

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特許公報(B2)

(11) 特許番号

特許第5026532号
(P5026532)

(45) 発行日 平成24年9月12日 (2012.9.12)

(24) 登録日 平成24年6月29日 (2012.6.29)

(51) Int. Cl. F I
H01G 4/18 (2006.01) H01G 4/24 321C
B29C 55/12 (2006.01) B29C 55/12
C08J 5/18 (2006.01) C08J 5/18 CES

請求項の数 23 (全 30 頁)

(21) 出願番号	特願2009-552223 (P2009-552223)	(73) 特許権者	509011363
(86) (22) 出願日	平成20年5月7日 (2008.5.7)		ボレアリス テクノロジー オサケ ユキ チュア
(65) 公表番号	特表2010-520632 (P2010-520632A)		フィンランド国 エフアイエヌ - O6 101 ボルヴォー、ピー、オー、ボック ス 330
(43) 公表日	平成22年6月10日 (2010.6.10)	(74) 代理人	110000855 特許業務法人浅村特許事務所
(86) 国際出願番号	PCT/EP2008/055663	(74) 代理人	100066692 弁理士 浅村 皓
(87) 国際公開番号	W02008/135598	(74) 代理人	100072040 弁理士 浅村 肇
(87) 国際公開日	平成20年11月13日 (2008.11.13)	(74) 代理人	100124969 弁理士 井上 洋一
審査請求日	平成21年9月8日 (2009.9.8)		
(31) 優先権主張番号	07009238.2		
(32) 優先日	平成19年5月8日 (2007.5.8)		
(33) 優先権主張国	欧州特許庁 (EP)		

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 電気絶縁フィルム

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

二軸延伸プロピレンホモポリマーを含むコンデンサフィルムであって、
a) 前記プロピレンホモポリマーが、少なくとも 4 . 0 の機械方向の延伸比及び少なくとも 4 . 0 の横方向の延伸比を有し、
b) 前記プロピレンホモポリマー及び/又は前記コンデンサフィルムが、IEC 60243 - part 1 (1988) に従って、機械方向及び横方向の延伸比 4 . 0 において少なくとも 300 kV / mm の絶縁破壊強度 EB 63 % を有し、
前記コンデンサフィルムが、7 . 19 nm の厚さを有するラメラ画分を少なくとも 20 wt % 含む、
コンデンサフィルム。

【請求項 2】

プロピレンホモポリマーが、4 . 0 ~ 8 . 0 の範囲の機械方向の延伸比及び 6 . 0 ~ 10 . 0 の横方向の延伸比を有する、請求項 1 に記載のコンデンサフィルム。

【請求項 3】

プロピレンホモポリマーが、IEC 60243 - part 1 (1988) に従って、機械方向及び横方向の延伸比 5 . 0 において少なくとも 500 kV / mm の絶縁破壊強度 EB 63 % を有する、請求項 1 又は 2 に記載のコンデンサフィルム。

【請求項 4】

フィルム及び/又はプロピレンホモポリマーが、少なくとも 0 . 5 wt % のキシレン可

溶物 (X S) を有する、請求項 1 から 3 までのいずれか一項に記載のコンデンサフィルム。

【請求項 5】

フィルム及びノ又はプロピレンホモポリマーが、0.5 ~ 1.5 wt % の範囲のキシレン可溶物を有する、請求項 1 から 4 までのいずれか一項に記載のコンデンサフィルム。

【請求項 6】

フィルム及びノ又はプロピレンホモポリマーが、機械方向の延伸比 4.0 及び横方向の延伸比 4.0 において少なくとも 1800 MPa の引張弾性率を有し、この引張弾性率が、クロスヘッド速度 1 mm / 分において、ISO 527-3 に従って測定される、請求項 1 から 5 までのいずれか一項に記載のコンデンサフィルム。

10

【請求項 7】

152 以下の延伸温度、並びに機械方向及び横方向の延伸比 4.0 において、機械方向及び横方向で少なくとも 2.5 MPa の引張応力を有する、請求項 1 から 6 までのいずれか一項に記載のコンデンサフィルム。

【請求項 8】

フィルム及びノ又はプロピレンホモポリマーが、少なくとも 148 の熔融温度 T_m を有する、請求項 1 から 7 までのいずれか一項に記載のコンデンサフィルム。

【請求項 9】

プロピレンホモポリマーが多峰性である、請求項 1 から 8 までのいずれか一項に記載のコンデンサフィルム。

20

【請求項 10】

プロピレンホモポリマーが単峰性である、請求項 1 から 8 までのいずれか一項に記載のコンデンサフィルム。

【請求項 11】

プロピレンホモポリマーが、ISO 16014 に従って測定して 8.00 以下の分子量分布 (MWD) を有する、請求項 1 から 10 までのいずれか一項に記載のコンデンサフィルム。

【請求項 12】

プロピレンホモポリマーが、ISO 1133 に従って測定して最大 10 g / 10 分の熔融流れ速度 MFR_2 を有する、請求項 1 から 11 までのいずれか一項に記載のコンデンサフィルム。

30

【請求項 13】

プロピレンホモポリマーが、NMR 分光法によって決定される 94 % を超える mmm ペンタッド濃度を有する、請求項 1 から 12 までのいずれか一項に記載のコンデンサフィルム。

【請求項 14】

プロピレンホモポリマーが、メタロセン錯体を含む触媒系の存在下で製造され、前記触媒系が、DIN 66135 に従って測定して 1.40 ml / g 未満の多孔率を有する、請求項 1 から 13 までのいずれか一項に記載のコンデンサフィルム。

【請求項 15】

40

プロピレンホモポリマーが、対称メタロセン錯体の存在下で製造されたものである、請求項 1 から 14 までのいずれか一項に記載のコンデンサフィルム。

【請求項 16】

請求項 1 から 15 までのいずれか一項に記載のコンデンサフィルムのコンデンサにおける使用。

【請求項 17】

請求項 1 から 15 までのいずれか一項に記載のコンデンサフィルムを含む少なくとも 1 つの層を含むコンデンサ。

【請求項 18】

請求項 1 から 15 までのいずれか一項に記載のコンデンサフィルムを調製する方法であ

50

って、請求項 1 から 15 までのいずれか一項に記載のプロピレンホモポリマーが、二軸延伸フィルムに形成される、前記方法。

【請求項 19】

プロピレンホモポリマーが、対称触媒を含む多孔率が低い触媒系を用いて調製され、前記触媒系は、D I N 6 6 1 3 5 に従って測定して 1 . 4 0 m l / g 未満の多孔率を有する、請求項 1 8 に記載の方法。

