

República Federativa do Brasil
Ministério do Desenvolvimento, Indústria
e do Comércio Exterior
Instituto Nacional da Propriedade Industrial

(21) **PI 0714425-3 A2**

(22) Data de Depósito: 09/07/2007
(43) Data da Publicação: 12/03/2013
(RPI 2201)



(51) *Int.Cl.:*
H01B 3/30

(54) **Título:** FILME DE ISOLAMENTO ELÉTRICO

(30) **Prioridade Unionista:** 10/07/2006 EP 06 014270.0

(73) **Titular(es):** Borealis Technology Oy

(72) **Inventor(es):** Eberhard Ernst, Franck Jacobs, Lauri Huhtanen, Manfred Stadlbauer, Yvo Daniels

(74) **Procurador(es):** Dannemann, Siemsen, Bigler & Ipanema Moreira

(86) **Pedido Internacional:** PCT EP2007006056 de 09/07/2007

(87) **Publicação Internacional:** WO 2008/006529 de 17/01/2008

(57) **Resumo:** FILME DE ISOLAMENTO ELÉTRICO. A presente invenção refere-se a um filme para capacitor que compreende polipropileno a) tendo solúveis em xileno (XS) de pelo menos 0,5% em peso e b) compreendendo uma porção cristalina que funde na faixa de temperatura de 200 a 105°C determinada por técnica de segregação isotérmica em etapas (SIST), em que a dita porção cristalina compreende uma parte que cristaliza a ou abaixo de 140°C e a dita parte representa pelo menos 10% em peso da dita porção cristalina.

Relatório Descritivo da Patente de Invenção para "**FILME DE ISOLAMENTO ELÉTRICO**".

A presente invenção refere-se a filmes de isolamento elétrico, particularmente a filmes para capacitor, e a seu uso.

5 Filmes para capacitor devem suportar condições extremas como altas temperaturas e alta resistência à interrupção elétrica. Ademais é desejável que filmes para capacitor possuam boas propriedades mecânicas como uma alta rigidez. Até agora, há opinião prevalente no campo técnico de tecnologia de capacitor que a alta resistência à desagregação somente pode
10 ser obtida com um nível baixo de condução elétrica, causada por metais residuais, como o titânio, alumínio e boro. Entretanto, polipropilenos tradicionais produzidos com um catalisador de Ziegler-Natta são contaminados com grandes quantidades de componentes catalisadores residuais. Para que se atinja os desejados baixos níveis de impurezas na fabricação de polipropi-
15 leno adequado para filmes para capacitor, os polipropilenos devem ser exa-geradamente lavados, um processo que consome tempo e é custoso. Para superar a etapa de lavagem, polipropilenos produzidos na presença de cata-
lisadores de sítio único, suportados, foram desenvolvidos, como descrito, por exemplo, em WO 02/16455 A1, com baixos níveis de impureza, incluindo
20 impurezas metálicas e não-metálicas, como alumínio, titânio, silício e halo-gênio (como Cl e F). Entretanto, para se atingir esse objetivo de baixos ní-
veis de impureza, as condições do processo devem ser controladas muito cuidadosamente. Ademais, tais polipropilenos têm a desvantagem de não
25 poderem ser processados de maneira estável. Em particular, filmes basea-
dos em polipropilenos produzidos na presença de catalisadores de sítio úni-
co adequados sofrem de afundamento e quebram facilmente quando fabri-
cados.

Portanto, o objetivo da presente invenção é fornecer um filme para capacitor com alta resistência à temperatura e com alta resistência à
30 interrupção elétrica, juntamente com boas propriedades mecânicas, em particular rigidez alta.

A presente invenção é baseada no achado de que um equilíbrio

aperfeiçoado entre alta resistência térmica, alta resistência à interrupção elétrica e boas propriedades mecânicas pode ser atingido através da introdução de um grau específico de ramificação de cadeia curta junto com uma quantidade específica de áreas não cristalinas. Em particular, foi descoberto que

5 as boas propriedades podem ser atingidas independentemente da quantidade de impurezas presentes, isto é, se o polipropileno for composto por altas quantidades de alumínio, titânio, silício, halogênio (tais como Cl e F) e/ou boro.

Assim, de acordo, em uma primeira modalidade da presente invenção, o objeto delineado acima é solucionado através do fornecimento de

10 um filme de isolamento elétrico, como um filme para capacitor, compreendendo um polipropileno em que o filme e/ou polipropileno tem/têm

- a) solúveis em xileno (XS) de pelo menos 0,5 % em peso e
 - b) um índice de endurecimento de deformação ($SHI@1s^{-1}$) de
- 15 pelo menos 0,15, medido a uma taxa de deformação de $d\epsilon/dt$ de $1,00 s^{-1}$ a uma temperatura de $180^{\circ}C$, em que o índice de endurecimento de deformação (SHI) é definido como a inclinação do logaritmo na base 10 da função de crescimento de resistência tensão ($\lg(\eta E^{+})$) como função do logaritmo na base 10 da deformação Hencky ($\lg(\epsilon)$) na faixa de deformações Hencky entre 1 e 3.
- 20

Surpreendentemente, foi descoberto que os filmes para capacitor compreendendo um polipropileno com tais características têm propriedades superiores se comparados aos filmes do estado da técnica. Especialmente, os filmes para capacitor inventivos têm altos valores de resistência à

25 interrupção elétrica, também no caso em que altas quantidades de impurezas estão presentes no filme. Assim, a exagerada etapa de lavagem não é necessária como é nos polipropilenos do estado da técnica. Ademais, os filmes para capacitor em conformidade com essa invenção possuem, adicionalmente, resistência a altas temperaturas e são obtidos em estabilidade de

30 processamento alta e baixa temperatura de processamento. Ademais e surpreendentemente, o filme inventivo possui ainda boas propriedades mecânicas como alta rigidez expressa pelo módulo de deformação. Adicionalmente,

foi observado que o novo filme para capacitor, de acordo com essa invenção, mostra um aumento significativo da resistência à interrupção elétrica com o aumento da taxa de estiramento.

Um primeiro requisito da primeira modalidade da presente invenção é que o filme para capacitor composto por um polipropileno e/ou o próprio polipropileno tenha/tenham algum nível de solúveis em xileno, isto é, pelo menos 0,50 % em peso. Solúveis em xileno formam parte do polímero solúvel em xileno frio, determinado pela dissolução em xileno em ebulição e deixando que a parte insolúvel se cristalice da solução de resfriamento (para o método, veja abaixo na parte experimental). As porções solúveis em xileno contêm cadeias poliméricas de baixa estereorregularidade e são uma indicação da quantidade de áreas não cristalinas.

Preferivelmente, o componente de polipropileno do filme tem solúveis em xileno de mais de 0,60 % em peso. Por outro lado, a quantidade de solúveis em xileno não deve ser muito alta, já que eles representam um risco potencial de contaminação. Por conseguinte, é preferível que os solúveis em xileno não sejam mais que 1,50 % em peso, ainda mais preferivelmente não mais que 1,35 % em peso e ainda mais preferivelmente não mais que 1,00 % em peso. Em modalidades preferidas, os solúveis em xileno estão na faixa de 0,50 a 1,50 % em peso, porém mais preferivelmente na faixa de 0,60 a 1,35 % em peso, e ainda mais preferivelmente na faixa de 0,60 a 1,00 % em peso.

Preferivelmente, o filme para capacitor tem solúveis em xileno de mais de 0,60 % em peso. Ainda mais preferivelmente, o filme para capacitor tem solúveis em xileno de não mais que 1,50 % em peso, mais preferivelmente de não mais que 1,35 % em peso. Em particular, o filme tem solúveis em xileno na faixa de 0,50 a 1,50 % em peso, mais preferivelmente na faixa de 0,60 a 1,35 % em peso, e ainda mais preferivelmente na faixa de 0,60 a 1,00 % em peso.

Ademais, o filme para capacitor e/ou o componente de polipropileno do filme em conformidade com a presente invenção são caracterizados em particular pelas propriedades de escoamento de fusão extensional. O

escoamento extensional, ou a deformação que envolve o estiramento de um material viscoso, é o tipo dominante de deformação em fluxos convergentes e de espremedura que ocorre em operações de processamento de polímeros típicas. Medições de escoamento extensional são particularmente úteis na caracterização do polímero porque são muito sensíveis à estrutura molecular do sistema polimérico em teste. Quando a taxa de deformação de extensão verdadeira, também conhecida como a taxa de deformação de Hencky, é constante, a extensão simples é dita ser um “fluxo forte” no sentido de poder gerar um grau muito mais alto de orientação molecular e estiramento que fluxos em cisalhamento simples. Como consequência, escoamentos extensionais são muito sensíveis a efeitos à cristalinidade e macroestruturais, como ramificação de cadeia curta, e assim pode ser muito mais descritivo no que tange a caracterização do polímero que outros tipos de medição reológica de volume que se aplicam ao de fluxo de cisalhamento.

Assim, de acordo, um requisito dessa invenção é que o filme para capacitor e/ou o componente de polipropileno do filme tenha um índice de endurecimento de deformação ($\text{SHI}@1\text{s}^{-1}$) de pelo menos 0,15, mais preferivelmente de pelo menos 0,20, ainda mais preferivelmente o índice de endurecimento de deformação ($\text{SHI}@1\text{s}^{-1}$) está na faixa de 0,15 a 0,30, como 0,15 até menos que 0,30, e ainda mais preferivelmente na faixa de 0,15 a 0,29. Em uma modalidade posterior é preferível que o filme para capacitor e/ou o componente de polipropileno do filme para capacitor tenha um índice de endurecimento de deformação ($\text{SHI}@1\text{s}^{-1}$) na faixa de 0,20 a 0,30, como 0,20 até menos que 0,30, mais preferivelmente na faixa de 0,20 a 0,29.

O índice de endurecimento de deformação é uma medida para o comportamento de endurecimento de deformação da fusão do polipropileno. Ademais, valores do índice de endurecimento de deformação ($\text{SHI}@1\text{s}^{-1}$) superiores a 0,10 indicam um polímero não linear, isto é, polímero com ramificação de cadeia curta. Na presente invenção, o índice de endurecimento de deformação ($\text{SHI}@1\text{s}^{-1}$) é medido pela taxa de deformação $d\varepsilon/dt$ de $1,00\text{ s}^{-1}$ a uma temperatura de 180°C para determinação do comportamento de endurecimento de deformação, em que o índice de endurecimento de de-

formação ($\text{SHI} @ 1\text{s}^{-1}$) é definido como sendo a inclinação da função de crescimento de tensão de tração η_E^+ como uma função da deformação de Hencky ε em uma escala logarítmica entre 1,00 e 3,00 (vide figura 1). Assim, a deformação de Hencky ε é definida pela fórmula $\varepsilon = \dot{\varepsilon}_H \cdot t$, em que a taxa de tensão de Hencky é definida pela fórmula

$$\varepsilon_H = \frac{2 \cdot \Omega \cdot R}{L_0}$$

“ L_0 ” é o comprimento não suportado, fixado, da amostra do espécime, que é igual à distância de linha central entre os tambores mestre e escravo

“ R ” é o raio dos tambores terminais equidimensionais, e

10 “ Ω ” é a taxa de rotação do eixo de transmissão constante.

A função de crescimento de tensão de tração η_E^+ , por sua vez, é definida pela fórmula

$$\eta_E^+(\varepsilon) = \frac{F(\varepsilon)}{\dot{\varepsilon}_H \cdot A(\varepsilon)} \quad \text{com}$$

$$T(\varepsilon) = 2 \cdot R \cdot F(\varepsilon) \quad \text{e}$$

$$A(\varepsilon) = A_0 \cdot \left(\frac{d_s}{d_M} \right)^{2/3} \cdot \exp(-\varepsilon)$$

em que

a taxa de tensão de Hencky $\dot{\varepsilon}_H$ é definida como para a deformação de Hencky ε

“ F ” é a força de estiramento tangencial

“ R ” é o raio dos tambores terminais equidimensionais

15 “ T ” é o sinal de torque medido, relativo à força de estiramento tangencial “ F ”

“ A ” é a área transversal instantânea de um espécime fundido estirado

“ A_0 ” é a área transversal do espécime no estado sólido (ex, anterior à fusão)

“ d_s ” é a densidade no estado sólido e

“ d_M ” é a densidade do polímero.

20 Um outro parâmetro físico que é sensível à cristalinidade e aos efeitos macroestruturais é o assim chamado índice de multirramificação

(MBI), como será explicado em mais detalhes mais à frente.

De maneira similar à medição do (SHI@1s⁻¹), um índice endurecimento de deformação (SHI) pode ser determinado em diferentes taxas de tensão. Um índice de endurecimento de deformação (SHI) é definido como a inclinação do logaritmo na base 10 da função de crescimento de tensão de tração η_E^+ , $\lg(\eta_E^+)$, como função do logaritmo na base 10 da tensão de Hencky ϵ , $\lg(\epsilon)$, entre as tensões de Hencky entre 1,00 e 3,00 a uma temperatura de 180°C, em que um SHI@0,1s⁻¹ é determinado com uma taxa de deformação $\dot{\epsilon}_H$ de 0,10 s⁻¹, um SHI@0,3s⁻¹ é determinado com uma taxa de deformação $\dot{\epsilon}_H$ de 0,30 s⁻¹, um SHI@3,0s⁻¹ é determinado com uma taxa de deformação $\dot{\epsilon}_H$ de 3,00 s⁻¹, um SHI@10,0s⁻¹ é determinado com uma taxa de deformação $\dot{\epsilon}_H$ de 10,0 s⁻¹. Em comparação com o índice de endurecimento de deformação (SHI) nestas cinco taxas de tensão $\dot{\epsilon}_H$ de 0,10, 0,30, 1,00, 3,00, 10,00 s⁻¹, a inclinação do índice de endurecimento de deformação (SHI) como uma função do logaritmo na base 10 de $\dot{\epsilon}_H$, $\lg(\dot{\epsilon}_H)$ é uma medida característica para a ramificação de cadeia curta. Portanto, um índice de multirramificação (MBI) é definido como sendo a inclinação do índice de endurecimento de deformação (SHI) como uma função do $\lg(\dot{\epsilon}_H)$, isto é a inclinação de uma curva de ajuste linear do índice de endurecimento de deformação (SHI) *versus* $\lg(\dot{\epsilon}_H)$, aplicando-se o método dos mínimos quadrados, preferivelmente o índice de endurecimento de deformação (SHI) é definido em taxas de deformação $\dot{\epsilon}_H$ entre 0,05 s⁻¹ e 20,00 s⁻¹, mais preferivelmente entre 0,10 s⁻¹ e 10,00 s⁻¹, e ainda mais preferivelmente em taxas de deformação de 0,10, 0,30, 1,00, 3,00 e 10,00 s⁻¹. Ainda mais preferivelmente, os valores de SHI determinados pelas taxas de deformação de 0,10, 0,30, 1,00, 3,00 e 10,00 s⁻¹ são utilizados para ajuste linear de acordo com o método dos mínimos quadrados quando se está estabelecendo o índice de multirramificação (MBI).

Preferivelmente, o componente de polipropileno do filme para

capacitor possui um índice de multirramificação (MBI) de pelo menos 0,10, mais preferivelmente de pelo menos 0,15, e ainda mais preferivelmente o índice de multirramificação (MBI) está na faixa de 0,10 a 0,30. Em uma modalidade preferida o polipropileno tem um índice de multirramificação (MBI) na faixa de 0,15 a 0,30.

O componente de polipropileno do filme para capacitor da presente invenção é caracterizado pelo fato de que o índice de endurecimento de deformação (SHI) aumenta em certa medida com a taxa de deformação $\dot{\epsilon}_H$ (isto é, polipropilenos com ramificações de cadeia curta), por exemplo, um fenômeno que não é observado em polipropilenos lineares. Tipos de polímeros com ramificação única (assim chamados de polímeros Y contendo uma cadeia principal com uma única cadeia lateral longa e uma arquitetura que se assemelha a um "Y") ou tipos de polímero com ramificação em H (duas cadeias poliméricas acopladas com um grupo de ligação em ponte e uma arquitetura que se assemelha a um "H") bem como polímeros lineares não mostram tal relação, isto é, o índice de endurecimento de deformação (SHI) não é influenciado pela taxa de deformação (vide Figura 2). Por conseguinte, o índice de endurecimento de deformação dos polímeros conhecidos, em particular dos polipropilenos conhecidos, não aumenta com o aumento da taxa de deformação $d\epsilon/dt$. Processos de conversão industrial que implicam fluxo elongacional operam em taxas de extensão muito rápidas. Assim, a vantagem de um material que apresenta um endurecimento de deformação mais pronunciado (medido pelo índice de endurecimento de deformação SHI) em taxas de tensão altas se torna óbvia. Quão mais rápido o material é alongado, maior é o índice de endurecimento de deformação e assim, mais estável será o material durante a conversão.

Quando medido em um filme para capacitor, o índice de multirramificação (MBI) é de pelo menos 0,10, mais preferivelmente de pelo menos 0,15, e ainda mais preferivelmente o índice de multirramificação (MBI) está na faixa de 0,10 a 0,30. Em uma modalidade preferida, o filme para capacitor tem um índice de multirramificação (MBI) na faixa de 0,15 a 0,30.

