(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2016 年 3 月 24 日(24.03.2016)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2016/043172 A1

(51) 国際特許分類:
*C08J 5/18* (2006.01) *H01G 4/18* (2006.01)
*B32B 15/085* (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2015/076092

(22) 国際出願日: 2015 年 9 月 15 日(15.09.2015)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(30) 優先権データ:
特願 2014-191075 2014 年 9 月 19 日(19.09.2014) JP
特願 2014-191078 2014 年 9 月 19 日(19.09.2014) JP

(71) 出願人: 東レ株式会社(TORAY INDUSTRIES, INC.) [JP/JP]; 〒1038666 東京都中央区日本橋室町２丁目１番１号 Tokyo (JP).

(72) 発明者: 岡田 一馬(OKADA, Kazuma); 〒5208558 滋賀県大津市園山１丁目１番１号 東レ株式会社 滋賀事業場内 Shiga (JP). 大倉 正寿(OHKURA, Masatoshi); 〒5208558 滋賀県大津市園山１丁目１番１号 東レ株式会社 滋賀事業場内 Shiga (JP). 今西 康之(IMANISHI, Yasuyuki); 〒5208558 滋賀県大津市園山１丁目１番１号 東レ株式会社 滋賀事業場内 Shiga (JP). 久万 琢也(KUMA, Takuya); 〒5208558 滋賀県大津市園山１丁目１番１号 東レ株式会社 滋賀事業場内 Shiga (JP).

(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告（条約第 21 条(3)）

WO 2016/043172 A1

(54) **Title**: POLYPROPYLENE FILM AND FILM CAPACITOR

(54) 発明の名称 : ポリプロピレンフィルムおよびフィルムコンデンサ

(57) **Abstract**: A polypropylene film in which the sum of the breaking strength thereof in the principal-axis direction of the film measured at 125°C and the breaking strength in the direction orthogonal to the principal axis of the film is 250 MPa or greater. Provided is a polypropylene film capable of demonstrating excellent voltage resistance and reliability at high temperature in a capacitor application for high voltage, and in which suitable thermal dimensional stability and high rigidity are obtained at the same time in such applications as the abovementioned capacitor application.

(57) 要約: １２５℃で測定した場合のフィルム主軸方向の破断強度とフィルム主軸直交方向の破断強度との和が２５０ＭＰａ以上である、ポリプロピレンフィルム。 高電圧用コンデンサ用途において高温時に優れた耐電圧性と信頼性を発揮でき、かかるコンデンサ用途等に好適な熱寸法安定性と高剛性化を両立したポリプロピレンフィルムを提供する。

# 明　細　書

## 発明の名称 ： ポリプロピレンフィルムおよびフィルムコンデンサ

## 技術分野

[0001] 本発明は、包装用や工業用等に好適なポリプロピレンフィルムに関するものであり、さらに詳しくはコンデンサ用誘電体として高温環境下でも高い耐電圧性と信頼性を維持できるコンデンサ用途に好適なポリプロピレンフィルムに関する。

## 背景技術

[0002] ポリプロピレンフィルムは、透明性、機械特性、電気特性等に優れるため、包装用途、テープ用途、ケーブルラッピングやコンデンサをはじめとする電気用途等の様々な用途に用いられている。

[0003] この中でもコンデンサ用途は、その優れた耐電圧特性、低損失特性から直流用途、交流用途に限らず高電圧コンデンサ用に特に好ましく用いられている。

[0004] 最近では、各種電気設備がインバーター化されつつあり、それに伴いコンデンサの小型化、大容量化の要求が一層強まってきている。そのような市場、特に自動車用途（ハイブリッドカー用途含む）や太陽光発電、風力発電用途の要求を受け、ポリプロピレンフィルムの耐電圧性を向上させ、生産性、加工性を維持させつつ、一層の薄膜化が必須な状況となってきている。

[0005] かかるポリプロピレンフィルムは、耐電圧性、生産性、加工性の観点からフィルム面内の高剛性化が必要であり、特に耐電圧性を向上させるためにはフィルム面内の高剛性化が重要である。また、耐熱性という観点では、将来的に、ＳｉＣを用いたパワー半導体用途を考えた場合、使用環境の温度が１２０℃を超えると言われている。コンデンサとしてさらなる耐熱化と耐電圧性の要求から、１２５℃という高温化でのフィルム高剛性化が求められている。しかしながら、非特許文献１に記載のように、ポリプロピレンフィルムの使用温度上限は約１１０℃といわれており、１２０℃を超える温度、例え

ば、１２５℃という温度環境では高い耐電圧を維持することは困難であった。

[0006] 例えば、特許文献１に、室温で測定した場合の破断強度の高いフィルムが紹介されているが、横延伸後のリラックス、及び、熱処理工程がない為、結晶化度が低く、また熱収も大きく、１２５℃の高温環境下では分子鎖配向が緩和しており、１２５℃で測定した場合の破断強度が高いとはいえなかった。特許文献２にも、室温で測定した場合の破断強度が高いポリプロピレンフィルムが紹介されているが、横延伸後の熱処理温度が高い為、１２５℃の高温環境下では分子鎖配向が緩和しており、１２５℃で測定した場合の破断強度が高いとはいえなかった。また、製膜安定性、厚み精度という点でも満足のいくものではなかった。これらの技術は、実使用において高温下でのコンデンサの容量維持についても必ずしも十分とはいえなかった。また、特許文献３に、８０℃でのヤング率を向上させたフィルムが紹介されているが、Ｔｇが１２０℃以下の石油樹脂を添加している為、１２５℃で測定した場合の破断強度が高いとはいえなかった。

[0007] また、高い絶縁性能を得るための一つの手法として、結晶核剤を添加する方法が挙げられる。一般的に、ポリプロピレンの結晶核剤は大別して非溶融型核剤と溶融型核剤の二種に分けられる。ポリプロピレン中に結晶核剤を添加することで、溶融結晶化する際に、核剤を起点に結晶核を多数生成することができるが、溶融ポリプロピレン中において、結晶核剤が溶融せずに存在するものが非溶融型核剤とされる。一方、溶融型核剤は、溶融ポリプロピレン中で核剤が溶融し、冷却過程でネットワーク構造を形成することで、非常に微小な球晶を形成する特徴がある。ポリプロピレンの溶融型核剤としては、ソルビトール系核剤が良く知られている（例えば、特許文献４、５）。しかしながら、これらのソルビトール系核剤は、耐熱温度があまり高くない為、溶融押出中に核剤が分解し、核剤効果が十分に発揮されず、特に１２５℃という高温環境下での耐電圧の向上は十分とはいえなかった。その他の溶融型核剤として、ノニトール系核剤が挙げられる。例えば、特許文献６には、

ノニトール系核剤を、メタロセン触媒にて重合したホモポリプロピレン中に添加した技術が紹介されている。しかしながら、シングルサイト触媒にて重合されたホモポリプロピレンは融点が低く、１２５℃という高温環境下での耐電圧の向上は十分とはいえなかった。また、通常のチーグラー・ナッタ触媒によるポリプロピレンにノニトール系核剤を添加しても、高温環境下での耐電圧性の向上は認められなかった。従来、溶融型核剤は透明核剤として、ポリプロピレン系樹脂の透明性向上、低ヘイズ化を目的に添加される。この場合、ポリプロピレンとしては、結晶性が低く透明化効果の大きいランダム共重合体や立体規則性の低いホモポリプロピレンを用いられてきた。

## 先行技術文献

### 特許文献

[0008] 特許文献1：特開平８－３００４７０号公報

特許文献2：特開平８－８０５６４号公報

特許文献3：特開２００４－１６１７９９号公報

特許文献4：特開昭５８－１３４７１４号公報

特許文献5：特開昭６０－８８０４９号公報

特許文献6：特表２０１３－５３８２５８号公報

### 非特許文献

[0009] 非特許文献1：日経エレクトロニクス、2012年9月17日、p.57-62

## 発明の概要

### 発明が解決しようとする課題

[0010] 本発明者らは、上記の課題を解決するため鋭意検討の結果、本発明に至ったものである。本発明は、高電圧用コンデンサ用途においても優れた高温時の耐電圧性と信頼性を発揮でき、かかるコンデンサ用途等に好適な熱寸法安定性と高剛性化を両立したポリプロピレンフィルムを提供する。

### 課題を解決するための手段

[0011] 上記した課題は、１２５℃で測定した場合のフィルム主軸方向の破断強度

とフィルム主軸直交方向の破断強度との和が２５０ＭＰａ以上である、ポリプロピレンフィルムによって達成可能である。

## 発明の効果

[0012] 本発明は、高温下での高剛性化と優れた熱寸法安定性を両立したポリプロピレンフィルムを提供することができるので、包装用途、テープ用途、ケーブルラッピングやコンデンサをはじめとする電気用途等の様々な用途に適用でき、特にコンデンサ用途に、好ましくは自動車用、太陽光発電、風力発電用に好適である。

## 発明を実施するための形態

[0013] 本発明のポリプロピレンフィルムは、１２５℃で測定した場合の、フィルム主軸方向の破断強度とフィルム主軸直交方向の破断強度との和が２５０ＭＰａ以上である。詳細は後述するが、フィルム平面を円周状に測定した破断強度の中で最大の値をとる方向を、そのフィルム主軸方向と定義する。また、その主軸方向に対して直交する方向を主軸直交方向と定義する。フィルムサンプルが短冊、リール、ロール等の形状で、サンプルの幅が５０ｍｍ未満で主軸方向が破断強度にて測定不可の場合は、広角Ｘ線によるポリプロピレンフィルムのα晶（１１０）面の結晶配向を次のように測定し、主軸方向および主軸直交方向を定義する。詳しくは、フィルム表面に対して垂直方向にＸ線を入射し、２θ＝約１４°（α晶（１１０）面）における結晶ピークを円周方向にスキャンし、得られた回折強度分布の回折強度が高い方向をフィルム主軸方向、それと直交する方向を主軸直交方向とする。

１２５℃で測定した場合の、フィルム主軸方向の破断強度とフィルム主軸直交方向の破断強度との和が２５０ＭＰａ未満の場合には、高温下でのフィルムの耐電圧性の低下を招いたり、異物が混入した場合に短絡が生じる場合があり、コンデンサとしたときの容量低下やショート破壊を引き起こす可能性がある。上記観点から１２５℃で測定した場合の、フィルム主軸方向の破断強度とフィルム主軸直交方向の破断強度の和は、より好ましくは２８０ＭＰａ以上、さらに好ましくは３２０ＭＰａ以上である。上限は特に限定されな

いが、フィルムの剛性が高過ぎた場合、柔軟性が損なわれハンドリング性に劣る場合があるので５００ＭＰａが上限である。

[0014] 発明者らは鋭意検討することにより、１２５℃で測定した場合のフィルムの主軸方向の破断強度とフィルム主軸直交方向の破断強度との和が、高温時のコンデンサ耐電圧特性に高い相関性があり、コンデンサ特性の高温耐電圧および信頼性の向上には、１２５℃で測定した場合のフィルムの主軸方向の破断強度とフィルム主軸直交方向の破断強度との和が高くなるよう制御することが重要であることを見出したものである。ここで、１２５℃で測定した場合のフィルムの主軸方向の破断強度とフィルム主軸直交方向の破断強度との和をかかる範囲に制御する方法としては、たとえば、使用原料や縦・横延伸倍率、延伸温度を後述する範囲に制御したり、二軸延伸後の熱処理および弛緩処理工程において、まず延伸温度より低温での処理工程（１段目処理工程）を経て、再度、前記処理温度より高温でかつ二軸延伸時の幅方向延伸温度未満の熱処理工程（２段目処理工程）を施すことが挙げられる。