【請求項 20】

触媒系が、非ケイ素担持系である、請求項 1 8 に記載の方法。

【請求項 21】

触媒系が、D I N 6 6 1 3 5 の検出限界未満の多孔率を有する、請求項 1 9 又は 2 0 に記載の方法。

10

【請求項 22】

触媒系が、I S O 9 2 7 7 に従って測定して 2 5 m² / g 未満の表面積を有する、請求項 1 9 ~ 2 1 のいずれかに記載の方法。

【請求項 23】

対称触媒が、式 (I) の遷移金属化合物である、請求項 1 9 から 2 2 までのいずれか一項に記載の方法



[式中、

M は、Z r、H f 又は T i、より好ましくは Z r であり、
 X は、独立に、配位子などの一価のアニオン性配位子であり、
 R は、2 つの C p 配位子を結合する架橋基であり、
 C p は、非置換シクロペンタジエニル、非置換インデニル、非置換テトラヒドロインデニル、非置換フルオレニル、置換シクロペンタジエニル、置換インデニル、置換テトラヒドロインデニル及び置換フルオレニルからなる群から選択される有機配位子であり、
 但し、両方の C p 配位子は、上記の基から選択され、両方の C p 配位子は、化学的に同じ、即ち同一である]。

20

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、電気絶縁フィルム、特にコンデンサフィルム、及びそれらの使用に関する。

30

【0002】

コンデンサフィルムは、高温及び高絶縁破壊強度などの極度条件に耐えなければならない。さらに、コンデンサフィルムは高い剛性などの良好な機械特性を保持することが好ましい。今までにコンデンサ技術の技術分野においては、チタン、アルミニウム及びホウ素などの残留金属によって生じる低レベルの電気伝導を用いてのみ高い絶縁破壊強度が実現され得るといった一般的な意見が存在している。しかし、チーグラ-ナッタ触媒を用いて生成する従来のポリプロピレンは、大量の残留触媒成分で汚染される。コンデンサフィルムに適したポリプロピレンを生成するのに望ましい非常に低い不純物レベルを達成するためには、ポリプロピレンを、時間を要しコストの高いプロセスである厄介な洗浄にさらさなければならない。洗浄ステップの問題を克服するために、例えば W O 0 2 / 1 6 4 5 5 A 1 に記載のように、担持シングルサイト触媒の存在下で生成され、アルミニウム、チタン、ケイ素、及びハロゲン (C l 及び F など) のような金属及び非金属不純物を含む不純物が低レベルのポリプロピレンが開発されている。しかし、この低い不純物レベルという目的を達成するためには、プロセス条件が非常に慎重に制御されなければならない。さらに、かかるポリプロピレンは、安定な方法では処理することができないという欠点を有する。特に、担持シングルサイト触媒の存在下で生成されたポリプロピレンをベースとするフィルムは、製造される際に容易に撓み、破断してしまう。

40

【0003】

したがって本発明の目的は、それらの欠点を生じることなく高電場強度に耐えるコンデ

50

ンサフィルム、及び高い剛性などの特に良好な機械特性を有する前記フィルムを提供することである。好ましくは、かかるコンデンサフィルムは、さらに高温耐性を有する。

【0004】

本発明は、段階的等温凝離法 (stepwise isothermal segregation technique) (SIST) によって決定されるかなり多量の薄いラメラを特徴とする、コンデンサフィルム用ポリプロピレンを使用することによって、改善された破壊挙動を達成し得るという知見に基づいている。かかるコンデンサフィルムは、高い耐熱性、高い絶縁破壊強度及び良好な機械特性の平衡状態を実現する。特に、良好な特性は、存在する不純物の量とは独立に、即ちポリプロピレンが、かなり多量のアルミニウム、チタン、ケイ素、ハロゲン (Cl 及び F など) 及び / 又はホウ素を含むか否かとは独立に実現し得ることが特に見出された。

10

【図面の簡単な説明】

【0005】

【図1】コールカウンターによる触媒粒径分布を示す図である。

【図2】延伸の異なる標本の絶縁破壊強度を示す図である。

【図3】SIST曲線E1を示す図である。

【図4】SIST曲線CE1を示す図である。

【図5】SIST曲線CE2を示す図である。

【図6】SIST曲線E3を示す図である。

【図7】ラメラの厚さ分布を示す図である。

【0006】

20

したがって、先に概説した目的は、二軸延伸ポリプロピレンを含むコンデンサフィルムとして下記を充足するものを提供することによって解決される：

a) 前記ポリプロピレンは、少なくとも4.0の機械方向の延伸比及び少なくとも4.0の横方向の延伸比を有し、

b) 前記ポリプロピレン及び / 又は前記コンデンサフィルムは、IEC60243 - part 1 (1988) に従って、機械方向の延伸比4.0及び横方向の延伸比4.0において少なくとも300 kV/mmの絶縁破壊強度EB63%を有する。

【0007】

好ましくは、コンデンサフィルムはさらに、前記フィルム及び / 又は前記フィルムのポリプロピレンが、ある程度の、即ち少なくとも0.50 wt%のキシレン可溶物を有することを特徴とする。

30

さらに、本発明で規定される二軸延伸ポリプロピレンは、コンデンサフィルムの唯一のポリマー成分であることが好ましい。

【0008】

かかるコンデンサフィルムは、当技術分野で公知のフィルムと比較して優れた特性を有する。特に本発明のコンデンサフィルムは、フィルム内に比較的少量の不純物が存在する場合にも、高い値の絶縁破壊強度を有する。したがってポリプロピレンに必要な、当技術分野で公知の厄介な洗浄ステップは必要ない。さらに本発明のコンデンサフィルムは、高温耐性をさらに有し、高いプロセス安定性及び低いプロセス温度で得ることができる。さらに、また驚くべきことには、本発明のフィルムは、引張弾性率として表される高い剛性においてさらに良好な機械特性を有する。さらに、本発明の新しいコンデンサフィルムは、延伸比の増大に伴って著しく増大する絶縁破壊強度を示すことが観測されている。

40

【0009】

本発明の第1の要件は、コンデンサフィルムのポリプロピレンが二軸延伸であり、即ち少なくとも4.0の機械方向の延伸比及び少なくとも4.0の横方向の延伸比を有することである。市販の二軸延伸ポリプロピレンフィルムは、破断なしに少なくとも先に規定の程度まで伸縮可能でなければならぬため、かかる比が好まれる。サンプルの長さは、延伸中に縦方向に増大し、縦方向の延伸比は、現在の長さ対元のサンプルの長さの比から算出される。その後、サンプルは横方向に延伸され、サンプルの幅が増大する。したがって延伸比は、サンプルの現在の幅対サンプルの元の幅から算出される。好ましくは、二軸延

50

伸ポリプロピレンの機械方向の延伸比は、4.0～8.0、より好ましくは4.5～6.5の範囲である。二軸ポリプロピレンの横方向の延伸比は、好ましくは6.0～10.0、より好ましくは7.0～9.5の範囲である。好ましい一態様では、二軸ポリプロピレンは、4.5～7.0、特に4.5～5.0の機械方向の延伸比、及び6.0～10.0、特に8.0～10.0の横方向の延伸比を有する。

【0010】

かかる二軸ポリプロピレンを得るために、好ましくは、本発明において一方法を以下に記載のように適用する。

【0011】

本発明の第2の要件は、二軸ポリプロピレン及び/又は前記コンデンサフィルムが、かなり高い絶縁破壊強度EB63%を有する、即ちIEC60243-part1(1988)に従って、機械方向の延伸比及び横方向の延伸比4.0において少なくとも300kV/mmの絶縁破壊強度EB63%を有することである。より好ましくは、機械方向及び横方向の延伸比4.0における二軸ポリプロピレン及び/又は前記コンデンサフィルムの絶縁破壊強度EB63%は、少なくとも350kV/mm、さらにより好ましくは少なくとも400kV/mm、さらにより好ましくは少なくとも430kV/mmである。絶縁破壊強度の測定についてのさらなる詳細は、下記の例において示される。

