



(19)  
Bundesrepublik Deutschland  
Deutsches Patent- und Markenamt

(10) **DE 699 08 840 T2 2004.05.06**

(12) **Übersetzung der europäischen Patentschrift**

(97) **EP 0 942 010 B1**

(21) Deutsches Aktenzeichen: **699 08 840.2**

(96) Europäisches Aktenzeichen: **99 103 987.6**

(96) Europäischer Anmeldetag: **11.03.1999**

(97) Erstveröffentlichung durch das EPA: **15.09.1999**

(97) Veröffentlichungstag

der Patenterteilung beim EPA: **18.06.2003**

(47) Veröffentlichungstag im Patentblatt: **06.05.2004**

(51) Int Cl.7: **C08F 10/02**

**C07F 15/00, C07F 15/04, C07F 15/06**

(30) Unionspriorität:  
**6330598 13.03.1998 JP**

(73) Patentinhaber:  
**Sumitomo Chemical Co., Ltd., Osaka, JP**

(74) Vertreter:  
**Vossius & Partner, 81675 München**

(84) Benannte Vertragsstaaten:  
**DE, FR, GB, IT, NL**

(72) Erfinder:  
**Hirahata, Wataru, Ichihara-shi, Chiba, JP; Itagaki, Makoto, Takatsuki-shi, Osaka, JP; Nomura, Kotohiro, 8916-5 Takayama-cho, Nara, JP**

(54) Bezeichnung: **Übergangsmetallverbindungen, Katalysatorkomponenten und Katalysatoren für die Olefinpolymerisation und ein Verfahren zur Herstellung von Polyolefinen**

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 Übergangsmetallverbindung, die als Katalysatorkomponente zur Olefinpolymerisation geeignet ist, einen Katalysator zur Olefinpolymerisation und ein Verfahren zur Herstellung eines Olefinpolymers. Insbesondere betrifft die vorliegende Erfindung eine neue Übergangsmetallverbindung, die leicht synthetisiert werden kann, eine Katalysatorkomponente zur Olefinpolymerisation, die die Übergangsmetallverbindung umfasst, einen Katalysator zur Olefinpolymerisation, der hohe Polymerisationsaktivität bei der Polymerisation eines Olefins unter Verwendung der Übergangsmetallverbindung zeigt, und ein Verfahren zur effizienten Herstellung eines olefinischen Homopolymers und Copolymers unter Verwendung der Katalysatorkomponente zur Olefinpolymerisation.

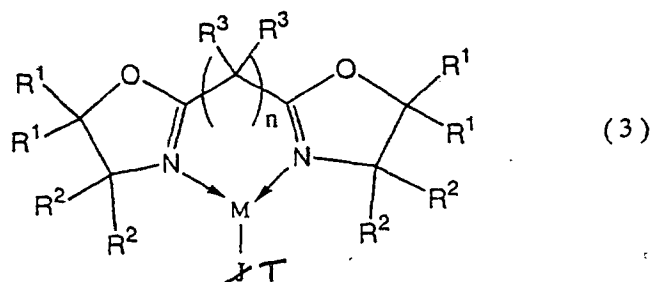
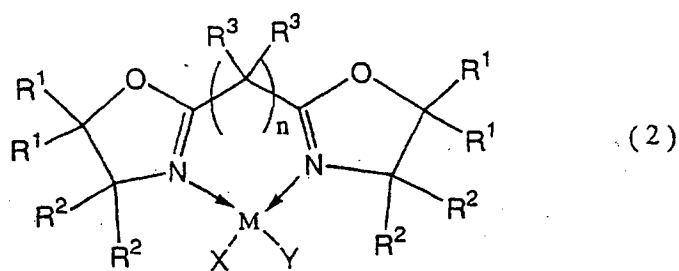
[0002] Berichte, die die Polymerisation von Olefinen, wie Ethylen und Propylen, unter Verwendung einer Nickel- und Palladiumverbindung als Übergangsmetallkomponente eines Katalysators betreffen, sind weitverbreitet bekannt. Zum Beispiel wird über ein Verfahren unter Verwendung eines Komplexes, der eine Phosphoranverbindung als Ligand enthält, in 1) U. Klabunbe, S. D. Ittel, *Journal of Molecular Catalysis*, Band 41 (1987), 123; U. Klabunbe, R. Mulhaupt, A. H. Janowicz, J. Calabrese und S. D. Ittel, *Journal of Polymer Science, A, Polymer Chemistry*, Band 25 (1987), 1989; U. Klabunbe, T. H. Tulip, D. C. Roe und S. D. Ittel, *Journal of Organometallic Chemistry*, Band 334 (1987), 141 und 2) W. Keim, R. Appel, A. Storeck, C. Kruger und R. Goddard, *Angewandte Chemie International Edition in English*, Band 26 (1987), 1012 oder 3) H. Nakazawa, S. Igai und K. Imaoka, japanische Patentveröffentlichung (nicht geprüft) Hei 8-143623 berichtet. Über ein Verfahren unter Verwendung eines Nickelkomplexes mit einem N-O-Liganden des Chelattyps wird in 4) S. Y. Desjardins, K. J. Cavell, J. L. Hoare, B. W. Skelton, A. N. Sobolev, A. H. White und W. Keim, *Journal of Organometallic Chemistry*, Band 544 (1997), 163 berichtet, und über ein Verfahren unter Verwendung eines Komplexes mit einem Liganden des Diimintyps, hergestellt durch Glyoxal, einem Diketon und Acenaphthenchinon mit verschiedenen Arten von substituierten Anilinverbindungen in 5) L. K. Johnson, C. M. Killian und M. Brookhart, *Journal of American Chemical Society*, Band 117 (1995), 6414; L. K. Johnson, S. Mecking und M. Brookhart, *Journal of American Chemical Society*, Band 118 (1996), 267; C. M. Killian, D. J. Tempel, L. K. Johnson und M. Brookhart, *Journal of American Chemical Society*, Band 118 (1996), 11664 und WO 96/23010.

[0003] WO 96/23010 beschreibt in Beispiel 205, dass ein Oligomer durch Inkontaktbringen von Ethylen mit einem Katalysator unter Verwendung eines Komplexes von 2,2'-Isopropylidenbis[(4s)-4-methyl-2-oxazolin]nickelbromid und Methylaluminoxan erhalten wird.

[0004] Jedoch waren diese Katalysatoren nicht immer zufriedenstellend im Hinblick auf die Polymerisationsaktivität in der Olefinpolymerisation.

[0005] Eine Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist, eine neue Übergangsmetallverbindung, die leicht synthetisiert werden kann und als Katalysatorkomponente zur Olefinpolymerisation geeignet ist, eine Katalysatorkomponente zur Olefinpolymerisation, die die Übergangsmetallverbindung umfasst, einen Katalysator zur Olefinpolymerisation, der hohe Polymerisationsaktivität bei der Polymerisation eines Olefins unter Verwendung der Übergangsmetallverbindung zeigt, und ein Verfahren zur effizienten Herstellung eines Olefinhomopolymers und -copolymers unter Verwendung der Katalysatorkomponente zur Olefinpolymerisation bereitzustellen.

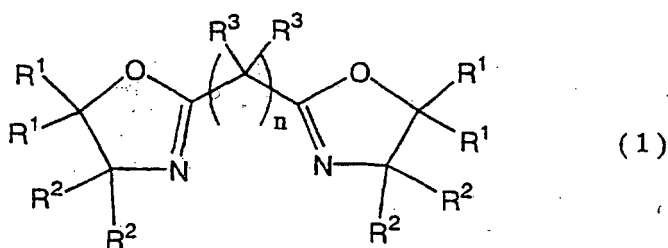
[0006] Die vorliegende Erfindung betrifft eine Nickelverbindung der folgenden Formel (2) oder (3) und einen Katalysator zur Olefinpolymerisation unter Verwendung einer Übergangsmetallverbindung der Formel (2) oder (3) und (C) und/oder (D), die nachstehend beschrieben sind, einen Katalysator zur Olefinpolymerisation unter Verwendung von (A), (B) und (C) und/oder (D), die nachstehend beschrieben sind, und ein Verfahren zur Herstellung eines Olefinpolymers, wobei die Olefine homopolymerisiert werden oder die Olefine mit anderen Olefinen und/oder einer anderen polymerisierbaren ungesättigten Verbindung copolymerisiert werden, wobei einer der Katalysatoren zur Olefinpolymerisation verwendet wird.



[0007] In den Formeln (2) und (3) stellt M ein Nickel-, ein Palladium-, ein Kobalt-, ein Rhodium- oder ein Rutheniumatom dar und stellt T eine koordinativ gebundene Verbindung dar.

[0008] N stellt ein Stickstoffatom dar und O stellt ein Sauerstoffatom dar. Jeder der Reste R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> und R<sup>3</sup> stellt unabhängig ein Wasserstoffatom, ein Halogenatom, einen Alkyl-, einen Aryl-, einen Aralkyl-, einen Alkoxy-, einen Aryloxy-, einen Aralkyloxyrest oder eine Cyanogruppe dar, wobei alle Reste R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> und R<sup>3</sup> gleich oder unterschiedlich und gegebenenfalls verknüpft sein können, um einen Ring zu bilden; mit der Maßgabe, dass nicht alle Reste R<sup>1</sup> gleichzeitig Wasserstoffatome sein können. Das Symbol "n" stellt eine ganze Zahl dar, welche die Bedingung 0 ≤ n ≤ 5 erfüllt. Jeder der Reste X und Y stellt unabhängig ein Wasserstoffatom, ein Halogenatom, einen Alkyl-, einen Aryl-, einen Aralkyl-, einen Alkoxy-, einen Aryloxy-, einen Aralkyloxy-, einen Sulfonyloxy- oder einen substituierten Silylrest dar. X und Y können gegebenenfalls verknüpft sein, um einen Ring zu bilden.

(A): Eine Bisoxazolinverbindung entsprechend der nachstehend beschriebenen allgemeinen Formel (1)



N stellt ein Stickstoffatom und O ein Sauerstoffatom dar. Jeder der Reste R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> und R<sup>3</sup> stellt unabhängig ein Wasserstoffatom, ein Halogenatom, einen Alkyl-, einen Aryl-, einen Aralkyl-, einen Alkoxy-, einen Aryloxy-, einen Aralkyloxyrest oder eine Cyanogruppe dar, wobei alle Reste R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> und R<sup>3</sup> gleich oder unterschiedlich und gegebenenfalls verknüpft sein können, um einen Ring zu bilden; mit der Maßgabe, dass nicht alle Reste R<sup>1</sup> gleichzeitig Wasserstoffatome sein können. Das Symbol "n" stellt eine ganze Zahl dar, welche die Bedingung 0 ≤ n ≤ 5 erfüllt.

(B) eine Nickel-, Palladium-, Kobalt-, Rhodium- oder Rutheniumverbindung.

(C) eine oder mehrere Aluminiumverbindungen, ausgewählt aus (C1)–(C3), wie nachstehend beschrieben:

(C1): eine Organoaluminiumverbindung, dargestellt durch die allgemeine Formel E<sup>1</sup><sub>a</sub>AlZ<sub>3-a</sub>,

s(C2): ein cyclisches Aluminoxan, mit einer Struktur der allgemeinen Formel {-Al(E<sup>2</sup>)-O-}<sub>b</sub>,

(C3): ein lineares Aluminoxan, mit einer Struktur der allgemeinen Formel E<sup>3</sup> {-Al(E<sup>3</sup>)-O-}<sub>c</sub>AlE<sup>3</sup><sub>2</sub>,

(wobei jeder der Reste E<sup>1</sup>, E<sup>2</sup> und E<sup>3</sup> ein Kohlenwasserstoffrest ist, und alle Reste E<sup>1</sup>, E<sup>2</sup> und E<sup>3</sup> gleich oder unterschiedlich sein können; Z ein Wasserstoffatom oder ein Halogenatom darstellt und alle Reste Z gleich oder unterschiedlich sein können. Das Symbol "a" stellte eine Zahl dar, welche die Bedingung 0 < a ≤ 3 erfüllt, b stellt eine Zahl von 2 oder mehr dar und c stellt eine ganze Zahl von 1 oder mehr dar.)

(D) eine Borverbindung gemäß (D1)–(D3) wie nachstehend beschrieben:

(D1): eine Borverbindung der allgemeinen Formel BQ<sup>1</sup>Q<sup>2</sup>Q<sup>3</sup>,

(D2): eine Borverbindung der allgemeinen Formel G<sup>+</sup>(BQ<sup>1</sup>Q<sup>2</sup>Q<sup>3</sup>Q<sup>4</sup>)<sup>-</sup>,

(D3): eine Borverbindung entsprechend der allgemeinen Formel (L-H)<sup>+</sup>(BQ<sup>1</sup>Q<sup>2</sup>Q<sup>3</sup>Q<sup>4</sup>)<sup>-</sup>

(wobei B ein Boratom im dreiwertigen Zustand ist, Q<sup>1</sup>, Q<sup>2</sup>, Q<sup>3</sup> bzw. Q<sup>4</sup> ein Halogenatom, einen Alkyl-, einen halogenierten Alkyl-, einen substituierten Silyl-, einen Alkoxy- oder einen disubstituierten Aminorest darstellen und sie gleich oder unterschiedlich sein können. G<sup>+</sup> ist ein anorganisches oder organisches Kation. L stellt eine neutrale Lewisbase dar und (L-H)<sup>+</sup> stellt eine Brønstedsäure dar).

[0009] **Fig. 1** ist ein Fließdiagramm, das das Verständnis der vorliegenden Erfindung unterstützen soll. Das Fließdiagramm ist ein veranschaulichendes Beispiel der Durchführung des Verfahrens der vorliegenden Erfindung, und die vorliegende Erfindung ist nicht darauf beschränkt.

[0010] Die erfindungsgemäße Nickelverbindung der vorliegenden Erfindung ist die Verbindung der vorstehend aufgeführten allgemeinen Formel (2) oder (3), in der M ein Nickelatom ist.

[0011] Die zur Polymerisation von Olefinen in der vorliegenden Erfindung verwendete Übergangsmetallverbindung ist die Übergangsmetallverbindung der vorstehend aufgeführten allgemeinen Formel (2) oder (3).

[0012] M in der vorstehend aufgeführten allgemeinen Formel (2) oder (3) stellt ein Nickel-, ein Palladium-, ein Kobalt-, ein Rhodium- oder ein Rutheniumatom dar, und ein Nickel- oder ein Palladiumatom ist bevorzugt. Insbesondere ist ein Nickelatom bevorzugt.