Além disso, o polipropileno do filme para capacitor da presente

invenção tem um índice de ramificação g' preferível de menos que 1,00. Ainda mais preferivelmente, o índice de ramificação g' é maior que 0,7. Assim, é preferível que o índice de ramificação g' do polipropileno fique na faixa de mais de 0,7 a menos que 1,0, mais preferivelmente na faixa de mais que 0,7 a 0,95, ainda mais preferivelmente na faixa de 0,75 a 0,95. O índice de ramificação g' define o grau de ramificação e se correlaciona com a quantidade de ramificações de um polímero. O índice de ramificação g' é definido como $g' = [IV]_{br}/[IV]_{lin}$, no qual g' é o índice de ramificação, $[IV]_{br}$ é a viscosidade intrínseca do polipropileno ramificado e $[IV]_{lin}$ é a viscosidade intrínseca do polipropileno linear que possui o mesmo peso molecular médio (dentro de uma faixa de $\pm 3\%$) que o polipropileno ramificado. Assim, um valor de g' baixo é um indicador de um polímero altamente ramificado. Em outras palavras, se o valor de g' diminui, a ramificação do polipropileno aumenta. Referências são feitas a esse respeito em B. H. Zimm e W. H. Stockmeyer, J. Chem. Phys. 17,301 (1949). Esse documento é aqui incluído como referência.

A viscosidade intrínseca necessária para a determinação do índice de ramificação g' é medida de acordo com DIN ISO 1628/1, outubro de 1999 (em decalina a 135°C).

Quando medido no filme para capacitor, o índice de ramificação g' está preferivelmente na faixa de mais que 0,7 a menos que 1,0.

Para maiores informações acerca dos métodos de medição aplicados para a obtenção de dados para o índice de ramificação g' , a função do crescimento de tensão de tração η_E^+ , a taxa de tensão de Hencky $\dot{\epsilon}_H$, a tensão de Hencky ϵ e o índice de multirramificação (MBI), vide a seção de exemplos.

Além disso, é preferível que o filme para capacitor de acordo com esta invenção seja também especificado por sua distribuição de espessura lamelar. Foi reconhecido que uma maior resistência à interrupção elétrica é atingida caso o polímero seja composto por quantidades bem altas de lamelas delgadas. Assim, a aceitação do filme como um filme para capacitor não depende das quantidades de impurezas presentes no polipropileno, mas

sim das suas propriedades cristalinas. A técnica de segregação isotérmica em etapas (SIST) fornece uma possibilidade de determinação da distribuição de espessura lamelar. Quantidades bastante elevadas de porções de polímeros cristalizando-se a temperaturas mais baixas indicam uma quantidade bem maior de lamelas delgadas. Assim, o filme para capacitor inventivo e/ou o polipropileno do filme compreende(m) uma porção cristalina se cristalizando na faixa de temperatura de 200 a 105°C determinada pela técnica de segregação isotérmica por etapas (SIST), em que a referida porção cristalina compreende uma parte que, durante a fusão subsequente a uma taxa de 10°C/min funde a ou a menos que 140°C e a referida parte representa pelo menos 10% em peso, mais preferivelmente pelo menos 15% em peso, ainda mais preferivelmente pelo menos 20% em peso, e ainda mais preferivelmente 25% em peso da referida porção cristalina. Alternativamente, o filme para capacitor inventivo e/ou o polipropileno do filme compreende(m) uma porção cristalina se cristalizando na faixa de temperatura de 200 a 105°C determinada pela técnica de segregação isotérmica em etapas (SIST), em que a referida porção cristalina compreende uma parte que, durante a fusão subsequente a uma taxa de fusão 10°C/min funde a ou a menos que a temperatura $T = T_m - 3^{\circ}\text{C}$ e a referida parte representa pelo menos 45% em peso, mais preferivelmente pelo menos 50% em peso, ainda mais preferivelmente pelo menos 55% em peso da referida porção cristalina. Mais detalhes sobre a SIST são fornecidos adiante nos exemplos.

Adicionalmente, é preferível que a porção cristalina que se cristaliza entre 200 e 105°C determinada pela técnica de segregação isotérmica em etapas (SIST), seja pelo menos 90% em peso do filme total e/ou do polipropileno total, mais preferivelmente pelo menos 95% em peso do filme total e/ou do polipropileno total e ainda mais preferivelmente pelo menos 98% em peso do filme total e/ou do polipropileno total.

Em uma segunda modalidade, a presente invenção fornece um filme de isolamento elétrico, como um filme para capacitor, compreendendo um polipropileno, em que o filme e/ou o polipropileno do filme

a) tem/têm solúveis em xileno (XS) de pelo menos 0,5% em pe-

so e

b) compreende(m) uma porção cristalina se cristalizando na faixa de temperatura de 200 a 105°C determinada pela técnica de segregação isotérmica em etapas (SIST), em que a referida porção cristalina compreende uma parte que, durante a fusão subsequente a uma taxa de 10°C/min, funde a ou a menos que 140°C e a referida parte representa pelo menos 10% em peso, mais preferivelmente pelo menos 20% em peso da referida porção cristalina.

Alternativamente, a segunda modalidade da presente invenção fornece um filme de isolamento elétrico, como um filme para capacitor, compreendendo um polipropileno, em que o filme e/ou o polipropileno do filme

a) tem/têm solúveis em xileno (XS) de pelo menos 0,5% em peso e

b) compreende(m) uma porção cristalina se cristalizando na faixa de temperatura de 200 a 105°C determinada pela técnica de segregação isotérmica em etapas (SIST), em que a dita porção cristalina compreende uma parte que, durante a fusão subsequente a uma taxa de 10°C/min, funde a ou a menos que a temperatura $T = T_m - 3^\circ\text{C}$ e a referida parte representa pelo menos 45% em peso, mais preferivelmente pelo menos 50% em peso, ainda mais preferivelmente pelo menos 55% em peso da referida porção cristalina.

Surpreendentemente, foi constatado que os filmes para capacitor que compreendem polipropilenos com tais características possuem propriedades superiores se comparados aos filmes conhecidos pelo estado da técnica. Especialmente, os filmes para capacitor inventivos têm altos valores de resistência à interrupção elétrica, também no caso em que quantidades de impurezas relativamente altas estão presentes no filme. Assim, a exagerada etapa de lavagem não é necessária como é nos polipropilenos do estado da técnica. Ademais, filmes para capacitor em conformidade com esta invenção possuem, adicionalmente, resistência a altas temperaturas e são obteníveis em estabilidade de processamento alta e baixa temperatura de processamento. Ademais e surpreendentemente, o filme inventivo possui, em adição,

boas propriedades mecânicas como alta rigidez expressa pelo módulo de deformação. Adicionalmente, foi observado que o novo filme para capacitor, de acordo com esta invenção, mostra um aumento significativo da resistência à interrupção elétrica com o aumento da taxa de estiramento.

5 Um primeiro requisito da segunda modalidade da presente invenção é que o filme para capacitor composto por um polipropileno e/ou o próprio polipropileno tenha(m) algum nível de solúveis em xileno, isto é, pelo menos 0,50 % em peso. Solúveis em xileno são partes do polímero solúvel em xileno frio, determinado pela dissolução em xileno em ebulição e deixando que a parte insolúvel se cristalice da solução de resfriamento (para o método, veja abaixo na parte experimental). As porções solúveis em xileno contêm cadeias poliméricas de baixa estereorregularidade e são uma indicação quanto à quantidade de áreas não cristalinas.

15 Preferivelmente, o componente de polipropileno do filme tem solúveis em xileno de mais de 0,60 % em peso. Por outro lado, a quantidade de solúveis em xileno não deve ser muito alta, já que eles representam um risco potencial de contaminação. Por conseguinte, é preferível que os solúveis em xileno não sejam mais que 1,50 % em peso, mais preferivelmente não mais que 1,35% em peso e ainda mais preferivelmente não mais que 20 1,00% em peso. Em modalidades preferidas, os solúveis em xileno estão na faixa de 0,50 a 1,50 % em peso, porém mais preferivelmente na faixa de 0,60 a 1,35 % em peso, e ainda mais preferivelmente na faixa de 0,60 a 1,00 % em peso.

25 Preferivelmente, o filme para capacitor tem solúveis em xileno de mais de 1,50 % em peso, mais preferivelmente, o filme tem solúveis em xileno de não mais que 1,35 % em peso. Mais preferivelmente, o filme tem solúveis em xileno na faixa de 0,50 a 1,35 % em peso, ainda mais preferivelmente na faixa de 0,60 a 1,35 % em peso, e ainda mais preferivelmente na faixa de 0,60 a 1,00 % em peso.

30 O filme para capacitor de acordo com esta invenção também é especificado por sua distribuição de espessura lamelar. Foi reconhecido que uma maior resistência à interrupção elétrica é atingida caso o polímero seja

composto por quantidades maiores de lamelas delgadas. Assim, a aceitação do filme como um filme para capacitor não depende das quantidades de impurezas presentes no polipropileno, mas sim das suas propriedades cristalinhas. A técnica de segregação isotérmica em etapas (SIST) fornece uma possibilidade de determinação da distribuição de espessura lamelar. Quantidades bastante elevadas de porções de polímeros cristalizando-se a temperaturas mais baixas indicam uma quantidade maior de lamelas delgada. Assim, o filme para capacitor inventivo e/ou o polipropileno do filme compreende(m) uma porção cristalina se cristalizando na faixa de temperatura de 200 a 105°C determinada pela técnica de segregação isotérmica em etapas (SIST), em que a referida porção cristalina compreende uma parte que, durante a fusão subsequente a uma taxa de 10°C/min, funde a ou a menos que 140°C e a dita parte representa pelo menos 10% em peso, mais preferivelmente pelo menos 15% em peso, ainda mais preferivelmente pelo menos 20% em peso, e ainda mais preferivelmente 25% em peso da referida porção cristalina. Mais detalhes sobre a SIST são fornecidos adiante nos exemplos.

Adicionalmente, é preferível que a porção cristalina que se cristaliza entre 200 a 105°C determinada pela técnica de segregação isotérmica em etapas (SIST) seja pelo menos 90% em peso do filme total e/ou o polipropileno total, mais preferivelmente pelo menos 95% em peso do filme total e/ou o polipropileno total e ainda mais preferivelmente pelo menos 98% em peso do filme total e/ou o polipropileno total.

Além disso, o filme para capacitor e/ou o componente de polipropileno do filme em conformidade com a presente invenção são caracterizados em particular pelas propriedades de escoamento extensional. O escoamento extensional, ou a deformação que envolve o estiramento de um material viscoso, é o tipo dominante de deformação em fluxos convergentes e de espremedura que ocorre em operações de processamento de polímeros típicas. Medições de escoamento extensional são particularmente úteis na caracterização do polímero porque são muito sensíveis à estrutura molecular do sistema polimérico em teste. Quando a taxa de deformação de extensão

verdadeira, também conhecida como a taxa de tensão de Hencky, é constante, a extensão simples é dita ser um “fluxo forte” no sentido de poder gerar um grau muito mais alto de orientação molecular e estiramento que fluxos em cisalhamento simples. Em consequência, escoamentos extensionais são muito sensíveis à cristalinidade e a efeitos macroestruturais, como ramificação de cadeia curta, e assim pode ser muito mais descritivo no que tange a caracterização do polímero que outros tipos de medições reológicas de volume que aplicam fluxo de cisalhamento.

Logo, um requisito dessa invenção é que o filme para capacitor e/ou o componente de polipropileno do filme tenha um índice de endurecimento de deformação ($\text{SHI}@1\text{s}^{-1}$) de pelo menos 0,15, mais preferivelmente de pelo menos 0,20, ainda mais preferivelmente o índice de endurecimento de deformação ($\text{SHI}@1\text{s}^{-1}$) está na faixa de 0,15 a 0,30, como 0,15 até menos que 0,30, e ainda mais preferivelmente na faixa de 0,15 a 0,29. Numa modalidade posterior é preferível que o filme para capacitor e/ou o componente de polipropileno do filme para capacitor tenha um índice de endurecimento de deformação ($\text{SHI}@1\text{s}^{-1}$) na faixa de 0,20 a 0,30, como 0,20 até menos que 0,30, mais preferivelmente na faixa de 0,20 a 0,29.

O índice de endurecimento de deformação é uma medida para o comportamento de endurecimento de deformação da fusão do polipropileno. Além disso, valores do índice de endurecimento de deformação ($\text{SHI}@1\text{s}^{-1}$) superiores a 0,10 indicam um polímero não linear, isto é, polímero com ramificação de cadeia curta. Na presente invenção, o índice de endurecimento de deformação ($\text{SHI}@1\text{s}^{-1}$) é medido pela taxa de deformação $d\varepsilon/dt$ de $1,00\text{ s}^{-1}$ a uma temperatura de 180°C para determinação do comportamento de endurecimento de deformação, em que o índice de endurecimento de deformação ($\text{SHI}@1\text{s}^{-1}$) é definido como sendo a inclinação da função de crescimento de tensão de tração η_{E+} como uma função da tensão de Hencky ε em uma escala logarítmica entre 1,00 e 3,00 (vide figura 1). Assim, a tensão de Hencky ε é definida pela fórmula $\varepsilon = \dot{\varepsilon}_H \cdot t$, em que a taxa de tensão de Hencky $\dot{\varepsilon}_H$ é definida pela fórmula

$$\dot{\epsilon}_H = \frac{2 \cdot \Omega \cdot R}{L_0} \text{ com}$$

"L₀" é o comprimento, não suportado, fixo, da amostra de espécime, que é igual à distância da linha central entre os tambores mestre e escravo

"R" é o raio dos tambores terminais equidimensionais, e

5 "Ω" é a taxa de rotação do eixo de transmissão constante

A função do crescimento de tensão de tração η_E^+ , por sua vez, é definida pela fórmula

$$\eta_E^+(\epsilon) = \frac{F(\epsilon)}{\dot{\epsilon}_H \cdot A(\epsilon)} \text{ com}$$

$$T(\epsilon) = 2 \cdot R \cdot F(\epsilon) \text{ e}$$

$$A(\epsilon) = A_0 \cdot \left(\frac{d_s}{d_M} \right)^{2/3} \cdot \exp(-\epsilon)$$

em que

a taxa de tensão de Hencky $\dot{\epsilon}_H$ é definida como para a tensão de Hencky ϵ

10 "F" é a força de estiramento tangencial

"R" é o raio dos tambores terminais equidimensionais

"T" é o sinal de torque medido, relativo à força de estiramento tangencial "F"

"A" é a área transversal instantânea de um espécime fundido estirado

"A₀" é a área transversal do espécime no estado sólido (isto é, anterior à fusão)

15

"d_s" é a densidade no estado sólido e

"d_m" é a densidade de fusão do polímero.

Outro parâmetro físico que é sensível à cristalinidade e aos efeitos macroestruturais é o assim chamado índice de multirramificação (MBI),
20 como será explicado em mais detalhes mais à frente.

Em relação à determinação do índice de multirramificação (MBI) deve ser feita referência à primeira modalidade desta invenção.

Preferivelmente, o componente de polipropileno do filme para capacitor possui um índice de multirramificação (MBI) de pelo menos 0,10, mais preferivelmente de pelo menos 0,15, e ainda mais preferivelmente o índice de multirramificação (MBI) está na faixa de 0,10 a 0,30. Em uma modalidade preferida, o polipropileno tem um índice de multirramificação (MBI) na faixa de 0,15 a 0,30.

O componente de polipropileno do filme para capacitor da presente invenção é caracterizado pelo fato de que o índice de endurecimento de deformação (SHI) aumenta em certa extensão com a taxa de deformação $\dot{\epsilon}_H$ (isto é, polipropilenos com ramificações de cadeia curta), isto é, um fenômeno que não é observado em polipropilenos lineares. Tipos de polímeros com ramificação única (chamados de polímeros Y contendo uma cadeia principal com uma única cadeia lateral longa e uma arquitetura que se assemelha a um "Y") ou tipos de polímero com ramificação em H (duas cadeias poliméricas acopladas com um grupo de ligação em ponte e uma arquitetura que se assemelha a um "H"), assim como polímeros lineares não mostram tal relação, isto é o índice de endurecimento de deformação (SHI) não é influenciado pela taxa de deformação (vide Figura 2). Por conseguinte, o índice de endurecimento de deformação (SHI) dos polímeros conhecidos, em particular dos polipropilenos conhecidos, não aumenta com o aumento da taxa de deformação $d\epsilon/dt$. Processos de conversão industrial que implicam fluxo elongacional operam em taxas de extensão muito rápidas. Assim, a vantagem de um material que apresenta um endurecimento de deformação mais pronunciado (medido pelo índice de endurecimento de deformação (SHI)) em taxas de tensão altas se torna óbvia. Quão mais rápido o material é estirado, mais rápido é o índice de endurecimento de deformação e assim, mais estável será o material na conversão.