【0012】

前述のように、二軸ポリプロピレンは、特に図2に示すことができるように、二軸延伸ポリプロピレンの絶縁破壊強度EB63%が延伸率の増大に伴って不均衡に増大することを特徴とする。したがって、機械方向及び横方向の延伸比5.0における二軸延伸ポリプロピレン及び/又はコンデンサフィルムの絶縁破壊強度EB63%は、少なくとも500kV/mm、さらにより好ましくは少なくとも550kV/mm、さらにより好ましくは少なくとも580kV/mmであることが好ましい。

【0013】

さらに、コンデンサフィルム及び/又は前記コンデンサフィルムのポリプロピレンが、ある程度の、即ち少なくとも0.50wt%のキシレン可溶物を有することが好ましい。キシレン可溶物は、冷却キシレンに溶けることができるポリマー部分であり、沸騰しているキシレンに溶解し、不溶性部分を冷却溶液から結晶化することによって決定される(その方法については、以下の実験部分を参照)。キシレン可溶物画分は、低い立体規則性のポリマー鎖を含有し、非晶質領域の量の指標となる。

【0014】

好ましくは、フィルムのポリプロピレン成分は、0.60wt%を超えるキシレン可溶物を有する。一方、キシレン可溶物の量は、それらが潜在的な汚染リスクを表すことから、多すぎるべきではない。したがって、キシレン可溶物は1.00wt%を超えず、さらにより好ましくは0.90wt%を超えないことが好ましい。好ましい態様では、キシレン可溶物は、0.60～1.00wt%の範囲、より好ましくは0.60～0.90wt%の範囲である。

【0015】

好ましくは、コンデンサフィルムは、0.60wt%を超えるキシレン可溶物を有する。さらにより好ましくは、コンデンサフィルムは、1.00wt%を超えず、より好ましくは0.90wt%を超えないキシレン可溶物を有する。特にフィルムは、0.60wt%～1.00wt%、より好ましくは0.60wt%～0.90wt%の範囲のキシレン可溶物を有する。

【0016】

さらに、本発明のコンデンサフィルムは、さらにそのラメラの厚さ分布によって特定されることが好ましい(図7参照)。高絶縁破壊強度は、ポリマーがかなり多量の薄いラメラを含む場合に達成可能であることが認識されている。したがって、コンデンサフィルムとしてのフィルムの受入れは、ポリプロピレン中に存在する不純物の量とは独立であり、その結晶特性とは独立である。段階的等温凝離法(SIST)は、ラメラの厚さ分布を決

10

20

30

40

50

定する可能性を提供するものである。厳密な方法は、例の部分で規定される。本発明では、ラメラの厚さとは、例の部分で規定されるように、段階的等温凝離法（S I S T）に従って測定されるポリマーのラメラの厚さであると理解される。低温で結晶化するかなり多量のポリマー画分は、かなり多量の薄いラメラを示す。

【0017】

したがって、本発明のコンデンサフィルム及び/又はフィルムのポリプロピレンは、かなり多量の薄いラメラ、即ち 7.19 nmの厚さを有するかなり多量のラメラを特徴とする。

【0018】

したがって、本発明のコンデンサフィルム及び/又はフィルムのポリプロピレンは、7.19 nmの厚さを有する、少なくとも20 wt%、より好ましくは少なくとも30 wt%、さらにより好ましくは少なくとも35 wt%、さらにより好ましくは少なくとも40 wt%、またさらにより好ましくは少なくとも45 wt%、最も好ましくは少なくとも50 wt%のラメラ画分を含むことが好ましい。

【0019】

より正確に、またより好ましくは、本発明のコンデンサフィルム及び/又はフィルムのポリプロピレンは、5.55 nm~7.19 nmの範囲の、少なくとも12 wt%、より好ましくは少なくとも20 wt%、さらにより好ましくは少なくとも25 wt%のラメラ画分を含む。さらに、本発明のコンデンサフィルム及び/又はフィルムのポリプロピレンは、4.52 nm~5.55 nmの範囲の、少なくとも5 wt%、より好ましくは少なくとも7 wt%、さらにより好ましくは少なくとも10 wt%のラメラ画分を含むことが好ましい。

【0020】

したがって、本発明のコンデンサフィルム及び/又はフィルムのポリプロピレンは、(a) 7.19 nmの厚さを有する、少なくとも20 wt%、より好ましくは少なくとも30 wt%、さらにより好ましくは少なくとも35 wt%、さらにより好ましくは少なくとも40 wt%、またさらにより好ましくは少なくとも45 wt%、最も好ましくは少なくとも50 wt%のラメラ画分を含み、

(b) 7.19 nmの厚さを有する前記ラメラ画分が、5.55 nm~7.19 nmの範囲の、少なくとも12 wt%、より好ましくは少なくとも20 wt%、さらにより好ましくは少なくとも25 wt%のラメラ画分を含み、かつ/又は

(c) 4.52 nm~5.55 nmの範囲の、少なくとも5 wt%、より好ましくは少なくとも7 wt%、さらにより好ましくは少なくとも10 wt%のラメラ画分を含むことが好ましい。

【0021】

ラメラの厚さ分布の決定方法は、例の部分で詳説される。重量パーセンテージは、S I S Tによって測定されるコンデンサフィルム及び/又はポリプロピレンの総量に対するものである。

【0022】

分子量分布（MWD）は、重量平均分子量（ M_w ）及び数平均分子量（ M_n ）の比として表される。数平均分子量（ M_n ）は、分子量に対して、各分子量範囲における分子数のプロットの第1モーメントとして表される、ポリマーの平均分子量である。実際これは、全分子の総分子量を分子数で割ったものである。同様に、重量平均分子量（ M_w ）は、分子量に対する、各分子量範囲におけるポリマーの重量のプロットの第1モーメントである。

【0023】

数平均分子量（ M_n ）及び重量平均分子量（ M_w ）、並びに分子量分布（MWD）は、オンライン粘度計を備えたWaters Alliance GPCV2000装置を使用して、サイズ排除クロマトグラフィー（SEC）によって決定される。オープンの温度は140である。溶媒としてトリクロロベンゼンを使用する（ISO16014）。

10

20

30

40

50

【0024】

本発明のコンデンサフィルムは、10,000~2,000,000 g/mol、より好ましくは20,000~1,500,000 g/molの重量平均分子量(M_w)を有するポリプロピレンを含むことが好ましい。

【0025】

ポリプロピレンの数平均分子量(M_n)は、好ましくは5,000~750,000 g/mol、より好ましくは10,000~750,000 g/molの範囲である。

【0026】

広い分子量分布(MWD)によって、ポリプロピレンの加工性が改善されるため、分子量分布(MWD)は、好ましくは最大20.00、より好ましくは最大10.00、さらにより好ましくは最大8.00である。しかし、かなり広い分子量分布は、撓みを促進する。したがって一代替態様では、分子量分布(MWD)は、好ましくは1.00と8.00の間、さらにより好ましくは1.00~4.00の範囲、さらにより好ましくは1.00~3.50の範囲である。