[0013] T in der vorstehend aufgeführten allgemeinen Formel (3) stellt eine koordinativ gebundene Verbindung und eine Verbindung dar, die in der Lage ist, mit dem Übergangsmetallatom M eine koordinative Bindung einzugehen. Beispiele eines solchen T schließen Olefinverbindungen, Dienverbindungen, Nitrilverbindungen, Esterverbindungen und Etherverbindungen ein.

[0014] Speziellere Beispiele schließen Olefinverbindungen, wie Ethylen, Propylen, Buten-1, Penten-1, Hexen-1, Hepten-1, Octen-1, Nonen-1 und Decen-1 und ein Gemisch dieser Isomere, Cycloalkenverbindungen, wie Cyclopenten, Cyclohexen und Norbornen, Dienverbindungen, wie Butadien, Isopren, 2,3-Dimethyl-1,3-butadien, Norbornadien, Cyclopentadien und Cyclooctadien und ein Gemisch dieser Isomere, Nitrilverbindungen, wie Acetonitril und Benzonitril,  $\alpha,\beta$ -ungesättigte Nitrilverbindungen, wie Acrylnitril, Propionitril, Dicyanoethylen und Tetracyanoethylen, Esterverbindungen, wie Methylacrylat und verschiedene Acrylsäureesterverbindungen, in denen eine Methylgruppe in z. B. eine Ethyl-, n-Propyl-, Isopropyl-, Isobutyl- und tert-Butylgruppe geändert ist, Methylmethacrylat und verschiedene Methacrylsäureesterverbindungen, in denen eine Methylgruppe in z. B. eine Ethyl-, n-Propyl-, Isopropyl-, Isobutyl-, tert-Butylgruppe geändert ist, Etherverbindungen, wie Tetrahydrofuran, Diethylether und Dimethoxyethan, ein.

[0015] Insbesondere sind koordinativ gebundene Verbindungen mit  $\pi$ -Elektronen als T in der vorliegenden Erfindung bevorzugt, koordinativ gebundene Verbindungen mit mindestens einer olefinischen Doppelbindung sind stärker bevorzugt und unter ihnen Dienverbindungen, wie 1,5-Cyclooctadien und 2,3-Dimethyl-1,3-butadien zum Stabilisieren z. B. des hergestellten nullwertigen Nickelkomplexes wirksam.

[0016] Jeder der Reste R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> und R<sup>3</sup> in der vorstehend aufgeführten allgemeinen Formel (2) oder (3) stellt unabhängig ein Wasserstoffatom, ein Halogenatom, einen Alkyl-, einen Aryl-, einen Aralkyl-, einen Alkoxy-, einen Aryloxy-, einen Aralkyloxyrest oder eine Cyanogruppe dar, wobei alle Reste R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> und R<sup>3</sup> gleich oder unterschiedlich und gegebenenfalls verknüpft sein können, um einen Ring zu bilden; mit der Maßgabe, dass nicht alle Reste R<sup>1</sup> gleichzeitig Wasserstoffatome sein können.

[0017] Spezielle Beispiele der Halogenatome schließen ein Fluor-, Chlor-, Brom- und Jodatome ein.

[0018] Ein Alkylrest mit 1 bis 20 Kohlenstoffatomen ist als Alkylrest von R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> oder R<sup>3</sup> bevorzugt und Beispiele schließen eine Methyl-, Ethyl-, n-Propyl-, Isopropyl-, n-Butyl-, Isobutyl-, sec-Butyl-, tert-Butyl-, n-Pentyl-, Neopentyl-, Amyl-, n-Hexyl-, n-Octyl-, n-Decyl-, n-Dodecyl-, n-Pentadecyl- und n-Eicosylgruppe ein, und eine Methyl-, Ethyl-, Isopropyl-, tert-Butyl- oder Amylgruppe ist stärker bevorzugt.

[0019] Jeder dieser Alkylreste kann mit einem Halogenatom, wie einem Fluor-, Chlor-, Brom- oder Jodatome, substituiert sein. Beispiele des Alkylrests mit 1 bis 20 Kohlenstoffatomen, der mit einem Halogenatom substituiert ist, schließen eine Fluormethyl-, Difluormethyl-, Trifluormethyl-, Chlormethyl-, Dichlormethyl-, Trichlormethyl-, Brommethyl-, Dibrommethyl-, Tribrommethyl-, Jodmethyl-, Dijodmethyl-, Trijodmethyl-, Florethyl-, Difluorethyl-, Trifluorethyl-, Tetrafluorethyl-, Pentafluorethyl-, Chlorethyl-, Dichlorethyl-, Trichlorethyl-, Tetrachlorethyl-, Pentachlorethyl-, Brommethyl-, Dibrommethyl-, Tribrommethyl-, Tetrabrommethyl-, Pentabrommethyl-, Perfluorpropyl-, Perfluorbutyl-, Perfluorpropyl-, Perfluorhexyl-, Perfluoroctyl-, Perfluordodecyl-, Perfluorpentadecyl-, Perfluoreicosyl-, Perchlorpropyl-, Perchlorbutyl-, Perchlorpentyl-, Perchlorhexyl-, Perchloroctyl-, Perchlorododecyl-, Perchlorpentadecyl-, Perchloroicosyl-, Perbrompropyl-, Perbrombutyl-, Perbrompentyl-, Perbromhexyl-, Perbromoctyl-, Perbromdodecyl-, Perbrompentadecyl- und Perbromeicosylgruppe ein.

[0020] Ferner kann jeder dieser Alkylreste teilweise mit einem Alkoxyrest, wie einer Methoxy- oder einer Ethoxygruppe, einem Aryloxyrest, wie einer Phenoxygruppe, oder einem Aralkyloxyrest, wie einer Benzyloxygruppe, substituiert sein.

[0021] Ein Arylrest mit 6 bis 20 Kohlenstoffatomen ist als Arylrest von R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> oder R<sup>3</sup> bevorzugt und Beispiele schließen eine Phenyl-, 2-Tolyl-, 3-Tolyl-, 4-Tolyl-, 2,3-Xylyl-, 2,4-Xylyl-, 2,5-Xylyl-, 2,6-Xylyl-, 3,4-Xylyl-, 3,5-Xylyl-, 2,3,4-Trimethylphenyl-, 2,3,5-Trimethylphenyl-, 2,3,6-Trimethylphenyl-, 2,4,6-Trimethylphenyl-, 3,4,5-Trimethylphenyl-, 2,3,4,5-Tetramethylphenyl-, 2,3,4,6-Tetramethylphenyl-, 2,3,5,6-Tetramethylphenyl-, Pentame-

thylphenyl-, Etylphenyl-, n-Propylphenyl-, Isopropylphenyl-, n-Butylphenyl-, sec-Butylphenyl-, tert-Butylphenyl-, n-Pentylphenyl-, Neopentylphenyl-, n-Hexylphenyl-, n-Octylphenyl-, n-Decylphenyl-, n-Dodecylphenyl-, n-Tetradecylphenyl-, Naphthyl- und Anthracenylgruppe ein, und eine Phenylgruppe ist stärker bevorzugt.

[0022] Jeder dieser Arylreste kann teilweise mit einem Halogenatom, wie einem Fluor-, Chlor-, Brom- oder Jodat, einem Alkoxyrest, wie einer Methoxy- oder Ethoxygruppe, einem Aryloxyrest, wie einer Phenoxygruppe, oder einem Aralkyloxyrest, wie einer Benzyloxygruppe, substituiert sein.

[0023] Ein Aralkylrest mit 7 bis 20 Kohlenstoffatomen ist als Aralkylrest von R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> oder R<sup>3</sup> bevorzugt und Beispiele schließen eine Benzyl-, (2-Methylphenyl)methyl-, (3-Methylphenyl)methyl-, (4-Methylphenyl)methyl-, (2,3-Dimethylphenyl)methyl-, (2,4-Dimethylphenyl)methyl-, (2,5-Dimethylphenyl)methyl-, (2,6-Dimethylphenyl)methyl-, (3,4-Dimethylphenyl)methyl-, (4,6-Dimethylphenyl)methyl-, (2,3,4-Trimethylphenyl)methyl-, (2,3,5-Trimethylphenyl)methyl-, (2,3,6-Trimethylphenyl)methyl-, (3,4,5-Trimethylphenyl)methyl-, (2,4,6-Trimethylphenyl)methyl-, (2,3,4,5-Tetramethylphenyl)methyl-, (2,3,4,6-Tetramethylphenyl)methyl-, (2,3,5,6-Tetramethylphenyl)methyl-, (Pentamethylphenyl)methyl-, (Etylphenyl)methyl-, (n-Propylphenyl)methyl-, (Isopropylphenyl)methyl-, (n-Butylphenyl)methyl-, (sec-Butylphenyl)methyl-, (tert-Butylphenyl)methyl-, (n-Pentylphenyl)methyl-, (Neopentylphenyl)methyl-, (n-Hexylphenyl)methyl-, (n-Octylphenyl)methyl-, (n-Decylphenyl)methyl-, (n-Dodecylphenyl)methyl-, (n-Tetradecylphenyl)methyl-, Naphthylmethyl- und Anthracenylmethylgruppe ein, und eine Benzylgruppe ist stärker bevorzugt.

[0024] Jeder dieser Aralkylreste kann teilweise mit einem Halogenatom, wie einem Fluor-, Chlor-, Brom- oder Jodat, einem Alkoxyrest, wie einer Methoxy- oder Ethoxygruppe, einem Aryloxyrest, wie einer Phenoxygruppe, oder einem Aralkyloxyrest, wie einer Benzyloxygruppe, substituiert sein.

[0025] Ein Alkoxyrest mit 1 bis 20 Kohlenstoffatomen ist als Alkoxyrest von R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> oder R<sup>3</sup> bevorzugt, und Beispiele schließen eine Methoxy-, Ethoxy-, n-Propoxy-, Isopropoxy-, n-Butoxy-, sec-Butoxy-, tert-Butoxy-, n-Pentoxy-, Neopentoxy-, n-Hexoxy-, n-Octoxy-, n-Dodecoxy-, n-Pentadecoxy- und n-Eicosoxygruppe ein, und eine Methoxy-, Ethoxy- oder tert-Butoxygruppe ist stärker bevorzugt.

[0026] Jeder dieser Alkoxyreste kann teilweise mit einem Halogenatom, wie einem Fluor-, Chlor-, Brom- oder Jodat, einem Alkoxyrest, wie einer Methoxy- oder Ethoxygruppe, einem Aryloxyrest, wie einer Phenoxygruppe, oder einem Aralkyloxyrest, wie einer Benzyloxygruppe, substituiert sein.

[0027] Ein Aryloxyrest mit 6 bis 20 Kohlenstoffatomen ist als Aryloxyrest von R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> oder R<sup>3</sup> bevorzugt, und Beispiele schließen eine Phenoxy-, 2-Methylphenoxy-, 3-Methylphenoxy-, 4-Methylphenoxy-, 2,3-Dimethylphenoxy-, 2,4-Dimethylphenoxy-, 2,5-Dimethylphenoxy-, 2,6-Dimethylphenoxy-, 3,4-Dimethylphenoxy-, 3,5-Dimethylphenoxy-, 2,3,4-Trimethylphenoxy-, 2,3,5-Trimethylphenoxy-, 2,3,6-Trimethylphenoxy-, 2,4,5-Trimethylphenoxy-, 2,4,6-Trimethylphenoxy-, 3,4,5-Trimethylphenoxy-, 2,3,4,5-Tetramethylphenoxy-, 2,3,4,6-Tetramethylphenoxy-, 2,3,5,6-Tetramethylphenoxy-, Pentamethylphenoxy-, Etylphenoxy-, n-Propylphenoxy-, Isopropylphenoxy-, n-Butylphenoxy-, sec-Butylphenoxy-, tert-Butylphenoxy-, n-Hexylphenoxy-, n-Octylphenoxy-, n-Decylphenoxy-, n-Tetradecylphenoxy-, Naphthoxy- und Anthracenoxygruppe ein.

[0028] Jeder dieser Aryloxyreste kann teilweise mit einem Halogenatom, wie einem Fluor-, Chlor-, Brom- oder Jodat, einem Alkoxyrest, wie einer Methoxy- oder Ethoxygruppe, einem Aryloxyrest, wie einer Phenoxygruppe, oder einem Aralkyloxyrest, wie einer Benzyloxygruppe, substituiert sein.

[0029] Ein Aralkyloxyrest mit 7 bis 20 Kohlenstoffatomen ist als Aralkyloxyrest von R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> oder R<sup>3</sup> bevorzugt und Beispiele schließen eine Benzyloxy-, (2-Methylphenyl)methoxy-, (3-Methylphenyl)methoxy-, (4-Methylphenyl)methoxy-, (2,3-Dimethylphenyl)methoxy-, (2,4-Dimethylphenyl)methoxy-, (2,5-Dimethylphenyl)methoxy-, (2,6-Dimethylphenyl)methoxy-, (3,4-Dimethylphenyl)methoxy-, (3,5-Dimethylphenyl)methoxy-, (2,3,4-Trimethylphenyl)methoxy-, (2,3,5-Trimethylphenyl)methoxy-, (2,3,6-Trimethylphenyl)methoxy-, (2,4,5-Trimethylphenyl)methoxy-, (2,4,6-Trimethylphenyl)methoxy-, (3,4,5-Trimethylphenyl)methoxy-, (2,3,4,5-Tetramethylphenyl)methoxy-, (2,3,4,6-Tetramethylphenyl)methoxy-, (2,3,5,6-Tetramethylphenyl)methoxy-, (Pentamethylphenyl)methoxy-, (Etylphenyl)methoxy-, (n-Propylphenyl)methoxy-, (Isopropylphenyl)methoxy-, (n-Butylphenyl)methoxy-, (sec-Butylphenyl)methoxy-, (tert-Butylphenyl)methoxy-, (n-Hexylphenyl)methoxy-, (n-Octylphenyl)methoxy-, (n-Decylphenyl)methoxy-, (n-Tetradecylphenyl)methoxy-, Naphthylmethoxy- und Anthracenylmethoxygruppe ein, und eine Benzyloxygruppe ist stärker bevorzugt.

[0030] Jeder dieser Aralkyloxyreste kann teilweise mit einem Halogenatom, wie einem Fluor-, Chlor-, Brom- oder Jodat, einem Alkoxyrest, wie einer Methoxy- oder Ethoxygruppe, einem Aryloxyrest, wie einer Phenoxygruppe, oder einem Aralkyloxyrest, wie einer Benzyloxygruppe, substituiert sein.