Quando medido em um filme para capacitor, o índice de multirramificação (MBI) é de pelo menos 0,10, mais preferivelmente de pelo menos 0,15, e ainda mais preferivelmente o índice de multirramificação (MBI) está na faixa de 0,10 a 0,30. Em uma modalidade preferida, o filme para capacitor tem um índice de multirramificação (MBI) na faixa de 0,15 a 0,30.

Ainda, o polipropileno do filme para capacitor da presente invenção tem um índice de ramificação g' preferível de menos que 1,00. Ainda mais preferivelmente, o índice de ramificação g' é maior que 0,7. Assim, é preferível que o índice de ramificação g' do polipropileno esteja na faixa de mais de 0,7 a menos que 1,0, mais preferivelmente na faixa de mais que 0,7 a 0,95, ainda mais preferivelmente na faixa de 0,75 a 0,95. O índice de ramificação g' define o grau de ramificação e se correlaciona com a quantidade de ramificações de um polímero. O índice de ramificação g' é definido como $g' = [IV]_{br}/[IV]_{lin}$, no qual g' é o índice de ramificação, $[IV]$ é a viscosidade intrínseca do polipropileno ramificado e $[IV]_{lin}$ é a viscosidade intrínseca do polipropileno linear que possui o mesmo peso molecular médio (dentro de uma faixa de $\pm 3\%$) que o polipropileno ramificado. Assim, um valor de g' baixo é um indicador de um polímero altamente ramificado. Em outras palavras, se o valor de g' diminui, a ramificação do polipropileno aumenta. Referências são feitas a esse respeito por B. H. Zimm e W. H. Stockmeyer, J. Chem. Phys. 17,301 (1949). Esse documento é aqui incluso a título de referência.

A viscosidade intrínseca necessária para a determinação do índice de ramificação g' é medida de acordo com DIN ISO 1628/1, outubro de 1999 (em decalina a 135°C). Quando medido no filme para capacitor, o índice de ramificação g' está preferivelmente na faixa de mais que 0,7 a menos que 1,0.

Para maiores informações acerca dos métodos de medição aplicados para a obtenção de dados para o índice de ramificação g' , a função de crescimento de tensão de tração η_E^+ , a taxa de tensão de Hencky $\dot{\epsilon}_H$, a tensão de Hencky ϵ e o índice de multirramificação (MBI), vide a seção de exemplos.

As características mencionadas abaixo se aplicam a ambas as modalidades, isto é, a primeira e a segunda modalidades definidas acima.

A distribuição de peso molecular (MWD) (também determinada aqui como polidispersibilidade) é a relação entre o número de moléculas em um polímero e o comprimento da cadeia individual. A distribuição de peso molecular (MWD) é expressa como sendo a razão entre o peso molecular

médio ponderal (M_w) e o peso molecular médio numérico (M_n). O peso molecular médio numérico (M_n) é o peso molecular médio de um polímero expresso como o primeiro momento de uma plotagem do número de moléculas em cada faixa de peso molecular *versus* peso molecular. Na verdade, isso é o peso molecular total de todas as moléculas divididas pelo número de moléculas. O peso molecular médio ponderal (M_w), por sua vez, é o primeiro momento de uma plotagem do peso do polímero em cada faixa de peso molecular *versus* peso molecular.

O peso molecular médio ponderal (M_w) e o peso molecular médio numérico (M_n) assim como a distribuição de peso molecular (MWD) são determinados por cromatografia por exclusão de tamanho (SEC) utilizando-se o instrumento Waters Alliance GPCV 2000 com viscosímetro on-line. A temperatura do forno é de 140°C. O triclorobenzeno é usado como solvente (ISO 16014).

É preferível que o filme para capacitor da presente invenção compreenda um polipropileno que tenha um peso molecular médio ponderal (M_w) de 10.000 a 2.000.000 g/mol.

O peso molecular médio numérico (M_n) do polipropileno está, preferivelmente, na faixa de 5.000 a 750.000 g/mol, mais preferivelmente de 10.000 a 750.000 g/mol.

Como uma distribuição de peso molecular (MWD) ampla melhora a processabilidade do polipropileno, a distribuição de peso molecular (MWD) é de preferivelmente até 20,00, mais preferivelmente de até 10,00, ainda mais preferivelmente de até 8,00. Entretanto, uma distribuição de peso molecular bastante ampla simula afundamento.

Portanto, em uma modalidade alternativa, a distribuição de peso molecular (MWD) está, preferivelmente, entre 1,00 e 8,00, ainda mais preferivelmente na faixa de 1,00 a 4,00 e ainda mais preferivelmente na faixa de 1,00 a 3,50.

Além disso, é preferível que o componente de polipropileno do filme para capacitor da presente invenção tenha uma taxa de escoamento de fusão (MFR) dada em uma faixa específica. A taxa de escoamento de fusão

depende principalmente do peso molecular médio. Isso se deve ao fato de que moléculas longas fazem com que o material tenda a um escoamento menor que moléculas curtas. Um aumento do peso molecular significa uma diminuição no valor de MFR. A taxa de escoamento (MFR) é medida em g/10 min do polímero descarregado através de um cossinete definido sob condições de temperatura e pressão especificadas e a medida da viscosidade do polímero que, por sua vez, para cada tipo de polímero, é influenciada principalmente pelo seu peso molecular, mas também pelo seu grau de ramificação. A taxa de escoamento de fusão medida sob uma carga de 2,16 kg a 230°C (ISO 1133) é denotada por MFR₂. Por conseguinte, é preferível que o filme para capacitor da presente invenção compreenda um polipropileno que contenha uma MFR₂ de até 10,00 g/10 min, mais preferivelmente de até 6,00 g/10 min. Em uma outra modalidade preferida, o polipropileno tem uma MFR₂ de até 4 g/10 min. Uma faixa preferível para a MFR₂ é de 1,00 a 10,00 g/10 min, mais preferivelmente na faixa de 1,00 a 8,00 g/10 min, e ainda mais preferivelmente na faixa de 1,00 a 6,00 g/10 min.

Uma reticulação tem um efeito negativo nas propriedades do escoamento extensional, é preferido que o polipropileno de acordo com esta invenção não seja reticulado.

Mais preferivelmente, o polipropileno da presente invenção é isotático. Assim, o polipropileno do filme de acordo com esta invenção deve possuir uma isotacticidade bastante alta por concentração meso "pentad" (também referida aqui como concentração pentad), isto é, maior que 91%, mais preferivelmente maior que 93%, ainda mais preferivelmente maior que 94% e ainda mais preferivelmente maior que 95%. Por outro lado, a concentração "pentad" não deve ser superior a 99,5%. A concentração "pentad" é um indicador da estreiteza na distribuição de regularidade do polipropileno e é medida por espectroscopia de RMN.

Ademais, é preferido que o polipropileno do filme para capacitor tenha uma temperatura de fusão T_m maior que 148°C, mais preferivelmente maior que 150°C. Em uma modalidade preferida, a temperatura de fusão T_m do componente de polipropileno é maior que 148°C, porém menor que

156°C. O método de medição da temperatura de fusão T_m é discutido na seção de exemplos.

A temperatura de fusão T_m do filme para capacitor é de pelo menos 148°C, mais preferivelmente pelo menos 150°C. Em uma modalidade preferida, a temperatura de fusão T_m do filme para capacitor é maior que 150°C, porém menor que 160°C.

O filme para capacitor de acordo com esta invenção é preferivelmente orientado biaxialmente. Ainda mais preferivelmente, o filme para capacitor está na direção da máquina e transversal estirável até uma razão de estriamento de pelo menos 3,5 sem se romper, mais preferivelmente de pelo menos 4,0 sem se romper. Em uma modalidade preferida, o filme para capacitor segundo esta invenção possui uma taxa de estiramento em direção da máquina e transversal de pelo menos 3,5, mais preferivelmente de pelo menos 4,0. O comprimento da amostra aumenta durante o estiramento na direção longitudinal e a razão de estiramento na direção longitudinal são calculados a partir da razão do comprimento atual sobre o comprimento da amostra original. Subsequentemente, a amostra é estiramento na direção transversal em que a largura da amostra está aumentando. Assim, a razão de estiramento é calculada a partir da largura atual da amostra sobre a largura original da amostra.

Tal módulo de deformação bastante alto a uma razão de estiramento 4 na direção de máquina e uma razão de estiramento de 4 na direção transversal é apreciada, já que filmes de propileno orientados biaxialmente são estirados com uma razão de estiramento de 4 a 6 na direção de máquina e uma razão de estiramento de 5 a 8 na direção transversal.

Preferivelmente, o componente de polipropileno do filme da presente invenção tem um módulo de deformação de pelo menos 800 MPa, medido de acordo com a norma ISO 527-3 a uma velocidade transversal de 1 mm/min. Mais preferivelmente, o componente de polipropileno tem um módulo de deformação de pelo menos 850 MPa, ainda mais preferivelmente pelo menos 900 MPa e ainda mais preferivelmente pelo menos 1000 MPa.

Preferivelmente, o componente de polipropileno do filme orienta-

do biaxialmente da presente invenção tem um módulo de deformação de pelo menos 1.800 MPa em uma razão de estiramento de 4 na direção de máquina e uma razão de estiramento de 4 na direção transversal, em que o módulo de estiramento é medido de acordo com a norma ISO 527-3 a uma
5 velocidade transversal de 1 mm/min. Mais preferivelmente, o filme de polipropileno possui um módulo de deformação de pelo menos 1.900 MPa, ainda mais preferivelmente 1.950 MPa e ainda mais preferivelmente pelo menos 2.200 MPa a uma razão de estiramento de 4 na direção de máquina e a uma razão de estiramento de 4 na direção transversal.

10 Em uma modalidade preferida, o filme tem uma tensão de estiramento de pelo menos 2,5 MPa na direção de máquina e pelo menos 2,5 MPa na direção transversal a uma temperatura de alongamento de 152°C ou menos e uma razão de estiramento de 4 na direção de máquina e na direção transversal. Preferivelmente, a temperatura de estiramento mencionada acima é de pelo menos 2°C, mais preferivelmente de pelo menos 3°C abaixo da
15 temperatura de fusão do filme.

Além disso, é preferível que o filme em conformidade com esta invenção tenha uma resistência à interrupção elétrica EB63% de pelo menos 230kV/mm. A medição da resistência à interrupção elétrica EB63% segue o
20 padrão IEC 60243-parte 1 (1998). Maiores detalhes sobre a resistência à interrupção elétrica são fornecidos abaixo nos exemplos.

Adicionalmente, é apreciado que o filme para capacitor inventivo possua boas propriedades ópticas. Assim, é preferido que o filme para capacitor tenha uma turbidez de não mais que 15, ainda mais preferivelmente de
25 não mais que 10, medida de acordo com ASTM D 1003-92. A transparência do filme deve, por sua vez, ser bastante alta. Assim, é preferível que o filme para capacitor tenha uma transparência de pelo menos 90% medida de acordo com ASTM D 1003-92.

Preferivelmente, o polipropileno do filme de acordo com esta invenção tem níveis baixos de impurezas, isto é, níveis baixos de resíduo de
30 alumínio (Al) e/ou níveis baixos de resíduo de silício (Si) e/ou níveis baixos de resíduo de boro (B). Assim, os resíduos de alumínio do polipropileno po-

dem ser reduzidos a um nível de 12,00 ppm. Por outro lado, as propriedades desta invenção não são influenciadas negativamente pela presença de resíduos. Logo, em uma modalidade preferida, o filme de acordo com esta invenção compreende um polipropileno que é preferivelmente essencialmente isento de quaisquer resíduos de boro e/ou de silício, isto é, os resíduos deste não são detectáveis (a análise do teor dos resíduos é definida na seção de exemplos). Em uma outra modalidade preferida, o polipropileno do filme de acordo com esta invenção compreende boro e/ou silício em quantidades detectáveis, isto é, em quantidades superiores a 0,10 ppm de resíduos de boro e/ou resíduos de silício, ainda mais preferivelmente quantidades superiores a 0,20 ppm de resíduos de boro e/ou de resíduos de silício e ainda mais preferivelmente quantidades superiores a 0,50 ppm de resíduos de boro e/ou de resíduos de silício. Em ainda uma outra modalidade preferida, o componente de polipropileno do filme de acordo com a presente invenção compreende resíduos de Al em uma quantidade superior a 12,00 ppm, mais preferivelmente em uma quantidade superior a 20,00 ppm, ainda mais preferivelmente em uma quantidade superior a 25,00 ppm. Em ainda uma outra modalidade preferida, o componente de polipropileno do filme de acordo com esta invenção compreende boro e/ou silício em quantidades detectáveis, por exemplo em quantidades superiores a 0,20 ppm de resíduos de boro e/ou de resíduos de silício e resíduos de alumínio em uma quantidade superior a 12,00 ppm, mais preferivelmente em uma quantidade superior a 20,00 ppm, ainda mais preferivelmente em uma quantidade superior a 25,00 ppm.

Além disso, o filme para capacitor segundo esta invenção possui, preferivelmente, níveis baixos de impurezas, isto é, níveis baixos de resíduo de alumínio (Al) e/ou níveis baixos de resíduo de silício (Si) e/ou níveis baixos de resíduo de boro (B). Por conseguinte, os resíduos de alumínio do filme podem ser reduzidos a um nível de 12,00 ppm. Por outro lado, as propriedades desta invenção não são influenciadas negativamente pela presença de resíduos. Assim, em uma modalidade preferida, o filme de acordo com esta invenção é preferivelmente essencialmente isento de quaisquer resí-

duos de boro e/ou de silício, isto é, os resíduos deste não são detectáveis (a análise do teor dos resíduos é definida na seção de exemplos). Em uma outra modalidade preferida, o filme de acordo com esta invenção compreende boro e/ou silício em quantidades detectáveis, isto é, em quantidades superiores a 0,10 ppm de resíduos de boro e/ou resíduos de silício, ainda mais preferivelmente quantidades superiores a 0,20 ppm de resíduos de boro e/ou resíduos de silício, ainda mais preferivelmente em quantidades superiores a 0,50 ppm de resíduos de boro e/ou de resíduos de silício. Em ainda uma outra modalidade preferida, o filme de acordo com a presente invenção compreende resíduos de Al em uma quantidade superior a 12,00 ppm, mais preferivelmente em uma quantidade superior a 20,00 ppm, ainda mais preferivelmente em uma quantidade superior a 25,00 ppm. Em ainda uma outra modalidade preferida, o filme de acordo com esta invenção compreende boro e/ou silício em quantidades detectáveis, isto é, em quantidades superiores a 0,20 ppm de resíduos de boro e/ou de resíduos de silício e resíduos de alumínio em uma quantidade superior a 12,00 ppm, mais preferivelmente em uma quantidade superior a 20,00 ppm, ainda mais preferivelmente em uma quantidade superior a 25,00 ppm.

Em uma modalidade preferida, o polipropileno como definido acima (e também definido abaixo) é, preferivelmente, unimodal. Em uma outra modalidade preferida, o polipropileno como definido acima (e mais definido abaixo) é, preferivelmente, multimodal, mais preferivelmente bimodal.

“Multimodal” ou “distribuição multimodal” descreve uma distribuição de frequências que contém várias máximas relativas (ao contrário da unimodal, que possui somente uma máxima). Em particular, a expressão “modalidade de um polímero” refere-se à forma da curva de sua distribuição de peso molecular (MWD), isto é, a aparência do gráfico da porção de peso do polímero como uma função de seu peso molecular. Se o polímero é produzido no processo de etapa sequencial, isto é, através da utilização de reatores acoplados em série, e utiliza condições diferentes em cada reator, as diferentes porções poliméricas produzidas nos diferentes reatores vão ter cada uma sua própria distribuição de peso molecular, que pode diferir consi-

deravelmente uma da outra. A curva de distribuição de peso molecular do polímero resultante final pode ser vista em uma sobreposição das curvas de distribuição de peso molecular da porção polimérica que mostrará, de acordo, uma máxima mais distinta, ou pelo menos será ampliada de modo distinto quando comparada às curvas das porções individuais.

Um polímero que apresenta tal curva de distribuição de peso molecular é chamado de bimodal ou multimodal, respectivamente.

No caso em que um polipropileno do filme para capacitor não é unimodal, ele é preferivelmente bimodal.

O polipropileno do filme de acordo com esta invenção pode ser um homopolímero ou um copolímero. No caso em que o polipropileno é unimodal, o polipropileno é preferivelmente um homopolímero de polipropileno. No caso em que o polipropileno é, por sua vez, multimodal, preferivelmente bimodal, o polipropileno pode ser um homopolímero assim como um copolímero de polipropileno. Todavia, é particularmente preferível que, no caso em que o polipropileno for multimodal, mais preferivelmente bimodal, o polipropileno seja um homopolímero de polipropileno. Além disso, é preferível que pelo menos uma das porções de polipropileno multimodal seja um polipropileno de ramificação de cadeia curta, preferivelmente um homopolímero de polipropileno de ramificação de cadeia curta, como definido acima.

O polipropileno do filme para capacitor de acordo com esta invenção é preferivelmente um homopolímero de polipropileno unimodal.