10

【0027】

さらに、本発明のフィルムのポリプロピレン成分は、特定範囲において所与の溶融流れ速度(MFR)を有することが好ましい。溶融流れ速度は、主に平均分子量に依存する。これは、長い分子によって、短い分子よりもその材料が流れる傾向が低くなることによる。分子量の増大は、MFR値の減少を意味する。溶融流れ速度(MFR)は、特定の温度及び圧力条件下で、画定されたダイを介して排出されるポリマーの10分当たりのgとして測定され、ポリマーの粘度の大きさは、ポリマーのそれぞれのタイプにつき主にその分子量によって影響されるが、その分岐度によっても影響される。230において2.16 kgの荷重下で測定した溶融流れ速度(ISO1133)は、 MFR_2 と示される。したがって本発明では、コンデンサフィルムは、最大10.00 g/10分、より好ましくは最大6.00 g/10分の MFR_2 を有するポリプロピレンを含むことが好ましい。別の好ましい態様では、ポリプロピレンは、最大4 g/10分の MFR_2 を有する。 MFR_2 の好ましい範囲は、1.00~10.00 g/10分、より好ましくは1.00~8.00 g/10分の範囲、さらにより好ましくは1.00~6.00 g/10分の範囲である。

20

【0028】

架橋は、伸長流れ特性に対して有害な作用を有するため、本発明のポリプロピレンは非架橋であることが好ましい。

30

【0029】

より好ましくは、本発明のフィルムのポリプロピレンは、メソペンタッド(mesopentad)濃度(本明細書では、ペンタッド濃度とも呼ぶ)によって測定される、かなり高い、即ち91%超、より好ましくは93%超、さらにより好ましくは94%超、最も好ましくは95%超のアイソタクチシティを有するものとする。一方ペンタッド濃度は、99.5%を超えないものとする。ペンタッド濃度は、ポリプロピレンの規則性分布における狭さの指標であり、NMR分光法によって測定される。

【0030】

さらに、コンデンサフィルムのポリプロピレンは、148 を超える、より好ましくは150 を超える溶融温度 T_m を有することが好ましい。好ましい一態様では、ポリプロピレン成分の溶融温度 T_m は、148 を超えるが156 未満である。溶融温度 T_m の測定方法は、例の部分で論じる。

40

【0031】

コンデンサフィルムの溶融温度 T_m は、好ましくは少なくとも148 、より好ましくは少なくとも150 である。好ましい一態様では、コンデンサフィルムの溶融温度 T_m は、150 を超えるが160 未満である。

【0032】

さらに、市販の二軸延伸ポリプロピレンフィルムは、4~8、より好ましくは4~6の

50

機械方向の延伸比及び5～10、より好ましくは6～8の横方向の延伸比で延伸するので、機械方向の延伸比4及び横方向の延伸比4ではかなり高い引張弾性率が好ましい。

【0033】

したがって、本発明のフィルムのポリプロピレン成分は、クロスヘッド速度1mm/分(厚さ100 μ m)において、ISO527-3に従って測定して少なくとも800MPaの引張弾性率を有する。より好ましくは、ポリプロピレン成分は、少なくとも850MPa、さらにより好ましくは900MPa、さらにより好ましくは少なくとも1000MPaの引張弾性率を有する。

【0034】

好ましくは、本発明の二軸延伸ポリプロピレンフィルムは、機械方向及び横方向の延伸比4において少なくとも1800MPaの引張弾性率を有し、この引張弾性率は、クロスヘッド速度1mm/分(正確な測定方法は、例の部分で提示される)において、ISO527-3に従って測定される。より好ましくは、ポリプロピレンフィルムは、機械方向及び横方向の延伸比4.0において、少なくとも1900MPa、さらにより好ましくは1950MPa、最も好ましくは少なくとも2200MPaの引張弾性率を有する。

【0035】

好ましい一態様では、フィルムは、152以下の延伸温度、並びに機械方向及び横方向の延伸比4.0において、機械方向で少なくとも2.5MPa及び横方向で少なくとも2.5MPaの引張応力を有する。好ましくは、前述の延伸温度は、フィルムの溶融温度より少なくとも2、より好ましくは少なくとも3低い温度である。

【0036】

さらに、本発明のコンデンサフィルムは、良好な光学特性を有することが好ましい。したがって、コンデンサフィルムは、ASTM D1003-92に従って測定して(正確な測定方法は、例の部分で提示される)、15を超えず、さらにより好ましくは10を超えないヘイズを有することが好ましい。同様に、フィルムの透明性もかなり高いものとする。したがって、コンデンサフィルムはASTM D1003-92に従って測定して少なくとも90%の透明性を有することが好ましい。

【0037】

好ましくは、本発明のフィルムのポリプロピレンは、低レベルの不純物、即ち低レベルのアルミニウム(A1)残渣及び/又は低レベルのケイ素残渣(Si)及び/又は低レベルのホウ素(B)残渣を有する。したがって、ポリプロピレンのアルミニウム残渣は、12.00ppmのレベルに低減することができる。したがって、本発明のフィルムのポリプロピレンのアルミニウム残渣の含量は、好ましくは20ppm未満、より好ましくは18ppm未満、さらにより好ましくは15ppmである。アルミニウム残渣の好ましい範囲は、12～20ppm、より好ましくは12～18ppm、さらにより好ましくは12～15ppmである。前述のように、本発明のフィルムのポリプロピレンは、低い値、即ち40ppm未満、より好ましくは20ppm未満、さらにより好ましくは10ppm未満のケイ素残渣(Si)及び/又はホウ素(B)残渣を含むことができる。したがって、好ましい一態様では、本発明のフィルムは、好ましくはいかなるホウ素及び/又はケイ素残渣も本質的に含まず、即ちその残渣が検出可能なポリプロピレンを含む(残渣含量の分析は、例の部分で規定される)。さらに、本発明のフィルムのポリプロピレンは、チタン及び/又はマグネシウム残渣を含まないことが好ましい。換言すれば、本発明のポリプロピレンは、好ましくはチタン及び/又はマグネシウムを含む触媒系では生成されない。一方、本発明の特性は、残渣の存在によっては有害な影響を受けない。別の好ましい態様では、本発明のフィルムのポリプロピレンは、検出可能な量のホウ素及び/又はケイ素、即ち0.10ppmを超える量のホウ素残渣及び/又はケイ素残渣、さらにより好ましくは0.20ppmを超える量のホウ素残渣及び/又はケイ素残渣、さらにより好ましくは0.50ppmを超える量のホウ素残渣及び/又はケイ素残渣を含む。さらに別の好ましい態様では、本発明のフィルムのポリプロピレン成分は、12.00ppmを超える量、さらにより好ましくは20.00ppmを超える量、さらにより好ましくは25.00p

10

20

30

40

50

ppmを超える量のAl残渣を含む。さらに別の好ましい態様では、本発明のフィルムのポリプロピレン成分は、検出可能な量のホウ素及び/又はケイ素、即ち0.20ppmを超える量のホウ素残渣及び/又はケイ素残渣、並びに12.00ppmを超える量、さらにより好ましくは20.00ppmを超える量、さらにより好ましくは25.00ppmを超える量のアルミニウム残渣を含む。