[0031] Ein Alkylrest, ein Arylrest oder ein Aralkylrest ist als R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> oder R<sup>3</sup> bevorzugt und insbesondere ist ein Alkylrest oder Arylrest als R<sup>1</sup> bevorzugt. Eine Methyl- oder Phenylgruppe ist als R<sup>1</sup> stärker bevorzugt.

[0032] Das Symbol "n" in der vorstehend aufgeführten allgemeinen Formel (2) oder (3) stellt eine ganze Zahl dar, die die Bedingung  $0 \leq n \leq 5$  erfüllt, n ist vorzugsweise eine ganze Zahl, die die Bedingung  $0 \leq n \leq 2$  erfüllt, und insbesondere ist n vorzugsweise 1.

[0033] X und Y in der vorstehend aufgeführten allgemeinen Formel (2) stellen jeweils unabhängig ein Wasserstoffatom, ein Halogenatom, einen Alkyl-, einen Aryl-, einen Aralkyl-, einen Alkoxy-, einen Aryloxy-, einen Aralkyloxy-, einen Sulfonyloxy- oder einen substituierten Silylrest dar. X und Y können gegebenenfalls ver-

knüpft sein, um einen Ring zu bilden.

[0034] Ein Halogenatom, ein Alkyl-, ein Aryl-, ein Aralkyl-, ein Alkoxy-, ein Aryloxy- oder ein Aralkyloxyrest für X oder Y weist jeweils die gleiche Bedeutung wie für die vorstehend aufgeführten Reste  $R^1$ ,  $R^2$  oder  $R^3$  auf.

[0035] Der Sulfonyloxyrest für X oder Y stellt eine Verbindung der allgemeinen Formel  $R^5SO_3-$  dar, und eine Sulfonyloxygruppe mit 1 bis 24 Kohlenstoffatomen ist bevorzugt. Insbesondere schließt er einen Rest, in dem  $R^5$  ein Alkylrest ist, wie eine Methansulfonyloxy-, Ethansulfonyloxy- oder Dodecansulfonyloxygruppe, einen Rest, der teilweise mit einem Halogenatom substituiert ist, wie eine Trifluormethansulfonyloxygruppe, und einen Rest ein, in dem  $R^5$  ein Arylrest ist, wie eine p-Toluolsulfonyloxygruppe.

[0036] Der substituierte Silylrest für X oder Y ist ein Silylrest, der mit einem Kohlenwasserstoffrest substituiert ist, wobei Beispiele des Kohlenwasserstoffrests Alkylreste mit 1 bis 10 Kohlenstoffatomen, wie eine Methyl-, Ethyl-, n-Propyl-, Isopropyl-, n-Butyl-, sec-Butyl-, tert-Butyl-, Isobutyl-, n-Pentyl-, n-Hexyl- und Cyclohexylgruppe, und Arylreste, wie eine Phenylgruppe, einschließen.

[0037] Beispiele eines solchen substituierten Silylrests mit 1 bis 20 Kohlenstoffatomen schließen monosubstituierte Silylreste mit 1 bis 20 Kohlenstoffatomen, wie eine Methylsilyl-, Ethylsilyl- und Phenylsilylgruppe, disubstituierte Silylreste mit 2 bis 20 Kohlenstoffatomen, wie eine Dimethylsilyl-, Diethylsilyl- und Diphenylsilylgruppe, trisubstituierte Silylreste mit 3 bis 20 Kohlenstoffatomen, wie eine Trimethylsilyl-, Triethylsilyl-, Tri-n-propylsilyl-, Triisopropylsilyl-, Tri-n-butylsilyl-, Tri-sec-butylsilyl-, Tri-tert-butylsilyl-, Triisobutylsilyl-, tert-Butyldimethylsilyl-, Tri-n-pentylsilyl-, Tri-n-hexylsilyl-, Tricyclohexylsilyl- und Triphenylsilylgruppe, ein, und eine Trimethylsilyl-, tert-Butyldimethylsilyl- oder Triphenylsilylgruppe ist bevorzugt.

[0038] Der Kohlenwasserstoffrest von jedem dieser substituierten Silylreste kann teilweise mit einem Halogenatom, wie einem Fluor-, Chlor-, Brom- oder Jodatome, einem Alkoxyrest, wie einer Methoxy- oder Ethoxygruppe, einem Aryloxyrest, wie einer Phenoxygruppe, oder einem Aralkyloxyrest, wie einer Benzyloxygruppe, substituiert sein.

[0039] Ein Halogenatom, ein Alkylrest oder ein Aralkylrest ist als X oder Y in der allgemeinen Formel (2) bevorzugt und ein Bromatom, eine Methylgruppe, eine Isobutylgruppe oder eine Benzylgruppe ist stärker bevorzugt.

[0040] Eine Übergangsmetallverbindung der vorstehend aufgeführten allgemeinen Formel (2) ist als Übergangsmetallverbindung der vorliegenden Erfindung bevorzugt.

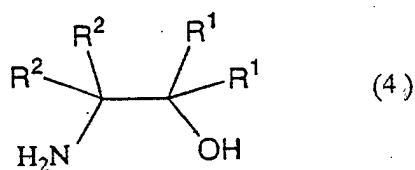
[0041] Eine solche Übergangsmetallverbindung der allgemeinen Formel (2) oder (3) kann durch Inkontaktbringen (A) der Bisoxazolinverbindung der vorstehend beschriebenen allgemeinen Formel (1) mit (B) der Nickel-, Palladium-, Kobalt-, Rhodium- oder Rutheniumverbindung erhalten werden.

[0042] Jeder der Reste  $R^1$ ,  $R^2$ ,  $R^3$  und n in der allgemeinen Formel (1) weist die gleiche Bedeutung wie in der allgemeinen Formel (2) oder (3) auf.

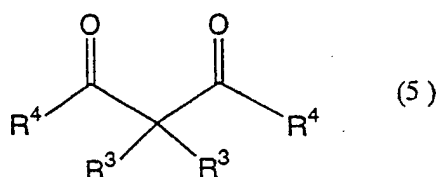
[0043] Asymmetrische Kohlenstoffatome sind in einer solchen Bisoxazolinverbindung (A) vorhanden und mindestens zwei Arten von optisch aktiven Substanzen, die diese als asymmetrische Zentren enthalten, können vorhanden sein. Jedoch kann die erfindungsgemäße Bisoxazolinverbindung (A) jede optisch aktive Substanz und weiter ein Gemisch davon sein.

[0044] Eine solche Bisoxazolinverbindung (A) ist eine Verbindung, die nicht in der Literatur beschrieben ist und kann mit den nachstehenden Verfahren synthetisiert werden, zum Beispiel wenn n 1 ist und die Substituenten an beiden Oxazolinringen gleich sind.

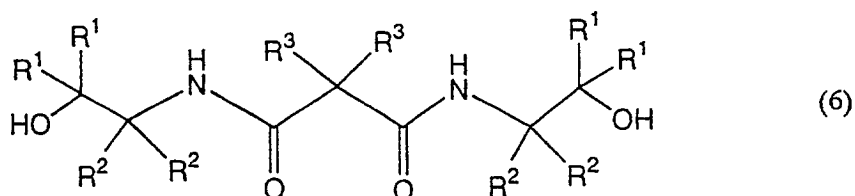
[0045] Einer der (optisch aktiven) 2-Aminoalkohole der allgemeinen Formel (4)



(in der  $R^1$  und  $R^2$  die vorstehend angegebene Bedeutung haben) wird mit einem Malonsäurederivat der allgemeinen Formel (5) umgesetzt



(wobei  $R^3$  die vorstehend angegebene Bedeutung hat und  $R^4$  einen Alkoxyrest oder ein Halogenatom darstellt), wobei eine Bisamidoalkoholverbindung der allgemeinen Formel (6)



(wobei R<sup>1</sup>, R<sup>2</sup> und R<sup>3</sup> die vorstehend angegebene Bedeutung haben) und dann wird die Verbindung in Gegenwart einer Lewis-Säure umgesetzt, wobei die Bisoxazolidinverbindung (A) erhalten wird.

[0046] Die Bisoxazolidinverbindung (A), in der n einen anderen Wert als 1 hat, kann ähnlich durch geeignetes Auswechseln des Malonsäurederivats der vorstehend aufgeführten allgemeinen Formel (5) durch eine andere Verbindung (z. B. eine 1,4-Diketoverbindung) erhalten werden.

[0047] Ein Salz, wie ein Salzsäuresalz, ein Schwefelsäuresalz oder ein Essigsäuresalz kann als 2-Aminoalkohol (4) verwendet werden. Unter den 2-Aminoalkoholen (4) schließen Beispiele einer in einem weiten Bereich verfügbaren Verbindung oder einer Verbindung, die leicht aus einem weit verbreitet erhältlichen Aminosäureester synthetisiert werden kann, 2-Amino-1,1-dimethylpropanol, 2-Amino-1,1-diethylpropanol, 2-Amino-1,1-di-n-propylpropanol, 2-Amino-1,1-diisopropylpropanol, 2-Amino-1,1-dicyclohexylpropanol, 2-Amino-1,1-dimethoxypropanol, 2-Amino-1,1-diethoxypropanol, 2-Amino-1,1-diphenylpropanol, 2-Amino-1,1-di-(2-methylphenyl)propanol, 2-Amino-1,1-di-(3-methylphenyl)propanol, 2-Amino-1,1-di-(4-methylphenyl)propanol, 2-Amino-1,1-di-(2-methoxyphenyl)propanol, 2-Amino-1,1-di-(3-methoxyphenyl)propanol, 2-Amino-1,1-di-(4-methoxyphenyl)propanol, 1-(1-Aminoethyl)cyclobutanol, 1-(1-Aminoethyl)cyclopentanol, 1-(1-Aminoethyl)cyclohexanol, 1-(1-Aminoethyl)cycloheptanol, 2-Amino-3-methyl-1,1-dimethylbutanol, 2-Amino-3-methyl-1,1-diethylbutanol, 2-Amino-3-methyl-1,1-di-n-propylbutanol, 2-Amino-3-methyl-1,1-dicyclohexylbutanol, 2-Amino-3-methyl-1,1-diphenylbutanol, 2-Amino-3-methyl-1,1-di-(2-methylphenyl)butanol, 2-Amino-3-methyl-1,1-di-(3-methylphenyl)butanol, 2-Amino-3-methyl-1,1-di-(4-methylphenyl)butanol, 2-Amino-3-methyl-1,1-di-(2-methoxyphenyl)butanol, 2-Amino-3-methyl-1,1-di-(3-methoxyphenyl)butanol, 2-Amino-3-methyl-1,1-di-(4-methoxyphenyl)butanol, 1-(1-Amino-2-methyl-n-propyl)cyclobutanol, 1-(1-Amino-2-methyl-n-propyl)cyclopentanol, 1-(1-Amino-2-methyl-n-propyl)cyclohexanol, 1-(1-Amino-2-methyl-n-propyl)cycloheptanol, 2-Amino-4-methyl-1,1-dimethylpentanol, 2-Amino-4-methyl-1,1-diethylpentanol, 2-Amino-4-methyl-1,1-di-n-propylpentanol, 2-Amino-4-methyl-1,1-diisopropylpentanol, 2-Amino-4-methyl-1,1-dicyclohexylpentanol, 2-Amino-4-methyl-1,1-diphenylpentanol, 2-Amino-4-methyl-1,1-di-(2-methylphenyl)pentanol, 2-Amino-4-methyl-1,1-di-(3-methylphenyl)pentanol, 2-Amino-4-methyl-1,1-di-(4-methylphenyl)pentanol, 2-Amino-4-methyl-1,1-di-(2-methoxyphenyl)pentanol, 2-Amino-4-methyl-1,1-di-(3-methoxyphenyl)pentanol, 2-Amino-4-methyl-1,1-di-(4-methoxyphenyl)pentanol, 1-(1-Amino-3-methyl-n-butyl)cyclobutanol, 1-(1-Amino-3-methyl-n-butyl)cyclopentanol, 1-(1-Amino-3-methyl-n-butyl)cyclohexanol, 1-(1-Amino-3-methyl-n-butyl)cycloheptanol, 2-Amino-3,3-dimethyl-1,1-dimethylbutanol, 2-Amino-3,3-dimethyl-1,1-diethylbutanol, 2-Amino-3,3-dimethyl-1,1-di-n-propylbutanol, 2-Amino-3,3-dimethyl-1,1-diisopropylbutanol, 2-Amino-3,3-dimethyl-1,1-dicyclohexylbutanol, 2-Amino-3,3-dimethyl-1,1-diphenylbutanol, 2-Amino-3,3-dimethyl-1,1-di-(2-methylphenyl)butanol, 2-Amino-3,3-dimethyl-1,1-di-(3-methylphenyl)butanol, 2-Amino-3,3-dimethyl-1,1-di-(4-methylphenyl)butanol, 2-Amino-3,3-dimethyl-1,1-di-(2-methoxyphenyl)butanol, 2-Amino-3,3-dimethyl-1,1-di-(3-methoxyphenyl)butanol, 2-Amino-3,3-dimethyl-1,1-di-(4-methoxyphenyl)butanol, 1-(1-Amino-2,2-dimethyl-n-propyl)cyclobutanol, 1-(1-Amino-2,2-dimethyl-n-propyl)cyclopentanol, 1-(1-Amino-2,2-dimethyl-n-propyl)cyclohexanol, 1-(1-Amino-2,2-dimethyl-n-propyl)cycloheptanol, 2-Amino-2-phenyl-1,1-dimethylethanol, 2-Amino-2-phenyl-1,1-diethylethanol, 2-Amino-2-phenyl-1,1-di-n-propylethanol, 2-Amino-2-phenyl-1,1-diisopropylethanol, 2-Amino-2-phenyl-1,1-dicyclohexylethanol, 2-Amino-2-phenyl-1,1-diphenylethanol, 2-Amino-2-phenyl-1,1-di-(2-methylphenyl)ethanol, 2-Amino-2-phenyl-1,1-di-(3-methylphenyl)ethanol, 2-Amino-2-phenyl-1,1-di-(4-methylphenyl)ethanol, 2-Amino-2-phenyl-1,1-di-(2-methoxyphenyl)ethanol, 2-Amino-2-phenyl-1,1-di-(3-methoxyphenyl)ethanol, 2-Amino-2-phenyl-1,1-di-(4-methoxyphenyl)ethanol, 1-(Aminophenylmethyl)cyclobutanol, 1-(Aminophenylmethyl)cyclopentanol, 1-(Aminophenylmethyl)cyclohexanol, 1-(Aminophenylmethyl)cycloheptanol, 2-Amino-2-benzyl-1,1-dimethylethanol, 2-Amino-2-benzyl-1,1-diethylethanol, 2-Amino-2-benzyl-1,1-di-n-propylethanol, 2-Amino-2-benzyl-1,1-diisopropylethanol, 2-Amino-2-benzyl-1,1-dicyclohexylethanol, 2-Amino-2-benzyl-1,1-diphenylethanol, 2-Amino-2-benzyl-1,1-di-(2-methylphenyl)ethanol, 2-Amino-2-benzyl-1,1-di-(3-methylphenyl)ethanol, 2-Amino-2-benzyl-1,1-di-(4-methylphenyl)ethanol, 2-Amino-2-benzyl-1,1-di-(2-methoxyphenyl)ethanol, 2-Amino-2-benzyl-1,1-di-(3-methoxyphenyl)ethanol, 2-Amino-2-benzyl-1,1-di-(4-methoxyphenyl)ethanol, 1-(1-Amino-2-phenyl)cyclobutanol, 1-(1-Amino-2-phenyl)cyclopentanol, 1-(1-Amino-2-phenyl)cyclohexanol und 1-(1-Amino-2-phenyl)cycloheptanol ein.