A expressão “homopolímero de polipropileno”, conforme utilizada nessa invenção, refere-se a um polipropileno que consiste substancialmente em, por exemplo, pelo menos 97% em peso, preferivelmente 99% em peso e mais preferivelmente 99,8% em peso de unidades de propileno. Em uma modalidade preferida, somente unidades de polipropileno no homopolímero de polipropileno são detectáveis. O teor de comonômero pode ser medido com espectroscopia no infravermelho FT. Maiores detalhes são fornecidos abaixo, nos exemplos.

No caso em que o polipropileno do filme de acordo com esta invenção é um copolímero polipropileno multimodal ou bimodal, é preferível

que o comonômero seja etileno. Todavia, outros comonômeros conhecidos no estado da técnica também são adequados. Preferivelmente, a quantidade total de comonômeros, mais preferivelmente o etileno, no copolímero de polipropileno é de até 30% em peso, mais preferivelmente de até 25% em peso.

Em uma modalidade preferida, o copolímero de polipropileno multimodal ou bimodal é um copolímero de polipropileno compreendendo uma matriz de homopolímero de polipropileno, sendo um polipropileno de ramificação de cadeia curta conforme definido acima e uma borracha de etileno-propileno (EPR).

A matriz de homopolímero de polipropileno pode ser unimodal ou multimodal, isto é, bimodal. Todavia, é preferível que a matriz de homopolímero de polipropileno seja unimodal.

Preferivelmente, a borracha de etileno-propileno (EPR) no copolímero de polipropileno bimodal ou multimodal é de até 50% em peso. Mais preferivelmente, a quantidade de borracha de etileno-propileno (EPR) no copolímero de polipropileno bimodal ou multimodal está na faixa de 10 a 40% em peso, ainda mais preferivelmente na faixa de 10 a 30% em peso.

Adicionalmente, é preferido que o copolímero de polipropileno multimodal ou bimodal compreenda uma matriz de homopolímero de polipropileno que seja um polipropileno de ramificação de cadeia curta conforme definido acima e uma borracha de etileno-propileno (EPR) com um teor de etileno de até 50% em peso.

Adicionalmente, é preferido que o polipropileno conforme descrito acima seja produzido na presença de um catalisador conforme definido abaixo. Ademais, para a produção do polipropileno conforme definido acima, o processo descrito abaixo é preferivelmente utilizado.

O polipropileno do filme para capacitor de acordo com esta invenção foi obtido, particularmente, por um novo sistema catalisador. Esse novo sistema catalisador compreende um catalisador simétrico, em que o sistema catalisador tem uma porosidade de menos que 1,40 ml/g, mais preferivelmente menos que 1,30 ml/g e ainda mais preferivelmente menos que

1,00 ml/g. A porosidade foi medida de acordo com a norma DIN 66135 (N₂). Em outra modalidade preferida, a porosidade não é detectável quando determinada com o método aplicado de acordo com DIN 66135 (N₂).

Um catalisador simétrico de acordo com esta invenção é um composto de metalloceno contendo simetria em C₂. Preferivelmente, o metalloceno simétrico em C₂ consiste em dois ligantes orgânicos idênticos, ainda mais preferivelmente consiste somente dois ligantes orgânicos idênticos e ainda mais preferivelmente consiste somente dois ligantes orgânicos idênticos e ligados via uma ponte.

Tal catalisador simétrico é preferivelmente um catalisador de sítio único (SSC).

Devido ao uso do sistema catalisador com uma porosidade muito baixa compreendendo um catalisador simétrico, a fabricação dos polipilenos de ramificação de cadeia curta descritos acima é possível.

Além disso, é preferido que o sistema catalisador tenha uma área de superfície menor que 25 m²/g, ainda mais preferivelmente menor que 20 m²/g, ainda mais preferivelmente menor que 15 m²/g, ainda mais preferivelmente menor que 10 m²/g e ainda mais preferivelmente menor que 5 m²/g. A área de superfície de acordo com esta invenção é medida de acordo com ISO 9277 (N₂).

É particularmente preferido que o sistema catalítico de acordo com esta invenção compreenda um catalisador simétrico, isto é, um catalisador como definido acima e em mais detalhes abaixo, e tenha uma porosidade não detectável quando da aplicação do método de acordo com DIN 66135 (N₂) e tenha uma área de superfície medida de acordo com a ISO 9277 (N₂) de menos que 5 m²/g.

Preferivelmente, o composto catalisador simétrico, isto é, o metalloceno contendo simetria em C₂, tem a fórmula (I):



em que

M é Zr, Hf ou Ti, mais preferivelmente Zr, e

X é independentemente um ligante aniônico monovalente, como um ligante

σ

R é um grupo de ligação em ponte ligando os dois ligantes Cp

Cp é um ligante orgânico selecionado do grupo que consiste em ciclopentadienílico não-substituída, indenila não-substituída, tetra-hidroindenila não-substituída, fluorenila não-substituída, ciclopentadienílico substituída, indenila substituída, tetra-hidroindenila substituída, fluorenila substituída, com a condição que ambos os ligantes Cp sejam selecionados de o grupo acima descritos e ambos os ligantes Cp são quimicamente iguais, isto é, são idênticos.

O termo "ligante σ " é entendido na descrição total em uma maneira conhecida, isto é, um grupo ligado ao metal em um ou mais lugares via uma ligação sigma. Um ligante aniônico monovalente preferido é o halogênio, particularmente o cloro (Cl).

Preferivelmente, o catalisador simétrico tem a fórmula (I) indicada acima,
em que
M é Zr e
cada X é Cl.

Preferivelmente, ambos os ligantes Cp idênticos são substituídos.

Os um ou mais substituintes opcionais ligados à ciclopentadienílico, indenila, tetra-hidroindenila ou fluorenila podem ser selecionados de um grupo que inclui halogênio, hidrocarbila (por exemplo, C₁-C₂₀-alquila, C₂-C₂₀-alquenila, C₂-C₂₀-alquinila, C₃-C₁₂-cicloalquila, C₆-C₂₀-arila, C₇-C₂₀-arialquila), C₃-C₁₂-cicloalquila que contém 1, 2, 3 ou 4 heteroátomos na porção do anel, C₆-C₂₀-heteroarila, C₁-C₂₀-haloalquila, -SiR"₃, -OSiR"₃, -SR", -PR"₂ e -NR"₂, em que cada R" é independentemente um hidrogênio ou uma hidrocarbila, por exemplo, C₁-C₂₀-alquila, C₂-C₂₀-alquenila, C₂-C₂₀-alquinila, C₃-C₁₂-cicloalquila, C₆-C₂₀-arila.

Mais preferivelmente ambos os ligantes Cp idênticos são porções de indenila em que cada porção de indenila contém um ou dois substituintes conforme definidos acima. Mais preferivelmente, cada um dos ligantes

tes Cp idênticos é uma porção de indenila contendo dois substituintes conforme definidos acima, com a condição de que os substituintes são escolhidos de tal forma que ambos os ligantes C_p apresentem a mesma estrutura química, isto é, ambos os ligantes Cp possuem os mesmos substituintes ligados à porção indenila quimicamente igual.

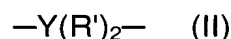
Ainda mais preferivelmente, ambos os Cp idênticos são porções indenila em que as porções indenila compreendem pelo menos no anel com 5 membros da porção indenila, mais preferivelmente na posição 2, um substituinte selecionado de um grupo que consiste em alquila, tal qual C_1 - C_6 -alquila, por exemplo, metila, etila, isopropila e trialquinoxissilóxi, em que cada alquila é independentemente selecionada de C_1 - C_6 -alquila, por exemplo, metila ou etila, com a condição que as porções indenila de ambos os Cp tenham a mesma estrutura química, isto é, ligantes Cp possuem os mesmos substituintes ligados à porção indenila quimicamente igual.

Ainda mais preferivelmente ambos os Cp idênticos são porções indenila em que as porções indenila compreendem pelo menos no anel com 6 membros da porção indenila, mais preferivelmente na posição 4, um substituinte selecionado de um grupo que consiste em uma porção de anel aromático C_6 - C_{20} , tal como fenila ou naftila, preferivelmente fenila, que é opcionalmente substituída com um ou mais substituintes, como o C_1 - C_6 -alquila e uma porção de anel heteroaromática, com a condição que as porções de indenila de ambos os Cp tenham a mesma estrutura química, isto é, ambos os ligantes Cp possuem os mesmos substituintes ligados à porção indenila quimicamente igual.

Ainda mais preferivelmente ambos os Cp idênticos são porções indenila em que as porções indenila compreendem pelo menos no anel com 5 membros da porção indenila, mais preferivelmente na posição 2, um substituinte e, no anel com 6 membros da porção indenila, mais preferivelmente na posição 4, um substituinte adicional, o substituinte do anel de 5 membros é selecionado de um grupo que consiste em alquila, tal como C_1 - C_6 -alquila, por exemplo, metila, etila, isopropila e trialquinoxissilóxi, e o substituinte adicional do anel de 6 membros é selecionado de um grupo que consiste em

- uma porção de anel aromático C₆-C₂₀, tal como fenila ou naftila, preferivelmente naftila, que é opcionalmente substituída com um ou mais substituintes, tal como C₁-C₆-alquila e uma porção de anel heteroaromático, com a condição que as porções indenila de ambos os Cp tenham a mesma estrutura química, isto é, ambos os ligantes Cp possuem os mesmos substituintes ligados à porção indenila quimicamente igual.

Em relação à porção "R", é preferível que "R" tenha a fórmula (II)



em que

- 10 Y é C, Si ou Ge, e

R' é C₁ a C₂₀ alquila, C₆-C₁₂-arila, ou C₇-C₁₂-arilalquila ou trimetilsilila

- No caso, ambos os ligantes Cp do catalisador simétrico conforme definidos acima, no caso particular de duas porções indenila, são ligados com um membro de ponte R, o membro de ponte R é tipicamente colocado na posição 1. O membro de ponte R pode conter um ou mais átomos de ponte selecionados de, por exemplo, C, Si e/ou Ge, preferivelmente de C e/ou Si. Uma ponte de R preferida é $-Si(R')_2-$, em que R' é selecionado independentemente de um ou mais de, por exemplo, trimetilsilila, C₁-C₁₀-alquila, C₁-C₂₀-alquila, tal como C₆-C₁₂-arila ou C₇-C₄₀, tal como C₇-C₁₂-arilalquila, em que a alquila como tal ou como uma parte da arilalquila é preferivelmente C₁-C₆-alquila, tal como etila ou metila, preferivelmente metila, e arila é preferivelmente fenila. A ponte de $-Si(R')_2-$ é preferivelmente, por exemplo, $-Si(C_1-C_6\text{-alquila})_2-$, $-Si(\text{fenila})_2-$ ou $-Si(C_1-C_6\text{-alquil})(\text{fenila})-$, tal como $-Si(\text{Me})_2-$.

- 25 Em uma modalidade preferida, o catalisador simétrico, isto é, o metalloceno contendo uma simetria em C₂, é definido pela fórmula (III):



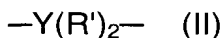
em que

- ambas as coordenadas de Cp para M e são selecionadas do grupo que consiste em ciclopentadienílico não-substituído, indenila não-substituída, tetra-hidroindenila não-substituída, fluorenila não-substituída, ciclopentadienílico substituído, indenila substituída, tetra-hidroindenila substituída, fluorenila

substituída, com a condição que ambos os ligantes Cp sejam selecionados do grupo acima descrito e ambos os ligantes Cp são quimicamente os mesmos, isto é, são idênticos, e

R é um grupo de ponte ligando dois ligantes L,

5 em que R é definido pela fórmula (II)



em que

Y é C, Si ou Ge, e

10 R' é C₁ a C₂₀-alquila, C₆-C₁₂-arila, ou C₇-C₁₂-arilalquila, trimetilsilila ou C₇-C₁₂-arilalquila.

Mais preferivelmente o catalisador simétrico é definido pela fórmula (III), em que ambos os Cp são selecionados de um grupo que consiste em ciclopentadienílico substituído, indenila substituída, tetra-hidroindenila substituída e fluorenila substituída.

15 Em uma modalidade preferida, o catalisador simétrico é o dicloreto de dimetilsilil(2-metil-4-fenil-indenil)₂zircônio e o dicloreto de dimetilsililandiilbis(2-metil-4-fenil-indenil)zircônio. Mais preferivelmente, o dito catalisador simétrico suportado em não-sílica.

20 Os componentes do catalisador simétrico descritos acima são preparados de acordo com os métodos descritos em WO 01/48034.

É particularmente preferido que o catalisador simétrico seja obténível pela tecnologia de solidificação de emulsão conforme descrito em WO 03/051934. Este documento é incluído aqui na íntegra a título de referência. Assim, o catalisador simétrico está preferivelmente na forma de partículas de catalisador sólidas, obténível por um processo que compreende as etapas de:

- a) preparação de uma solução de um ou mais componentes do catalisador simétrico;
 - b) dispersão da dita solução em um solvente imiscível a ela para a formação de uma emulsão na qual o dito um ou mais componentes catalisadores estão presentes em gotículas na fase dispersa,
 - c) solidificação da dita fase dispersa para converter as ditas gotí-
- 30

culas em partículas sólidas e, opcionalmente, recuperar tais partículas para obter o referido catalisador.

Preferivelmente um solvente, mais preferivelmente um solvente orgânico, é usado para formar a dita solução. Ainda mais preferivelmente o solvente orgânico é selecionado do grupo consistindo em um alcano linear, alcano cíclico, alqueno linear, alqueno cíclico, hidrocarboneto aromático, e hidrocarboneto contendo halogênio.

Além disso, o solvente imiscível que a fase contínua é um solvente inerte, mais preferivelmente o solvente imiscível compreende um solvente orgânico fluorado e/ou um seu derivado funcionalizado, ainda mais preferivelmente o solvente imiscível compreende um hidrocarboneto semi-, altamente- ou perfluorado e/ou um seu derivado funcionalizado. Em particular é preferido que o dito solvente imiscível compreenda um perfluor-hidrocarboneto ou um seu derivado funcionalizado, preferivelmente C₃₋₃₀ perflúor-alcanos, -alquenos ou -cicloalcanos, mais preferidos C₄₋₁₀ perflúor-alcanos, -alquenos ou -ciclo alcanos, particularmente preferido perflúor-hexano, perflúor-heptano, perfluoro-actano ou perflúor(metilciclohexano) ou uma misturas destes.

Além disso, é preferido que a emulsão compreendendo a dita fase contínua e a dita fase dispersa seja um sistema bi ou multifásico como conhecido na técnica. Um emulsificante pode ser usado para formação de emulsão. Após a formação do sistema de emulsão, o dito catalisador é formado *in situ* a partir de componentes de catalisador na dita solução.

Em princípio, o agente emulsificante pode ser qualquer agente apropriado que contribua para a formação e/ou estabilização da emulsão e que não tenha qualquer efeito adverso sobre a atividade catalítica do catalisador. O agente emulsificante pode, por exemplo, ser um tensoativo baseado em hidrocarbonetos opcionalmente interrompidos com (a) heteroátomo(s), preferivelmente hidrocarbonetos halogenados opcionalmente tendo um grupo funcional, preferivelmente hidrocarbonetos semi-, altamente- ou per-fluorados como conhecidos na técnica. Alternativamente, o agente emulsificante pode ser preparado durante a preparação de emulsão, por exem-

5 plo, através de reação de um precursor de tensoativo com um composto da solução catalisadora. O dito precursor de tensoativo pode ser um hidrocarboneto halogenado com pelo menos um grupo funcional, por exemplo, um álcool C_{1-30} altamente fluorado, que reage, por exemplo, com um componente co-catalisador, tal como aluminoxano.

10 Em princípio qualquer processo de solidificação pode ser usado para formação de partículas sólidas a partir de gotículas dispersas. De acordo com uma realização preferível, a solidificação é efetuada através de um tratamento de mudança de temperatura. Portanto, a emulsão submetida à mudança gradual de temperatura de até $10^{\circ}\text{C}/\text{minuto}$, preferivelmente $0,5$ a $6^{\circ}\text{C}/\text{minuto}$ e mais preferivelmente 1 a $5^{\circ}\text{C}/\text{minuto}$. Mesmo mais preferido, a emulsão é submetida a uma mudança de temperatura de mais que 40°C , preferivelmente mais que 50°C dentro de menos que 10 segundos, preferivelmente menos que 6 segundos.

15 As partículas recuperadas preferivelmente têm uma faixa de tamanho médio de 5 a $200\ \mu\text{m}$, mais preferivelmente 10 a $100\ \mu\text{m}$.

20 Além disso, a forma de partículas solidificadas tem preferivelmente um formato esférico, uma predeterminada distribuição de tamanho de partículas e uma área de superfície como mencionado acima de preferivelmente menos que $25\ \text{m}^2/\text{g}$, ainda mais preferivelmente menos que $20\ \text{m}^2/\text{g}$, ainda mais preferivelmente menos que $15\ \text{m}^2/\text{g}$, ainda mais preferivelmente menos que $10\ \text{m}^2/\text{g}$, e mais preferivelmente menos que $5\ \text{m}^2/\text{g}$, onde as ditas partículas são obtidas através do processo descrito acima.