[0015] また本発明のポリプロピレンフィルムは、１２５℃で測定した場合のフィルム主軸直交方向の破断強度が８０ＭＰａ以上であることが好ましい。より好ましくは、１００ＭＰａ以上、さらに好ましくは１２０ＭＰａ以上である。上限は特に限定されないが、フィルムの剛性が高過ぎた場合、柔軟性が損なわれハンドリング性に劣る場合があるので３００ＭＰａが上限である。１２５℃で測定した場合のフィルム主軸直交方向の破断強度が８０ＭＰａ未満の場合には、高温下でのフィルムの耐電圧性の低下を招いたり、異物が混入した場合に短絡が生じる場合があり、コンデンサとしたときの容量低下やショート破壊を引き起こす可能性がある。１２５℃で測定した場合のフィルム主軸直交方向の破断強度をかかる範囲に制御する方法としては、たとえば、使用原料や縦・横延伸倍率、延伸温度を後述する範囲に制御したり、二軸延伸後の熱処理および弛緩処理工程において、まず延伸温度より低温での処理工程（１段目処理工程）を経て、再度、前記処理温度より高温でかつ二軸延伸時の幅方向延伸温度未満の熱処理工程（２段目処理工程）を施すことが挙

げられる。

[0016] また本発明のポリプロピレンフィルムは、１２５℃で測定した場合のフィルム主軸直交方向の伸度５％時の応力（Ｆ５値）が８ＭＰａ以上であることが好ましい。より好ましくは、９ＭＰａ以上、さらに好ましくは１０ＭＰａ以上である。上限は特に限定されないが、フィルムの剛性が高過ぎた場合、柔軟性が損なわれハンドリング性に劣る場合があるので３０ＭＰａが上限である。１２５℃で測定した場合のフィルム主軸直交方向のＦ５値が８ＭＰａ未満の場合には、高温下でのフィルムの耐電圧性の低下を招いたり、異物が混入した場合に短絡が生じる場合があり、コンデンサとしたときの容量低下やショート破壊を引き起こす可能性がある。１２５℃で測定した場合のフィルム主軸直交方向のＦ５値をかかる範囲に制御する方法としては、たとえば、使用原料や縦・横延伸倍率、延伸温度を後述する範囲に制御したり、二軸延伸後の熱処理および弛緩処理工程において、まず延伸温度より低温での処理工程（１段目処理工程）を経て、再度、前記処理温度より高温でかつ二軸延伸時の幅方向延伸温度未満の熱処理工程（２段目処理工程）を施すことが挙げられる。

[0017] また本発明のポリプロピレンフィルムは、メソペンタッド分率が０．９５以上であり、融点が１６０℃を超えるリプロピレン樹脂、及び、上記ポリプロピレン樹脂に対してポリプロピレン溶融型核剤を含有し、二軸延伸されてなるポリプロピレンフィルムであることが好ましい。規則性、結晶性の非常に高いポリプロピレンに溶融型核剤を添加することが、効果を発現する上で非常に重要である。従来、溶融型核剤は透明核剤として、ポリプロピレン系樹脂の透明性向上、低ヘイズ化を目的に添加される。この場合、ポリプロピレンとしては、結晶性が低く透明化効果の大きいランダム共重合体や立体規則性の低いホモポリプロピレンが用いられてきた。本発明者らは、高立体規則性、高融点のポリプロピレンに溶融型核剤を添加することにより延伸性、機械物性、耐電圧、熱収縮率などにおいて驚くべき向上効果を発現しうることを見出し、本発明に至ったのである。メソペンタッド分率は０．９７以上

がより好ましく、０．９７５以上が更に好ましく、０．９８以上が特に好ましい。メソペンタッド分率は核磁気共鳴法（ＮＭＲ法）で測定されるポリプロピレンの結晶相の立体規則性を示す指標であり、該数値が高いものほど結晶化度が高く、融点が高くなり、機械強度、絶縁破壊電圧が高くなるので好ましい。メソペンタッド分率の上限については特に規定するものではない。本発明では、高メソペンタッド分率、高融点のポリプロピレンは特に、いわゆるチーグラー・ナッタ触媒によるものが好ましく、電子供与成分の選定を適宜行う方法等が好ましく採用され、これによるポリプロピレンは分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）が３．０以上、＜２，１＞エリトロ部位欠損は０．１ｍｏｌ％以下となる。ポリプロピレン樹脂のメソペンタッド分率が０．９５未満の場合、ポリプロピレンの規則性が低い為、フィルムの剛性に乏しく、フィルムの耐電圧性の低下を招いたり、金属膜を蒸着により形成する工程やコンデンサ素子巻き取り加工での、フィルム搬送中に破膜する場合がある。ポリプロピレン樹脂の融点は１６３℃以上がより好ましく、１６５℃以上がさらに好ましい。融点が１６０℃未満の場合、結晶性が低い為、フィルムの剛性に乏しく、フィルムの耐電圧性の低下を招いたり、金属膜を蒸着により形成する工程やコンデンサ素子巻き取り加工での、フィルム搬送中に破膜する場合がある。＜２，１＞エリトロ部位欠損が０．１ｍｏｌ％を超えると、ポリプロピレン樹脂の融点が下がり、高温下でのフィルムの耐電圧性低下を招く場合がある。

[0018] 本発明のポリプロピレンフィルムは、ポリプロピレン樹脂に対して、溶融型核剤を含有せしめることが好ましい。ポリプロピレンの核剤としては、リン酸塩、安息香酸塩、タルクなどの非溶融型核剤と溶融型核剤があるが、本発明では溶融型核剤を用いることが好ましい。溶融型核剤とは、溶融ポリプロピレン中で核剤自体が融解又は溶融する結晶核剤であり、一連の加熱溶融及び冷却再結晶化を示す。上記溶解及び再結晶化を測定する方法は、ＩＳＯ６２７１－１０：１９９９によって定義されているように、動的モードでの溶融レオロジーを用いることによってモニターすることができる。溶融型核

剤は、ソルビトール誘導体、ノニトール誘導体、トリアミド誘導体等が挙げられる。具体的には、ジ（アルキルベンジリデン）ソルビトール、例えば、ジベンジリデンソルビトール、２，４－ジメチルベンジリデンソルビトール、１，３－ジメチルベンジリデンソルビトール、２，４－ジエチルベンジリデンソルビトール、１，３－ジブチルベンジリデンソルビトール、２，４－ジブチルベンジリデンソルビトール、１，３－ジメトキシベンジリデンソルビトール、２，４－ジメトキシベンジリデンソルビトール、１，３－ジエトキシベンジリデンソルビトール、１，３－クロルベンジリデン、２，４－メチルベンジリデンソルビトール、モノメチルジベンジリデンソルビトール、２，４－ジエトキシベンジリデンソルビトール、１，３：２，４－ジベンジリデンソルビトール、１，３：２，４－ジメトキシベンジリデンソルビトール、１，３：２，４－ジエトキシベンジリデンソルビトール、ビス－（３，４－ジメチルベンジリデン）ソルビトール、１，２，３－トリデオキシ－４，６：５，７－ビス－Ｏ－［（４－プロピルフェニル）メチレン］－ノニトール、Ｎ，Ｎ’，Ｎ”－トリス－シクロヘキシル－１，３，５－ベンゼン－トリカルボキサミド、Ｎ，Ｎ’，Ｎ”－トリス－ｔｅｒｔ－ブチル－１，３，５－ベンゼントリカルボキシアミド、Ｎ，Ｎ’，Ｎ”－トリス－（２－メチルシクロヘキサン－１－イル）プロパン－１，２，３－トリイルカルボキサミドなどが挙げられる。一般的に、上記のソルビトール系核剤は、核剤の耐熱温度があまり高くない為、ポリプロピレン樹脂の押出温度が高い場合、核剤の熱分解ガスが発生し、フィルムにエア噛み欠点等を発生させる場合がある。そういった観点から、上記溶融型核剤の中でもノニトール系、もしくは、トリアミド誘導体の核剤は耐熱温度が高いことが知られており、特に好ましく用いられる。溶融型核剤の含有量は前記ポリプロピレン樹脂１００質量部に対し、０．０１～１．０質量部、好ましくは、０．０２～０．６質量部である。含有量が１．０質量部より高い場合、フィルム表面からにじみ出し、フィルムの製造過程でロール等へ付着転移し、フィルム表面を汚す場合がある。含有量が０．０１質量部未満の場合、核剤の効果が小さい場合があ

る。

[0019] 次に、本発明のポリプロピレンフィルムに用いると好ましい直鎖状ポリプロピレンについて説明する。直鎖状ポリプロピレンは、通常、包装材やコンデンサ用に使用されるものであるが、好ましくは冷キシレン可溶部（以下ＣＸＳ）が４質量％以下であることが好ましい。これらを満たさないと製膜安定性に劣る場合があったり、二軸配向したフィルムを製造する際にフィルム中にボイドを形成する場合があり、熱寸法安定性および耐電圧性の低下が大きくなる場合がある。

[0020] ここで冷キシレン可溶部（ＣＸＳ）とはフィルムをキシレンで完全溶解せしめた後、室温で析出させたときに、キシレン中に溶解しているポリプロピレン成分のことをいい、立体規則性の低い、分子量が低い等の理由で結晶化し難い成分に該当していると考えられる。このような成分が多く樹脂中に含まれているとフイルムの熱寸法安定性が劣ったり、さらには絶縁破壊電圧が低下する等の問題を生じることがある。従って、ＣＸＳは４質量％以下であることが好ましいが、更に好ましくは３質量％以下であり、特に好ましくは２質量％以下である。ＣＸＳの下限は特に限定されないが、０．８％未満の場合、延伸性が悪化し、延伸倍率が上げられない場合がある。このようなＣＸＳを有する直鎖状ポリプロピレンとするには、樹脂を得る際の触媒活性を高める方法、得られた樹脂を溶媒あるいはプロピレンモノマー自身で洗浄する方法等の方法が使用できる。

[0021] かかる直鎖状ポリプロピレンとしては、より好ましくはメルトフローレート（ＭＦＲ）が１～１０ｇ／１０分（２３０℃、２１．１８Ｎ荷重）、特に好ましくは２～５ｇ／１０分（２３０℃、２１．１８Ｎ荷重）の範囲のものが、製膜性の点から好ましい。メルトフローレート（ＭＦＲ）を上記の値とするためには、平均分子量や分子量分布を制御する方法などが採用される。

[0022] かかる直鎖状ポリプロピレンとしては、主としてプロピレンの単独重合体からなるが、本発明の目的を損なわない範囲で他の不飽和炭化水素による共重合成分などを含有してもよいし、プロピレンが単独ではない重合体がブレ