【0038】

さらに好ましくは、本発明のコンデンサフィルムは、低レベルの不純物、即ち低レベルのアルミニウム(A1)残渣及び/又は低レベルのケイ素残渣(Si)及び/又は低レベルのホウ素(B)残渣を有する。したがって、フィルムのアルミニウム残渣は、12.00ppmのレベルに低減することができる。したがって、本発明のフィルムのアルミニウム残渣含量は、好ましくは20ppm未満、より好ましくは18ppm未満、さらにより好ましくは15ppmである。アルミニウム残渣の好ましい範囲は、12~20ppm、より好ましくは12~18ppm、さらにより好ましくは12~15ppmである。前述のように、本発明のフィルムは、低い値、即ち40ppm未満、より好ましくは20ppm未満、さらにより好ましくは10ppm未満のケイ素残渣(Si)及び/又はホウ素(B)残渣を含むことができる。したがって、好ましい一態様では、本発明のフィルムは、好ましくはいかなるホウ素及び/又はケイ素残渣も本質的に含まず、即ちその残渣が検出不可能である(残渣含量の分析は、例の部分で規定される)。

【0039】

さらに、本発明のフィルムは、チタン及び/又はマグネシウム残渣を含まないことが好ましい。換言すれば、本発明のポリプロピレンは、好ましくはチタン及び/又はマグネシウムを含む触媒系では生成されない。一方、本発明の特性は、残渣の存在によっては有害な影響を受けない。したがって、好ましい一態様では、本発明のフィルムは、好ましくはいかなるホウ素及び/又はケイ素残渣も本質的に含まず、即ちその残渣が検出不可能である(残渣含量の分析は、例の部分で規定される)。別の好ましい態様では、本発明のフィルムは、検出可能な量のホウ素及び/又はケイ素、即ち0.10ppmを超える量のホウ素残渣及び/又はケイ素残渣、さらにより好ましくは0.20ppmを超える量のホウ素残渣及び/又はケイ素残渣、さらにより好ましくは0.50ppmを超える量のホウ素残渣及び/又はケイ素残渣を含む。さらに別の好ましい態様では、本発明のフィルムは、12.00ppmを超える量、さらにより好ましくは20.00ppmを超える量、さらにより好ましくは25.00ppmを超える量のAl残渣を含む。さらに別の好ましい態様では、本発明のフィルムは、検出可能な量のホウ素及び/又はケイ素、即ち0.20ppmを超える量のホウ素残渣及び/又はケイ素残渣、並びに12.00ppmを超える量、さらにより好ましくは20.00ppmを超える量、さらにより好ましくは25.00ppmを超える量のアルミニウム残渣を含む。

【0040】

好ましい一態様では、先に規定(及び以下にさらに規定)のポリプロピレンは、好ましくは単峰性である。別の好ましい態様では、先に規定(及び以下にさらに規定)のポリプロピレンは、好ましくは多峰性、より好ましくは二峰性である。

【0041】

「多峰性」又は「多峰性分布」とは、幾つかの極大を有する(ただ1つの最大を有する単峰性に対して)度数分布を説明するものである。特に、「ポリマーのモダリティ」という表現は、その分子量分布(MWD)曲線の形態、即ちその分子量の関数としてのポリマー重量画分のグラフの外観を指す。ポリマーが逐次段階法で生成される場合、即ち連続して結合した反応器を使用し、各反応器において異なる条件を使用する場合、異なる反応器で生成される異なるポリマー画分は、それぞれそれら自体の分子量分布を有し、その分布は互いに大幅に異なってもよい。得られる最終ポリマーの分子量分布曲線は、ポリマー画分の各分子量分布曲線の重ね合わせに見ることができ、したがってこれはより明確な最大値を示し、又は少なくとも個々の画分についての曲線と比較して独特の広さをもつことになる。

【0042】

かかる分子量分布曲線を示すポリマーは、それぞれ二峰性又は多峰性と呼ばれる。

【0043】

コンデンサフィルムのポリプロピレンが単峰性ではない場合、それは好ましくは二峰性である。

【0044】

本発明のフィルムのポリプロピレンは、ホモポリマー又はコポリマーであってよい。ポリプロピレンが単峰性である場合、ポリプロピレンは、好ましくはポリプロピレンホモポリマーである。同様に、ポリプロピレンが多峰性、より好ましくは二峰性である場合、ポリプロピレンは、ポリプロピレンホモポリマー並びにポリプロピレンコポリマーであってよい。しかし、ポリプロピレンが多峰性、より好ましくは二峰性である場合、ポリプロピレンはポリプロピレンホモポリマーであることが特に好ましい。さらに、多峰性ポリプロピレンの画分の少なくとも1つは、本発明のポリプロピレン、より好ましくは本発明のポリプロピレンホモポリマーであることが好ましい。

10

【0045】

本発明のコンデンサフィルムのポリプロピレンは、最も好ましくは単峰性ポリプロピレンホモポリマーである。

【0046】

本発明で使用されるポリプロピレンホモポリマーという表現は、著しい、即ち少なくとも97wt%、好ましくは少なくとも99wt%、最も好ましくは少なくとも99.8wt%のプロピレン単位からなるポリプロピレンを指す。好ましい一態様では、ポリプロピレンホモポリマーのプロピレン単位のみが検出可能である。モノマー含量は、FT赤外線分光法で測定することができる。さらなる詳細は、下記の例で示される。

20

【0047】

さらに、本発明のポリプロピレンは、6個以上の炭素原子を有する三分岐の - オレフィン及び/又は6個以上の炭素原子を有するビニルシクロアルカンに由来する単位を含まないことが好ましい。さらにより好ましくは、本発明のフィルムは、即ち6個以上の炭素原子を有する三分岐の - オレフィン及び/又は6個以上の炭素原子を有するビニルシクロアルカンに由来する単位を含まないプロピレンホモポリマーを含む。プロピレンコポリマーが使用される場合、コポリマーは、6個以上の炭素原子を有する三分岐の - オレフィン及び/又は6個以上の炭素原子を有するビニルシクロアルカンに由来する単位を含まないことが好ましい。

30

【0048】

本発明のフィルムのポリプロピレンが多峰性又は二峰性ポリプロピレンコポリマーである場合、モノマーはエチレンであることが好ましい。しかし、当技術分野で公知の他のモノマーも適している。好ましくは、プロピレンコポリマーにおけるモノマー、より好ましくはエチレンの総量は、最大30wt%、より好ましくは最大25wt%である。

【0049】

好ましい一態様では、多峰性又は二峰性ポリプロピレンコポリマーは、先に規定のポリプロピレン及びエチレン - プロピレンゴム (EPR) であるポリプロピレンホモポリマーマトリックスを含むポリプロピレンコポリマーである。

40

【0050】

ポリプロピレンホモポリマーマトリックスは、単峰性又は多峰性、即ち二峰性であってよい。しかし、ポリプロピレンホモポリマーマトリックスは単峰性であることが好ましい。

【0051】

好ましくは、全ての多峰性又は二峰性ポリプロピレンコポリマーにおけるエチレン - プロピレンゴム (EPR) は、最大50wt%である。より好ましくは、全ての多峰性又は二峰性ポリプロピレンコポリマーにおけるエチレン - プロピレンゴム (EPR) の量は、10~40wt%の範囲、さらにより好ましくは10~30wt%の範囲である。