25 Para mais detalhes, modalidades e exemplos do sistema de fase contínua e dispersa, processo de formação de emulsão, agente emulsificante e processos de solidificação é feita referência, por exemplo, ao pedido de patente internacional citado acima WO 03/051934.

Os componentes do catalisador simétrico descritos acima são preparados de acordo com os métodos descritos em WO 01/48034.

30 Como mencionado acima o sistema catalisador ainda pode compreender um ativador como um cocatalisador, como descrito em WO 03/051934, que é aqui incorporado a título de referência.

Preferidos como cocatalisadores para metalocenos e não-metalocenos, se desejado, são os aluminóxanos, em particular os C_{1-10} alquilaluminóxanos, mais particularmente metilaluminóxanos (MAO). Tais aluminóxanos podem ser usados como o único cocatalisador ou juntos com outro cocatalisador(es). Assim além ou em adição aos aluminóxanos, outros
5 ativadores catalisadores que formam complexo de cátion podem ser usados. Os ditos ativadores são comercialmente disponíveis ou podem ser preparados de acordo com a literatura da técnica anterior.

Ainda, os cocatalisadores de aluminóxano são descritos i.a. em
10 WO 94/28034 que é aqui incorporado a título de referência. Estes são oligômeros lineares ou cíclicos tendo até 40, preferivelmente 3 a 20, unidades de repetição $-(Al(R''')O)-$ (onde R''' é hidrogênio, C_{1-10} alquila (preferivelmente metila) ou C_{6-18} arila ou misturas dos mesmos).

O uso e quantidades de tais ativadores estão dentro dos conhe-
15 cimentos daqueles versados na técnica. Como exemplo, com os ativadores de boro, a razão 5:1 a 1:5, preferivelmente 2:1 a 1:2, tal como 1:1, do metal de transição para ativador de boro pode ser usada. Em caso de aluminóxanos preferidos, tal como metil aluminóxano (MAO), a quantidade de Al, fornecida por aluminóxano, pode ser escolhida para proporcionar uma razão
20 molar de Al:metal de transição, por exemplo, na faixa de 1 para 10.000, apropriadamente 5 para 8.000, preferivelmente 10 para 7.000, por exemplo, 100 para 4.000, tal como 1.000 para 3.000. Tipicamente no caso de catalisador sólido (heterogêneo) a razão está preferivelmente abaixo de 500.

A quantidade de cocatalisador a ser empregada no catalisador
25 da invenção é assim variável, e depende das condições e do particular composto de metal de transição escolhido de uma maneira bem-conhecida por aqueles versados na técnica.

Quaisquer componentes adicionais a serem contidos na solução compreendendo o composto de transição orgânico podem ser adicionados à
30 dita solução antes ou, alternativamente, após a etapa de dispersão.

Além disso, a presente invenção se refere ao uso do sistema catalisador definido acima para a produção de um polipropileno de acordo

com esta invenção.

Ainda, a presente invenção se refere ao processo para produção do filme para capacitor inventivo compreendendo o polipropileno, pelo que o sistema catalisador conforme definido acima é empregado. Além disso, é
5 preferido que a temperatura de processo seja maior que 60°C. Preferivelmente, o processo é um processo multiestágios para obter polipropileno multimodal como definido acima.

Processos de multiestágios também incluem reatores de fase gás/volume conhecidos como reatores de fase gasosa de multizonas para
10 produção de polímero de propileno multimodal.

Um processo de multiestágios preferido é um processo de “*loop-fase*”, tal como desenvolvido por Borealis A/S, Dinamarca (conhecido como tecnologia BORSTAR®) descrito, por exemplo, em literatura de patente, tal como em EP 0 887 379 ou em WO 92/12182.

15 Polímeros multimodais podem ser produzidos de acordo com vários processos que são descritos, por exemplo, em WO 92/12182, EP 0 887 379 e WO 97/22633.

Um polipropileno multimodal de acordo com esta invenção é produzido preferivelmente em um processo de multiestágios em uma sequência de reação de multiestágios como descrito em WO 92/12182. O conteúdo deste documento é aqui incluído a título de referência.
20

É previamente conhecida a produção de polipropileno multimodal, em particular bimodal, em dois ou mais reatores conectados em série, isto é, em diferentes etapas (a) e (b).

25 De acordo com a presente invenção, os principais estágios de polimerização são preferivelmente realizados como uma combinação de uma polimerização em massa/polimerização em fase gasosa.

As polimerizações em massa são preferivelmente realizadas em um assim chamado reator tipo *loop*.

30 De modo a produzir o polipropileno multimodal de acordo com esta invenção, um modo flexível é preferido. Por esta razão, é preferido que a composição seja produzida em dois estágios de polimerização principais

em combinação de reator tipo loop/reator em fase gasosa.

Opcionalmente, e preferivelmente, o processo também pode compreender uma etapa de pré-polimerização em uma maneira conhecida na técnica e que pode preceder a etapa de polimerização (a).

5 Se desejado, ainda um componente de comonômero elastomérico, assim chamado componente de borracha de etileno-propileno (EPR) como nesta invenção, pode ser incorporado à matriz de homopolímero de polipropileno obtida para formar um copolímero de propileno como definido acima. O componente de borracha de etileno-propileno (EPR) pode ser pre-
10 ferivelmente produzido após a etapa de polimerização em fase gasosa (b) em uma segunda subsequente ou outras polimerizações em fase gasosa usando um ou mais reatores de fase gasosa.

O processo é preferivelmente um processo contínuo.

Preferivelmente, no processo para produção de polímero de
15 propileno, como definido acima, as condições para o reator de volume de etapa (a) podem ser como se segue:

- a temperatura está dentro da faixa de 40°C a 110°C, preferivelmente entre 60°C e 100°C, 70 a 90°C,
- a pressão está dentro da faixa de 2.000 kPa (20 bar) a 8.000 kPa (80 bar),
20 preferivelmente entre 3.000 kPa (30 bar) a 6.000 kPa (60 bar),
- hidrogênio pode ser adicionado para controle da massa molar em uma maneira conhecida per se.

Subsequentemente, a mistura de reação do reator de volume (*bulk*) (etapa a) é transferida para o reator de fase gasosa, isto é, para etapa
25 (b), em que as condições na etapa (b) são preferivelmente como a seguir:

- a temperatura está dentro da faixa de 50°C a 130°C, preferivelmente entre 60°C e 100°C,
- a pressão está dentro da faixa de 500 kPa (5 bar) a 5.000 kPa (50 bar), preferivelmente entre 1.500 kPa (15 bar) a 3.500 kPa (35 bar),
30 - hidrogênio pode ser adicionado para controle de massa molar em uma maneira conhecida per se.

O tempo de residência pode variar em ambas as zonas do rea-

tor. Em uma modalidade do processo para produção de polímero de propileno, o tempo de residência no reator de volume, por exemplo, o *loop* está na faixa de 0,5 a 5 horas, por exemplo, 0,5 a 2 horas e o tempo de residência no reator de fase gasosa será genericamente 1 a 8 horas.

5 Se desejado, a polimerização pode ser efetuada em uma maneira conhecida sob condições supercríticas no reator de volume, preferivelmente reator tipo *loop*, e/ou como um modo condensado no reator de fase gasosa.

10 O processo da invenção ou qualquer uma de suas realizações acima permite meios altamente exequíveis para produção e ainda talhando a composição de polímero propileno dentro da invenção, por exemplo, as propriedades de composição de polímero podem ser ajustadas ou controladas em uma maneira conhecida, por exemplo, com um ou mais dos seguintes parâmetros de processo: temperatura, alimentação de hidrogênio, alimenta-
15 ção de comonômero, alimentação de propileno, por exemplo, no reator de fase gasosa, catalisador, o tipo e quantidade de um doador externo (se usado), separação entre componentes.

 O processo acima permite meios bem exequíveis para obtenção de polipropileno fabricado em reator como definido acima.

20 O filme para capacitor pode ser preparado através de processos de desenho conhecidos no estado da técnica. Por conseguinte, o processo para a fabricação de filme para capacitor de acordo com esta invenção compreende o uso de um polipropileno conforme definido aqui e sua transformação em um filme, preferivelmente um filme fundido. Tipicamente, um filme
25 fundido é preparado primeiramente através da extrusão de sedimentos de polipropileno. Filmes fundidos preparados podem ter tipicamente, uma espessura de 50 a 100 μm como usada para estiramento do filme posterior. Subsequentemente, um grampo de filmes fundidos pode ser preparado a partir de várias folhas de filme fundido para que se atinja uma espessura es-
30 pecífica para o grampo, por exemplo, de 700 a 1.000 μm . A temperatura de estiramento é normalmente definida como uma temperatura ligeiramente abaixo do ponto de fusão, por exemplo, de 2 a 4°C abaixo do ponto de fu-

são, e o filme é estirado em uma razão de estiramento específica na direção de máquina e na direção transversal.

Ademais, a presente invenção é direcionada ao uso de filmes para capacitor conforme aqui definidos, em um capacitor.

- 5 Adicionalmente, a presente invenção é direcionada a um capacitor compreendendo pelo menos uma camada que contém o filme para capacitor aqui definido.

A presente invenção será agora descrita ainda em detalhes pelos exemplos proporcionados abaixo.

10 Exemplos

1. Definições/Métodos de Medição

As seguintes definições de termos e processos de determinação aplicam-se à descrição geral acima da invenção assim como aos exemplos abaixo a menos que de outro modo definido.

15 A. Concentração "pentad"

Para a análise de concentração meso "pentad", também aqui referida como análise de concentração "pentad", a tarefa de análise é efetuada de acordo com T Hayashi, *Pentad concentration*, R. Chujo e T. Asakura, *Polymer* 29 138-43 (1988) e Chujo R, et al., *Polymer* 35 339 (1994).

20 B. Índice de Multirramificação

1. Aquisição do dados experimentais

O polímero é fundido em $T=180^{\circ}\text{C}$ e estirado com a SER Universal Testing Platform como descrito abaixo em taxas de deformação de $d\epsilon/dt = 0,1, 0,3, 1,0, 3,0$ e 10 s^{-1} em experimentos subseqüentes. O método para aquisição de dados brutos é descrito por Sentmanat et al., J. Rheol. 2005, *Measuring the Transient Elongational Rheology of Polyethylene Melts Using the SER Universal Testing Platform*.

Montagem Experimental

Um Paar Physica MCR300, equipado com uma unidade de controle de temperatura TC30 e um forno CTT600 (aquecimento por convecção e radiação) e um dispositivo extensional SERVP01-025 com sensor de temperatura e um software RHEOPLUS/32 v2.66 é usado.

Preparação das Amostras

Péletes estabilizados são moldados por compressão a 220°C (tempo de gel de 3 minutos, tempo de pressão de 3 minutos, tempo de moldagem total 3+3 = 6 minutos) em um molde em uma pressão suficiente para evitar bolhas no espécime, resfriado para temperatura ambiente. A partir de tal placa preparada com 0,7 mm de espessura, tiras de uma largura de 10 mm e um comprimento de 18 mm são cortadas.

Verificação do Dispositivo SER

Devido às baixas forças atuando sobre as amostras estiradas para espessuras finas, qualquer fricção essencial do dispositivo pode deteriorar a precisão dos resultados e tem de ser evitada.

De modo a assegurar que a fricção do dispositivo seja menos que um limite de 5×10^{-3} mNm (miliNewton-metro) que é requerida para medições precisas e corretas, o seguinte procedimento de verificação é realizado antes de cada medição.

- O dispositivo é fixado na temperatura de teste (180°C) por um mínimo de 20 minutos, sem amostra, na presença dos prendedores
- Um teste padrão com $0,3 \text{ s}^{-1}$ é realizado com o dispositivo na temperatura de teste (180°C)
- O torque (medido em mNm) é anotado e plotado contra tempo
- O torque não deve exceder um valor de 5×10^{-3} mNm para assegurar a fricção do dispositivo em uma faixa aceitavelmente baixa.

Condução de experimento

O dispositivo é aquecido por 20 minutos para a temperatura de teste (180°C medida com o termopar ligado ao dispositivo SER) com prendedores, mas sem amostra. Subsequentemente, a amostra (0,7 x 10 x 18 mm), preparada como descrito acima, é presa no dispositivo quente. A amostra é deixada fundir por 2 minutos +/- 20 segundos antes de experimento ser iniciado.

Durante o experimento de estiramento sob atmosfera inerte (nitrogênio) em taxa de deformação de Hencki constante, o torque é anotado como função de tempo em condições isotérmicas (medidas e controladas

com o termopar ligado ao dispositivo SER).

Após estiramento, o dispositivo é aberto e o filme estirado (que é enrolado sobre os tambores) é inspecionado. Extensão homogênea é requerida. Pode ser julgado visualmente a partir da forma do filme estirado sobre os tambores se o estiramento de amostra estiver homogêneo ou não. A fita tem de ser enrolada simetricamente sobre ambos os tambores, mas também simetricamente nas metades superior e inferior do espécime.

Se estiramento simétrico é assim confirmado, a viscosidade e-longacional transiente é calculada a partir de torque anotado como esboçado abaixo.

2. Avaliação

Para cada uma das diferentes taxas de deformação $d\epsilon/dt$ aplicadas, a resultante função de crescimento de tensão de tração η_E^+ ($d\epsilon/dt$, t) é plotada contra a deformação de Hencky total ϵ para determinar o comportamento de endurecimento de deformação de fusão, vide Figura 1.

Na faixa de deformações de Hencky entre 1,0 e 3,0, a função de crescimento de tensão de tração η_E^+ pode ser bem adaptada com uma função

$$\eta_E^+(\dot{\epsilon}, \epsilon) = c_1 \cdot \epsilon^{c_2}$$

onde c_1 e c_2 são variáveis de adaptação. Tal derivada c_2 é uma medida para o comportamento de endurecimento de deformação de fusão e o chamado índice de endurecimento de deformação SHI.

Dependendo da arquitetura do polímero, SHI pode

- ser independente da taxa de deformação (materiais lineares, estruturas Y ou H)
- aumentar com a taxa de deformação (estruturas de cadeia curta, hiper ou multirramificadas).

Isso é ilustrado na Figura 2.

Para polietileno, estruturas lineares (HDPE), ramificadas de cadeia curta (LLDPE) e hiperrramificadas (LDPE) são bem-conhecidas e, portanto, elas são usadas para ilustrarem as características analíticas estrutu-

rais baseadas nos resultados de viscosidade de extensão. Elas são comparadas com um polipropileno com estruturas Y e H com relação a sua mudança do comportamento de endurecimento de deformação como função de taxa de deformação, vide Figura 2 e Tabela 1.

5 Para ilustrar a determinação de SHI em diferentes taxas de deformação assim como o índice de multirramificação (MBI) quatro polímeros de conhecida arquitetura de cadeia são examinados com o procedimento analítico descrito acima.

10 O primeiro polímero é um homopolímero de polipropileno de forma H e Y fabricado de acordo com EP 879 830 ("A"). Ele tem uma MFR230/2,16 de 2,0 g / 10 minutos, um módulo de tração de 1.950 MPa e um índice de ramificação g' de 0,7.

15 O segundo polímero é um LDPE hiper-ramificado comercial, Borealis "B", fabricado em um processo de alta pressão conhecido da técnica. Ele tem uma MFR190/2,16 de 4,5 e uma densidade de 923 kg/m³.

 O terceiro polímero é um LLDPE ramificado de cadeia curta, Borealis "C", fabricado em um processo de baixa pressão conhecido da técnica. Ele tem uma MFR190/2,16 de 1,2 e uma densidade de 919 kg/m³.

20 O quarto polímero é um HDPE linear, Borealis "D", fabricado em um processo de baixa pressão conhecido da técnica. Ele tem uma MFR190/2,16 de 4,0 e uma densidade de 954 kg/m³.

25 Os quatro materiais de arquitetura de cadeia conhecida são investigados por meio de medição da viscosidade elongacional transiente a 180°C em taxas de deformação de 0,10, 0,30, 1,0, 3,0 e 10 s⁻¹. Dados obtidos (viscosidade elongacional transiente versus deformação de Hencky) são adaptados com uma função.

$$\eta_E^+ = c_1 * \varepsilon^{c_2}$$

30 para cada uma das taxas de deformação mencionadas. Os parâmetros c_1 e c_2 são encontrados através de representação gráfica de logaritmo da viscosidade elongacional transiente contra o logaritmo da deformação de Hencky e realizando uma adaptação linear destes dados aplicando o processo dos

quadrados mínimos. O parâmetro c_1 calcula-se a partir da intercessão da adaptação linear dos dados $\lg(\eta\epsilon^+)$ versus $\lg(\epsilon)$ de

$$c_1 = 10^{\text{intercessão}}$$

e c_2 é o índice de endurecimento de deformação (SHI) na taxa de deformação particular.

Esse procedimento é feito para todas as cinco taxas de deformação e portanto, $\text{SHI}@0,1\text{s}^{-1}$, $\text{SHI}@0,3\text{s}^{-1}$, $\text{SHI}@1,0\text{s}^{-1}$, $\text{SHI}@3,0\text{s}^{-1}$ e $\text{SHI}@10\text{s}^{-1}$ são determinados, vide Figura 1.