ンドされていてもよい。このような共重合成分やブレンド物を構成する単量体成分として例えばエチレン、プロピレン（共重合されたブレンド物の場合）、１－ブテン、１－ペンテン、３－メチルペンテン－１、３－メチルブテン－１、１－ヘキセン、４－メチルペンテン－１、５－エチルヘキセン－１、１－オクテン、１－デセン、１－ドデセン、ビニルシクロヘキセン、スチレン、アリルベンゼン、シクロペンテン、ノルボルネン、５－メチル－２－ノルボルネンなどが挙げられる。共重合量またはブレンド量は、耐絶縁破壊特性、熱寸法安定性の点から、共重合量では１ｍｏｌ％未満とし、ブレンド量では１０質量％未満とするのが好ましい。

[0023] また、かかる直鎖状ポリプロピレンには、本発明の目的を損なわない範囲で種々の添加剤、例えば結晶核剤、酸化防止剤、熱安定剤、すべり剤、帯電防止剤、ブロッキング防止剤、充填剤、粘度調整剤、着色防止剤などを含有せしめることもできる。

[0024] これらの中で、酸化防止剤の種類および添加量の選定は長期耐熱性の観点から重要である。すなわち、かかる酸化防止剤としては立体障害性を有するフェノール系のもので、そのうち少なくとも１種は分子量５００以上の高分子量型のものが好ましい。その具体例としては種々のものが挙げられるが、例えば２，６－ジ－ｔ－ブチル－ｐ－クレゾール（ＢＨＴ：分子量２２０．４）とともに１，３，５－トリメチル－２，４，６－トリス（３，５－ジ－ｔ－ブチル－４－ヒドロキシベンジル）ベンゼン（例えば、ＢＡＳＦ社製Ｉｒｇａｎｏｘ（登録商標）１３３０：分子量７７５．２）またはテトラキス［メチレン－３（３，５－ジ－ｔ－ブチル－４－ヒドロキシフェニル）プロピオネート］メタン（例えばＢＡＳＦ社製Ｉｒｇａｎｏｘ（登録商標）１０１０：分子量１１７７．７）等を併用することが好ましい。これら酸化防止剤の総含有量はポリプロピレン全量に対して０．０３～１．０質量％の範囲が好ましい。酸化防止剤が少なすぎると長期耐熱性に劣る場合がある。酸化防止剤が多すぎるとこれら酸化防止剤のブリードアウトによる高温下でのブロッキングにより、コンデンサ素子に悪影響を及ぼす場合がある。より好ま

しい含有量は０．１～０．９質量％であり、特に好ましくは０．２～０．８質量％である。

[0025] コンデンサ作製においてもプロセス条件が高温化する中で素子加工性およびコンデンサとしてのさらなる耐熱化を発揮する観点から、本発明のポリプロピレンフィルムは、フィルム主軸方向の１２５℃１５分加熱処理における熱収縮率が１％以下であることが好ましい。０．５％以下がより好ましく、０．２％以下がさらに好ましい。熱収縮率が１．０％を超える場合は、高温時の熱変形量が大きく、コンデンサ製造工程および使用工程の熱によりフィルム自体の収縮が生じ、フィルムとメタリコン間に隙間が生じたり、変形する場合があり、耐電圧性が低下する場合がある。下限は特に限定されないが、フィルムが膨張しすぎる場合はコンデンサ製造工程や使用工程の熱により素子の巻き状態が緩む場合があるので、好ましくは－１．０％である。ここで、１２５℃１５分加熱処理におけるフィルム主軸方向の熱収縮率をかかる範囲に制御するには、たとえば、使用原料や縦・横延伸倍率、延伸温度、二軸延伸後の二段階の熱処理および弛緩処理工程での条件を後述する範囲に制御することにより達成可能である。

[0026] 本発明のポリプロピレンフィルムは、２３℃で測定した場合のフィルム主軸直交方向の破断強度をＦｍ（ＭＰａ）、フィルム主軸直交方向の１２５℃１５分加熱処理における熱収縮率をＳｍ（％）としたときに、Ｆｍ、Ｓｍが下式（１）を満たすことが好ましい。

[0027] Ｆｍ／Ｓｍ≧１００・・・・（１）

一般的に、フィルム主軸直交方向の破断強度と熱収縮率は相反するパラメータであり、Ｆｍの値を高くすると通常Ｓｍの値も高くなる為、Ｆｍ／Ｓｍの値を大きくすることは難しい。つまり、１２５℃で測定した場合のフィルム幅方向の破断強度とフィルム長手方向の破断強度との和が２５０ＭＰａ以上であり、かつ、Ｆｍ／Ｓｍの値が高いということは、高強度と低熱収縮率を両立していることを表す。Ｆｍ／Ｓｍの値は１３０以上がより好ましく、１４０以上がさらに好ましい。Ｆｍ／Ｓｍの値が１００未満の場合、Ｆｍの

値が低いことから、フィルムの耐電圧性の低下を招いたり、金属膜を蒸着により形成する工程やコンデンサ素子巻き取り加工での、フィルム搬送中に破膜する場合がある。また、Ｓｍの値が高いことから、高温時の熱変形量が大きく、コンデンサ製造工程および使用工程の熱によりフィルム自体の収縮が生じ、フィルム間に隙間が生じる場合があり、耐電圧性が低下する場合がある。Ｆｍ／Ｓｍの値の上限は特に限定されないが、フィルムが膨張しすぎる場合はコンデンサ製造工程や使用工程の熱により素子の巻き状態が緩む場合がある。Ｆｍ／Ｓｍの値をかかる範囲に制御するには、たとえば、使用原料や縦・横延伸倍率、延伸温度、二軸延伸後の二段階の熱処理および弛緩処理工程での条件を後述する範囲に制御することにより達成可能である。

[0028] 本発明のポリプロピレンフィルムは、示差走査熱量計により、溶融状態からの冷却過程において観察できる結晶化ピーク温度が１２５℃を超えることが好ましい。結晶化温度は核剤効果の一つの指標として用いられる場合がある。結晶化温度が高いということは、溶融結晶化過程で、より高温で核生成することから、核形成能が高いといえる。結晶化温度は１２８℃以上がより好ましく、１３０℃を超えることがさらに好ましい。結晶化温度が１２５℃以下の場合、核剤の効果が小さい場合がある。上限は特に規定されないが、事実上、１４０℃が上限である。結晶化温度をかかる範囲に制御するには、たとえば、使用原料や核剤含有量を適宜調整することで可能である。

[0029] 本発明のポリプロピレンフィルムは、適度に粗面化しフィルム層間間隙の均一性、フィルム同士あるいは搬送ロールとのすべり易さ、およびコンデンサとしての信頼性を得る観点から、少なくともフィルムの片表面の中心面平均粗さＳＲａが３０ｎｍ以上であることが好ましく、より好ましくは５０ｎｍ以上、さらに好ましくは７０ｎｍ以上である。中心面平均粗さＳＲａが３０ｎｍ未満であるとフィルムの滑りが極端に低下し、ハンドリング性に劣ったり、シワが発生しやすくなり、またコンデンサとして連続使用時にシワ等の影響で容量変化が大きくなったり、フィルムを積層したコンデンサとした場合にフィルム層間の適度な隙間がないため自己回復機能（セルフヒーリン

グ）が動作し難くコンデンサの信頼性が低下する場合がある。上限は特に限定しないが、ＳＲａが大きすぎる場合、耐電圧性が低下する場合があるので、好ましくは３００ｎｍである。本発明のポリプロピレンフィルムの中心面平均粗さＳＲａを好ましい範囲内に制御するにはたとえば、後述する使用原料や溶融シート冷却固化時の冷却温度および積層構成などの条件を好ましい範囲内で制御することにより達成可能である。

[0030] 本発明のポリプロピレンフィルムはフイルム表面を粗面化し適度な凹凸を形成させ、薄いフイルムであってもコンデンサ素子加工適性に優れ、高温環境でも高い耐電圧性を発揮させる観点から、厚さ方向に２層以上積層されてなる構成が好ましく、具体的には少なくとも一方の表層をＡ層とする２層以上の構成であり、たとえばＡ層／Ｂ層の２層構成、より好ましくはＡ層／Ｂ層／Ａ層の３層構成およびＡ層をフィルム両表面の最外層とする４層以上の構成である。Ａ層をフィルム最外層とすることにより、前述の核剤のフィルム表面へのにじみ出し、及びそれによるロール、フィルム汚れを抑制できる。ここでＡ層とは実質的に溶融型核剤を含有しない層と定義するものである。本発明のポリプロピレンフィルムの表面を形成する方法として、Ａ層のポリプロピレンの結晶変態を利用する手法を好ましく用いることができる。Ａ層に粒子やポリプロピレンに非相溶のポリマーを添加する方法があるが、ポリプロピレン以外の成分添加により、電気特性の低下の可能性があること、従来のコンデンサ表面と同様のクレータ形状が得られることから結晶変態を用いる手法が好ましい。以下、結晶変態により得られる表面形態について説明する。

[0031] 結晶変態による面形成法とは文献（M.Fujiyama, Journal of Applied Polymer Science, Vol.36,P.985-1948(1988)等に記載のポリプロピレンが有する２つの結晶系を利用して表面形成を行うものであり、α晶（単斜晶系、結晶密度０．９３６ｇ／ｃｍ$^3$）系の球晶とβ晶（六方晶系、結晶密度０．９２２ｇ／ｃｍ$^3$）系の球晶を未延伸シートに生成させておき、延伸工程で、熱的に不安定なβ晶をα晶に結晶変態させることで、フイルム表面に凹凸を形成す

るものである。本手法により得られる表面凹凸の基本単位は球晶の変形に起因するものであることから該形状は円弧状に形成されたクレータ形状を呈する。すなわち、凸部が円形や楕円形の形状に並んだ形態が観察される。当該結晶変態により得られる典型的な表面形状は、楕円状に形成されたクレータ形状が多数存在することで形成され、フイルム表面から突起した部分（凸部）は円弧状に連なることでクレータ形状を有するものである。すなわち、β晶系球晶が存在しないところでは凹凸が形成され難く比較的平坦になるという特徴がある。本発明のポリプロピレンフィルム表面に凹凸を形成させるためには、フィルム製造工程において溶融押出後にキャスティング（冷却）ドラム上で固化させ未延伸シートを得る過程において、冷却ドラム温度を６０～１２０℃に適宜調整し、Ａ層にβ晶系球晶を形成することで可能となる。またＡ層ポリプロピレン樹脂中に分岐鎖状ポリプロピレンを０．０５～１０質量％含有することでフイルム表面に凹凸がさらに効率良く形成できるため好ましい。

[0032] ここで本発明のポリプロピレンフィルムは厚さ方向に２層以上積層した構成である場合に、全厚みに対するＡ層の厚みの割合（両表層にＡ層がある場合はそれら合わせた両表層の厚み割合）は製膜性や表面形状を制御する点から１％～６０％であることが好ましく５～４０％がより好ましい。Ａ層の割合が大きすぎると実質的に溶融型核剤を含むＢ層が薄くなり、高温環境での耐電圧性を低下させてしまったり、他方、Ａ層の割合が小さすぎるとフイルム表面に凹凸を効率良く形成できない場合があり、コンデンサー素子加工適性が得られなくなる場合がある。ここでＡ層は、例えば、フィルム断面を作成し走査型電子顕微鏡（ＳＥＭ）などを用いた断面観察を行うことで、Ａ層とＢ層との樹脂界面を判定することにより識別が可能である。