[0048] Die vorstehend aufgeführte Verbindung kann auch als optisch aktive Substanz in (R)- oder (S)-Form verwendet werden, oder ein Gemisch davon in einem bestimmten Verhältnis kann verwendet werden.

[0049] Ferner können die vorstehend aufgeführten 2-Aminoalkohole (4) leicht aus einem entsprechenden Aminosäureester oder einem Salz davon, wie einem Salzsäuresalz, einem Schwefelsäuresalz oder einem Es-

sigsäuresalz oder dgl., und einem entsprechenden Grignard-Reagens synthetisiert werden. Ferner kann, wenn ein optisch aktiver Aminoalkohol synthetisiert wird, ein optisch aktiver Aminosäureester oder ein Salz davon, wie ein Salzsäuresalz, ein Schwefelsäuresalz oder ein Essigsäuresalz, verwendet werden.

[0050] Der Aminosäureester schließt Alaninmethylester, Valinmethylester, Leucinmethylester, (t)-Leucinmethylester, Phenylglycinmethylester, Phenylalaninmethylester und Verbindungen ein, in denen der Methylester durch z. B. einen Ethylester, einen Propylester und einen n-Butylester ersetzt ist.

[0051] Ferner kann er eine (R)- oder (S)-Verbindung eines optisch aktiven Substituenten der vorstehend aufgeführten Verbindungen oder ein Salz, wie ein Salzsäuresalz, ein Schwefelsäuresalz oder ein Essigsäuresalz, der vorstehend aufgeführten Ester sein.

[0052] Die Grignard-Reagenzien schließen Methylmagnesiumchlorid, Ethylmagnesiumchlorid, Isopropylmagnesiumchlorid, n-Propylmagnesiumchlorid, n-Butylmagnesiumchlorid, Cyclohexylmagnesiumchlorid, Benzylmagnesiumchlorid, Phenylmagnesiumchlorid, 2-Methylphenylmagnesiumchlorid, 3-Methylphenylmagnesiumchlorid, 4-Methylphenylmagnesiumchlorid, 2-Methoxyphenylmagnesiumchlorid, 3-Methoxymagnesiumchlorid, 4-Methoxymagnesiumchlorid und Verbindungen ein, in denen das Chlorid durch Bromid oder Jodid ersetzt ist.

[0053] Beispiele des Malonsäurederivats der allgemeinen Formel (5) schließen Malonsäurediester, wie Dimethylmalonat, Diethylmalonat und Dimethyldimethylmalonat, und Malonyldihalogenide, wie Malonyldichlorid, Dimethylmalonyldichlorid, Malonyldibromid und Dimethylmalonyldibromid, ein.

[0054] Die verwendete Menge beträgt üblicherweise etwa die 0,5–2fache Molmenge, bezogen auf die 2-Aminoalkohole (4) und vorzugsweise etwa die 0,5–1fache Molmenge.

[0055] Beispiele der Lewis-Säuren schließen Titan-tetraisopropoxid, Aluminiumtriisopropoxid, Dimethylzinndichlorid, Zinnchlorid und Zinkchlorid ein. Diese Lewissäuren werden jeweils allein oder in einem Gemisch von zwei oder mehreren davon verwendet. Die verwendete Menge beträgt üblicherweise etwa die 0,001–5fache Molmenge, bezogen auf die 2-Aminoalkohole (4) und vorzugsweise die etwa 0,01–1fache Molmenge.

[0056] Ein Lösungsmittel wird üblicherweise zum Zeitpunkt der Umsetzung verwendet, und Beispiele schließen ein Lösungsmittel wie Toluol, Xylol, Heptan, Octan, Chlorbenzol, Dichlormethan oder Dichlorethan ein. Diese werden jeweils allein oder in einem Gemisch von zwei oder mehreren davon verwendet, und die verwendete Menge, die nicht besonders beschränkt ist, beträgt üblicherweise das etwa 2–200fache Gewicht, bezogen auf die 2-Aminoalkohole (4).

[0057] Wenn die vorstehend aufgeführte Bisoxazolinverbindung (A) hergestellt wird, wird zuerst die Bisamidoalkoholverbindung (6) mit den nachstehend angegebenen Verfahren hergestellt.

[0058] Wenn die 2-Aminoalkohole (4) und Malonsäurediester umgesetzt werden, werden beide unter Verwendung des vorstehend aufgeführten Lösungsmittels umgesetzt. Die Reaktionstemperatur beträgt üblicherweise etwa 50–250°C und vorzugsweise etwa 60–180°C.

[0059] Wenn die 2-Aminoalkohole (4) und die Malonyldichloride umgesetzt werden, werden beide unter Verwendung des vorstehend aufgeführten Lösungsmittels in Gegenwart einer geeigneten Base umgesetzt. Die Base schließt Triethylamin ein und die verwendete Menge davon beträgt üblicherweise etwa die 2fache Molmenge oder mehr, bezogen auf die Malonyldichloride. Die Reaktionstemperatur beträgt üblicherweise etwa –30–100°C und vorzugsweise etwa –10–50°C.

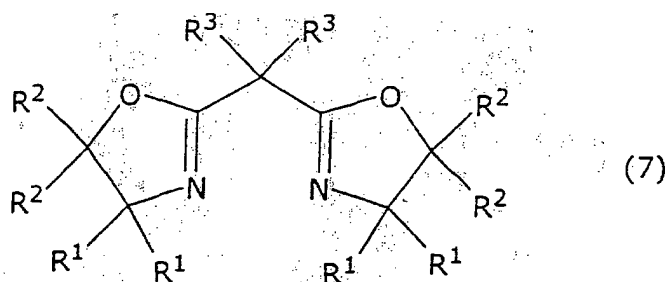
[0060] Weiter kann die erhaltene Bisamidoalkoholverbindung (6) vom Reaktionssystem abgetrennt werden und im folgenden Reaktionsverfahren ohne Abtrennung verwendet werden.

[0061] Als Verfahren zur Herstellung der Bisoxazolinverbindung (A) aus der Bisamidoalkoholverbindung (6) wird ein Verfahren des Lösens der isolierten Bisamidoalkoholverbindung (6) im vorstehend aufgeführten Lösungsmittel oder Zugabe einer Lewissäure der vorstehend aufgeführten Menge zur Reaktionslösung, die die Bisamidoalkoholverbindung enthält, und anschließendem Umsetzen aufgeführt.

[0062] Die Umsetzungstemperatur beträgt üblicherweise etwa 50–250°C und vorzugsweise etwa 60–180°C.

[0063] Nach vollständiger Umsetzung kann die Bisoxazolinverbindung der allgemeinen Formel (7), die den verwendeten 2-Aminoalkoholen (4) entspricht, zum Beispiel durch Zugabe einer wässrigen alkalischen Lösung, wie wässrigem Natriumhydrogencarbonat, zum erhaltenen Reaktionsgemisch, Abtrennen der abgetrennten Feststoffe, Konzentrieren des erhaltenen Filtrats, Zugabe von Wasser, Durchführen einer Extraktionsbehandlung unter Verwendung eines organischen Lösungsmittels, wie Toluol, Essigsäureethylester oder Chloroform, und Konzentrieren der erhaltenen organischen Schicht erhalten werden. Die erhaltene Bisoxazolinverbindung kann weiter mit einem üblichen Verfahren, wie zum Beispiel Destillation oder Chromatographie, gereinigt werden. Ferner kann nach vollständiger Umsetzung die gewünschte Bisoxazolinverbindung auch durch Konzentrieren der Reaktionslösung und unmittelbar Durchführen einer Destillation oder Chromatographie erhalten werden.





[0064] Die sterische Konfiguration um ein asymmetrisches Kohlenstoffatom in der allgemeinen Formel (1) der so erhaltenen Bisoxazolinverbindung ist genauso wie die sterische Konfiguration des optisch aktiven Substituenten der verwendeten 2-Aminoalkohole (4).

[0065] Unter den erfindungsgemäßen Bisoxazolinverbindungen (A) der allgemeinen Formel (1) schließen optisch aktive disubstituierte Bisoxazolinverbindungen, die mit den vorstehend aufgeführten Verfahren erhalten wurden, 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-methyl-5,5-dimethyloxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-methyl-5,5-dethyloxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-methyl-5,5-di-n-propyloxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-methyl-5,5-diisopropyloxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-methyl-5,5-dicyclohexyloxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-methyl-5,5-dimethoxyoxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-methyl-5,5-diethoxyoxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-methyl-5,5-diphenyloxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-methyl-5,5-di-(2-methylphenyl)oxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-methyl-5,5-di-(3-methylphenyl)oxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-methyl-5,5-di-(4-methylphenyl)oxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-methyl-5,5-di-(2-methoxyphenyl)oxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-methyl-5,5-di-(3-methoxyphenyl)oxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-methyl-5,5-di-(4-methoxyphenyl)oxazolin], 2,2'-Methylenbis[spiro{(4R)-4-methyloxazolin-5,1'-cyclobutan}], 2,2'-Methylenbis[spiro{(4R)-4-methyloxazolin-5,1'-cyclopentan}], 2,2'-Methylenbis[spiro{(4R)-4-methyloxazolin-5,1'-cyclohexan}], 2,2'-Methylenbis[spiro{(4R)-4-methyloxazolin-5,1'-cycloheptan}], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-isopropyl-5,5-dimethyloxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-isopropyl-5,5-dethyloxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-isopropyl-5,5-di-n-propyloxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-isopropyl-5,5-diisopropyloxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-isopropyl-5,5-dicyclohexyloxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-isopropyl-5,5-diphenyloxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-isopropyl-5,5-di-(2-methylphenyl)oxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-isopropyl-5,5-di-(3-methylphenyl)oxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-isopropyl-5,5-di-(4-methylphenyl)oxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-isopropyl-5,5-di-(2-methoxyphenyl)oxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-isopropyl-5,5-di-(3-methoxyphenyl)oxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-isopropyl-5,5-di-(4-methoxyphenyl)oxazolin], 2,2'-Methylenbis[spiro{(4R)-4-isopropyloxazolin-5,1'-cyclobutan}], 2,2'-Methylenbis[spiro{(4R)-4-isopropyloxazolin-5,1'-cyclopentan}], 2,2'-Methylenbis[spiro{(4R)-4-isopropyloxazolin-5,1'-cyclohexan}], 2,2'-Methylenbis[spiro{(4R)-4-isopropyloxazolin-5,1'-cycloheptan}], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-isobutyl-5,5-dimethyloxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-isobutyl-5,5-diethyloxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-isobutyl-5,5-di-n-propyloxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-isobutyl-5,5-diisopropyloxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-isobutyl-5,5-dicyclohexyloxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-isobutyl-5,5-diphenyloxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-isobutyl-5,5-di-(2-methylphenyl)oxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-isobutyl-5,5-di-(3-methylphenyl)oxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-isobutyl-5,5-di-(4-methylphenyl)oxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-isobutyl-5,5-di-(2-methoxyphenyl)oxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-isobutyl-5,5-di-(3-methoxyphenyl)oxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-isobutyl-5,5-di-(4-methoxyphenyl)oxazolin], 2,2'-Methylenbis[spiro{(4R)-4-isobutyloxazolin-5,1'-cyclobutan}], 2,2'-Methylenbis[spiro{(4R)-4-isobutyloxazolin-5,1'-cyclopentan}], 2,2'-Methylenbis[spiro{(4R)-4-isobutyloxazolin-5,1'-cyclohexan}], 2,2'-Methylenbis[spiro{(4R)-4-isobutyloxazolin-5,1'-cycloheptan}], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-tert-butyl-5,5-dimethyloxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-tert-butyl-5,5-diethyloxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-tert-butyl-5,5-di-n-propyloxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-tert-butyl-5,5-diisopropyloxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-tert-butyl-5,5-diphenyloxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-tert-butyl-5,5-dicyclohexyloxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-tert-butyl-5,5-di-(2-methylphenyl)oxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-tert-butyl-5,5-di-(3-methylphenyl)oxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-tert-butyl-5,5-di-(4-methylphenyl)oxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-tert-butyl-5,5-di-(2-methoxyphenyl)oxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-tert-butyl-5,5-di-(3-methoxyphenyl)oxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-tert-butyl-5,5-di-(4-methoxyphenyl)oxazolin], 2,2'-Methylenbis[spiro{(4R)-4-tert-butyloxazolin-5,1'-cyclobutan}], 2,2'-Methylenbis[spiro{(4R)-4-tert-butyloxazolin-5,1'-cyclopentan}], 2,2'-Methylenbis[spiro{(4R)-4-tert-butyloxazolin-5,1'-cyclohexan}], 2,2'-Methylenbis[spiro{(4R)-4-tert-butyloxazolin-5,1'-cycloheptan}], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-phenyl-5,5-dimethyloxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-phenyl-5,5-diethyloxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-phenyl-5,5-di-n-propyloxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-phenyl-5,5-diisopropyloxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-phenyl-5,5-dicyclohexyloxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-phenyl-5,5-diphenyloxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-phenyl-5,5-di-(2-methylphenyl)oxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-phenyl-5,5-di-(3-methylphenyl)oxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-phenyl-5,5-di-(4-methylphenyl)oxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-phenyl-5,5-di-(2-methoxyph

nyl)oxazolin), 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-phenyl-5,5-di-(3-methoxyphenyl)oxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-phenyl-5,5-di-(4-methoxyphenyl)oxazolin], 2,2'-Methylenbis[spiro {(4R)-4-phenyloxazolin-5,1'-cyclobutan} ], 2,2'-Methylenbis[spiro{(4R)-4-phenyloxazolin-5,1'-cyclopentan}], 2,2'-Methylenbis[spiro{(4R)-4-phenyloxazolin-5,1'-cyclohexan}], 2,2'-Methylenbis[spiro{(4R)-4-phenyloxazolin-5,1'-cycloheptan}], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-benzyl-5,5-dimethyloxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-benzyl-5,5-diethyloxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-benzyl-5,5-di-n-propyloxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-benzyl-5,5-diisopropyloxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-benzyl-5,5-dicyclohexyloxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-benzyl-5,5-diphenyloxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-benzyl-5,5-di-(2-methylphenyl)oxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-benzyl-5,5-di-(3-methylphenyl)oxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-benzyl-5,5-di-(4-methylphenyl)oxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-benzyl-5,5-di-(2-methoxyphenyl)oxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-benzyl-5,5-di-(3-methoxyphenyl)oxazolin], 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-benzyl-5,5-di-(4-methoxyphenyl)oxazolin], 2,2'-Methylenbis[spiro {(4R)-4-benzyloxazolin-5,1'-cyclobutan} ], 2,2'-Methylenbis[spiro {(4R)-4-benzyloxazolin-5,1'-cyclopentan}], 2,2'-Methylenbis[spiro{(4R)-4-benzyloxazolin-5,1'-cyclohexan}], 2,2'-Methylenbis[spiro{(4R)-4-benzyloxazolin-5,1'-cycloheptan}] und Verbindungen, in denen (4R) in jeder der vorstehend aufgeführten Verbindungen durch (4S) ersetzt ist, ein.