Tabela 1: Valores de SHI

$d\epsilon/dt$	$\lg(d\epsilon/dt)$	Propriedade	Ramificado Y e H	Multirramificado	Ramificado de cadeia curta	Linear
			A	B	C	D
0,1	-1,0	$\text{SHI}@0,1\text{s}^{-1}$	2,05	-	0,03	0,03
0,3	-0,5	$\text{SHI}@0,3\text{s}^{-1}$	-	1,36	0,08	0,03
1	0,0	$\text{SHI}@1,0\text{s}^{-1}$	2,19	1,65	0,12	0,11
3	0,5	$\text{SHI}@3,0\text{s}^{-1}$	-	1,82	0,18	0,01
10	1,0	$\text{SHI}@10\text{s}^{-1}$	2,14	2,06	-	-

A partir do comportamento de endurecimento de deformação medido pelos valores do $\text{SHI}@1\text{s}^{-1}$ pode-se claramente distinguir entre dois grupos de polímeros: lineares e ramificados de cadeia curta têm um $\text{SHI}@1\text{s}^{-1}$ significativamente menor que 0,30. Em contraste, os ramificados Y e H assim como os materiais hiper-ramificados têm um $\text{SHI}@1\text{s}^{-1}$ significativamente maior que 0,30.

Na comparação de índice de endurecimento de deformação naquelas cinco taxas de deformação $\dot{\epsilon}_H$ de 0,10, 0,30, 1,0, 3,0 e 10s^{-1} , a inclinação de SHI como função do logaritmo de $\dot{\epsilon}_H$ é uma medida característica para multirramificação. Por isso, um índice de multirramificação (MBI) é calculado a partir da inclinação de uma curva de adaptação linear de SHI versus $\lg(\dot{\epsilon}_H)$:

$$\text{SHI}(\dot{\epsilon}_H) = c_3 + \text{MBI} * \lg(\dot{\epsilon}_H)$$

Os parâmetros c_3 e MBI são encontrados através de representação gráfica de SHI contra o logaritmo da taxa de deformação de Hencky $\lg(\dot{\epsilon}_H)$ e realizando uma adaptação linear destes dados através de aplicação do processo de quadrados mínimos. Favor vide Figura 2.

5 Tabela 2: Valores de MBI

Propriedade	Ramificado Y e H	Multirramificado	Ramificado de cadeia curta	Linear
	A	B	C	D
MBI	0,04	0,45	0,10	0,01

O índice de multirramificação MBI permite agora distinguir entre polímeros ramificados Y ou H que mostram um MBI menor que 0,05 e polímeros hiper-ramificados que mostram um MBI maior que 0,15. Ainda, permite distinguir entre polímeros ramificados de cadeia curta com MBI maior que 0,10 e materiais lineares que têm um MBI menor que 0,10.

Resultados similares podem ser observados quando diferentes polipropilenos são comparados, isto é, polipropilenos com estruturas bem altamente ramificadas têm maiores valores de SHI e MBI, respectivamente, em comparação com a suas contrapartes lineares e de cadeia curta. Similares aos polietilenos de baixa densidade linear, os novos polipropilenos desenvolvidos mostram certo grau de ramificação de cadeia curta. Entretanto, os polipropilenos de acordo com a presente invenção são claramente distinguidos nos valores de SHI e MBI quando comparados a polietilenos de baixa densidade linear conhecidos. Sem estar preso a essa teoria, acredita-se que os diferentes valores de SHI e MBI são o resultado de uma diferente arquitetura de ramificação. Por esta razão, os novos polipropilenos ramificados verificados de acordo com esta invenção são designados como ramificados de cadeia curta.

Combinando ambos, índice de endurecimento de deformação e índice de multirramificação, a arquitetura de cadeia pode ser avaliada como indicado na Tabela 3:

Tabela 3: Índice de endurecimento de deformação (SHI) e Índice de multir-

ramificação (MBI) para várias arquiteturas de cadeia

Propriedade	Ramificada Y e H	Multirramificada	Ramificada com cadeia curta	Linear
SHI @ 1,0s ⁻¹	>0,30	>0,30	≤0,30	≤0,30
MBI	≤0,10	>0,10	>0,10	≤0,10

C. Análise Elementar

A análise elementar descrita abaixo é usada para determinação de teor de resíduos elementares que estão principalmente originando-se do catalisador, especialmente os resíduos de Al, B, e Si no polímero. Os ditos resíduos de Al, B e Si podem estar em qualquer forma, por exemplo, em forma elementar ou iônica, que possa ser recuperada e detectada a partir do polipropileno usando o método ICP descrito abaixo. O processo também pode ser usado para determinação de teor de Ti do polímero. É entendido que também outros processos podem ser usados que podem resultar em resultados similares.

Espectrometria de ICP (Emissão de Plasma Acoplada Indutivamente)

Instrumento de ICP: O instrumento para determinação do teor de Al, B e Si é ICP Optima 2000 DV, PSN 620785 (fornecedor Perkin Elmer Instruments, Bélgica) com software do instrumento.

Limites de detecção são de 0,10 ppm (Al), 0,10 ppm (B), 0,10 ppm (Si).

A amostra de polímero foi primeiramente formada em cinzas, de uma maneira conhecida, então dissolvida em um solvente ácido apropriado. As diluições dos padrões para a curva de calibração são dissolvidas no mesmo solvente que a amostra e as concentrações escolhidas, de modo que a contração da amostra possa cair dentro de curva de calibração padrão.

ppm: significa partes por milhão em peso

teor de cinzas: o teor de cinzas é medido de acordo com o padrão ISO 3451-1 (1997).

Cinzas calculadas, teor de Al, Si e B:

As cinzas e os elementos listados acima, Al e/ou Si e/ou B também podem ser calculados de um polipropileno baseado na atividade de po-

limerização do catalisador como exemplificado nos exemplos. Esses valores podem render o limite superior da presença dos ditos resíduos originando-se do catalisador.

Assim, o resíduo de catalisador estimado é baseado na composição de catalisador e produtividade de polimerização, resíduos de catalisador no polímero podem ser estimados de acordo com:

Resíduos totais de catalisador [ppm] = $1 / \text{produtividade [kg}_{pp}/\text{g}_{\text{catalisador}}] \times 100$

Resíduos de Al [ppm] = $w_{\text{Al, catalisador}} [\%] \times \text{resíduos totais de catalisador [ppm]} / 100$

Resíduos de Zr [ppm] = $w_{\text{Zr, catalisador}} [\%] \times \text{resíduos totais de catalisador [ppm]} / 100$

(Cálculos similares são também aplicados a resíduos de B, Cl e Si)

Teor de resíduos de cloro: O teor de resíduos de Cl é medido de amostras da maneira conhecida usando espectrometria de fluorescência de raios-X (XRF). O instrumento foi *X ray fluorescence* Philips PW2400, PSN 620487, (fornecedor: Philips, Bélgica) software X47. Limite de detecção para Cl é de 1 ppm.

D. Outros Métodos de Medição

Distribuição de tamanho de partícula: Distribuição de tamanho de partícula é medida via Contador Coulter LS 200 em temperatura ambiente, com n-heptano como meio.

RNM

Medições de espectroscopia de RNM:

Os espectros de RNM C^{13} de polipropileno foram registrados em um espectrômetro Bruker 400 MHz a 130°C a partir de amostras dissolvidas em 1,2,4-triclorobenzeno/benzene- d_6 (90/10 peso/peso). Para a análise "pentad", a transmissão é feita de acordo com os processos descritos na literatura: (T. Hayashi, Y. Inoue, R. Chũjō, e T. Asakura, *Polymer* 29 138-43 (1988) e Chujo R, et al., *Polymer* 35 339 (1994).

A medição de RNM foi usada para determinação de concentração mmmm "pentad" em uma maneira conhecida na técnica.

Peso molecular médio numérico (M_n), peso molecular médio

ponderal (M_w) e distribuição de peso molecular (MWD) são determinados por cromatografia de exclusão de tamanho (SEC) usando o instrumento Waters Alliance GPCV 2000 com viscosímetro on-line. A temperatura de forno é de 140°C. Triclorobenzeno é usado como um solvente (ISO 16014).

- 5 Os solúveis em xileno (XS, % em peso): Análises de acordo com o método conhecido: 2,0 g de polímero são dissolvidos em 250 mL de p-xileno a 135°C sob agitação. Após 30+/- 2 minutos a solução é deixada resfriar por 15 minutos em temperatura ambiente e então deixada depositar por 30 minutos a 25±0,5°C. A solução é filtrada e evaporada em fluxo de nitrogênio e o resíduo é
- 10 secado sob vácuo a 90°C, até peso constante ser atingido.

$$XS\% = (100 \times m_1 \times v_0) / (m_0 \times v_1), \text{ em que}$$

m_0 = quantidade inicial de polímero (g)

m_1 = peso de resíduo (g)

v_0 = volume inicial (mL)

- 15 V_1 = volume da amostra analisada (mL)

Temperatura de fusão T_m , temperatura de cristalização T_c , e o grau de cristalinidade: medidos com calorimetria de varredura diferencial (DSC) Mettler TA820 nas amostras de 5-10 mg. Ambas as curvas de cristalização e fusão foram obtidas durante varreduras de resfriamento e de aquecimento de

20 10°C/minuto entre 30 e 225°C. Temperaturas de fusão e cristalização foram tomadas como os picos de endotermas e exotermas.

Também a entalpia de fusão e cristalização (H_m e H_c) foram medidas através do processo DSC de acordo com ISO 11357-3.

MFR₂: medida de acordo com ISO 1133 (230°C, 2,16 kg de carga).

- 25 Teor de comonômero é medido com espectroscopia de infravermelho da transformada de Fourier (FTIR) calibrada com RMN ¹³C. Quando se está medindo o teor de etileno em polipropileno, um filme delgado da amostra (espessura de cerca de 250 μm) foi preparado através de prensagem a quente. A área de pico de absorção de -CH₂- (800-650 cm⁻¹) foi medida com
- 30 espectrômetro Perkin Elmer FTIR 1600. O processo foi calibrado através de dados de teor de etileno medidos por RMN ¹³C.

Rigidez de filme TD (direção transversal), Rigidez de Filme MD (direção da

máquina), Elongação na ruptura TD e Elongação na ruptura MD: estas são determinadas de acordo com ISO 527-3 (velocidade de cruzeta: 1 mm/minuto).

Turbidez e transparência: são determinadas de acordo com ASTM D1003-92.

- 5 Viscosidade intrínseca: é medida de acordo com DIN ISO 1628/1, outubro de 1999 (em decalina a 135°C).

Porosidade: é medida de acordo com DIN 66135.

Área de superfície: é medida de acordo com ISO 9277.

- 10 Técnica de Segregação Isotérmica Em Etapas (SIST): A cristalização isotérmica para análise SIST foi realizada em um Mettler TA820 DSC sobre amostras de $0,3 \pm 0,5$ mg em temperaturas decrescentes entre 200°C e 105°C.

(i) As amostras foram fundidas a 225°C por 5 minutos.

(ii) então resfriadas com 80°C/minuto para 145°C

(iii) mantidas por 2 horas a 145°C,

- 15 (iv) então resfriadas com 80°C / minuto para 135°C

(v) mantidas por 2 horas a 135°C,

(vi) então resfriadas com 80°C/minuto para 125°C

(vii) mantida por 2 horas a 125°C,

(viii) então resfriadas com 80°C/minuto para 115°C

- 20 (ix) mantidas por 2 horas a 115°C,

(x) então resfriadas com 80°C/minuto para 105°C

(xi) mantidas por 2 horas a 105°C.

- 25 Após a última etapa, a amostra foi resfriada para a temperatura ambiente, e a curva de fusão foi obtida através de aquecimento da amostra resfriada em uma taxa de aquecimento de 10°C/minuto até 200°C. Todas as medições foram realizadas em uma atmosfera de nitrogênio. A entalpia de fusão é registrada como função de temperatura e avaliada através de medição de entalpia de fusão de porções fundindo dentro de intervalos de temperaturas como indicado para exemplo E 1 na tabela 8 e figura 5.

- 30 A curva de fusão do material cristalizado desta maneira pode ser usada para cálculo de distribuição de espessura de lamela de acordo com equação de Thomson-Gibbs (Eq. 1).

$$T_m = T_0 \left(1 - \frac{2\sigma}{\Delta H_0 \cdot L} \right) \quad (1)$$

onde $T_0 = 457\text{K}$, $\Delta H_0 = 184 \times 10^6 \text{ J/m}^3$, $\sigma = 0,049,6 \text{ J/m}^2$ e L é a espessura de lamela.

Resistência de interrupção elétrica (EB63%)

Segue o padrão IEC 60243 – parte 1 (1988).

- 5 O método descreve um modo de medir a resistência de interrupção elétrica para materiais de isolamento sobre placas moldadas por compressão.

Definição:

$$\text{Eb:} \quad E_b = \frac{U_b}{d}$$

- 10 A resistência de campo elétrico na amostra de teste na qual ocorre interrupção. Em placas e filmes homogêneos isto corresponde à resistência de interrupção elétrica dividida pela espessura da placa/filme (d), unidade: kV/mm.

- 15 A resistência à interrupção elétrica é determinada em 50 Hz dentro de um gabinete de alta voltagem usando bastões de metal como eletrodos como descrito em IEC60243-1 (4.1.2). A voltagem é elevada sobre o filme/placa em 2 kV/s até ocorrer uma interrupção.

3. Exemplos

Exemplo Inventivo 1 (E1)

Preparação do Catalisador

- 20 O catalisador foi preparado como descrito no exemplo 5 de WO 03/051934, com as razões de Al e Zr como dadas no dito exemplo (Al/Zr = 250).

Características do Catalisador:

- 25 Teor de Al e Zr foram analisados através do método mencionado acima para 36,27% em peso de Al, e 0,42% em peso de Zr. O diâmetro de partícula médio (analisado via contador Coulter) é de 20 μm e a distribuição de tamanho de partícula é mostrada na Figura 3.

Polimerização

Um reator de aço inoxidável de 5 litros foi usado para polimerizações de propileno. 1.100 g de propileno líquido (grau de polimerização Borealis) foram alimentados ao reator. 0,2 mL de trietilalumínio (100%, adquirido da Crompton) foi alimentado como "scavenser" e 15 mmols de hidrogênio (qualidade 6,0, suprido por Åga) como agente de transferência de cadeia. A temperatura do reator foi fixada para 30°C. 29,1 mg de catalisador foram descarregados no reator com sobrepressão de nitrogênio. O reator foi aquecido para 70°C em um período de cerca 14 minutos. Polimerização foi continuada por 50 minutos a 70°C, então propileno foi jorrado, 5 mmols de hidrogênio foram alimentados e a pressão de reator foi aumentada para 2.000 kPa (20 bar) através de alimentação de propileno (gasoso). A polimerização continuou em fase gasosa por 144 minutos, então o reator foi jateado, o polímero foi secado e pesado.

O rendimento de polímero pesou 901 g, que iguala uma produtividade de 31 kg_{pp}/g_{catalisador}. 1.000 ppm de um estabilizador comercial Irganox B 215 (FF) (Ciba) foram adicionados ao pó. O pó foi composto por fusão com um amassador de laboratório Prism TSE16 em 250 rpm, a uma temperatura de 220-230°C.

20 Exemplo Inventivo 2 (E 2)

Um catalisador como usado em I1 foi empregado.

Um reator de aço inoxidável de 5 litros para polimerizações de propileno. 1.100 g de propileno líquido (grau de polimerização Borealis) foram alimentados ao reator. 0,2 mL de trietilalumínio (100%, adquirido da Crompton) foi alimentado como um "scavenser" e 15 mmols de hidrogênio (qualidade 6,0, fornecido por Åga) como agente de transferência de cadeia. A temperatura do reator foi fixada em 30°C. 19,9 mg de catalisador foram carregados no reator com sobrepressão de nitrogênio. O reator foi aquecido para 70°C em um período de 14 minutos. Polimerização foi continuada por 30 minutos a 70°C, então propileno foi purgado, a pressão do reator foi aumentada para 2.000 kPa (20 bar) através da alimentação de propileno (gasoso). A polimerização continuou em fase gasosa por 135 minutos, então o

reator foi jateado, o polímero foi secado e pesado.

O rendimento de polímero foi de 871 g, que iguala uma produtividade de 44 kg_{pp}/g_{catalisador}. 1000 ppm de um estabilizador comercial Irganox B 215 (FF) (Ciba) foram adicionados ao pó. O pó foi composto por fusão com um amassador de laboratório Prism TSE16 em 250 rpm em uma temperatura de 220-230°C.

Exemplo Comparativo 1 (CE 1)

Um homopolímero de polipropileno comercial Borealis foi usado.

Exemplo Comparativo 2 (CE2)

Um homopolímero de polipropileno comercial Borealis foi usado.

Nas Tabelas 4, 5 e 6, as propriedades das amostras CE 1, CE 2, E1 e E2 estão resumidas.