50

【0052】

さらに、多峰性又は二峰性ポリプロピレンコポリマーは、先に規定のポリプロピレン及びエチレン-プロピレンゴム(EPR)である、エチレン含量が最大50wt%のポリプロピレンホモポリマーマトリックスを含むことが好ましい。

【0053】

さらに、先に規定のポリプロピレンは、以下に規定の触媒の存在下で生成されることが好ましい。さらに、先に規定のポリプロピレンの生成には、好ましくは以下に記載の方法が使用される。

【0054】

さらに、上記において規定され、かつさらに規定されるコンデンサフィルムとして好ましいのは、本願において特許請求の範囲から除かれている下記の2つの態様である。

(A) 二軸延伸ポリプロピレンを含むコンデンサフィルム。

a) 前記ポリプロピレンは、機械方向及び横方向の延伸比4を有し、

b) 前記ポリプロピレン及び/又は前記コンデンサフィルムは、IEC60243-part1(1988)に従って、機械方向及び横方向の延伸比4において291kV/mm又は388kV/mmの絶縁破壊強度EB63%を有する。

(B) 二軸延伸ポリプロピレンを含むコンデンサフィルム。

a) 前記ポリプロピレンは、機械方向及び横方向の延伸比5を有し、

b) 前記ポリプロピレン及び/又は前記コンデンサフィルムは、IEC60243-part1(1988)に従って、機械方向及び横方向の延伸比5において638kV/mmの絶縁破壊強度EB63%を有する。

【0055】

本発明のコンデンサフィルムのポリプロピレンは、特に新しい触媒系によって得られた。この新しい触媒系は、対称触媒を含み、それによって該触媒系は、1.40ml/g未満、より好ましくは1.30ml/g未満、最も好ましくは1.00ml/g未満の多孔率を有する。多孔率は、DIN66135(N₂)に従って測定した。別の好ましい態様では、DIN66135(N₂)に従って適用した方法で決定する場合、多孔率は検出不可可能である。

【0056】

本発明の対称触媒は、C₂対称を有するメタロセン化合物である。好ましくは、C₂対称メタロセンは、2つの同一の有機配位子を含み、さらにより好ましくは同一の2つの有機配位子のみを含み、さらにより好ましくは同一であり架橋を介して結合している2つの有機配位子のみを含む。

【0057】

本発明のメタロセン化合物のラセミ：メソ比は、少なくとも20:1、即ち95%がラセミであることが好ましい。

【0058】

前記対称触媒は、好ましくはシングルサイト触媒(SSC)である。

【0059】

対称触媒を含む非常に低い多孔率の触媒系の使用により、先に規定の単鎖分岐ポリプロピレンの製造が可能となる。

【0060】

さらに該触媒系は、25m²/g未満、さらにより好ましくは20m²/g未満、さらにより好ましくは15m²/g未満、またさらには10m²/g未満、最も好ましくは5m²/g未満の表面積を有することが好ましい。本発明の表面積は、ISO9277(N₂)に従って測定される。

【0061】

本発明の触媒系は、対称触媒、即ち先に規定され、以下さらに詳細に規定される触媒を含み、DIN66135(N₂)に従う方法を適用した場合に検出不可可能な多孔率を有し、ISO9277(N₂)に従って5m²/g未満と測定される表面積を有することが

10

20

30

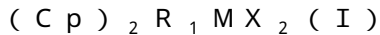
40

50

特に好ましい。

【0062】

好ましくは、対称触媒化合物、即ちC₂対称メタロセンは、式(I)を有する。



式中、

Mは、Zr、Hf又はTi、より好ましくはZrであり、

Xは、独立に、 σ -配位子などの一価のアニオン性配位子であり、

Rは、2つのC_p配位子を結合する架橋基であり、

C_pは、非置換シクロペンタジエニル、非置換インデニル、非置換テトラヒドロインデニル、非置換フルオレニル、置換シクロペンタジエニル、置換インデニル、置換テトラヒド

10

ロインデニル及び置換フルオレニルからなる群から選択される有機配位子であり、
但し、両方のC_p配位子は、上記の基から選択され、両方のC_p配位子は、化学的に同じ、即ち同一である。

【0063】

「 σ -配位子」という用語は、公知のように全ての説明において理解されており、即ちシグマ結合を介して1つ又は複数の場所で金属と結合している基である。好ましい一価のアニオン性配位子は、ハロゲン、特に塩素(Cl)である。

【0064】

好ましくは、対称触媒は、先に示す式(I)の触媒であり、

式中、

20

MはZrであり、

各XはClである。

【0065】

好ましくは、両方の同一のC_p配位子は置換されている。

【0066】

シクロペンタジエニル、インデニル、テトラヒドロインデニル又はフルオレニルに結合している任意選択の1つ又は複数の置換基は、ハロゲン、ヒドロカルビル(例えば、C₁~C₂₀-アルキル、C₂~C₂₀-アルケニル、C₂~C₂₀-アルキニル、C₃~C₁₂-シクロアルキル、C₆~C₂₀-アリール又はC₇~C₂₀-アリールアルキル)、環部分に1、2、3又は4個のヘテロ原子を含有するC₃~C₁₂-シクロアルキル、C₆~C₂₀-ヘテロアリール、C₁~C₂₀-ハロアルキル、-SiR'₃、-OSiR'₃、-SR'、-PR'₂及び-NR'₂を含む基から選択することができ、各R'は独立に、水素又はヒドロカルビル、例えばC₁~C₂₀-アルキル、C₂~C₂₀-アルケニル、C₂~C₂₀-アルキニル、C₃~C₁₂-シクロアルキル又はC₆~C₂₀-アリールである。

30

【0067】

より好ましくは、両方の同一のC_p配位子は、各インデニル部分が先に規定の1個又は2個の置換基を担持しているインデニル部分である。より好ましくは、同一のC_p配位子のそれぞれは、先に規定の2個の置換基を担持しているインデニル部分であり、但し該置換基は、両方のC_p配位子が同じ化学構造になるように、即ち両方のC_p配位子が、同じインデニル部分に化学的に結合している同じ置換基を有するよう

40

【0068】

さらにより好ましくは、両方の同一のC_p'sは、少なくともインデニル部分の5員環において、より好ましくは2位において、C₁~C₆アルキルなどのアルキル、例えばメチル、エチル、イソプロピル、及びトリアルキルオキシシロキシからなる群から選択される置換基を含むインデニル部分であり、各アルキルは、メチル又はエチルなどのC₁~C₆アルキルから独立に選択され、但し両方のC_pのインデニル部分は同じ化学構造であり、即ち両方のC_p配位子は、同じインデニル部分に化学的に結合している同じ置換基を有する。

【0069】

50

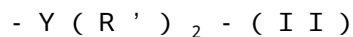
さらにより好ましくは、両方の同一のC_pは、少なくともインデニル部分の6員環において、より好ましくは4位において、C₁~C₆アルキルなどの1個又は複数の置換基で任意選択で置換されているフェニル又はナフチル、好ましくはフェニルなどのC₆~C₂₀芳香環部分及びヘテロ芳香環部分からなる群から選択される置換基を含むインデニル部分であり、但し両方のC_pのインデニル部分は同じ化学構造であり、即ち両方のC_p配位子は、同じインデニル部分に化学的に結合している同じ置換基を有する。