[0066] Ferner schließen Beispiele des Isomers der meso-Form eine Verbindung ein, in der (4R) in jeder der vorstehend aufgeführten Verbindungen (4R) eines Oxazolinkerns entspricht und (4S) des anderen Oxazolinkerns entspricht.

[0067] Eine Verbindung, in der eine koordinativ gebundene Verbindung an ein anorganisches Säure- oder organisches Säuresalz dieser Übergangsmetalle oder an ein nullwertiges Übergangsmetallatom koordinativ gebunden ist, ist als vorstehend aufgeführte Nickel-, Palladium-, Kobalt-, Rhodium- oder Rutheniumverbindung (B) bevorzugt. Insbesondere ist sie ein Chlorid, ein Fluorid, ein Bromid, ein Jodid, ein Carbonat, ein Oxalat, ein Acetylacetonatsalz oder ein Acetat dieser Übergangsmetalle und ein Lösungsmittel des Estertyps, ein Olefin, ein Dien oder eine Nitrilverbindung können gleichzeitig daran koordinativ gebunden sein. Ferner wird bei einem nullwertigen Komplex von Nickel oder Palladium eine Verbindung, in der ein Olefin, ein Dien oder eine Nitrilverbindung nur koordinativ an den nullwertigen Komplex gebunden ist, vorzugsweise verwendet.

[0068] Insbesondere werden Bis(1,5-cyclooctadien)nickel(0), Bis(cyclopentadienyl)nickel(II), Bis(pentamethylcyclopentadienyl)nickel(II), (Hexaammin)nickel(II)chlorid, (Hexaammin)nickel(II)jodid, Nickel(II)acetat, Nickel(II)acetylacetonat, Nickel(II)bromid, (Dimethoxyethan)nickel(II)bromid, Nickel(II)carbonat, Nickel(II)chlorid, (Dimethoxyethan)nickel(II)chlorid, Nickel(II)cyclohexanbutylat, Nickel(II)dimethylglyoxim, Nickel(II)-2-ethylhexanoat, Nickel(II)fluorid, Nickel(II)hexafluoracetylacetonat, Nickel(II)jodid, Nickel(II)naphthenat, Nickel(II)stearat, Nickel(II)trifluoracetylacetonat, Allylpalladium(II)chlorid (Dimer), Dichlorbis(acetonitril)palladium(II), Dichlorbis(benzonitril)palladium(II), Dichlor(1,5-cyclooctadien)palladium(II), trans-Diaminpalladium(II)dichlorid, Palladium(II)acetat, Palladium(II)acetylacetonat, Palladium(II)bromid, Palladium(II)chlorid, Palladium(II)cyanid, Palladium(II)jodid, Palladium(II)trifluoracetat, Tetrakis(acetonitril)palladium(0)tetrafluorborat, Tris(dibenzylidenaceton)dipalladium(0), Kobalt(II)acetylacetonat, Kobalt(III)acetylacetonat, Kobalt(II)bromid, Kobalt(II)carbonat, Kobalt(II)chlorid, Kobalt(II)cyclohexanbutylat, Kobalt(II)fluorid, Kobalt(II)jodid, Kobalt(II)naphthenat, Kobalt(II)stearat, Rhodium(II)bis(ethylen)acetylacetonat, Bis(1,5-cyclooctadien)rhodium(I)trifluormethansulfonat, Chlorbis(ethylen)rhodium(I) (Dimer), Chlor(1,5-cyclooctadien)rhodium(I) (Dimer), Chlor(norbornadien)rhodium(I) (Dimer), Rhodium(II)acetat (Dimer), Rhodium(III)acetylacetonat, Rhodium(III)chlorid, Rhodium(III)jodid, Rhodium(II)trifluoracetat (Dimer), Dichlor(1,5-cyclooctadien)ruthenium(III) (Dimer), Ruthenium(III)acetylacetonat, Ruthenium(III)bromid, Ruthenium(III)chlorid und Ruthenium(III)jodid aufgeführt.

[0069] Unter diesen ist eine Nickelverbindung und eine Palladiumverbindung in der vorliegenden Erfindung insbesondere bevorzugt, und Bis(1,5-cyclooctadien)nickel(0), Nickel(II)acetat, Nickel(II)acetylacetonat, Nickel(II)bromid, (Dimethoxyethan)nickel(II)bromid, Nickel(II)carbonat, Nickel(II)chlorid, (Dimethoxyethan)nickel(II)chlorid, Nickel(II)dimethylglyoxim, Nickel(II)fluorid, Nickel(II)hexafluoracetylacetonat, Nickel(II)jodid, Nickel(II)naphthenat, Nickel(II)stearat, Dichlorbis(acetonitril)palladium(II), Dichlorbis(benzonitril)palladium(II), Dichlor-(1,5-cyclooctadien)palladium(II), Palladium(II)acetat, Palladium(II)acetylacetonat, Palladium(II)bromid, Palladium(II)chlorid, Palladium(II)jodid und Tris(dibenzylidenaceton)dipalladium(0) sind stärker bevorzugt. Insbesondere werden Bis(1,5-cyclooctadien)nickel(0), (Dimethoxyethan)nickel(II)chlorid und (Dimethoxyethan)nickel(II)bromid stärker bevorzugt als Übergangsmetallverbindung verwendet, die in der Lage ist, leicht einen Komplex mit der in der vorliegenden Erfindung verwendeten Bisoxazolinverbindung (A) zu bilden.

[0070] Die Übergangsmetallverbindung der vorstehend aufgeführten allgemeinen Formel (2) oder (3) ist als Katalysatorkomponente zur Olefinpolymerisation geeignet. Wenn die Übergangsmetallverbindung als Katalysatorkomponente zur Olefinpolymerisation verwendet wird, wird eine Cokatalysatorkomponente in Kombination verwendet, die dazu in der Lage ist, die Übergangsmetallverbindung zu aktivieren.

[0071] Der erfindungsgemäße Katalysator zur Olefinpolymerisation ist ein Katalysator zur Olefinpolymerisation, in dem eine Übergangsmetallverbindung der vorstehend aufgeführten allgemeinen Formel (2) oder (3) und (C) und/oder (D), die vorstehend beschrieben sind, verwendet wird.

[0072] Die vorstehend aufgeführte Bisoxazolinverbindung (A) und die vorstehend aufgeführte Verbindung (B)

können anstelle der Übergangsmetallverbindung der allgemeinen Formel (2) oder (3) als erfindungsgemäßer Katalysator zur Olefinpolymerisation verwendet werden. Genauer ist eine Ausführungsform des erfindungsgemäßen Katalysators zur Olefinpolymerisation ein Katalysator zur Olefinpolymerisation, in dem die vorstehend beschriebenen (A), (B) und (C) und/oder (D) verwendet werden.

[0073] Als Kohlenwasserstoffrest in E<sup>1</sup>, E<sup>2</sup> oder E<sup>3</sup> der Aluminiumverbindung (C) ist ein Kohlenwasserstoffrest mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen bevorzugt, und ein Alkylrest ist stärker bevorzugt.

[0074] Spezielle Beispiele von (C 1) der Organoaluminiumverbindung, dargestellt durch die allgemeine Formel E<sup>1</sup><sub>a</sub>AlZ<sub>3-a</sub>, schließen Trialkylaluminiumverbindungen, wie Trimethylaluminium, Triethylaluminium, Tripropylaluminium, Triisobutylaluminium und Trihexylaluminium; Dialkylaluminiumchloride, wie Dimethylaluminiumchlorid, Diethylaluminiumchlorid, Dipropylaluminiumchlorid, Diisobutylaluminiumchlorid und Dihexylaluminiumchlorid; Alkylaluminiumdichloride, wie Methylaluminiumdichlorid, Ethylaluminiumdichlorid, Propylaluminiumdichlorid, Isobutylaluminiumdichlorid und Hexylaluminiumdichlorid; und Dialkylaluminiumhydride, wie Dimethylaluminiumhydrid, Diethylaluminiumhydrid, Dipropylaluminiumhydrid, Diisobutylaluminiumhydrid und Dihexylaluminiumhydrid, ein.

[0075] Eine Trialkylaluminiumverbindung ist bevorzugt und Triethylaluminium oder Triisobutylaluminium stärker bevorzugt.

[0076] Ferner kann ein Oligomer je nach Art der verwendeten Aluminiumverbindung und den Reaktionsbedingungen (Temperatur und Druck) im erfindungsgemäßen Katalysator hergestellt werden.

[0077] Spezielle Beispiele von E<sup>2</sup> und E<sup>3</sup> des cyclischen Aluminoxans (C2) mit einer Struktur der allgemeinen Formel {-Al(E<sup>2</sup>)-O-}<sub>b</sub> und des linearen Aluminoxans (C3) mit einer Struktur entsprechend der allgemeinen Formel E<sup>3</sup> {-Al(E<sup>3</sup>-O-)}<sub>c</sub>AlE<sup>3</sup><sub>2</sub> sind Alkylreste, wie eine Methyl-, eine Ethyl-, eine n-Propyl-, eine Isopropyl-, eine n-Butyl-, eine Isobutyl-, eine n-Pentyl- und eine Neopentylgruppe. b ist eine ganze Zahl von 2 oder mehr und c ist eine ganze Zahl von 1 oder mehr. E<sup>2</sup> und E<sup>3</sup> sind vorzugsweise eine Methylgruppe oder eine Isobutylgruppe, b ist 2-40 und c ist 1-40.

[0078] Das vorstehend aufgeführte Aluminoxan wird mit verschiedenen Verfahren hergestellt. Das Verfahren ist nicht besonders beschränkt und es kann gemäß allgemein bekannten Verfahren hergestellt werden. Zum Beispiel wird es durch Inkontaktbringen einer Lösung einer Trialkylaluminiumverbindung (zum Beispiel Trimethylaluminium) in einem geeigneten organischen Lösungsmittel (Benzol oder ein aliphatischer Kohlenwasserstoff) mit Wasser hergestellt. Weiter kann ein Verfahren zur Herstellung des Aluminoxans durch Inkontaktbringen einer Trialkylaluminiumverbindung (zum Beispiel Trimethylaluminium) mit einem Kristallwasser enthaltenden Metallsalz (zum Beispiel ein Hydrat von Kupfersulfat-Hydrat) veranschaulicht werden.

#### (D) Borverbindung

[0079] Jede der folgenden (D1), eine Borverbindung entsprechend der allgemeinen Formel BQ<sup>1</sup>Q<sup>2</sup>Q<sup>3</sup>, (D2), eine Borverbindung entsprechend der allgemeinen Formel G<sup>+</sup>(BQ<sup>1</sup>Q<sup>2</sup>Q<sup>3</sup>Q<sup>4</sup>)<sup>-</sup>, und (D3), eine Borverbindung entsprechend der allgemeinen Formel (L-H)<sup>+</sup>(BQ<sup>1</sup>Q<sup>2</sup>Q<sup>3</sup>Q<sup>4</sup>)<sup>-</sup> kann als erfindungsgemäße Borverbindung (D) verwendet werden.

[0080] In der Borverbindung (D1) entsprechend der allgemeinen Formel BQ<sup>1</sup>Q<sup>2</sup>Q<sup>3</sup> ist B ein dreiwertiges Boratom, ist jeder der Reste Q<sup>1</sup>-Q<sup>3</sup> ein Halogenatom, ein Kohlenwasserstoffrest, ein halogener Kohlenwasserstoffrest, eine substituierte Silylgruppe, ein Alkoxyrest oder eine disubstituierte Aminogruppe und sie können gleich oder verschieden sein. Jeder der Reste Q<sup>1</sup>-Q<sup>3</sup> ist vorzugsweise ein Halogenatom, ein Kohlenwasserstoffrest mit 1 bis 20 Kohlenstoffatomen, ein halogener Kohlenwasserstoffrest mit 1 bis 20 Kohlenstoffatomen, eine substituierte Silylgruppe mit 1 bis 20 Kohlenstoffatomen, ein Alkoxyrest mit 1 bis 20 Kohlenstoffatomen oder ein disubstituierter Aminorest mit 1 bis 20 Kohlenstoffatomen und jeder der stärker bevorzugten Reste Q<sup>1</sup>-Q<sup>3</sup> ist ein Halogenatom, ein Kohlenwasserstoffrest mit 1 bis 20 Kohlenstoffatomen und ein halogener Kohlenwasserstoffrest mit 1 bis 20 Kohlenstoffatomen. Jeder der Reste Q<sup>1</sup>-Q<sup>4</sup> ist stärker bevorzugt ein fluorierter Kohlenwasserstoffrest mit 1 bis 20 Kohlenstoffatomen, der mindestens ein Fluoratom enthält, und insbesondere ist jeder der Reste Q<sup>1</sup>-Q<sup>4</sup> vorzugsweise ein fluorierter Arylrest mit 6 bis 20 Kohlenstoffatomen, der mindestens ein Fluoratom enthält.

[0081] Spezielle Beispiele der Verbindung (D1) schließen Tris(pentafluorphenyl)boran, Tris(2,3,5,6-tetrafluorphenyl)boran, Tris(2,3,4,5-tetrafluorphenyl)boran, Tris(3,4,5-trifluorphenyl)boran, Tris(2,3,4-trifluorphenyl)boran und Phenylbis(pentafluorphenyl)boran ein, und Tris(pentafluorphenyl)boran ist am stärksten bevorzugt.