Tabela 4: Propriedades do polipropileno de acordo com a invenção e exemplos comparativos

	Unidade	CE 1	CE 2	E 1	E 2
Cinzas	ppm	15	13	85	n.a.
MFR	g/10'	2,1	2,1	2	5,3
Mw	g/mol	412000	584000	453000	405000
Mw/Mn	-	9,9	8,1	2,8	5,3
XS	% em peso	1,2	3,5	0,85	0,66
Mmmm	-			0,95	0,95
Tm	°C	162	162	150,6	150,9
Hm	J/g	107	100	99,5	100,1
Tc	°C	115	113	111,9	111,2
Hc	J/g	101	94	74,6	92,8
g'	-	1	1	0,9	<1
SHI@1,0s ⁻¹	-	0	0	0,15	n.a.
MBI	-	0	0	0,20	n.a.
Arquitetura da Cadeia	Qualitativa	Linear	Linear	Ramificada de cadeia curta	Ramificada de cadeia curta

Tabela 5: Preparação do filme fundido e caracterização do filme fundido com equipamento OCS, espessura constante em 90-110 μm .

	Unidade	CE 1	CE 2	E 1	E 2
Rigidez de filme TD	MPa	960	756	1011	n.a.
Rigidez de filme MD	MPa	954	752	1059	n.a.
Elongação na ruptura TD	%	789	792	700	n.a.
Elongação na ruptura MD	%	733	714	691	
Transparência	%	94	94	94	n.a.
Turbi	%	24,2	19,9	7,8	n.a.

Tabela 6: Preparação do filme BOPP e caracterização VTT Tampere, Orientação 4x4

5

Código	Unidade	CE 1	CE 2	E1	E2
EB63%	kV/mm	210	224	291	388
90% de CONF INFERIOR	kV/mm	197	203	267	349
90% de CONF SUPERIOR	kV/mm	223	244	311	425
Beta:	nenhuma	10,4	6,9	8,3	6,5
Tensão MD4	MPa	4,3	3,8	3,6	2,7
Tensão TD4	MPa	3,4	3,1	3,0	2,5
Rigidez do Filme 4x4 MD	MPa	3003	3138	2550	2020
Rigidez do Filme 4x4 TD	MPa	2943	2691	2824	2554
Elongação na Ruptura Filme 4x4 TD	%	52	53	80	62
Elongação na Ruptura Filme 4x4 MD	%	50	60	34	41
Tm Inicial Filme 4x4	°C	141	136	137	n.a.
Tm Filme (1ª fusão 4x4)	°C	156	158	154	157

Hm Filme (1ª fusão 4x4)	J/g	56	66	70	92
Tc Filme 4x4	°C	111	112	112	114
Hc Filme 4x4	J/g	80	78	77	90
Tm Filme (2ª fusão 4x4)	°C	167	165	156	154
Hm Filme (2ª fusão 4x4)	J/g	74	73	69	89

Tabela 7: Preparação do Filme BOPP e caracterização VTT Tampere, Orientação 5x5

Código	Unidade	E2
EB63%	kV/mm	638
90% de CONF INFERIOR	kV/mm	563
90% de CONF SUPERIOR	kV/mm	707
Beta:	nenhuma	5,6
Tensão MD5	MPa	3,5
Tensão TD5	MPa	3,4
Rigidez do Filem 5x5 MD	MPa	2271
Rigidez do Filem 5x5 TD	MPa	2445
Elongação na Ruptura Filme 5x5 TD	%	39
Elongação na Ruptura Filme 5x5 MD	%	19
Tm Inicial Filme 5x5	°C	n.a.
Tm Filme (1ª fusão 5x5)	°C	152
Hm Filme (1ª fusão 5x5)	J/g	83
Tc Filme 5x5	°C	109
Hc Filme 5x5	J/g	95
Tm Filme (2ª fusão 5x5)	°C	153
Hm Filme (2ª fusão 5x5)	J/g	100

Um filme orientado biaxialmente é preparado como a seguir:

- No Dispositivo Bruckner Karo IV de estiramento biaxial, amostras de filme são grampeadas e estendidas tanto na direção longitudinal como na direção transversal, em velocidade de estiramento constante. O com-

primento da amostra aumenta durante o estiramento na direção longitudinal e a razão de estiramento na direção longitudinal calcula-se da razão do comprimento corrente sobre o comprimento da amostra original. Subsequentemente, a amostra é estirada na direção transversal onde a largura da amostra está aumentando. Logo, a razão de estiramento calcula-se a partir da largura da amostra sobre a largura original da amostra.

Na Tabela 8, o comportamento da cristalização da amostra E 1 é determinada via técnica de segregação isotérmica em etapas (SIST).

Tabela 8: Resultados da técnica de segregação isotérmica em etapas (SIST)

		E 1	CE 1	CE 2
	Faixa			
Pico ID	[°C]	H_m [J/g]	H_m [J/g]	H_m [J/g]
1	<110	6,0	0,6	1,0
2	110-120	3,8	1,0	1,4
3	120-130	4,8	2,0	2,6
4	130-140	11,4	3,9	4,8
5	140-150	27,5	10,6	12,8
6	150-160	29,2	25,4	32,1
7	160-170	16,9	50,7	56,6
8	>170	0,1	37,5	14,3

H_m = entalpia de fusão.

REIVINDICAÇÕES

1. Filme para capacitor, caracterizado pelo fato de que compreende um polipropileno, em que o filme e/ou o polipropileno

a) tem/têm xileno solúvel (XS) de pelo menos 0,5% em peso e

5 b) compreende(m) uma porção cristalina que cristaliza na faixa de temperatura de 200 a 105°C, determinada por técnica de segregação isotérmica em etapas (SIST), em que a dita porção cristalina compreende uma parte que durante fusão subsequente a uma taxa de fusão de 10°C/min funde a ou abaixo de 140°C e a dita parte representa pelo menos 10% em peso da dita porção cristalina.

2. Filme para capacitor, caracterizado pelo fato de que compreende um polipropileno, em que o filme e/ou o polipropileno

a) tem/têm solúveis em xileno (XS) de pelo menos 0,5% em peso e

15 b) compreende(m) uma porção cristalina que cristaliza na faixa de temperatura de 200 a 105°C por técnica de segregação isotérmica em etapas (SIST), em que a dita porção cristalina compreende uma parte que durante fusão subsequente em uma taxa de fusão de 10°C/min funde a ou abaixo da temperatura $T = T_m - 3^\circ\text{C}$, em que T_m é a temperatura de fusão e a dita parte representa pelo menos 45% em peso da dita porção cristalina.

20 3. Filme para capacitor, caracterizado pelo fato de que compreende um polipropileno, em que o filme e/ou o polipropileno tem/têm

a) solúveis em xileno (XS) de pelo menos 0,5% em peso e

25 b) um índice de endurecimento de deformação ($\text{SHI}@1\text{s}^{-1}$) de pelo menos 0,15 medido em uma taxa de deformação d/dt de 1,00 s^{-1} , a uma temperatura de 180°C,

em que o índice de endurecimento de deformação (SHI) é definido como a inclinação do logaritmo para a base 10 da função de crescimento de tensão de tração ($\lg(\eta E^+)$) como função do logaritmo de base 10 da deformação de Hencky ($\lg(\epsilon)$) na faixa das deformações de Hencky entre 1 e 3.

4. Filme para capacitor, de acordo com a reivindicação 1 ou 2,

caracterizado pelo fato de que o filme e/ou o polipropileno tem/têm um índice de endurecimento de deformação ($SHI@1s^{-1}$) de pelo menos 0,15 medido em uma taxa de deformação $d\epsilon/dt$ de $1,00 s^{-1}$ em uma temperatura de $180^{\circ}C$, em que o índice de endurecimento de deformação (SHI) é definido como a inclinação do logaritmo para a base 10 da função de crescimento de tensão de tração ($\lg(\eta E+)$) como função do logaritmo de base 10 da deformação de Hencky ($\lg(\epsilon)$) na faixa das deformações de Hencky entre 1 e 3.

5. Filme para capacitor, de acordo com a reivindicação 3, caracterizado pelo fato de que o filme e/ou o polipropileno compreende(m) uma porção cristalina que cristaliza na faixa de temperatura de 200 a $205^{\circ}C$ determinada por técnica de segregação isotérmica em etapas (SIST), em que a dita porção cristalina compreende uma parte que durante fusão subsequente em uma taxa de fusão de $10^{\circ}C/min$ funde a ou abaixo de $140^{\circ}C$ e a dita parte representa pelo menos 20% em peso da dita porção cristalina.

6. Filme para capacitor, de acordo com a reivindicação 3, caracterizado pelo fato de que o filme e/ou o polipropileno compreende(m) uma porção cristalina que cristaliza na faixa de temperatura de 200 a $105^{\circ}C$ determinada através de técnica de segregação isotérmica em etapas (SIST), em que a dita porção cristalina compreende uma parte que durante subsequente fusão em uma taxa de fusão de $10^{\circ}C/minuto$ funde a, ou abaixo da temperatura $T = T_m - 3^{\circ}C$, na qual T_m é a temperatura de fusão e a dita parte representa pelo menos 50% em peso da dita fração cristalina.

7. Filme para capacitor, de acordo com qualquer uma das reivindicações 1 a 6, caracterizado pelo fato de que o filme e/ou o polipropileno tem/têm solúveis em xileno na faixa de 0,5 a 1,5% em peso.

8. Capacitor para filme, de acordo com qualquer uma das reivindicações 1, 2, 4 a 7, caracterizado pelo fato de que o filme e/ou o polipropileno compreende(m) pelo menos 90% em peso da dita porção cristalina.

9. Filme para capacitor, de acordo com qualquer uma das reivindicações 1 a 8, caracterizado pelo fato de que o filme é um filme biaxialmente orientado.

10. Filme para capacitor, de acordo com qualquer uma das reivindicações 1 a 9, caracterizado pelo fato de que o filme é estirável na direção da máquina e transversal até uma proporção de estiramento de pelo menos 3,5 sem ruptura.

5 11. Filme para capacitor, de acordo com qualquer uma das reivindicações 1 a 10, caracterizado pelo fato de que o filme tem uma proporção de estiramento na direção da máquina e transversal de pelo menos 3,5.

10 12. Filme para capacitor, de acordo com qualquer uma das reivindicações 1 a 11, caracterizado pelo fato de que o filme e/ou o polipropileno tem/têm um módulo de tração de pelo menos 1.800 MPa em uma proporção de estiramento de 4 na direção da máquina e uma proporção de estiramento de 4 na direção transversal, medida de acordo com ISO 527-3 em velocidade de cruzeta transversal de 1 mm/min.

15 13. Filme para capacitor, de acordo com qualquer uma das reivindicações 1 a 12, caracterizado pelo fato de que o filme tem uma tensão de estiramento de pelo menos 2,5 MPa na direção da máquina e na direção transversa em uma temperatura e estiramento de 152°C ou menos e uma proporção de estiramento de 4,0 na direção da máquina e na direção transversal.

20 14. Filme para capacitor, de acordo com qualquer uma das reivindicações precedentes 3 a 13, caracterizado pelo fato de que o filme e/ou o polipropileno tem/têm um índice de dureza de deformação ($SHI@1s^{-1}$) na faixa de 0,15 a 0,30.

25 15. Filme para capacitor, de acordo com qualquer uma das reivindicações 1 a 14, caracterizado pelo fato de que o filme e/ou o polipropileno tem/têm um ponto de fusão T_m de pelo menos 148°C.

30 16. Filme para capacitor, de acordo com qualquer uma das reivindicações 1 a 15, caracterizado pelo fato de que o filme e/ou o polipropileno tem/têm um índice de multirramificação (MBI) de pelo menos 0,15, em que o índice de multirramificação (MBI) é definido como a inclinação do índice de endurecimento de deformação (SHI) como função do logaritmo para a base 10 da taxa de deformação de Hencky ($\lg(d\epsilon/dt)$), em que

a) $d\varepsilon/dt$ é a taxa de deformação,

b) ε é a deformação de Hencky, e

c) o índice de endurecimento de deformação (SHI) é medido em uma temperatura de 180°C, em que o índice de endurecimento de deformação (SHI) é definido como a inclinação do logaritmo para a base 10 da função de crescimento de tensão de tração ($\lg(\eta_E^+)$) como função do logaritmo de base 10 da deformação de Hencky ($\lg(\varepsilon)$) na faixa das deformações de Hencky entre 1 e 3.

17. Filme para capacitor, de acordo com qualquer uma das reivindicações 1 a 16, caracterizado pelo fato de que o filme e/ou o polipropileno tem/têm um índice de ramificação g' de menos que 1,00.

18. Filme para capacitor, de acordo com qualquer uma das reivindicações 1 a 17, caracterizado pelo fato de que o polipropileno é multimodal.

19. Filme para capacitor, de acordo com qualquer uma das reivindicações 1 a 17, caracterizado pelo fato de que o polipropileno é unimodal.

20. Filme para capacitor, de acordo com qualquer uma das reivindicações 1 a 19, caracterizado pelo fato de que o polipropileno tem distribuição de peso molecular (MWD) medida de acordo com ISO 16014 de não mais que 8,00.

21. Filme para capacitor, de acordo com qualquer uma das reivindicações 1 a 20, caracterizado pelo fato de que o polipropileno tem uma taxa de escoamento de fusão MFR_2 medida de acordo com ISO 1133 de até 10 g/10 min.

22. Filme para capacitor, de acordo com qualquer uma das reivindicações 1 a 21, caracterizado pelo fato de que o polipropileno tem uma concentração mmmm "pentad" maior que 94% determinada por espectroscopia de RMN.

23. Filme para capacitor, de acordo com qualquer uma das reivindicações 1 a 22, caracterizado pelo fato de que o polipropileno é um homopolímero de propileno.

24. Filme para capacitor, de acordo com qualquer uma das reivindicações 1 a 23, caracterizado pelo fato de que o polipropileno foi produzido em presença de um sistema catalítico que compreende complexo de metalloceno, em que o sistema catalítico tem uma porosidade, medida de acordo com DIN 66135, menor que 1,40 mL/g.

25. Filme para capacitor, de acordo com qualquer uma das reivindicações 1 a 24, caracterizado pelo fato de que o polipropileno foi produzido em presença de um complexo de metalloceno simétrico.

26. Uso do filme para capacitor, como definido em qualquer uma das reivindicações 1 a 25, caracterizado pelo fato de ser em um capacitor.

27. Capacitor, caracterizado pelo fato de que compreende pelo menos uma camada que contém um filme para capacitor, como definido em qualquer uma das reivindicações 1 a 25.

28. Processo para a preparação de um filme para capacitor, como definido em qualquer uma das reivindicações precedentes 1 a 25, caracterizado pelo fato de que o polipropileno, como definido em qualquer uma das reivindicações 1 a 9, 12, 14 a 25, é formado em um filme, preferivelmente em um filme fundido.

29. Processo, de acordo com a reivindicação 28, caracterizado pelo fato de que o filme, preferivelmente o filme fundido, é biaxialmente orientado.

30. Processo, de acordo com a reivindicação 28 ou 29, caracterizado pelo fato de que o polipropileno é preparado usando um sistema catalítico de baixa porosidade, em que o sistema catalítico compreende um catalisador simétrico, em que o sistema catalítico tem uma porosidade medida de acordo com DIN 66135 de menos que 1,40 mL/g.

31. Processo, de acordo com a reivindicação 30, caracterizado pelo fato de que o sistema catalítico é um sistema suportado em não-sílica.

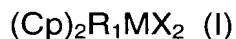
32. Processo, de acordo com a reivindicação 30 ou 31, caracterizado pelo fato de que o sistema catalítico tem uma porosidade abaixo do limite de detecção de DIN 66135.

33. Processo, de acordo com qualquer uma das reivindicações

30 a 32, caracterizado pelo fato de que o sistema catalítico tem uma área de superfície de menos que 25 m²/g, medida de acordo com ISO 9277.

34. Processo, de acordo com qualquer uma das reivindicações 30 a 33, caracterizado pelo fato de que o catalisador simétrico é um compos-

5 to de metal de transição de fórmula (I)



na qual

M é Zr, Hf ou Ti, mais preferivelmente Zr, e

X é independentemente um ligante aniônico monovalente, tal como ligante-σ

10 R é um grupo de ligação de ponte ligando os dois ligantes Cp

Cp é um ligante orgânico selecionado do grupo que consiste em ciclopentadienílico não-substituído, indenila não-substituída, tetra-hidroindenila não-substituída, fluorenila não-substituída, ciclopentadienílico substituído, indenila substituída, tetra-hidroindenila substituída, e fluorenila substituída,

15 com a condição de que ambos ligantes-Cp sejam selecionados do grupo estabelecido acima e ambos ligantes-Cp sejam quimicamente os mesmos, isto é, sejam idênticos.