[0033] 本発明のポリプロピレンフィルムは、高温特性に優れる為、一般工業用途、包装用途に好適に用いられる。特に、高温時の耐電圧性に優れることから、通常厚み３０μｍ以下の一般コンデンサ用フィルムに有用であるのは勿論であるが、特に高温環境下で用いられる自動車用途（ハイブリッドカー用途

を含む）等に要求される薄膜の耐熱フィルムコンデンサ用に好適である。特にフィルム厚みは０．５μｍ以上１５μｍ未満の範囲であることが好ましく、より好ましくは０．５μｍ以上１０μｍ以下、さらに好ましくは０．８μｍ以上５．０μｍ以下である。ここで、フィルム厚みをかかる範囲に制御するには、たとえば、使用原料や縦・横延伸倍率、延伸温度を後述する範囲に制御したり、二軸延伸後の熱処理および弛緩処理工程において、まず延伸温度より低温での処理工程（１段目処理工程）を経て、再度、前記処理温度より高温でかつ二軸延伸時の幅方向延伸温度未満の熱処理工程（２段目処理工程）を施すことが挙げられる。

[0034] 本発明のポリプロピレンフィルムは、コンデンサ用誘電体フィルムとして好ましく用いられるものであるが、コンデンサのタイプに限定されるものではない。具体的には電極構成の観点では箔巻きコンデンサ、金属蒸着膜コンデンサのいずれであってもよいし、絶縁油を含浸させた油浸タイプのコンデンサや絶縁油を全く使用しない乾式コンデンサにも好ましく用いられる。また、形状の観点では、捲巻式であっても積層式であっても構わない。しかしながら本発明のフィルムの特性から特に金属蒸着膜コンデンサとして好ましく使用される。

[0035] なお、ポリプロピレンフィルムは通常、表面エネルギーが低く、金属蒸着を安定的に施すことが困難であるために、金属付着を良好とする目的で、蒸着前に表面処理を行うことが好ましい。表面処理とは具体的にはコロナ放電処理、プラズマ処理、グロー処理、火炎処理等が例示される。通常、ポリプロピレンフィルムの表面濡れ張力は３０ｍＮ／ｍ程度であるが、これらの表面処理によって、濡れ張力を３７～５０ｍＮ／ｍ、好ましくは３９～４８ｍＮ／ｍ程度とすることが、金属膜との接着性に優れ、保安性も良好となるので好ましい。

[0036] 本発明のポリプロピレンフィルムは、上述した特性を与えうる原料を用い、二軸延伸されることによって得られる。二軸延伸の方法としては、インフレーション同時二軸延伸法、テンター同時二軸延伸法、テンター逐次二軸延

伸法のいずれによっても得られるが、その中でも、フィルムの製膜安定性、厚み均一性、フィルムの破断強度、熱寸法安定性を制御する点においてテンター逐次二軸延伸法を採用することが好ましい。本発明のポリプロピレンフィルムは、単層フィルムでも積層フィルムでもよい。積層の方法としては、ラミネートによるフィルム同士を貼り合わせる方法、共押出によるフィードブロック方式やマルチマニホールド方式、コーティングによる方法などが挙げられる。また積層はフィルム厚さ方向に２層以上積層されていてもよく、核剤添加量の異なる層、核剤を含有しない層が積層されていてもよい。

[0037] 次に本発明のポリプロピレンフィルムの製造方法を説明する。まず、ポリプロピレン樹脂を支持体上に溶融押出してポリプロピレン樹脂シートとし、このポリプロピレン樹脂シートを縦延伸、横延伸と逐次二軸延伸した後に熱処理および弛緩処理を施してポリプロピレンフィルムを製造する。以下、より具体的に説明するが、必ずしもこれに限定されるものではない。

[0038] まず、メソペンタッド分率が０．９５以上であり、融点が１６０℃以上であるポリプロピレン樹脂１００質量部に対して溶融型核剤を０．０１～１．０質量部添加して溶融押出し、濾過フィルターを通した後、２３０～２６０℃の温度でスリット状口金から押出し、２０～１２０℃の温度に制御された冷却ドラム上で固化させ未延伸シートを得る。あるいは、また、メソペンタッド分率が０．９５以上であり、融点が１６０℃を超えるポリプロピレン樹脂に対して溶融型核剤をブレンドしたポリプロピレン原料ＢをＢ層用の単軸押出機に供給し、実質的に溶融型核剤を含まないポリプロピレン原料ＡをＡ層用の単軸押出機に供給し、２００～２６０℃にて溶融共押出によるフィードブロック方式でＡ層／Ｂ層／Ａ層の３層構成に積層された樹脂をスリット状口金から押出し、６０～１２０℃の温度に制御された冷却ドラム上で固化させ未延伸シートを得てもよい。冷却ドラムへの密着方法としては静電印加法、水の表面張力を利用した密着方法、エアーナイフ法、プレスロール法、水中キャスト法などのうちいずれの手法を用いてもよい。

[0039] 次に、この未延伸フィルムを二軸延伸し、二軸配向せしめる。まず未延伸

フィルムを６０～１５０℃に保たれたロールに通して予熱し、引き続き該シートを６０～１５０℃の温度に保ち、長手方向に２～１０倍に延伸した後、室温まで冷却する。より好ましい長手方向の延伸倍率としては４．５～９倍であり、好ましくは５．１～８倍、更に好ましくは５．４～８倍、最も好ましくは５．８～８倍である。延伸方法や延伸倍率は、とくに限定されず用いるポリマー特性により適宜選択される。

[0040] 次いで縦一軸延伸フィルムをテンターに導いてフィルムの端部をクリップで把持し横延伸を１４０～１６５℃の温度で幅方向に５～１５倍、より好ましくは６～１２倍に延伸する。幅方向の延伸倍率が５倍未満の場合、ポリプロピレンフィルムの幅方向の機械強度が低下したり、厚み斑が悪化する為、耐電圧性が低下する場合がある。一方、幅方向の延伸倍率が１５倍を超えると、破膜しやすくなり生産性が低下する場合がある。

[0041] 本発明においては続く熱処理および弛緩処理工程ではクリップで幅方向を緊張把持したまま幅方向に２～２０％の弛緩を与えつつ、１１５℃以上１４０℃以下の温度で１段目熱処理した後に、クリップで幅方向を緊張把持したまま前記１段目の熱処理温度を超えて横延伸温度未満の条件で熱固定を施す２段目熱処理を施すように多段方式の熱処理を行うことが、フィルム面内を均一に緩和させ局所的な厚みムラを低減させ、フィルムを高剛性化し、かつフィルムの熱収縮率を低減し、フィルム耐電圧特性を向上させる観点から重要である。

[0042] 弛緩処理工程における弛緩率は、熱寸法安定性を得る観点から５～１８％が好ましく、８～１５％がより好ましい。２０％を超える場合はテンター内部でフィルムが弛みすぎ製品にシワが入り蒸着時にムラを発生させる場合があり、他方弛緩率が２％より小さい場合は熱寸法安定性が得られず、コンデンサとしたときの高温使用環境下で容量低下やショート破壊を引き起こす場合がある。

[0043] １段目熱処理温度は延伸時の分子鎖配向を維持でき機械強度を高められる観点から、１段目の熱処理温度は１１５℃以上１４０℃以下とすることが好

ましく、１２０℃以上、１３８℃以下がより好ましく、１２５℃以上、１３５℃以下がさらに好ましい。１１５℃未満の熱処理温度では高温環境下でのコンデンサ特性において容量減少やショート破壊を引き起こす場合がある。他方、１４０℃を超えての熱処理の場合は分子鎖配向緩和が進行するため、フィルムの機械強度が低くなる場合がある。

[0044] ２段目熱処理温度を１段目の熱処理温度を超えて横延伸温度未満とすることで、１段目の熱処理工程で緩和不十分な運動性の高い非晶分子鎖を緩和させることができ、熱収縮率を低減できる。この観点から２段目熱処理温度は１段目の熱処理温度＋５℃以上、横延伸温度－５℃以下が好ましく、１段目の熱処理温度＋８℃以上、横延伸温度－８℃以下がさらに好ましい。

[0045] 多段式の熱処理を経た後はクリップで幅方向を緊張把持したまま８０～１００℃での冷却工程を経てテンターの外側へ導き、フィルム端部のクリップを解放し、ワインダ工程にてフィルムエッジ部をスリットし、フィルム製品ロールを巻き取る。ここでフィルムを巻取る前に蒸着を施す面に蒸着金属の接着性を良くするために、空気中、窒素中、炭酸ガス中あるいはこれらの混合気体中でコロナ放電処理を行うことが好ましい。

[0046] 上記の手法により得られる二軸延伸フィルムでは通常、フィルム長手方向がフィルム主軸直交方向になり、フィルム幅方向がフィルム主軸方向となる。

[0047] 本発明において、上記したポリプロピレンフィルム表面に金属膜を設けて金属膜積層フィルムとする方法は特に限定されないが、例えば、ポリプロピレンフィルムの少なくとも片面に、アルミニウムを蒸着してフィルムコンデンサの内部電極となるアルミニウム蒸着膜等の金属膜を設ける方法が好ましく用いられる。このとき、アルミニウムと同時あるいは逐次に、例えば、ニッケル、銅、金、銀、クロムおよび亜鉛などの他の金属成分を蒸着することもできる。また、蒸着膜上にオイルなどで保護層を設けることもできる。

[0048] 本発明では、必要により、金属膜を形成後、金属膜積層フィルムを特定の温度でアニール処理を行なったり、熱処理を行なったりすることができる。

また、絶縁もしくは他の目的で、金属膜積層フィルムの少なくとも片面に、ポリフェニレンオキサイドなどのコーティングを施すこともできる。

[0049] このようして得られた金属膜積層フィルムは、種々の方法で積層もしくは巻回してフィルムコンデンサを得ることができる。巻回型フィルムコンデンサの好ましい製造方法を例示すると、次のとおりである。

[0050] ポリプロピレンフィルムの片面にアルミニウムを減圧状態で蒸着する。その際、フィルム長手方向に走るマージン部を有するストライプ状に蒸着する。次に、表面の各蒸着部の中央と各マージン部の中央に刃を入れてスリットし、表面が一方にマージンを有した、テープ状の巻取リールを作成する。左もしくは右にマージンを有するテープ状の巻取リールを左マージンおよび右マージンのもの各１本ずつを、幅方向に蒸着部分がマージン部よりはみ出すように２枚重ね合わせて巻回し、巻回体を得る。