[0082] In der Borverbindung (D2) entsprechend der allgemeinen Formel G<sup>+</sup>(BQ<sup>1</sup>Q<sup>2</sup>Q<sup>3</sup>Q<sup>4</sup>)<sup>-</sup> ist G<sup>+</sup> ein anorganisches oder organisches Kation. B ist ein dreiwertiges Boratom und Q<sup>1</sup>-Q<sup>4</sup> weisen die gleiche Bedeutung wie Q<sup>1</sup>-Q<sup>3</sup> im vorstehend aufgeführten (D1) auf.

[0083] Spezielle Beispiele von G<sup>+</sup> als anorganisches Kation in der Verbindung (D2) entsprechend der allgemeinen Formel G<sup>+</sup>(BQ<sup>1</sup>Q<sup>2</sup>Q<sup>3</sup>Q<sup>4</sup>)<sup>-</sup> schließen ein Ferroceniumkation, ein alkylsubstituiertes Ferroceniumkation und ein Silberkation ein, und G<sup>+</sup> als organisches Kation schließt ein Triphenylcarbeniumkation ein. Als G<sup>+</sup> ist ein Carbeniumkation bevorzugt und insbesondere ein Triphenylcarbeniumkation bevorzugt.

[0084]  $(BQ^1Q^2Q^3Q^4)^-$  schließt Tetrakis(pentafluorphenyl)borat, Tetrakis(2,3,5,6-tetrafluorphenyl)borat, Tetrakis(2,3,4,5-tetrafluorphenyl)borat, Tetrakis(3,4,5-trifluorphenyl)borat, Tetrakis(2,3,4-trifluorphenyl)borat, Phenyltris(pentafluorphenyl)borat und Tetrakis[3,5-bis(trifluormethyl)phenyl]borat ein.

[0085] Spezielle Kombinationen davon schließen Ferroceniumtetrakis(pentafluorphenyl)borat, 1,1'-Dimethylferroceniumtetrakis(pentafluorphenyl)borat, Silber-tetrakis(pentafluorphenyl)borat, Triphenylcarbeniumtetrakis(pentafluorphenyl)borat und Triphenylcarbeniumtetrakis[3,5-bis(trifluormethyl)phenyl]borat ein, und Triphenylcarbeniumtetrakis(pentafluorphenyl)borat ist am stärksten bevorzugt.

[0086] Ferner ist in der Borverbindung (D3) entsprechend der allgemeinen Formel  $(L-H)^+(BQ^1Q^2Q^3Q^4)^-$  L eine neutrale Lewisbase,  $(L-H)^+$  eine Brønstedtsäure, B ein dreiwertiges Boratom und weisen  $Q^1-Q^4$  die gleiche Bedeutung wie  $Q^1-Q^3$  im vorstehend aufgeführten (D1) auf.

[0087] Spezielle Beispiele von  $(L-H)^+$ , das eine Brønstedtsäure in der Verbindung entsprechend der allgemeinen Formel  $(L-H)^+(BQ^1Q^2Q^3Q^4)^-$  darstellt, schließen eine trialkylsubstituierte Ammoniumverbindung, eine N,N-Dialkylaniliniumverbindung, eine Dialkylammoniumverbindung und eine Triarylphosphoniumverbindung ein, und  $(BQ^1Q^2Q^3Q^4)^-$  weist die vorstehend angegebene Bedeutung auf.

[0088] Spezielle Beispiele dieser Kombinationen schließen Triethylammoniumtetrakis(pentafluorphenyl)borat, Tripropylammoniumtetrakis(pentafluorphenyl)borat, Tri(n-butyl)ammoniumtetrakis(pentafluorphenyl)borat, Tri(n-butyl)ammoniumtetrakis[3,5-bis(trifluormethyl)phenyl]borat, N,N-Dimethylaniliniumtetrakis(pentafluorphenyl)borat, N,N-Diethylaniliniumtetrakis(pentafluorphenyl)borat, N,N-2,4,6-Pentamethylaniliniumtetrakis(pentafluorphenyl)borat, N,N-Dimethylaniliniumtetrakis[3,5-bis(trifluormethyl)phenyl]borat, Düsopropylammoniumtetrakis(pentafluorphenyl)borat, Dicyclohexylammoniumtetrakis(pentafluorphenyl)borat, Triphenylphosphoniumtetrakis(pentafluorphenyl)borat, Tri(methylphenyl)phosphoniumtetrakis(pentafluorphenyl)borat und Tri(dimethylphenyl)phosphoniumtetrakis(pentafluorphenyl)borat ein, und Tri(n-butyl)ammoniumtetrakis(pentafluorphenyl)borat oder N,N-Dimethylaluminiumtetrakis(pentafluorphenyl)borat ist am stärksten bevorzugt.

[0089] Als erfindungsgemäßer Katalysator zur Olefinpolymerisation ist der Katalysator zur Olefinpolymerisation, in dem die Übergangsmetallverbindung der vorstehend aufgeführten allgemeinen Formel (2) oder (3) und das vorstehend aufgeführte (C 1) und das vorstehend aufgeführte (D) verwendet werden, oder der Katalysator zur Olefinpolymerisation, in dem die Übergangsmetallverbindung der vorstehend aufgeführten allgemeinen Formel (2) oder (3) und das vorstehend aufgeführte (C2) und/oder (C3) verwendet werden, bevorzugt. Der Katalysator zur Olefinpolymerisation, in dem die Übergangsmetallverbindung der vorstehend aufgeführten allgemeinen Formel (2) oder (3) und das vorstehend aufgeführte (C 1) und das vorstehend aufgeführte (D) verwendet werden, ist stärker bevorzugt.

[0090] Die verwendete Menge der Verbindung (C) kann üblicherweise in einem weiten Bereich von 1–10000 mol als Molmenge der Aluminiumatome pro 1. mol Übergangsmetallatome in der Übergangsmetallverbindung der allgemeinen Formel (2) oder (3) oder der Verbindung (B) gewählt werden. Ein Bereich von 1–3000 mol pro 1 mol der Übergangsmetallatome ist bevorzugt.

[0091] Die verwendete Menge der Verbindung (D) kann in einem weiten Bereich von 0,01–1000 mol als Molmenge pro 1 mol Übergangsmetallatome in der Übergangsmetallverbindung der allgemeinen Formel (2) oder (3) oder der Verbindung (B) gewählt werden. Ein Bereich von 0,1–50 mol pro 1 mol der Übergangsmetallatome ist bevorzugt und ein Bereich von 0,1–20 mol stärker bevorzugt.

[0092] Als Verfahren zum Einbringen jedes der Bestandteile in einen Polymerisationsgefäß wird er in Gegenwart eines Monomers unter trockenen Bedingungen in einem inaktiven Gas, wie zum Beispiel Stickstoff oder Argon, eingebracht. Eine Übergangsmetallverbindung der allgemeinen Formel (2) oder (3), die Verbindung (C) und die Verbindung (D) oder die Bisoxazolinverbindung (A) der allgemeinen Formel (1), die Verbindung (B), die Verbindung (C) und die Verbindung (D) können einzeln eingebracht werden und können nach vorhergehendem Inkontaktbringen eingebracht werden.

[0093] Die Polymerisation kann üblicherweise bei  $-80-300^\circ\text{C}$ , vorzugsweise  $0-280^\circ\text{C}$  und stärker bevorzugt  $20-250^\circ\text{C}$  durchgeführt werden.

[0094] Der Polymerisationsdruck ist nicht besonders beschränkt und etwa Normaldruck bis etwa  $150\text{ kg/cm}^2$  ( $151,99 \cdot 10^5\text{ Newton/m}^2$ ) ist vom industriellen und wirtschaftlichen Standpunkt bevorzugt. Die Polymerisationsdauer wird gemäß der Art des gewünschten Polymers und einer Reaktionsvorrichtung im Allgemeinen geeignet festgelegt und nimmt einen im Bereich von 5 Minuten–40 Stunden an.

[0095] Als Polymerisationsverfahren sind entweder ein Chargentyp oder ein kontinuierlicher Typ anwendbar. Weiter ist eine Aufschlammungspolymerisation oder eine Lösungspolymerisation mit einem inerten Kohlenwasserstofflösungsmittel, wie Propan, Pentan, Hexen, Heptan oder Octan, eine Flüssigphasenpolymerisation ohne ein Lösungsmittel oder eine Gasphasenpolymerisation anwendbar.

[0096] Das erfindungsgemäße Verfahren zur Herstellung eines olefinischen Polymers ist ein Verfahren zur Herstellung eines olefinischen Polymers, wobei Olefine homopolymerisiert werden oder Olefine mit anderen Olefinen und/oder einer anderen polymerisierbaren ungesättigten Verbindung copolymerisiert werden, wobei der vorstehend aufgeführte Katalysator zur Olefinpolymerisation verwendet wird.

[0097] Als Olefine, die in der erfindungsgemäßen Polymerisation verwendbar sind, können Olefine, die 2 bis 20 Kohlenstoffatome umfassen, insbesondere Ethylen, ein  $\alpha$ -Olefin mit 3 bis 20 Kohlenstoffatomen und Diolefine mit 4 bis 20 Kohlenstoffatomen verwendet werden, und zwei oder mehrere Monomere können gleichzeitig verwendet werden. Spezielle Beispiele der Olefine schließen lineare Olefine, wie Ethylen, Propylen, Buten-1, Penten-1, Hexen-1, Hepten-1, Octen-1, Nonen-1 und Decen-1, verzweigte Olefine, wie 3-Methylbuten-1, 3-Methylpenten-1, 4-Methylpenten-1 und 5-Methyl-2-penten-1, und Vinylcyclohexan ein.

[0098] Spezielle Beispiele der anderen im erfindungsgemäßen Verfahren zur Herstellung eines olefinischen Polymers verwendeten polymerisierbaren ungesättigten Verbindung schließen eine Verbindung, ausgewählt aus einer Acrylsäureesterverbindung und einer Methacrylsäureesterverbindung, ein. Spezielle Beispiele der Acrylsäureesterverbindung schließen Methylacrylat und eine Verbindung ein, in der Methyl in Ethyl, n-Propyl-, Isopropyl-, n-Butyl, Isobutyl oder tert-Butyl geändert ist.

[0099] Ferner schließen spezielle Beispiele der Methacrylsäureesterverbindung Methylmethacrylat und eine Verbindung ein, in der Methyl in Ethyl, n-Propyl, Isopropyl, n-Butyl, Isobutyl oder tert-Butyl geändert ist.

[0100] Ein Ethylen- $\alpha$ -Olefin-Copolymer ist als Copolymer bevorzugt, das mit dem erfindungsgemäßen Verfahren zur Herstellung eines olefinischen Polymers hergestellt wird, und spezielle Beispiele der Kombination von Monomeren, die ein Copolymer bilden, schließen Ethylen und Propylen, Ethylen und Buten-1, Ethylen und Hexen-1, Ethylen und Octen-1, sowie Propylen und Buten-1 ein. Jedoch sollte die vorliegende Erfindung nicht auf diese Kombinationen beschränkt sein.

[0101] Ferner kann ein Kettenübertragungsmittel, wie Wasserstoff oder eine Silanverbindung zugegeben werden, um das Molekulargewicht des erfindungsgemäßen Olefinpolymers einzustellen.

#### Beispiele

[0102] Die vorliegende Erfindung wird im Einzelnen gemäß den nachstehenden Beispielen veranschaulicht.

[0103] Ferner wurden die Messwerte der jeweiligen Punkte in den Beispielen mit den nachstehend beschriebenen Verfahren gemessen.

#### (1) Innere Viskosität ( $[\eta]$ : dl/g):

[0104] Sie wurde mit einem Viskosimeter des Ubbelohde-Typs bei 135°C in Tetralin gemessen.

#### (2) Zahlenmittel des Molekulargewichts ( $M_n$ ) und Molekulargewichtsverteilung ( $M_w/M_n$ ):

[0105] Sie wurde durch Gelpermeationschromatographie (GPC) unter Verwendung von Polystyrol als Standard unter den nachstehend beschriebenen Bedingungen abgeschätzt.

Vorrichtung	Typ 150CV, hergestellt von Millipore-Waters Company Ltd.
Säule	Shodex M/S 80
Messtemperatur	145°C, Lösungsmittel: o-Dichlorbenzol
Probenkonzentration	5 mg/8 ml

#### (3) Schmelzpunkt ( $T_m$ °C):

[0106] Er wurde mit DSC-VII, hergestellt von Perkin-Elmer Company Ltd. unter den nachstehenden Bedingungen gemessen.

Temperaturerhöhung	40°C–150°C (10°C/min), Halten für 5 Minuten
Abkühlen	150°C–40°C (5°C/min), Halten für 10 Minuten
Messung	40°C–160°C (5°C/min)

#### (4) $^1\text{H-NMR}$ -Spektrum:

[0107] Es wurde auf einem JEOL JNM-EX270-Spektrometer aufgezeichnet. Ein im Beispiel beschriebenes deuteriertes Lösungsmittel wurde verwendet und die Messung bei Raumtemperatur durchgeführt.

#### (5) Massenanalyse des Komplexes:

[0108] Sie wurde unter Verwendung eines Massenanalysators Typ JEOL JMS-700 durchgeführt.

[0109] Die während der Polymerisation in den nachstehend beschriebenen Beispielen verwendeten jeweiligen Verbindungen (C) und (D) sind folgende:

Triisobutylaluminium: Kommerzielles Produkt, hergestellt von Toso-Akzo Company Ltd.

Triisobutylaluminium wurde mit Toluol verdünnt und als 1 mol/l Lösung verwendet.

Triethylaluminium: Kommerzielles Produkt, hergestellt von Toso-Akzo Company Ltd.

Triethylaluminium wurde mit Toluol verdünnt und als 1 mol/l Lösung verwendet.

PMAO: PMAO-S, hergestellt von Toso-Akzo Company Ltd.

3 mol/l Lösung von (Poly)methylaluminoxan wurde verwendet.

MMAO: Hergestellt von Toso-Akzo Company Ltd.

2,25 mol/l Hexanlösung von (Poly)methylisobutylaluminoxan wurde verwendet.

Triphenylcarbeniumtetrakis(pentafluorphenyl)borat: Kommerzielles Produkt, hergestellt von Toso-Akzo Company Ltd. Triphenylcarbeniumtetrakis(pentafluorphenyl)borat wurde verdünnt und als 0,001 mol/l Lösung verwendet.

