッジング基を経て互いにブリッジされ、14 族元素を含有するブリッジング基であるのが好ましい。