[0051] 両面に蒸着を行う場合は、一方の面の長手方向に走るマージン部を有するストライプ状に蒸着し、もう一方の面には長手方向のマージン部が裏面側蒸着部の中央に位置するようにストライプ状に蒸着する。次に表裏それぞれのマージン部中央に刃を入れてスリットし、両面ともそれぞれ片側にマージン（例えば表面右側にマージンがあれば裏面には左側にマージン）を有するテープ状の巻取リールを作製する。得られたリールと未蒸着の合わせフィルム各１本ずつを、幅方向に金属化フィルムが合わせフィルムよりはみ出すように２枚重ね合わせて巻回し、巻回体を得る。

[0052] 以上のようにして作成した巻回体から芯材を抜いてプレスし、両端面にメタリコンを溶射して外部電極とし、メタリコンにリード線を溶接して巻回型フィルムコンデンサを得ることができる。フィルムコンデンサの用途は、鉄道車輌用、自動車用（ハイブリットカー、電気自動車）、太陽光発電・風力発電用および一般家電用等、多岐に亘っており、本発明のフィルムコンデンサもこれら用途に好適に用いることができる。その他、包装用フィルム、離型用フィルム、工程フィルム、衛生用品、農業用品、建築用品、医療用品など様々な用途でも用いることができる。

[0053] 本発明における特性値の測定方法、並びに効果の評価方法は次のとおりである。

[0054] （１）フィルム厚み

ポリプロピレンフィルムの任意の場所の合計１０箇所を２３℃６５％ＲＨの雰囲気下で接触式のアンリツ（株）製電子マイクロメータ（Ｋ－３１２Ａ型）を用いて、その平均値をポリプロピレンフィルムのフィルム厚みとした。

[0055] （２）２３℃で測定した場合のフィルムの破断強度

ポリプロピレンフィルムを準備し、任意の方向に、長さ５０ｍｍ×幅１０ｍｍの矩形に切り出しサンプル＜１＞とした。次に、矩形のサンプルの長辺方向から１５°回転させ、サンプル＜２＞を採取した。以下同様に、矩形のサンプルの長辺方向を１５°ずつ回転させ、サンプル＜３＞～＜１２＞を採取した。次に、矩形のサンプル＜１＞を引張試験機（オリエンテック製テンシロンＵＣＴ－１００）に、初期チャック間距離２０ｍｍでセットし、２３℃雰囲気下で引張速度を３００ｍｍ／分としてフィルムの引張試験を行った。サンプル破断時の荷重値を読み取り、試験前の試料の断面積（フィルム厚み×幅（１０ｍｍ））で除した値を破断強度の応力として算出し、測定は各サンプル５回ずつ行い、その平均値で評価を行った。同様にサンプル＜２＞～＜１２＞について、それぞれ破断強度を算出し、＜１＞～＜１２＞の中での最大値をフィルム主軸方向の破断強度と定義した。

[0056] なお、破断強度算出の為に用いるフィルム厚みは上記（１）で測定した値を用いた。

[0057] （３）１２５℃で測定した場合のフィルムの破断強度

ポリプロピレンフィルムを準備し、（２）で求めたフィルム主軸方向、及びフィルム主軸直交方向を長辺方向とするサンプルを、長さ５０ｍｍ×幅１０ｍｍの矩形に切り出し、矩形のサンプルを引張試験機（オリエンテック製テンシロンＵＣＴ－１００）に、初期チャック間距離２０ｍｍでセットし、１２５℃に加熱されたオーブン中へチャックごと投入し、１分間加熱した後

、引張速度を３００ｍｍ／分としてフィルムの引張試験を行った。サンプル破断時の荷重値を読み取り、試験前の試料の断面積（フィルム厚み×幅（１０ｍｍ））で除した値を破断強度の応力として算出し、測定は各サンプル５回ずつ行い、その平均値で評価を行った。なお、破断強度算出の為に用いるフィルム厚みは上記（１）で測定した値を用いた。

[0058] （４）１２５℃で測定した場合の伸度５％時の応力（Ｆ５値）

ポリプロピレンフィルムを準備し、（２）で求めたフィルム主軸方向、及びフィルム主軸直交方向を長辺方向とするサンプルを、長さ５０ｍｍ×幅１０ｍｍの矩形に切り出し、矩形のサンプルを引張試験機（オリエンテック製テンシロンＵＣＴ－１００）に、初期チャック間距離２０ｍｍでセットし、１２５℃に加熱されたオーブン中へチャックごと投入し、１分間加熱した後、引張速度を３００ｍｍ／分としてフィルムの引張試験を行った。サンプルの伸びが５％の時にフィルムにかかっていた荷重値を読み取り、試験前の試料の断面積（フィルム厚み×幅（１０ｍｍ））で除した値をＦ５値として算出し、測定は各サンプル５回ずつ行い、その平均値で評価を行った。なお、Ｆ５値算出の為に用いるフィルム厚みは上記（１）で測定した値を用いた。

[0059] （５）１２５℃１５分加熱処理における熱収縮率

ポリプロピレンフィルムを準備し、（２）で求めたフィルム主軸方向、及びフィルム主軸直交方向を長辺方向とするサンプルを、長さ５０ｍｍ×幅１０ｍｍの矩形に切り出し、試長が約２０ｍｍとなるように両端から１５ｍｍの位置に印を付け、印間の間隔をニコン社製万能投影機試（Ｖ－１６Ａ）を用いて測定し、試長（$l_0$）とする。次に、試験片を紙に挟み込み荷重ゼロの状態で１２５℃に保温されたオーブン内で、１５分間加熱後に取り出して、室温で冷却後、寸法（$l_1$）を測定して下記式にて求め、５本の平均値を熱収縮率とした。

[0060] 熱収縮率＝｛（$l_0$－$l_1$）／$l_0$｝×１００（％）

ここで、フィルム主軸直交方向の１２５℃１５分加熱処理における熱収縮率をＳｍ（％）と定義した。

[0061] （６）結晶化温度

示差走査熱量計（セイコーインスツル製ＥＸＳＴＡＲ　ＤＳＣ６２２０）を用いて、窒素雰囲気中で３ｍｇのフィルムサンプルを３０℃から２３０℃まで４０℃／ｍｉｎの条件で昇温する。次いで、２６０℃で５ｍｉｎ保持した後、４０℃／ｍｉｎの条件で３０℃まで降温する。この際に得られる放熱カーブのピーク温度を結晶化温度とする。

[0062] （７）融点

示差走査熱量計（セイコーインスツル製ＥＸＳＴＡＲ　ＤＳＣ６２２０）を用いて、窒素雰囲気中で３ｍｇのポリプロピレンチップを３０℃から２６０℃まで４０℃／ｍｉｎの条件で昇温する。次いで、２６０℃で５ｍｉｎ保持した後、４０℃／ｍｉｎの条件で３０℃まで降温する。次いで、３０℃で５ｍｉｎ保持した後、３０℃から２６０℃まで４０℃／ｍｉｎの条件で昇温する。この際に得られる吸熱カーブのピーク温度を融点とする。

[0063] （８）メソペンタッド分率

フィルムまたはチップ状のポリプロピレンを６０℃のｎ－ヘプタンで２時間抽出し、ポリプロピレン中の不純物・添加物を除去した後、１３０℃で２時間以上減圧乾燥したものをサンプルとする。該サンプルを溶媒に溶解し、$^{13}$Ｃ－ＮＭＲを用いて、以下の条件にてメソペンタッド分率（ｍｍｍｍ）を求めた。

測定条件

・装置：Ｂｒｕｋｅｒ製ＤＲＸ－５００

・測定核：$^{13}$Ｃ核（共鳴周波数：１２５．８ＭＨｚ）

・測定濃度：１０質量％

・溶媒：ベンゼン：重オルトジクロロベンゼン＝１：３混合溶液（体積比）

・測定温度：１３０℃

・スピン回転数：１２Ｈｚ

・ＮＭＲ試料管：５ｍｍ管

・パルス幅：４５°（４．５μｓ）

・パルス繰り返し時間：１０秒

・データポイント：６４Ｋ

・積算回数：１００００回

・測定モード：ｃｏｍｐｌｅｔｅ　ｄｅｃｏｕｐｌｉｎｇ

解析条件

ＬＢ（ラインブロードニングファクター）を１としてフーリエ変換を行い、ｍｍｍｍピークを２１．８６ｐｐｍとした。ＷＩＮＦＩＴソフト（Ｂｒｕｋｅｒ製）を用いて、ピーク分割を行う。その際に、高磁場側のピークから以下のようにピーク分割を行い、更にソフトの自動フィッテイングを行い、ピーク分割の最適化を行った上で、ｍｍｍｍとｓｓ（ｍｍｍｍのスピニングサイドバンドピーク）のピーク分率の合計をメソペンタッド分率（ｍｍｍｍ）とする。

(1)ｍｒｒｍ

(2)(3)ｒｒｒｍ（２つのピークとして分割）

(4)ｒｒｒｒ

(5)ｍｒｍｍ＋ｒｍｒｒ

(6)ｍｍｒｒ

(7)ｍｍｍｒ

(8)ｓｓ（ｍｍｍｍのスピニングサイドバンドピーク）

(9)ｍｍｍｍ

(10)ｒｍｍｒ。

[0064] 同じサンプルについて同様の測定を５回行い、得られたメソペンタッド分率の平均値を当該サンプルのメソペンタッド分率とした。

[0065] （９）蒸着コンデンサ特性の評価（１１０℃での耐電圧・信頼性、素子加工性）

後述する各実施例および比較例で得られたフィルムのキャスティングドラム接触面側に、ＵＬＶＡＣ製真空蒸着機でアルミニウムを膜抵抗が８Ω／ｓｑで長手方向に垂直な方向にマージン部を設けた所謂Ｔ型マージンパターン

を有する蒸着パターンを施し、幅５０ｍｍの蒸着リールを得た。

[0066] 次いで、このリールを用いて皆藤製作所製素子巻機（ＫＡＷ－４ＮＨＢ）にてコンデンサ素子を巻き取り、メタリコンを施した後、減圧下、１２０℃の温度で１０時間の熱処理を施し、リード線を取り付けコンデンサ素子を仕上げた。

[0067] こうして得られたコンデンサ素子１０個を用いて１１０℃高温下でコンデンサ素子に３００ＶＤＣの電圧を印加し、該電圧で１０分間経過後にステップ状に５０ＶＤＣ／１分で徐々に印加電圧を上昇させることを繰り返す所謂ステップアップ試験を行なった。

[0068] ＜耐電圧＞

この際の静電容量変化を測定しグラフ上にプロットして、該容量が初期値の７０％になった電圧をフィルムの厚み（上記（１））で割り返して耐電圧評価とし、以下の通り評価した。