【0070】

さらにより好ましくは、両方の同一のC_pは、少なくともインデニル部分の5員環において、より好ましくは2位において一置換基を含み、インデニル部分の6員環において、より好ましくは4位においてさらなる置換基を含むインデニル部分であり、5員環の置換基は、C₁~C₆アルキルなどのアルキル、例えばメチル、エチル、イソプロピル、及びトリアルキルオキシシロキシからなる群から選択され、6員環のさらなる置換基は、C₁~C₆アルキルなどの1個又は複数の置換基で任意選択で置換されているフェニル又はナフチル、好ましくはフェニルなどのC₆~C₂₀芳香環部分及びヘテロ芳香環部分からなる群から選択され、但し両方のC_p'sのインデニル部分は同じ化学構造であり、即ち両方のC_p配位子は、同じインデニル部分に化学的に結合している同じ置換基を有する。

【0071】

部分「R」に関して、「R」は式(II)を有することが好ましい。



式中、

YはC、Si又はGeであり、

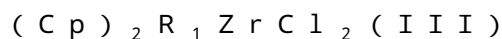
R'は、C₁~C₂₀アルキル、C₆~C₁₂アリーール若しくはC₇~C₁₂アリーールアルキル又はトリメチルシリルである。

【0072】

先に規定の対称触媒の両方のC_p配位子、特に2つのインデニル部分が、架橋員Rで結合している場合、架橋員Rは一般に、1位に位置している。架橋員Rは、例えばC、Si及び/又はGe、好ましくはC及び/又はSiから選択される1つ又は複数の架橋原子を含有することができる。好ましい一架橋Rは、-Si(R')₂-であり、R'は、例えば、トリメチルシリル、C₁~C₁₀アルキル、C₆~C₁₂アリーールなどのC₁~C₂₀アルキル、又はC₇~C₁₂アリーールアルキルなどのC₇~C₄₀の1つ又は複数から独立に選択され、そのままの又はアリーールアルキルの部分としてのアルキルは、好ましくはエチル又はメチル、好ましくはメチルなどのC₁~C₆アルキルであり、アリーールは好ましくはフェニルである。架橋-Si(R')₂-は、好ましくは、例えば-Si(Me)₂-などの-Si(C₁~C₆アルキル)₂-、-Si(フェニル)₂-又は-Si(C₁~C₆アルキル)(フェニル)-である。

【0073】

好ましい一態様では、対称触媒、即ちC₂対称メタロセンは、式(III)によって規定される。



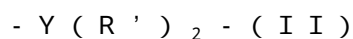
式中、

両方のC_pはMと連結し、非置換シクロペンタジエニル、非置換インデニル、非置換テトラヒドロインデニル、非置換フルオレニル、置換シクロペンタジエニル、置換インデニル、置換テトラヒドロインデニル及び置換フルオレニルからなる群から選択され、

但し両方のC_p配位子は、化学的に同じ、即ち同一であり、

Rは、2つの配位子Lを結合する架橋基であり、

Rは式(II)によって規定され、



式中、

YはC、Si又はGeであり、

R'は、C₁~C₂₀アルキル、C₆~C₁₂アリーール又はC₇~C₁₂アリーールアルキ

10

20

30

40

50

ルである。

【0074】

より好ましくは、対称触媒は、式(III)によって規定され、両方のCpは、置換シクロペンタジエニル、置換インデニル、置換テトラヒドロインデニル及び置換フルオレニルからなる群から選択される。

【0075】

好ましい一態様では、対称触媒は、ジメチルシランジイルビス(2-メチル-4-フェニル-インデニル)二塩化ジルコニウムである。より好ましい前記対称触媒は、ケイ素に担持されていない。

【0076】

上記の対称触媒成分は、WO01/48034に記載の方法に従って調製される。

【0077】

対称触媒は、WO03/051934に記載のエマルジョン凝固技術によって得られることが特に好ましい。この文書は、その全体が参照によって本明細書に含まれる。したがって対称触媒は、好ましくは、

- a) 1つ又は複数の対称触媒成分の溶液を調製するステップ、
 - b) 前記溶液を、それと混和しない溶媒に分散させて、前記1つ又は複数の触媒成分が分散相の液滴として存在するエマルジョンを生成するステップ、
 - c) 前記分散相を固化して、前記液滴を固体粒子に変換し、任意選択で前記粒子を回収して前記触媒を得るステップ、
- を含む方法によって得られる固体触媒粒子の形態である。

【0078】

好ましくは溶媒、より好ましくは有機溶媒を使用して、前記溶液を生成する。さらにより好ましくは、有機溶媒は、直鎖アルカン、環式アルカン、直鎖アルケン、環式アルケン、芳香族炭化水素及びハロゲン含有炭化水素からなる群から選択される。

【0079】

さらに、連続相を形成する非混和性溶媒は不活性溶媒であり、より好ましくは、非混和性溶媒はフッ素化有機溶媒及び/又はその官能性誘導体を含み、さらにより好ましくは、非混和性溶媒はセミフルオロ、高度フルオロ又はペルフルオロ炭化水素及び/又はその官能性誘導体を含む。前記非混和性溶媒は、ペルフルオロ炭化水素又はその官能性誘導体、好ましくはC₃~C₃₀ペルフルオロアルカン、-アルケン若しくは-シクロアルカン、より好ましくはC₄~C₁₀ペルフルオロ-アルカン、-アルケン若しくは-シクロアルカン、特に好ましくはペルフルオロヘキサン、ペルフルオロヘプタン、ペルフルオロオクタン又はペルフルオロ(メチルシクロヘキサン)又はそれらの混合物を含むことが特に好ましい。

【0080】

さらに、前記連続相及び前記分散相を含むエマルジョンは、当技術分野で公知のように、二相又は多相系であることが好ましい。乳化剤を使用してエマルジョンを生成することができる。前記触媒は、エマルジョン系の生成後、前記溶液の触媒成分から*in situ*生成される。

【0081】

原則として、乳化剤は、エマルジョンの生成及び/又は安定化に寄与し、触媒の触媒活性にいかなる悪影響も及ぼさない任意の適切な薬剤であってよい。乳化剤は、例えば当技術分野で公知の、ヘテロ原子(複数可)で任意選択で遮断されている炭化水素、好ましくは任意選択で官能基を有するハロゲン化炭化水素、好ましくはセミフルオロ、高度フルオロ又はペルフルオロ炭化水素をベースとする界面活性剤であってよい。或いは、乳化剤は、エマルジョン調製中に、例えば界面活性剤前駆体を、触媒溶液の化合物と反応させることによって調製することができる。前記界面活性剤前駆体は、少なくとも1つの官能基を有するハロゲン化炭化水素、例えばアルミノキサンなどの共触媒成分と反応する高度フルオロ化C₁~C₃₀アルコールであってよい。