#### Bezugsbeispiel 1

[0110] Unter einer Stickstoffatmosphäre wurden 3,0 g (10,4 mmol) (R)-2-Amino-2-phenyl-1,1-diphenylethanol und 0,685 g (5,2 mmol) Dimethylmalonat in 150 ml m-Xylol gelöst. Die Lösung wurde 5 Stunden bei 120°C gerührt. Dann wurden 147 mg (0,52 mmol) Titanetraisopropoxid zur Reaktionslösung gegeben und das Gemisch 48 Stunden bei 120°C gerührt.

[0111] Nach vollständiger Umsetzung wurde das m-Xylol unter vermindertem Druck verdampft und 2,35 g (Ausbeute: 74,1%) 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-phenyl-5,5-diphenyloxazolin] durch Reinigen mit Chromatographie (neutrales Aluminiumoxid/Essigsäureethylester : Hexan = 3 : 2) erhalten.

$^1\text{H NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ , TMS)  $\delta$  3.91 (s, 2H), 6.82–7.14 (m, 18H), 7.33–7.43 (m, 8H), 7.68 (d, 4H)

#### Bezugsbeispiel 2

[0112] 2,2'-Methylenbis[(4S)-4-isopropyl-5,5-diphenyloxazolin] wurde aus 2,66 g (10,4 mmol) (S)-2-Amino-3-methyl-1,1-diphenylbutanol und 0,685 g (5,2 mmol) Dimethylmalonat mit 76,5% Ausbeute (schwachgelbes Pulver, 2,15 g) unter Wiederholen des gleichen Verfahrens wie für Bezugsbeispiel 1 beschrieben hergestellt.

$^1\text{H NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ , TMS)  $\delta$  0.64 (d, 6H, J = 6.9), 0.96 (d, 6H, J = 6.9), 1.70–1.85 (m, 2H), 3.64 (s, 2H), 4.63 (d, 2H, J = 4.9), 7.21–7.51 (m, 20H)

#### Bezugsbeispiel 3

[0113] 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-phenyl-5,5-dimethyloxazolin] wurde aus 1,72 g (10,4 mmol) (R)-2-Amino-2-phenyl-1,1-dimethylethanol und 0,685 g (5,2 mmol) Dimethylmalonat mit 75,4% Ausbeute (schwachgelbes Öl, 1,42 g) unter Wiederholen des gleichen Verfahrens wie für Bezugsbeispiel 1 beschrieben hergestellt.

$^1\text{H NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ , TMS)  $\delta$  0.88 (s, 6H), 1.60 (s, 6H), 3.53 (s, 2H), 4.90 (s, 2H), 7.20–7.35 (m, 10H)

#### Bezugsbeispiel 4

[0114] 2,2'-Methylenbis[spiro{(4R)-4-phenyloxazolin-5,1'-cyclopentan}] wurde aus 1,99 g (10,4 mmol) 1-[(R)-Aminophenylmethyl]cyclopentanol und 0,685 g (5,2 mmol) Dimethylmalonat mit 77,5% Ausbeute (schwachgelbes Öl, 1,66 g) unter Wiederholen des gleichen Verfahrens wie für Bezugsbeispiel 1 beschrieben hergestellt.

$^1\text{H NMR}$  ( $\text{CDCl}_3$ , TMS)  $\delta$  1.00–1.83 (m, 16H), 3.55 (s, 2H), 5.01 (s, 2H), 7.20–7.34 (m, 10H)

#### Beispiel 1

[0115] Unter einer Stickstoffatmosphäre wurden 567 mg (1,40 mmol) 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-phenyl-5,5-dimethyloxazolin] und 400 mg (1,30 mmol) Dimethoxyethannickelbromid mit 25 ml Dichlormethan gemischt und das Gemisch 18 Stunden bei Raumtemperatur gerührt. Das Lösungsmittel wurde unter vermindertem Druck verdampft und das Produkt 4 Mal mit Hexan (20 ml) gewaschen und unter vermindertem Druck getrocknet. 700 mg (Ausbeute: 93%) 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-phenyl-5,5-dimethyloxazolin]nickelbromid wurde als schwach rosafarbenes Pulver erhalten.

#### Beispiel 2

[0116] Unter einer Stickstoffatmosphäre wurden 323 mg (529 mmol) 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-phenyl-5,5-diphenyloxazolin] und 163 mg (529 mmol) Dimethoxyethannickelbromid mit 25 ml Dichlormethan gemischt und

das Gemisch 18 Stunden bei Raumtemperatur gerührt. Das Lösungsmittel wurde unter vermindertem Druck verdampft und das Produkt 4 Mal mit (Toluol : Hexan = 1 : 2, 20 ml) gewaschen und unter vermindertem Druck getrocknet. 180 mg (Ausbeute: 41%) 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-phenyl-5,5-diphenyloxazolinylnickelbromid wurde als schwach rosafarbenes Pulver erhalten.

#### Beispiel 3

[0117] Unter einer Stickstoffatmosphäre wurden 250 mg (0,69 mmol) 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-phenyl-5,5-diphenyloxazolin], hergestellt in Bezugsbeispiel 1, und 190 mg (0,69 mmol) Bis(1,5-cyclooctadien)nickel(0) mit 23 ml Toluol in einem mit einem Rührer ausgestatteten auberginenförmigen 50 ml-Kolben gemischt und das Gemisch 18 Stunden bei Raumtemperatur gerührt. Der Niederschlag wurde unter Verwendung eines mit Celite bedeckten Glasfilters abfiltriert und dann eine Lösung der Übergangsmetallverbindung erhalten.

[0118] 200 ml gereinigtes m-Xylol wurden in einen aus Edelstahl hergestellten 400 ml-Autoklaven mit Rührer unter Argon gegeben. 11 ml (2,5 mmol) MMAO und 1,7 ml (50  $\mu$ mol) der vorher hergestellten Lösung der Übergangsmetallverbindung wurden zugegeben, wobei das Molverhältnis [Al]/[Ni] 500 betrug. Ethylengas mit 35 kgf/cm<sup>2</sup> (34,32·10<sup>5</sup> Newton/m<sup>2</sup>) wurde eingebracht und die Polymerisation 60 Minuten bei Raumtemperatur durchgeführt. Der Ethylengasdruck wurde während der Polymerisation konstant gehalten. Dann wurde die Polymerisation durch Einspritzen von 15 ml Ethanol gequencht. Nicht umgesetztes Ethylengas wurde ausgespült und der Inhalt des Autoklaven in 400 ml Ethanol gegossen, zu dem 50 ml 2 n Salzsäure zugegeben worden waren, und das Polymer ausgefällt. Das Polymer wurde abfiltriert und bei 60°C etwa 4 Stunden getrocknet. Als Ergebnis wurden 2,33 g Polyethylen erhalten. Mn = 9390; Mw/Mn = 52,4.

#### Beispiel 4

[0119] Unter einer Stickstoffatmosphäre wurden 26 mg (0,45  $\mu$ mol) in Beispiel 1 hergestelltes 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-phenyl-5,5-dimethyloxazolinylnickelbromid in 47 ml gereinigtem Toluol in einem mit einem Rührer ausgestatteten 100 ml-Schlenkrohr gelöst. Die Lösung wurde auf 0°C abgekühlt, 5 ml (1,5 mmol) PMAO zugegeben und das Gemisch 10 Minuten gerührt. Das Molverhältnis [Al]/[Ni] betrug 333.

[0120] 150 ml gereinigtes Toluol wurden in einen aus Edelstahl hergestellten 400 ml-Autoklaven mit Rührer unter Argon gegeben und das Innere des Autoklaven auf 30°C eingestellt. 10 ml (3 mmol) PMAO und 47 ml (45  $\mu$ mol) der vorher hergestellten Lösung der Übergangsmetallverbindung wurden zugegeben, wobei das Molverhältnis [Al]/[Ni] im gesamten System 1000 betrug. Nach 5 Minuten Rühren wurde Ethylengas mit 35 kgf/cm<sup>2</sup> (34,32·10<sup>5</sup> Newton/m<sup>2</sup>) eingebracht und die Polymerisation 60 Minuten bei 30°C durchgeführt. Der Ethylengasdruck wurde während der Polymerisation konstant gehalten. Dann wurde die Polymerisation durch Einspritzen von 15 ml Wasser gequencht. Die Menge an verbrauchtem Ethylen betrug 22,5 g (TON 17800 h<sup>-1</sup>). Der Autoklav wurde unter Verwendung von Trockeneis/Ethanol auf -50°C oder weniger abgekühlt und das nicht umgesetzte Ethylengas ausgespült. Das Oligomer aus dem Autoklaveninhalt wurde in das mit Trockeneis/Ethanol gekühlte Schlenkrohr extrahiert und das Zusammensetzungsverhältnis durch Gaschromatographie bestimmt. Die Zusammensetzung des Oligomers betrug 90% C4-Bestandteil und 3% C6-Bestandteil. Das feste Polymer wurde in 400 ml Ethanol gegossen, zu dem 50 ml 2 n Salzsäure gegeben worden waren, und das Polymer ausgefällt. Das Polymer wurde abfiltriert und etwa 4 Stunden bei 60°C getrocknet. Als Ergebnis wurden 460 mg Polyethylen erhalten. TON bedeutet eine Molzahl an umgesetztem Ethylen pro Katalysator Mol pro Zeiteinheit.

#### Beispiel 5

[0121] Unter einer Stickstoffatmosphäre wurden 7 mg (12  $\mu$ mol) in Beispiel 1 hergestelltes 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-phenyl-5,5-dimethyloxazolinylnickelbromid in 12 ml gereinigtem Toluol in einem mit einem Rührer ausgestatteten auberginenförmigen 50 ml-Kolben gelöst. 200 ml gereinigtes Toluol wurden in einen aus Edelstahl hergestellten 400 ml-Autoklaven mit Rührer unter Argon gegeben und das Innere des Autoklaven auf 30°C eingestellt. Dazu wurden 0,5 ml (0,5 mmol) Triisobutylaluminium und 1 ml (1  $\mu$ mol) der vorher hergestellten Lösung der Übergangsmetallverbindung gegeben, wobei das Molverhältnis [Al]/[Ni] 500 betrug. Nach 5 Minuten Rühren bei 30°C wurden 3 ml (3  $\mu$ mol) Triphenylcarbeniumtetrakis(pentafluorphenyl)borat zugegeben und gerührt. Das Molverhältnis [Ni]/[B] betrug 3. Ethylengas mit 35 kgf/cm<sup>2</sup> (34,32 · 10<sup>5</sup> Newton/m<sup>2</sup>) wurde eingebracht und die Polymerisation 60 Minuten bei 30°C durchgeführt. Der Ethylengasdruck wurde während der Polymerisation konstant gehalten. Dann wurde die Polymerisation durch Einspritzen von 15 ml Ethanol gequencht. Nicht umgesetztes Ethylengas wurde ausgespült und der Inhalt des Autoklaven in 400 ml Ethanol gegossen, zu dem 50 ml 2 n Salzsäure gegeben worden waren, und das Polymer ausgefällt. Das Polymer wurde abfiltriert und etwa 4 Stunden bei 60°C getrocknet. Als Ergebnis wurden 8,40 g Polyethylen erhalten.  $[\eta]$  = 1,8 dl/g; Mn = 110000; Mw/Mn = 1,7.

## Beispiel 6

[0122] Die gleiche Vorrichtung und das gleiche Verfahren wie in Beispiel 5 wurden durchgeführt, außer dass die Menge an Triisobutylaluminium auf 1 mmol in Beispiel 5 geändert wurde (wobei das Molverhältnis [Al]/[Ni] 1000 betrug). Als Ergebnis wurden 1,5 g Polyethylen erhalten.  $[\eta] = 1,56$  dl/g;  $M_n = 110000$ ;  $M_w/M_n = 1,7$ .

## Beispiel 7

[0123] Die gleiche Vorrichtung und das gleiche Verfahren wie in Beispiel 5 wurden durchgeführt, außer dass Triisobutylaluminium auf 0,5 ml (0,5 mmol) Triethylaluminium in Beispiel 5 geändert wurde. Als Ergebnis wurden 0,35 g Polyethylen erhalten.  $M_n = 129000$ ;  $M_w/M_n = 4,6$ .

## Beispiel 8

[0124] Eine Polymerisation wurde unter Verwendung der gleichen Vorrichtung und des gleichen Verfahrens wie in Beispiel 5 durchgeführt, außer dass 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-phenyl-5,5-dimethyloxazolinylnickeldibromid in in Beispiel 2 synthetisiertes 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-phenyl-5,5-diphenyloxazolinylnickeldibromid geändert wurde und die Menge des eingebrachten Ethylengases 10 kgf/cm<sup>2</sup> betrug. Als Ergebnis wurden 7,50 g Polyethylen erhalten. Die innere Viskosität ( $[\eta]$ ) des erhaltenen Polyethylens betrug 1,50 dl/g, das Zahlenmittel des Molekulargewichts ( $M_n$ ) 101000 und die Molekulargewichtsverteilung ( $M_w/M_n$ ) 1,9.

## Beispiel 9

[0125] Unter einer Stickstoffatmosphäre wurden 7 mg (12  $\mu$ mol) in Beispiel 1 synthetisiertes 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-phenyl-5,5-dimethyloxazolinylnickeldibromid in 12 ml gereinigtem Toluol in einem mit einem Rührer ausgestatteten auberginenförmigen 50 ml-Kolben gelöst. Die Atmosphäre eines aus Edelstahl hergestellten 400 ml-Autoklaven mit Rührer wurde durch Argon ersetzt, 200 ml gereinigtes Toluol eingebracht und das Innere des Autoklaven auf 30°C eingestellt. Dazu wurden 0,5 ml (0,5 mmol) Triisobutylaluminium und 1 ml (1  $\mu$ mol) einer Lösung der vorher hergestellten Übergangsmetallverbindung gegeben. Das Molverhältnis [Al]/[Ni] betrug 500. Nachdem das Gemisch 5 Minuten bei 30°C gerührt worden war, wurden 3 ml (3  $\mu$ mol) Triphenylcarbeniumtetrakis(pentafluorphenyl)borat zugegeben und das Gemisch gerührt. Das Molverhältnis [Ni]/[B] betrug 3. Dazu wurden 30 ml Hexen-1 gegeben, Ethylengas wurde mit 20 kgf/cm<sup>2</sup> (19,61 · 10<sup>5</sup> Newton/m<sup>2</sup>) eingebracht und die Polymerisation 60 Minuten bei 30°C durchgeführt. Ethylengas wurde kontinuierlich eingebracht, um den Druck des Systems währenddessen konstant zu halten. Dann wurde die Polymerisation durch Einbringen von 15 ml Ethanol unter Druck beendet. Nicht umgesetztes Ethylengas wurde ausgespült und der Inhalt des Autoklaven in 400 ml Ethanol eingebracht, zu dem 50 ml 2 n Salzsäure gegeben worden waren, und ein abgeschiedenes Polymer durch Filtration abgetrennt und etwa 4 Stunden bei 60°C getrocknet. Als Ergebnis wurden 4,00 g Polymer erhalten. Die innere Viskosität ( $[\eta]$ ) des erhaltenen Polymers betrug 1,72 dl/g, das Zahlenmittel des Molekulargewichts ( $M_n$ ) 102000, die Molekulargewichtsverteilung ( $M_w/M_n$ ) 1,7 und der Schmelzpunkt ( $T_m$ ) 118°C.