[0069] Ｓ：５００Ｖ／μｍ以上

Ａ：４５０Ｖ／μｍ以上５００Ｖ／μｍ未満

Ｂ：４００Ｖ／μｍ以上４５０Ｖ／μｍ未満

Ｃ：４００Ｖ／μｍ未満。

[0070] Ｓ、Ａは使用可能である。Ｂ、Ｃでは実用上の性能に劣る。

[0071] ＜信頼性＞

静電容量が初期値に対して１０％以下に減少するまで電圧を上昇させた後に、コンデンサ素子を解体し破壊の状態を調べて、信頼性を以下の通り評価した。

[0072] Ｓ：素子形状の変化は無く貫通状の破壊は観察されない。

[0073] Ａ：素子形状の変化は無くフィルム１０層以内の貫通状破壊が観察される。

[0074] Ｂ：素子形状に変化が認められる若しくは１０層を超える貫通状破壊が観察される。

[0075] Ｃ：素子形状が破壊する。

[0076] Ｓは問題なく使用でき、Ａでは条件次第で使用可能である。Ｂ、Ｃでは実用上の性能に劣る。

[0077] ＜素子加工性＞

下記基準で判断した。上記と同様にしてコンデンサー素子を作成し、目視により素子の形状を確認した。

Ａ：コンデンサー素子のフィルムのずれ、変形がなく、後の工程に全く支障がないレベル

Ｂ：コンデンサー素子のフィルムのずれ、変形は若干あるが後の工程で問題がないレベル

Ｃ：コンデンサー素子のフィルムのずれ、変形が大きく、後の工程に支障を来すレベル

Ａ、Ｂは使用可能である。Ｃでは実用が困難である。

[0078] （１０）溶融型核剤の含有分析

ポリプロピレンフィルム試料を３～４ｇ細断した後、凍結粉砕し、この粉砕物について、メタノール/クロロホルム(=1/1(v/v))混液でソックスレー抽出を行い、抽出物について、FTIR,$^{1}$H-NMR, MALDI-MS測定を実施。溶融型核剤の有無について分析する。

＜FT-IR測定条件＞

FT-IR装置　：IRPrestige-21（島津製作所製）

検出器　：DLATGS

測定モード：透過

分解能　：4 cm$^{-1}$

積算回数　：64回

試料調製　：KBr錠剤法（4 mmφ）

＜1H-NMR測定条件＞

装置名　：ECA400（日本電子製）

測定核　：1H

観測周波数：400 MHz

＜MALDI-MS測定条件＞

装置名　　：AXIMA-TOF2（島津製作所製）

イオン化法：MALDI（マトリックス支援レーザー脱離イオン化）。

[0079]　（１１）１２５℃雰囲気でのフィルム絶縁破壊電圧（Ｖ／μｍ）

１２５℃に保温されたオーブン内で、フィルムを１分間加熱後にその雰囲気中でＪＩＳ　Ｃ２３３０（２００１）７．４．１１．２　Ｂ法（平板電極法）に準じて、耐電圧試験を３０回実施し、得られた値をフィルム厚み（上記（１））で除し、（Ｖ／μｍ）に換算し、計３０点の測定値（算出値）のうち破壊電圧が最も大きい方から５点と最も小さい方から５点をそれぞれ除いた２０点の平均値を１２５℃雰囲気でのフィルム絶縁破壊電圧とした。

[0080]　（１２）絶縁欠陥の評価

２３℃６５％ＲＨの環境下で、上部電極として片面アルミ蒸着ＰＥＴフィルム（３１０ｍｍ×４１０ｍｍ）の蒸着面と下部電極として銅製平板(７５０ｍｍ×４００ｍｍ)との間に測定試料であるポリプロピレンフィルム（４００ｍｍ×５００ｍｍ）を挟んだ。次いで上部電極に電源（ハイデン研究所製直流電圧試験器　ＢＤＶ１０－２０Ｐ型）を用いて、０．０１ｋＶ／秒の昇圧速度にて電圧印加し、０．１ｋＶ到達後に１分間保持した。その後、さらに０．０１ｋＶ／秒の昇圧速度にて、０．１ｋＶずつ１分間保持する段階的昇圧を繰り返し１．０ｋＶまで到達させた。各電圧において生じた絶縁破壊個数（欠陥個数）をカウントし、以下の最初の破壊開始電圧および累積破壊個数基準から絶縁欠陥の判定を行った。

[0081]　なお、測定サンプルが４００ｍｍ×５００ｍｍサイズ取れない場合は、合計面積０．２ｍ$^2$になるよう試験数を増やして測定した。

[0082]　Ｓ：最初の破壊開始電圧が８００Ｖ以上

Ａ：６００Ｖ以上８００Ｖ未満までの累積破壊個数が１～１５０個未満

Ｂ：６００Ｖ以上８００Ｖ未満までの累積破壊個数が１５０個以上

Ｃ：最初の破壊開始電圧が６００Ｖ未満。

[0083]　Ｓ、Ａは使用可能である。Ｂ、Ｃでは実用上の性能に劣る。

## 実施例

[0084] 以下、実施例を挙げて本発明の効果をさらに説明する。

[0085] （実施例１）

チーグラー・ナッタ触媒にて重合されたメソペンタッド分率が０．９８、融点が１６７℃で、メルトフローレイト（ＭＦＲ）が２．６ｇ／１０分であるポリプロピレン樹脂に、Ｍｉｌｌｉｋｅｎ社製ノニトール系溶融型核剤（α晶核剤）「ＮＸ－８０００」を０．３質量％添加し、２４０℃に設定した押出機で混練押出し、ストランドを水冷後チップとした。このチップを温度２４０℃に設定した押出機に供給しＴ型スリットダイよりシート状に溶融押出し、該溶融シートを３０℃に保持されたキャスティングドラム上で、静電印加により密着させ冷却固化し未延伸シートを得た。次いで、該シートを複数のロール群にて徐々に１４０℃に予熱し、引き続き１４０℃の温度に保ち周速差を設けたロール間に通し、長手方向に６．０倍に延伸した。引き続き該フィルムをテンターに導き、１６０℃の温度で幅方向に１０倍延伸し、次いで１段目の熱処理および弛緩処理として幅方向に１０％の弛緩を与えながら１３０℃で熱処理を行ない、さらに２段目の熱処理としてクリップで幅方向把持したまま１４０℃で熱処理を行った。その後１００℃で冷却工程を経てテンターの外側へ導き、フィルム端部のクリップを解放し、次いでフィルム表面（キャスティングドラム接触面側）に２５Ｗ・ｍｉｎ／ｍ$^2$の処理強度で大気中でコロナ放電処理を行い、フィルム厚み２．８μｍのフィルムをフィルムロールとして巻き取った。本実施例のポリプロピレンフィルムにおいて、フィルム主軸方向はフィルム幅方向であった。

[0086] （実施例２）

実施例１で用いたメソペンタッド分率が０．９８、融点が１６７℃で、メルトフローレイト（ＭＦＲ）が２．６ｇ／１０分であるポリプロピレン樹脂に、Ｍｉｌｌｉｋｅｎ社製ノニトール系溶融型核剤「ＮＸ－８０００」を０．４質量％添加し、２４０℃に設定した押出機で混練押出し、ストランドを水冷後チップとした。このチップを温度２４０℃に設定した押出機に供給し

Ｔ型スリットダイよりシート状に溶融押出し、該溶融シートを３０℃に保持されたキャスティングドラム上で、静電印加により密着させ冷却固化し未延伸シートを得た。次いで、該シートを複数のロール群にて徐々に１４０℃に予熱し、引き続き１４０℃の温度に保ち周速差を設けたロール間に通し、長手方向に５．４倍に延伸した。引き続き該フィルムをテンターに導き、１６０℃の温度で幅方向に８倍延伸し、次いで１段目の熱処理および弛緩処理として幅方向に７％の弛緩を与えながら１３０℃で熱処理を行ない、さらに２段目の熱処理としてクリップで幅方向把持したまま１４１℃で熱処理を行った。その後１００℃で冷却工程を経てテンターの外側へ導き、フィルム端部のクリップを解放し、次いでフィルム表面（キャスティングドラム接触面側）に２５Ｗ・ｍｉｎ／ｍ$^2$の処理強度で大気中でコロナ放電処理を行い、フィルム厚み２．９μｍのフィルムをフィルムロールとして巻き取った。本実施例のポリプロピレンフィルムにおいて、フィルム主軸方向はフィルム幅方向であった。

[0087] （実施例３）

チーグラー・ナッタ触媒にて重合されたメソペンタッド分率が０．９７、融点が１６４℃で、メルトフローレイト（ＭＦＲ）が３．０ｇ／１０分であるポリプロピレン樹脂に、Ｍｉｌｌｉｋｅｎ社製ノニトール系溶融型核剤「ＮＸ－８０００」を０．１質量％添加し、２４０℃に設定した押出機で混練押出し、ストランドを水冷後チップとした。このチップを温度２４０℃に設定した押出機に供給しＴ型スリットダイよりシート状に溶融押出し、該溶融シートを３０℃に保持されたキャスティングドラム上で、静電印加により密着させ冷却固化し未延伸シートを得た。次いで、該シートを複数のロール群にて徐々に１４０℃に予熱し、引き続き１４０℃の温度に保ち周速差を設けたロール間に通し、長手方向に５．２倍に延伸した。引き続き該フィルムをテンターに導き、１６０℃の温度で幅方向に７．５倍延伸し、次いで１段目の熱処理および弛緩処理として幅方向に９％の弛緩を与えながら１２９℃で熱処理を行ない、さらに２段目の熱処理としてクリップで幅方向把持したま

ま１４２℃で熱処理を行った。その後１００℃で冷却工程を経てテンターの外側へ導き、フィルム端部のクリップを解放し、次いでフィルム表面（キャスティングドラム接触面側）に２５Ｗ・ｍｉｎ／ｍ²の処理強度で大気中でコロナ放電処理を行い、フィルム厚み３．０μｍのフィルムをフィルムロールとして巻き取った。本実施例のポリプロピレンフィルムにおいて、フィルム主軸方向はフィルム幅方向であった。

[0088] （実施例４）

実施例３で用いたメソペンタッド分率が０．９７、融点が１６４℃で、メルトフローレイト（ＭＦＲ）が３．０ｇ／１０分であるポリプロピレン樹脂に、Ｍｉｌｌｉｋｅｎ社製ノニトール系溶融型核剤「ＮＸ－８０００」を０．３質量％添加し、２４０℃に設定した押出機で混練押出し、ストランドを水冷後チップとした。このチップを温度２４０℃に設定した押出機に供給しＴ型スリットダイよりシート状に溶融押出し、該溶融シートを３０℃に保持されたキャスティングドラム上で、静電印加により密着させ冷却固化し未延伸シートを得た。次いで、該シートを複数のロール群にて徐々に１４０℃に予熱し、引き続き１４０℃の温度に保ち周速差を設けたロール間に通し、長手方向に５．８倍に延伸した。引き続き該フィルムをテンターに導き、１６０℃の温度で幅方向に９．３倍延伸し、次いで、弛緩処理として幅方向に８％の弛緩を与えながら１６５℃で熱処理を行った。その後１００℃で冷却工程を経てテンターの外側へ導き、フィルム端部のクリップを解放し、次いでフィルム表面（キャスティングドラム接触面側）に２５Ｗ・ｍｉｎ／ｍ²の処理強度で大気中でコロナ放電処理を行い、フィルム厚み６．０μｍのフィルムをフィルムロールとして巻き取った。本実施例のポリプロピレンフィルムにおいて、フィルム主軸方向はフィルム幅方向であった。

（実施例５）

チーグラー・ナッタ触媒にて重合された、メソペンタッド分率が０．９８、融点が１６７℃で、メルトフローレイト（ＭＦＲ）が２．６ｇ／１０分である直鎖状ポリプロピレン樹脂１００質量部に対しＭｉｌｌｉｋｅｎ社製ノ