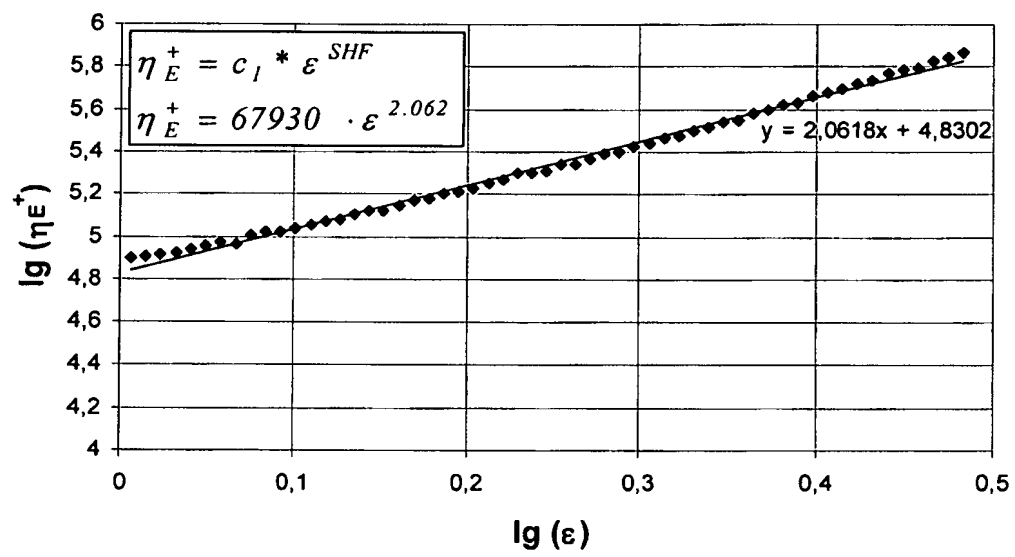


Fig. 1: Determinação do SHI de "A" em uma taxa de deformação de $0,1s^{-1}$ (SHI@ $0,1s^{-1}$)

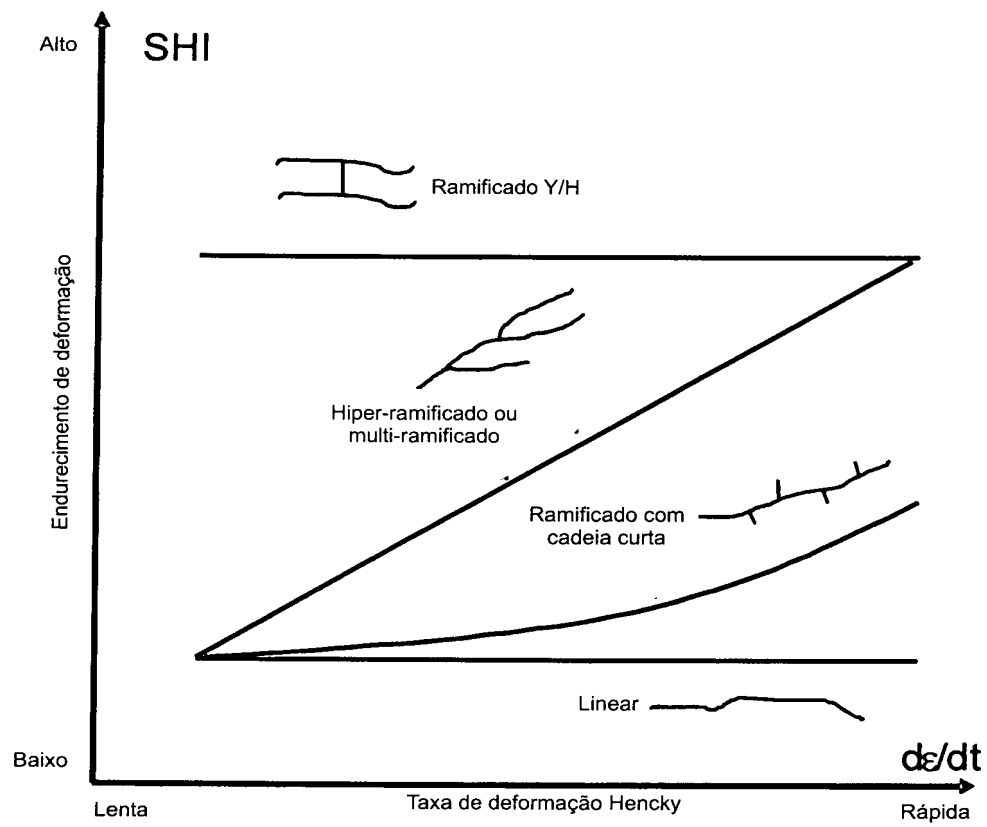


Fig. 2: Taxa de deformação versus endurecimento de deformação

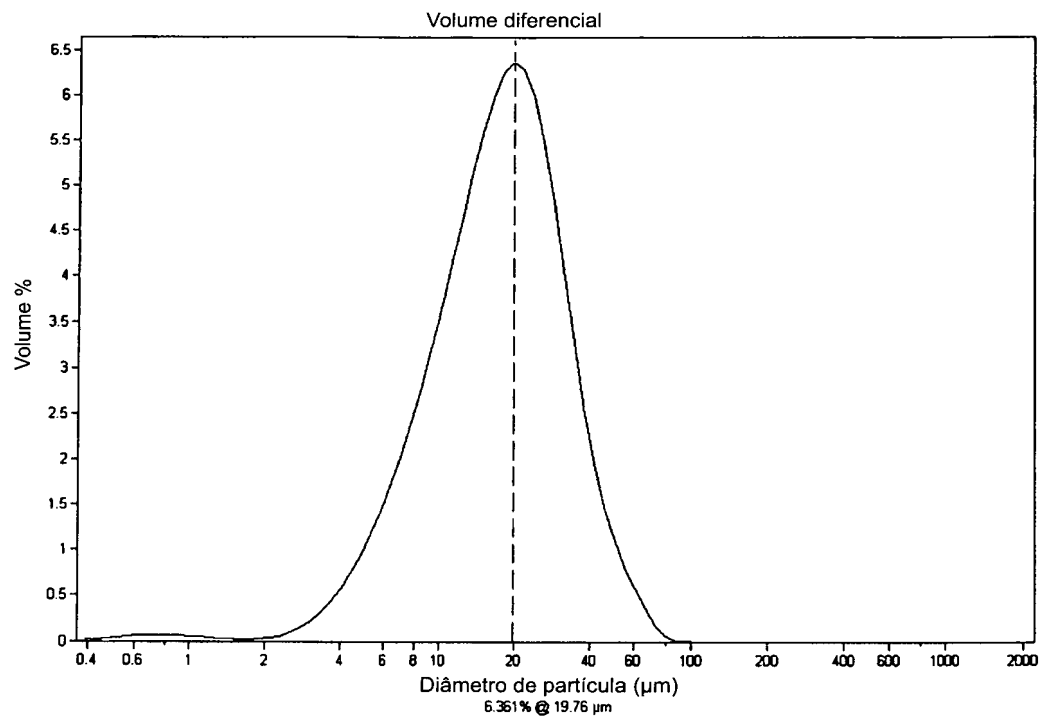


Fig. 3: Distribuição de tamanho de partícula de catalisador via contador Coulter

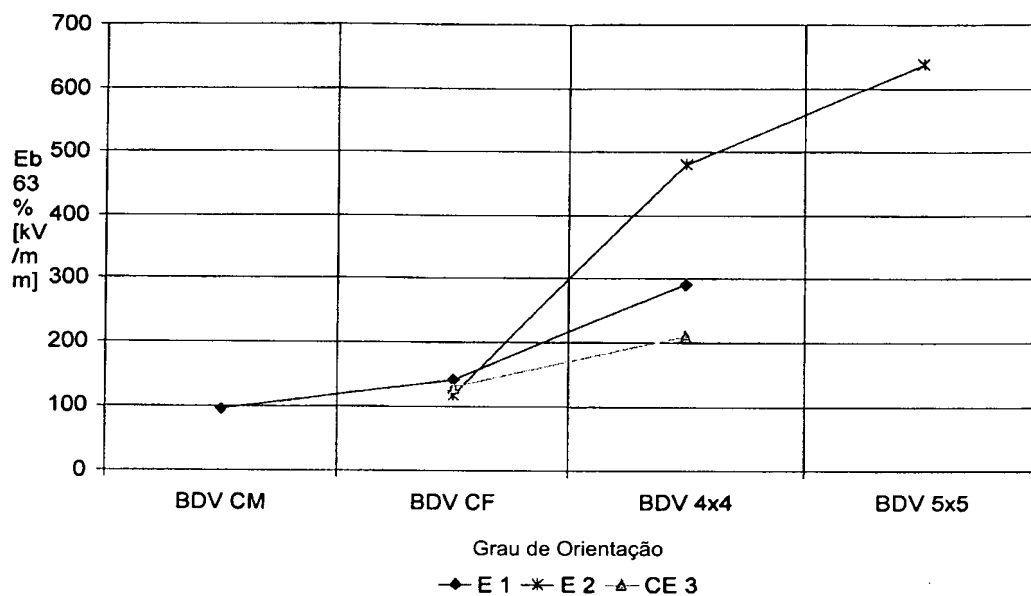


Fig. 4: Resistência à Interrupção Elétrica de Espécime orientada diferentemente (CM... moldado por compressão, CF filme fundido, 4x4 BOPP com 4x estiramento em MD e 4x estiramento em TD, 5x5...BOPP 5x5 de estiramento).

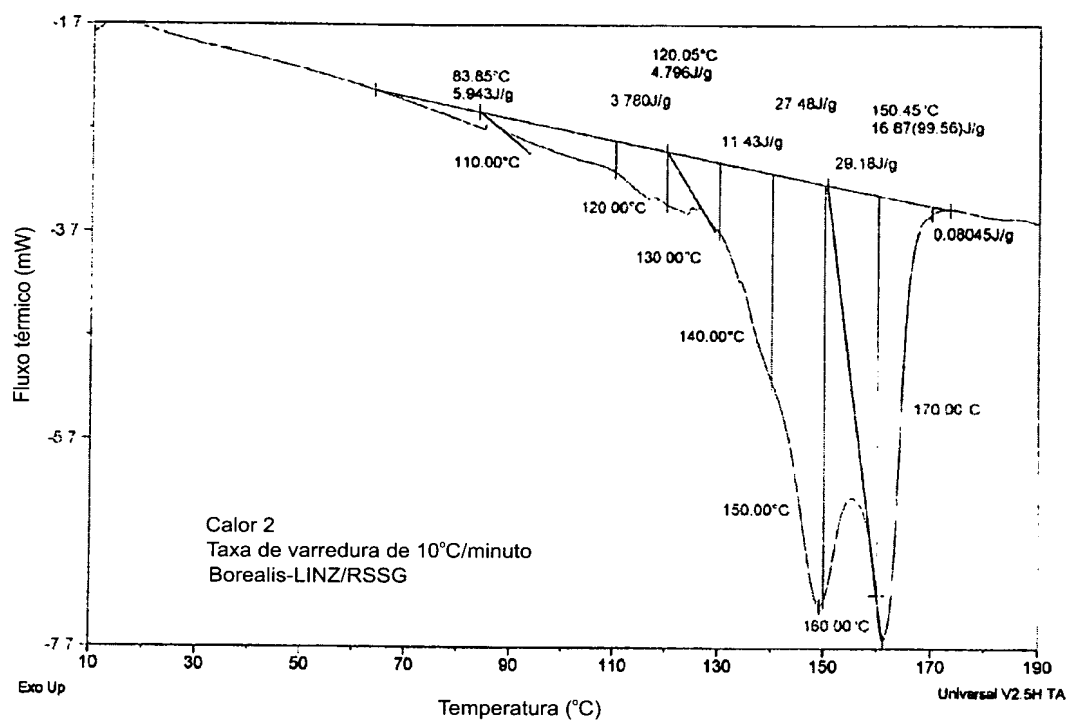


Fig. 5: SIST Curva I2 (amostra de 7,76 mg)

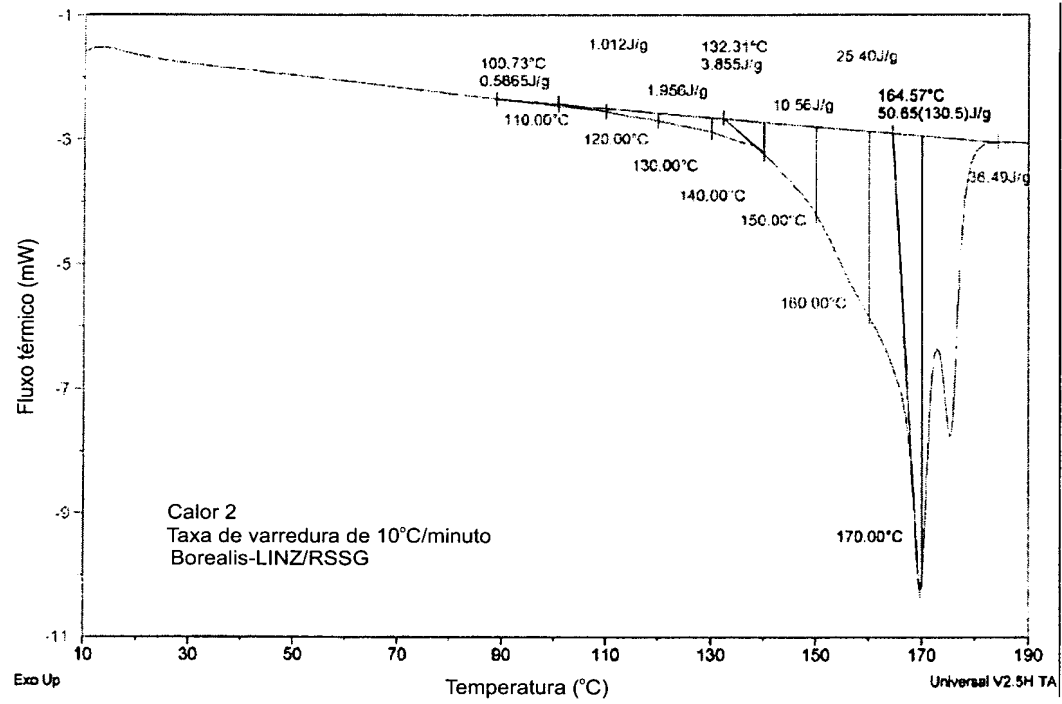


Fig. 6: SIST Curva I2 (amostra de 5,21 mg)

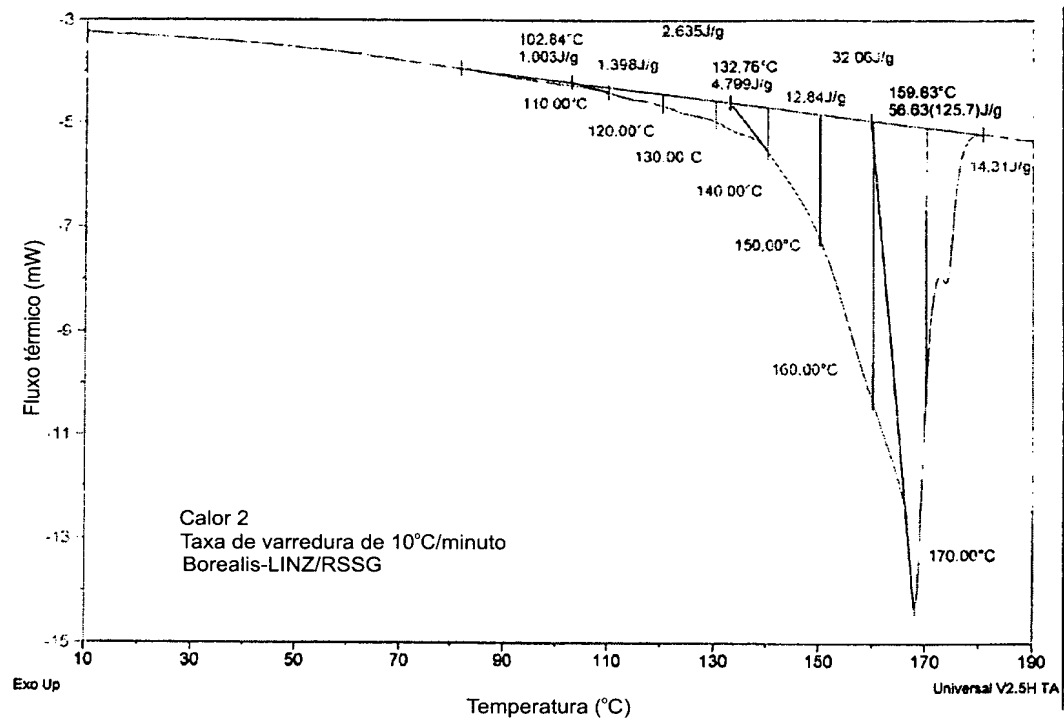


Fig. 7: SIST Curva I2 (amostra de 7,27 mg)

RESUMO

Patente de Invenção: "**FILME DE ISOLAMENTO ELÉTRICO**".

5 A presente invenção refere-se a um filme para capacitor que compreende polipropileno a) tendo solúveis em xileno (XS) de pelo menos 0,5% em peso e b) compreendendo uma porção cristalina que funde na faixa de temperatura de 200 a 105°C determinada por técnica de segregação isotérmica em etapas (SIST), em que a dita porção cristalina compreende uma parte que cristaliza a ou abaixo de 140°C e a dita parte representa pelo menos 10% em peso da dita porção cristalina.