## Beispiel 10

[0126] Eine Polymerisation wurde unter Verwendung der gleichen Vorrichtung und des gleichen Verfahrens wie in Beispiel 9 durchgeführt, außer dass 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-phenyl-5,5-dimethyloxazolinylnickeldibromid in in Beispiel 2 synthetisiertes 2,2'-Methylenbis[(4R)-4-phenyl-5,5-diphenyloxazolinylnickeldibromid geändert wurde, die Menge an Hexen-1 auf 15 ml geändert wurde und die Menge an eingebrachtem Ethylengas auf 5 kgf/cm<sup>2</sup> geändert wurde. Als Ergebnis wurden 6,40 g eines Polymers erhalten. Die innere Viskosität ( $[\eta]$ ) des erhaltenen Polymers betrug 1,08 dl/g, das Zahlenmittel des Molekulargewichts ( $M_n$ ) 82000, die Molekulargewichtsverteilung ( $M_w/M_n$ ) 1,8 und der Schmelzpunkt ( $T_m$ ) 103°C.

## Beispiel 11

[0127] Eine Polymerisation wurde unter Verwendung der gleichen Vorrichtung und des gleichen Verfahrens wie in Beispiel 5 durchgeführt, außer dass Hexen-1 in 20 g Buten-1 in Beispiel 10 geändert wurde. Als Ergebnis wurden 4,0 g eines Polymers erhalten. Die innere Viskosität ( $[\eta]$ ) des erhaltenen Polymers betrug 0,99 dl/g, das Zahlenmittel des Molekulargewichts ( $M_n$ ) 89000, die Molekulargewichtsverteilung ( $M_w/M_n$ ) 1,7 und der Schmelzpunkt ( $T_m$ ) 64°C.

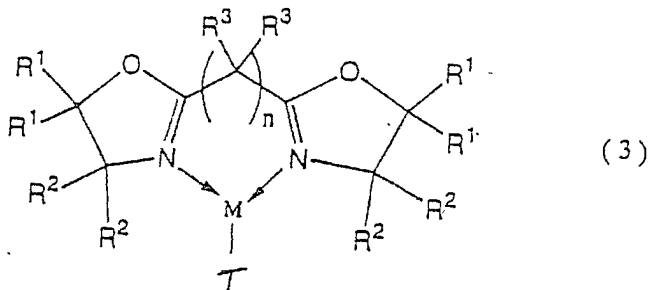
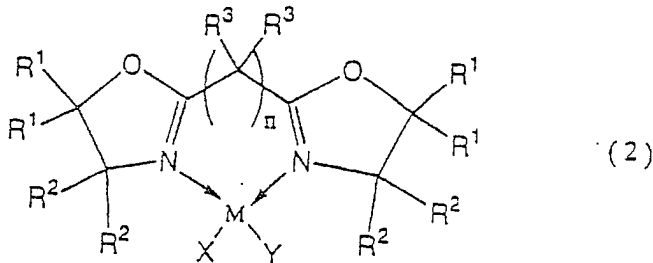
[0128] Gemäß der vorliegenden Erfindung werden eine neue Übergangsmetallverbindung, die leicht synthetisiert werden kann, ein Katalysatorbestandteil zur Olefinpolymerisation, der die Übergangsmetallverbindung



umfasst, ein Katalysator zur Olefinpolymerisation, der hohe Polymerisationsaktivität bei Polymerisation des Olefins unter Verwendung der Übergangsmetallverbindung zeigt, und ein Verfahren zur effizienten Herstellung eines Olefinhomopolymers und -copolymers unter Verwendung des Katalysators zur Olefinpolymerisation bereitgestellt.

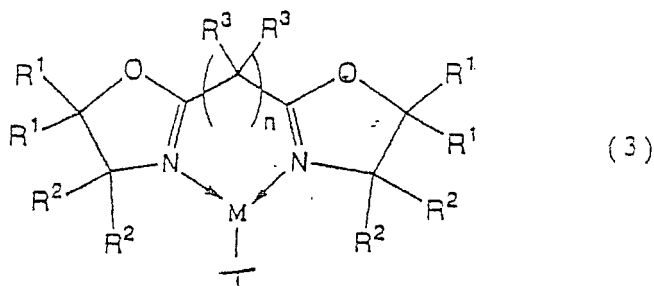
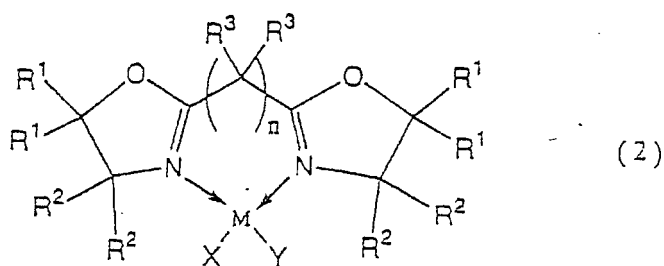
### Patentansprüche

1. Übergangsmetallverbindung entsprechend der folgenden Formel (2) oder (3),



wobei M ein Nickelatom darstellt und T eine koordinativ gebundene Verbindung darstellt; N ein Stickstoffatom und O ein Sauerstoffatom darstellt; jeder der Reste  $R^1$ ,  $R^2$  und  $R^3$  unabhängig ein Wasserstoffatom, ein Halogenatom, einen Alkyl-, einen Aryl-, einen Aralkyl-, einen Alkoxy-, einen Aryloxy-, einen Aralkyloxyrest oder eine Cyanogruppe darstellen, wobei alle Reste  $R^1$ ,  $R^2$  und  $R^3$  gleich oder unterschiedlich und gegebenenfalls verknüpft sein können, um einen Ring zu bilden; alle Reste  $R^1$  nicht gleichzeitig Wasserstoffatome sein können; das Symbol „n“ eine ganze Zahl darstellt, welche die Bedingung  $0 \leq n \leq 5$  erfüllt; jeder der Reste X und Y unabhängig ein Wasserstoffatom, ein Halogenatom, einen Alkyl-, einen Aryl-, einen Aralkyl-, einen Alkoxy-, einen Aryloxy-, einen Aralkyloxy-, einen Sulfonyloxy- oder einen substituierten Silylrest darstellen, oder X und Y gegebenenfalls verknüpft sein können, um einen Ring zu bilden.

2. Katalysator zur Olefinpolymerisation, umfassend eine Übergangsmetallverbindung entsprechend der folgenden Formel (2) oder (3),



wobei M ein Nickel-, ein Palladium-, ein Kobalt-, ein Rhodium- oder ein Rutheniumatom darstellt, und T eine koordinativ gebundene Verbindung darstellt; N ein Stickstoffatom und O ein Sauerstoffatom darstellt; jeder der Reste  $R^1$ ,  $R^2$  und  $R^3$  unabhängig ein Wasserstoffatom, ein Halogenatom, einen Alkyl-, einen Aryl-, einen Aralkyl-, einen Alkoxy-, einen Aryloxy-, einen Aralkyloxyrest oder eine Cyanogruppe darstellen, wobei alle Reste  $R^1$ ,  $R^2$  und  $R^3$  gleich oder unterschiedlich und gegebenenfalls verknüpft sein können, um einen Ring zu bilden; alle Reste  $R^1$  nicht gleichzeitig Wasserstoffatome sein können; das Symbol „n“ eine ganze Zahl darstellt, welche die Bedingung  $0 \leq n \leq 5$  erfüllt; jeder der Reste X und Y unabhängig ein Wasserstoffatom, ein Halogenatom, einen Alkyl-, einen Aryl-, einen Aralkyl-, einen Alkoxy-, einen Aryloxy-, einen Aralkyloxy-, einen Sulfonyloxy- oder einen substituierten Silylrest darstellen, oder X und Y gegebenenfalls verknüpft sein können, um einen Ring zu bilden, und

(C) und/oder (D), wie nachstehend beschrieben:

(C) eine oder mehrere Aluminiumverbindungen, ausgewählt aus (C1)–(C3):

(C1): eine Organoaluminiumverbindung, dargestellt durch die allgemeine Formel  $E^1_a AlZ_{3-a}$ ,

(C2): ein cyclisches Aluminoxan, welches eine Struktur entsprechend der allgemeinen Formel  $\{-Al(E^2)-O\}_b$  aufweist,

(C3): ein lineares Aluminoxan, welches eine Struktur entsprechend der allgemeinen Formel  $E^3\{-Al(E^3)-O\}_c AlE^3_2$  aufweist,

wobei jeder der Reste  $E^1$ ,  $E^2$  und  $E^3$  ein Kohlenwasserstoffrest ist, und alle Reste  $E^1$ ,  $E^2$  und  $E^3$  gleich oder unterschiedlich sein können; Z ein Wasserstoffatom oder ein Halogenatom darstellt und alle Reste Z gleich oder unterschiedlich sein können; das Symbol „a“ eine Zahl darstellt, welche die Bedingung  $0 < a \leq 3$  erfüllt, b eine Zahl von 2 oder mehr darstellt, und c eine ganze Zahl von 1 oder mehr darstellt,

(D): eine Borverbindung gemäß (D1)–(D3) wie nachstehend beschrieben:

(D1): eine Borverbindung entsprechend der allgemeinen Formel  $BQ^1Q^2Q^3$

(D2): eine Borverbindung entsprechend der allgemeinen Formel  $G^+(BQ^1Q^2Q^3Q^4)^-$ ,

(D3): eine Borverbindung entsprechend der allgemeinen Formel  $(L-H)^+(BQ^1Q^2Q^3Q^4)^-$

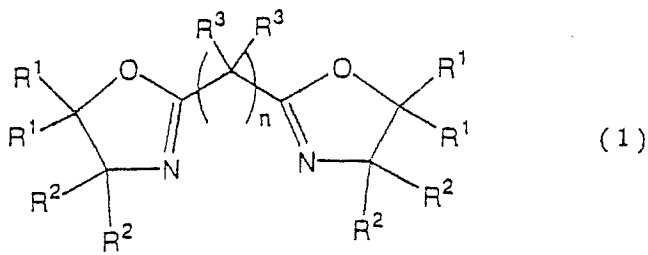
wobei B ein Boratom im dreiwertigen Zustand ist,

$Q^1$ ,  $Q^2$ ,  $Q^3$  bzw.  $Q^4$  ein Halogenatom, einen Alkyl-, einen halogenierten Alkyl-, einen substituierten Silyl-, einen Alkoxy- oder einen disubstituierten Aminorest darstellen und sie gleich oder unterschiedlich sein können;  $G^+$  ein anorganisches oder organisches Kation ist; L eine neutrale Lewisbase darstellt und  $(L-H)^+$  eine Brønsted-säure darstellt.

3. Katalysator zur Olefinpolymerisation gemäß Anspruch 2, wobei M ein Nickel- oder Palladiumatom darstellt.

4. Katalysator zur Olefinpolymerisation, umfassend (A) und (B) wie nachstehend beschrieben und (C) und/oder (D) wie in Anspruch 2 definiert:

(A): eine Bisoxazolinverbindung entsprechend der allgemeinen Formel (1),



wobei N ein Stickstoffatom und O ein Sauerstoffatom darstellt; jeder der Reste  $R^1$ ,  $R^2$  und  $R^3$  unabhängig ein Wasserstoffatom, ein Halogenatom, einen Alkyl-, einen Aryl-, einen Aralkyl-, einen Alkoxy-, einen Aryloxy-, einen Aralkyloxyrest oder eine Cyanogruppe darstellen, wobei alle Reste  $R^1$ ,  $R^2$  und  $R^3$  gleich oder unterschiedlich und gegebenenfalls verknüpft sein können, um einen Ring zu bilden; mit der Maßgabe, dass nicht alle Reste  $R^3$  gleichzeitig Wasserstoffatome sind; das Symbol „n“ eine ganze Zahl darstellt, welche die Bedingung  $0 \leq n \leq 5$  erfüllt,

(B): eine Nickel-, Palladium-, Kobalt-, Rhodium- oder Rutheniumverbindung.

5. Katalysator zur Olefinpolymerisation gemäß Anspruch 4, wobei (B) eine Nickel- oder Palladiumverbindung ist.

6. Verfahren zur Herstellung eines olefinischen Polymers, wobei, unter Verwendung eines Katalysators zur Olefinpolymerisation gemäß einem der Ansprüche 2 bis 5, Olefine homopolymerisiert oder Olefine mit anderen Olefinen und/oder einer anderen polymerisierbaren ungesättigten Verbindung copolymerisiert werden.

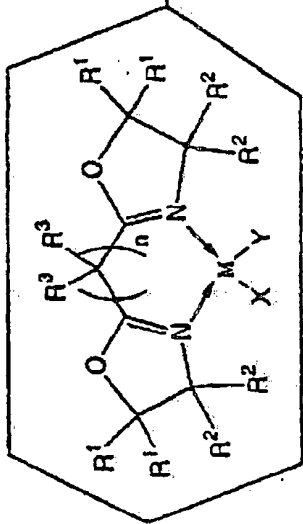
7. Verfahren zur Herstellung eines olefinischen Polymers gemäß Anspruch 6, wobei das olefinische Polymer ein Copolymer von Ethylen mit einem  $\alpha$ -Olefin ist.

Es folgt ein Blatt Zeichnungen

Anhängende Zeichnungen

Figur 1

(A) Übergangsmetallbestandteil



M: Ni, Pd, Co, Rh, Ru

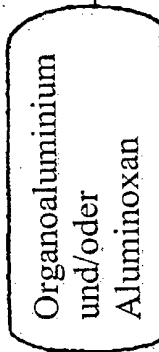
R1-3: Wasserstoffatom, Halogenatom, Alkylrest, Arylrest, Alkylrest, Arylrest,

Arylrest, Alkoxyrest, Aryloxyrest,

Aralkylrest, Aryloxyrest, Cyanogruppe

n:  $0 \leq n \leq 5$

(B) Metallorganischer Bestandteil



(C) Dritter Bestandteil

Borverbindung