ニトール系溶融型核剤「ＮＸ－８０００」を濃度が０．３質量部となるように２４０℃に設定した押出機で混練押出し、ストランドを水冷後チップ化し、ポリプロピレン樹脂原料（Ｂ）とした。このポリプロピレン樹脂原料（Ｂ）をＢ層用の単軸の溶融押出機に供給し、Ａ層用のポリプロピレン樹脂として直鎖状ポリプロピレンとしてメソペンタッド分率が０．９８、融点が１６７℃で、メルトフローレイト（ＭＦＲ）が２．６ｇ／１０分であるプライムポリマー(株)製ポリプロピレン樹脂に、Basell社製分岐鎖状ポリプロピレン樹脂（高溶融張力ポリプロピレンProfax　PF-814）を１．０質量％ブレンドしＡ層用の単軸の溶融押出機に供給し、２４０℃で溶融押出を行い、８０μｍカットの焼結フィルターで異物を除去後、フィードブロックを用いてＡ／Ｂ／Ａの３層積層で積層厚み比が１／８／１（フィルム全厚みに対する表面層Ａ層の割合は２０％）となるよう押出量を調節し、その溶融積層ポリマーをＴダイより吐出させ、該溶融シートを９０℃に保持されたキャスティングドラム上で、静電印加により密着させ冷却固化し未延伸シートを得た。次いで、該シートを複数のロール群にて徐々に１４０℃に予熱し、引き続き１４０℃の温度に保ち周速差を設けたロール間に通し、長手方向に６．０倍に延伸した。引き続き該フィルムをテンターに導き、１６５℃の温度で幅方向に１０倍延伸し、次いで１段目の熱処理および弛緩処理として幅方向に８％の弛緩を与えながら１３０℃で熱処理を行ない、さらに２段目の熱処理としてクリップで幅方向把持したまま１４０℃で熱処理を行った。その後１００℃で冷却工程を経てテンターの外側へ導き、フィルム端部のクリップを解放し、次いでフィルム表面（キャスティングドラム接触面側）に２５Ｗ・ｍｉｎ／ｍ$^2$の処理強度で大気中でコロナ放電処理を行い、フィルム厚み２．０μｍのフィルムをフィルムロールとして巻き取った。本実施例のポリプロピレンフィルムにおいて、フィルム主軸方向はフィルム幅方向であった。

[0089]　（比較例１）

シングルサイト触媒にて重合された、メソペンタッド分率が０．９７、融点が１５７℃で、メルトフローレイト（ＭＦＲ）が３．５ｇ／１０分である

ポリプロピレン樹脂にＭｉｌｌｉｋｅｎ社製ノニトール系溶融型核剤「ＮＸ－８０００」を０．２質量％添加し、２４０℃に設定した押出機で混練押出し、ストランドを水冷後チップとした。このチップを温度２４０℃に設定した押出機に供給しＴ型スリットダイよりシート状に溶融押出し、該溶融シートを３０℃に保持されたキャスティングドラム上で、静電印加により密着させ冷却固化し未延伸シートを得た。次いで、該シートを複数のロール群にて徐々に１４０℃に予熱し、引き続き１４０℃の温度に保ち周速差を設けたロール間に通し、長手方向に５．０倍に延伸した。引き続き該フィルムをテンターに導き、１６０℃の温度で幅方向に８倍延伸し、次いで熱処理および弛緩処理として幅方向に１０％の弛緩を与えながら１６５℃で熱処理を行なった。その後１００℃で冷却工程を経てテンターの外側へ導き、フィルム端部のクリップを解放し、次いでフィルム表面（キャスティングドラム接触面側）に２５Ｗ・ｍｉｎ／ｍ$^2$の処理強度で大気中でコロナ放電処理を行い、フィルム厚み３．１μｍのフィルムをフィルムロールとして巻き取った。本比較例のポリプロピレンフィルムにおいて、フィルム主軸方向はフィルム幅方向であった。

[0090] （比較例２）

実施例１で用いた、メソペンタッド分率が０．９８で、融点が１６７℃で、メルトフローレイト（ＭＦＲ）が２．６ｇ／１０分であるポリプロピレン樹脂を温度２６０℃の押出機に供給し、樹脂温度２６０℃でＴ型スリットダイよりシート状に溶融押出し、該溶融シートを３０℃に保持されたキャスティングドラム上で、静電印加により密着させ冷却固化し未延伸シートを得た。次いで、該シートを複数のロール群にて徐々に１４０℃に予熱し、引き続き１４０℃の温度に保ち周速差を設けたロール間に通し、長手方向に４．３倍に延伸した。引き続き該フィルムをテンターに導き、１６０℃の温度で幅方向に８倍延伸し、次いで１段目の熱処理および弛緩処理として幅方向に１０％の弛緩を与えながら１３２℃で熱処理を行ない、さらに２段目の熱処理としてクリップで幅方向把持したまま１４２℃で熱処理を行った。その後１

００℃で冷却工程を経てテンターの外側へ導き、フィルム端部のクリップを解放し、次いでフィルム表面（キャスティングドラム接触面側）に２５Ｗ・ｍｉｎ／ｍ$^2$の処理強度で大気中でコロナ放電処理を行い、フィルム厚み３．２ｍのフィルムをフィルムロールとして巻き取った。本比較例のポリプロピレンフィルムにおいて、フィルム主軸方向はフィルム幅方向であった。

[0091] （比較例３）

実施例１で用いた、メソペンタッド分率が０．９８、融点が１６７℃で、メルトフローレイト（ＭＦＲ）が２．６ｇ／１０分であるポリプロピレン樹脂に、ＡＤＥＫＡ社製リン酸塩系非溶融型核剤「アデカスタブ（登録商標）ＮＡ－２１」を０．２質量％添加し、２４０℃に設定した押出機で混練押出し、ストランドを水冷後チップとした。このチップを温度２４０℃に設定した押出機に供給しＴ型スリットダイよりシート状に溶融押出し、該溶融シートを３０℃に保持されたキャスティングドラム上で、静電印加により密着させ冷却固化し未延伸シートを得た。次いで、該シートを複数のロール群にて徐々に１４０℃に予熱し、引き続き１４０℃の温度に保ち周速差を設けたロール間に通し、長手方向に５．４倍に延伸した。引き続き該フィルムをテンターに導き、１６０℃の温度で幅方向に９．１倍延伸し、次いで１段目の熱処理および弛緩処理として幅方向に２％の弛緩を与えながら１３１℃で熱処理を行ない、さらに２段目の熱処理としてクリップで幅方向把持したまま１４０℃で熱処理を行った。その後１００℃で冷却工程を経てテンターの外側へ導き、フィルム端部のクリップを解放し、次いでフィルム表面（キャスティングドラム接触面側）に２５Ｗ・ｍｉｎ／ｍ$^2$の処理強度で大気中でコロナ放電処理を行い、フィルム厚み３．０μｍのフィルムをフィルムロールとして巻き取った。本比較例のポリプロピレンフィルムにおいて、フィルム主軸方向はフィルム幅方向であった。

（比較例４）

シングルサイト触媒にて重合された、メソペンタッド分率が０．９７、融点が１５７℃で、メルトフローレイト（ＭＦＲ）が３．５ｇ／１０分である

ポリプロピレン樹脂１００質量部に対し、Ｍｉｌｌｉｋｅｎ社製ノニトール系溶融型核剤「ＮＸ－８０００」を濃度が０．２質量部となるように２４０℃に設定した押出機で混練押出し、ストランドを水冷後チップとし、ポリプロピレン樹脂（Ｃ）とした。ポリプロピレン樹脂（Ｂ）の代わりに該ポリプロピレン樹脂（Ｃ）を用いた以外は実施例５と同様にして厚み２．０μｍのポリプロピレンフィルムを得た。

[0092] （比較例５）

チーグラー・ナッタ触媒にて重合されたメソペンタッド分率が０．９４、融点が１６３℃で、メルトフローレイト（ＭＦＲ）が３．０ｇ／１０分である直鎖状ポリプロピレン樹脂１００質量部に対しＭｉｌｌｉｋｅｎ社製ノニトール系溶融型核剤「ＮＸ－８０００」を濃度が０．２質量部となるように２４０℃に設定した押出機で混練押出し、ストランドを水冷後チップとし、ポリプロピレン樹脂（Ｄ）とした。ポリプロピレン樹脂（Ｂ）の代わりに該ポリプロピレン樹脂（Ｄ）を用いた以外は実施例５と同様にして厚み２．３μｍのポリプロピレンフィルムを得た。

[0093] 実施例、比較例の製造条件、得られたフィルムの特性を表１、表２に示した。

[0094]

[表1]

【表1】

| | | 実施例1 | 実施例2 | 実施例3 | 実施例4 | 実施例5 |
|---|---|---|---|---|---|---|
| メソペンタッド分率 | — | 0.98 | 0.98 | 0.97 | 0.97 | 0.98 |
| ポリプロピレン樹脂の融点 | ℃ | 167 | 167 | 164 | 164 | 167 |
| 溶融型核剤含有の有無 | — | あり | あり | あり | あり | あり |
| 核剤の種類 | — | ノニトール系 | ノニトール系 | ノニトール系 | ノニトール系 | ノニトール系 |
| 核剤濃度 | % | 0.3 | 0.4 | 0.1 | 0.3 | 0.3 |
| 積層構成 | — | 単層 | 単層 | 単層 | 単層 | A/B/A |
| 縦延伸倍率 | 倍 | 6.0 | 5.4 | 5.2 | 5.8 | 6.0 |
| 横延伸倍率 | 倍 | 10.0 | 8.0 | 7.5 | 9.3 | 10.0 |
| 1段目熱処理温度 | ℃ | 130 | 130 | 129 | 165 | 130 |
| 2段目熱処理温度 | ℃ | 140 | 141 | 142 | - | 140 |
| 弛緩率 | % | 10 | 7 | 9 | 8 | 8 |
| フィルム厚み | μm | 2.8 | 2.9 | 3.0 | 6.0 | 2.0 |
| 結晶化温度 | ℃ | 133 | 134 | 131 | 132 | 133 |
| 125℃主軸方向の破断強度＋125℃主軸直交方向の破断強度 | MPa | 350 | 310 | 275 | 256 | 348 |
| 125℃ 主軸直交方向の破断強度 | MPa | 153 | 117 | 104 | 78 | 148 |
| 125℃ 主軸直交方向のF5値 | MPa | 11.3 | 9.7 | 8.8 | 7.7 | 11.1 |
| 125℃15分 主軸方向の熱収縮率 | % | 0.1 | 0.3 | 0.2 | 0.4 | 0.2 |
| Fm／Sm | — | 150 | 140 | 125 | 134 | 145 |
| 125℃フィルムの絶縁破壊電圧 | V/μm | 571 | 548 | 512 | 505 | 565 |
| 絶縁欠陥 | — | S | S | A | S | S |
| 110℃コンデンサ特性 | 耐電圧 | S | S | A | A | S |
| | 信頼性 | S | A | S | A | S |
| 素子加工性 | — | B | B | B | B | A |

[0095]

[表2]

【表2】

| | | 比較例1 | 比較例2 | 比較例3 | 比較例4 | 比較例5 |
|---|---|---|---|---|---|---|
| メソペンタッド分率 | | 0.97 | 0.98 | 0.98 | 0.97 | 0.94 |
| ポリプロピレン樹脂の融点 | ℃ | 157 | 167 | 167 | 157 | 163 |
| 溶融型核剤含有の有無 | — | あり | なし | なし | あり | あり |
| 核剤の種類 | — | ノニトール系 | — | 非溶融型 | ノニトール系 | ノニトール系 |
| 核剤濃度 | % | 0.2 | — | 0.2 | 0.2 | 0.2 |
| 積層構成 | — | 単層 | 単層 | 単層 | A/C/A | A/D/A |
| 縦延伸倍率 | 倍 | 5.0 | 4.3 | 5.4 | 6.0 | 6.0 |
| 横延伸倍率 | 倍 | 8.0 | 8.0 | 9.1 | 10.0 | 10.0 |
| 1段目熱処理温度 | ℃ | 165 | 132 | 131 | 130 | 130 |
| 2段目熱処理温度 | ℃ | - | 142 | 140 | 140 | 140 |
| 弛緩率 | % | 10 | 10 | 2 | 8 | 8 |
| フィルム厚み | μm | 3.1 | 3.2 | 3.0 | 2.0 | 2.3 |
| 結晶化温度 | ℃ | 132 | 109 | 128 | 133 | 131 |
| 125℃主軸方向の破断強度＋125℃主軸直交方向の破断強度 | MPa | 227 | 218 | 241 | 218 | 207 |
| 125℃ 主軸直交方向の破断強度 | MPa | 77 | 70 | 76 | 74 | 68 |
| 125℃ 主軸直交方向のF5値 | MPa | 6.9 | 7.1 | 7.2 | 6.7 | 6.1 |
| 125℃15分 主軸方向の熱収縮率 | % | 0.6 | 0.3 | 1.6 | 0.5 | 0.9 |
| Fm／Sm | — | 96 | 89 | 91 | 92 | 84 |
| 125℃フィルムの絶縁破壊電圧 | V/μm | 488 | 481 | 497 | 485 | 415 |
| 絶縁欠陥 | — | B | B | B | B | C |
| 110℃コンデンサ特性 | 耐電圧 | B | B | B | B | C |
| | 信頼性 | C | B | C | B | C |
| 素子加工性 | — | B | A | B | A | A |

# 請求の範囲

[請求項1] １２５℃で測定した場合のフィルム主軸方向の破断強度とフィルム主軸直交方向の破断強度との和が２５０ＭＰａ以上である、ポリプロピレンフィルム。

[請求項2] １２５℃で測定した場合のフィルム主軸直交方向の破断強度が８０ＭＰａ以上である、請求項１に記載のポリプロピレンフィルム。

[請求項3] １２５℃で測定した場合のフィルム主軸直交方向の伸度５％時の応力（Ｆ５値）が８ＭＰａ以上である、請求項１または２に記載のポリプロピレンフィルム。

[請求項4] フィルム主軸方向の１２５℃１５分加熱処理における熱収縮率が１％以下である、請求項１～３のいずれかに記載のポリプロピレンフィルム。

[請求項5] ２３℃で測定した場合のフィルム主軸直交方向の破断強度をＦｍ（ＭＰａ）、フィルム主軸直交方向の１２５℃１５分加熱処理における熱収縮率をＳｍ（％）としたときに、Ｆｍ、Ｓｍが下式（１）を満たす、請求項１～４のいずれかに記載のポリプロピレンフィルム。

$$Fm/Sm \geqq 100 \cdots (1)$$

[請求項6] メソペンタッド分率が０．９５以上であり、融点が１６０℃を超えるポリプロピレン樹脂と、当該樹脂に対する溶融型核剤とを含有する、請求項１～５のいずれかに記載のポリプロピレンフィルム。

[請求項7] 前記溶融型核剤がノニトール系またはトリアミド誘導体系の化合物から選ばれる核剤である、請求項１～６のいずれかに記載のポリプロピレンフィルム。

[請求項8] 示差走査熱量計により、溶融状態からの冷却過程において観察できる結晶化ピーク温度が１２５℃を超える、請求項１～７のいずれかに記載のポリプロピレンフィルム。

[請求項9] 厚さ方向に２層以上積層された構成を有する、請求項１～８のいずれかに記載のポリプロピレンフィルム。

[請求項10] 厚さ方向に２層以上積層され、少なくとも片表面に溶融型核剤を含有しない層を有する、請求項１～９のいずれかに記載のポリプロピレンフィルム。

[請求項11] 請求項１～１０のいずれかに記載のポリプロピレンフィルムの少なくとも片面に金属膜が設けられてなる金属膜積層フィルム。

[請求項12] 請求項１１に記載の金属膜積層フィルムを用いてなるフィルムコンデンサ。

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2015/076092

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
*C08J5/18*(2006.01)i, *B32B15/085*(2006.01)i, *H01G4/18*(2006.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
C08J5/00-5/02, C08J5/12-5/22, B32B1/00-43/00, H01G4/18

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

| | | | |
|---|---|---|---|
| Jitsuyo Shinan Koho | 1922-1996 | Jitsuyo Shinan Toroku Koho | 1996-2015 |
| Kokai Jitsuyo Shinan Koho | 1971-2015 | Toroku Jitsuyo Shinan Koho | 1994-2015 |

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|---|---|---|
| X<br>Y<br>A | JP 2006-093689 A (Toray Industries, Inc.),<br>06 April 2006 (06.04.2006),<br>claims; paragraph [0048]; tables 1, 2<br>(Family: none) | 1,5-6,8,<br>11-12<br>1,4-6,8-12<br>2-3,7 |
| X<br>Y<br>A | JP 2013-538258 A (Borealis AG),<br>10 October 2013 (10.10.2013),<br>claims; paragraphs [0022], [0114], [0115]<br>& US 2013/0303684 A1<br>claims; paragraphs [0028], [0167], [0168]<br>& WO 2012/016964 A1 & EP 2415791 A1<br>& ES 2398714 T & CN 103052661 A<br>& MX 2013001340 A & KR 10-2013-0059406 A<br>& EA 201300203 A | 1,4-8,11-12<br>1,4-6,8-12<br>2-3 |

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

| Date of the actual completion of the international search | Date of mailing of the international search report |
|---|---|
| 02 December 2015 (02.12.15) | 15 December 2015 (15.12.15) |

| Name and mailing address of the ISA/ | Authorized officer |
|---|---|
| Japan Patent Office<br>3-4-3,Kasumigaseki,Chiyoda-ku,<br>Tokyo 100-8915,Japan | Telephone No. |

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.
PCT/JP2015/076092

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category* | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|---|---|---|
| Y<br>A | JP 59-191207 A (Toray Industries, Inc.),<br>30 October 1984 (30.10.1984),<br>claims; examples; table 1<br>(Family: none) | 1,4-6,8-12<br>2-3,7 |
| A | JP 5-128915 A (Mitsubishi Cable Industries, Ltd.),<br>25 May 1993 (25.05.1993),<br>claims; paragraph [0003]<br>(Family: none) | 1-12 |
| E,X | JP 2015-201616 A (Oji Holdings Corp.),<br>12 November 2015 (12.11.2015),<br>claims; paragraphs [0001], [0114]; examples 1 to 10<br>(Family: none) | 1-12 |
| P,A | JP 2014-194010 A (Sumitomo Chemical Co., Ltd.),<br>09 October 2014 (09.10.2014),<br>claims; paragraphs [0002], [0038], [0053]; comparative example 5; table 1<br>& CN 104017269 A<br>claims; paragraphs [0002], [0068], [0109], [0110]; comparative example 5<br>& KR 10-2014-0108134 A & TW 201437234 A | 1-12 |

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２０１５／０７６０９２

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C08J5/18(2006.01)i, B32B15/085(2006.01)i, H01G4/18(2006.01)i

Ｂ．　調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C08J5/00-5/02, C08J5/12-5/22, B32B1/00-43/00, H01G4/18

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報　１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報　１９７１－２０１５年
日本国実用新案登録公報　１９９６－２０１５年
日本国登録実用新案公報　１９９４－２０１５年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

Ｃ．　関連すると認められる文献

| 引用文献のカテゴリー＊ | 引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示 | 関連する請求項の番号 |
|---|---|---|
| X | JP 2006-093689 A（東レ株式会社）2006.04.06, 特許請求の範囲、[0048]、表１、表２（ファミリーなし） | 1,5-6,8,11-12 |
| Y | | 1,4-6,8-12 |
| A | | 2-3,7 |
| X | JP 2013-538258 A（ボレアリス　アクチエンゲゼルシャフト）2013.10.10, 特許請求の範囲、[0022]、[0114]、[0115] & US 2013/0303684 A1;Claims,[0028],[0167],[0168] & WO 2012/016964 A1 & EP 2415791 A1 & ES 2398714 T & CN 103052661 A & MX 2013001340 | 1,4-8,11-12 |
| Y | | 1,4-6,8-12 |
| A | | 2-3 |

☑　Ｃ欄の続きにも文献が列挙されている。

☐　パテントファミリーに関する別紙を参照。

＊　引用文献のカテゴリー
「Ａ」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「Ｅ」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「Ｌ」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
「Ｏ」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「Ｐ」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献
「Ｔ」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「Ｘ」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Ｙ」特に関連のある文献であって、当該文献と他の１以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「＆」同一パテントファミリー文献

| 国際調査を完了した日 | 国際調査報告の発送日 |
|---|---|
| ０２．１２．２０１５ | １５．１２．２０１５ |


国際調査機関の名称及びあて先
日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ）
郵便番号１００－８９１５
東京都千代田区霞が関三丁目４番３号

特許庁審査官（権限のある職員）　４Ｆ　５２８３
久保田　葵
電話番号　０３－３５８１－１１０１　内線　３４３０

Ｃ（続き）．　関連すると認められる文献

| 引用文献のカテゴリー＊ | 引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示 | 関連する請求項の番号 |
|---|---|---|
| | A & KR 10-2013-0059406 A & EA 201300203 A | |
| Y<br>A | JP 59-191207 A (東レ株式会社) 1984.10.30, 特許請求の範囲、実施例、表１ (ファミリーなし) | 1,4-6,8-12<br>2-3,7 |
| A | JP 5-128915 A (三菱電線工業株式会社) 1993.05.25, 特許請求の範囲、[0003] (ファミリーなし) | 1-12 |
| E,X | JP 2015-201616 A (王子ホールディングス株式会社) 2015.11.12, 特許請求の範囲、[0001]、[0114]、実施例１－１０ (ファミリーなし) | 1-12 |
| P,A | JP 2014-194010 A (住友化学株式会社) 2014.10.09, 特許請求の範囲、[0002]、[0038]、[0053]、比較例５、表１ & CN 104017269 A; 特許請求の範囲、[0002]、[0068]、[0109]、[0110]、比較例５ & KR 10-2014-0108134 A & TW 201437234 A | 1-12 |