10

20

30

40

50

【0082】

原則として、分散した液滴から固体粒子を生成するために、任意の固化方法を使用することができる。好ましい一態様によれば、固化は温度変化処理によって行われる。したがってエマルジョンは、最高10 /分、好ましくは0.5~6 /分、より好ましくは1~5 /分の段階的溫度変化に付される。さらにより好ましくは、エマルジョンは、10秒未満、好ましくは6秒未満以内に40 を超え、好ましくは50 を超える溫度変化に付される。

【0083】

回収した粒子は、好ましくは5~200 μm、より好ましくは10~100 μmの平均粒径範囲を有する。

10

【0084】

さらに固化粒子の形態は、好ましくは球形、所定の粒径分布、及び好ましくは25 m²/g未満、さらにより好ましくは20 m²/g未満、さらにより好ましくは15 m²/g未満、またさらにより好ましくは10 m²/g未満、最も好ましくは5 m²/g未満の前述の表面積を有し、前記粒子は、上記の方法によって得られる。

【0085】

連続した分散相系、エマルジョン生成法、乳化剤及び固化法のさらなる詳細、態様及び例については、例えば先に引用した国際特許出願WO03/051934を参照されたい。

【0086】

上記の対称触媒成分は、WO01/48034に記載の方法に従って調製される。

20

【0087】

前述のように、触媒系はさらに、参照によって本明細書に包含されるWO03/051934に記載のように、共触媒として活性剤を含むことができる。

【0088】

望ましい場合、メタロセン及び非メタロセンの共触媒として好ましいのは、アルミノキサン、特にC₁~C₁₀-アルキルアルミノキサン、最も具体的にはメチルアルミノキサン(MAO)である。かかるアルミノキサンは、単独の共触媒として又は他の共触媒(複数可)と一緒に使用することができる。したがって、アルミノキサンの他に又はそれに加えて、他のカチオン錯体生成触媒を活性剤として使用することができる。前記活性剤は、市販で利用可能であり、又は従来技術分野の文献に従って調製することができる。

30

【0089】

さらなるアルミノキサン共触媒は、とりわけ、参照によって本明細書に組み込まれるWO94/28034に記載されている。これらは最大40、好ましくは3~20個の-(Al(R'''))₃O)-反復単位(R''''は、水素、C₁~C₁₀アルキル(好ましくはメチル)若しくはC₆~C₁₈-アリール又はそれらの混合物)を有する直鎖又は環式オリゴマーである。

【0090】

かかる活性剤の使用及び量は、当業者には理解される。一例として、ホウ素活性剤では、5:1~1:5、好ましくは2:1~1:2、1:1などの、遷移金属対ホウ素活性剤の比を使用することができる。メチルアルミニウムオキサン(MAO)などの好ましいアルミノキサンの場合、アルミノキサンによって提供されるAlの量は、例えば1~10000、適切には5~8000、好ましくは10~7000、例えば100~4000、1000~3000などの範囲のAl:遷移金属のモル比を提供するように選択することができる。一般に、固体(不均一)触媒の場合、その比は好ましくは500未満である。

40

【0091】

したがって、本発明の触媒に使用される共触媒の量は可変であり、当業者に周知の方法で選択される条件及び特定の遷移金属化合物に依存して決まる。

【0092】

有機遷移化合物を含む溶液に含有される任意の追加成分は、前記溶液に、分散ステップ

50

の前或いはその後に添加することができる。

【0093】

さらに本発明は、先に規定の触媒系を、本発明のポリプロピレンの生成に使用することに関する。

【0094】

さらに本発明は、先に規定の触媒系が使用される、ポリプロピレンを含む本発明のコンデンサフィルムの生成方法に関する。さらに、該方法の温度は60 を超えることが好ましい。好ましくは、該方法は、先に規定の多峰性ポリプロピレンを得るための多段階法である。

【0095】

多段階法は、多峰性プロピレンポリマーを生成するためのマルチゾーン気相反応器として公知のバルク/気相反応器も含む。

【0096】

好ましい多段階法は、例えば、EP 0 887 379又はWO92/12182などの特許文書に記載の、Borealis A/S、デンマークによって開発されたものなどの「ループ(loop)気相」法(BORSTAR(登録商標)技術として公知)である。

【0097】

多峰性ポリマーは、例えばWO92/12182、EP 0 887 379及びWO97/22633に記載の幾つかの方法に従って生成することができる。

【0098】

本発明の多峰性ポリプロピレンは、好ましくはWO92/12182に記載のように多段階法において多段階反応順序で生成される。この文書内容は、参照によって本明細書に含まれる。

【0099】

連続して結合した2つ以上の反応器内で、即ち異なるステップ(a)及び(b)で、多峰性、特に二峰性のポリプロピレンを生成することが既に知られている。

【0100】

本発明によれば、主な重合段階は、好ましくはバルク重合/気相重合の組合せとして実施される。

【0101】

バルク重合は、好ましくはいわゆるループ反応器内で実施される。

【0102】

本発明の多峰性ポリプロピレンを生成するために、柔軟な態様が好ましい。したがって生成物は、2つの主な重合段階において、ループ反応器/気相反応器の組合せで生成されることが好ましい。

【0103】

任意選択でかつ好ましくは、該方法は、当分野で公知のように、重合ステップ(a)より先に行うことができるプレポリマー化ステップを含むこともできる。

【0104】

望ましい場合、本発明においては、さらなるエラストマー用モノマー成分、いわゆるエチレン-プロピレンゴム(EPR)成分を、得られたポリプロピレンホモポリマーマトリックスに組み込んで、先に規定のプロピレンコポリマーを生成することができる。エチレン-プロピレンゴム(EPR)成分は、好ましくは気相重合ステップ(b)の後、それに続く第2の又はさらなる気相重合において、1つ又は複数の気相反応器を使用して生成することができる。

【0105】

該方法は、好ましくは連続法である。

【0106】

好ましくは先に規定のプロピレンポリマーの生成方法において、ステップ(a)のバル

10

20

30

40

50

ク反応条件は、以下の通りになり得る。

- 温度は、40 ~ 110、好ましくは60 及び100 の間、70 ~ 90 の範囲内であり、
- 圧力は、20 パール ~ 80 パール、好ましくは30 パール ~ 60 パールの範囲内であり、
- モル質量を制御するために、それ自体公知の方法で水素を添加することができる。

【0107】

その後、バルク（バルク）反応器（ステップ a）からの反応混合物を、気相反応器、即ちステップ（b）に移し、ステップ（b）の条件は、好ましくは以下の通りになる。

- 温度は、50 ~ 130、好ましくは60 及び100 の間の範囲内であり、
- 圧力は、5 パール ~ 50 パール、好ましくは15 パール ~ 35 パールの間の範囲内であり、
- モル質量を制御するために、それ自体公知の方法で水素を添加することができる。

【0108】

滞留時間は、両方の反応器領域で変わり得る。プロピレンポリマーの生成方法の一態様では、バルク反応器内、例えばループ内の滞留時間は、0.5 ~ 5 時間、例えば0.5 ~ 2 時間の範囲内であり、気相反応器内の滞留時間は、一般に1 ~ 8 時間となる。

【0109】

望ましい場合には、重合は、バルク内、好ましくはループ反応器内の超臨界条件下で、及び/又は気相反応器内で凝縮モードとして、公知のように行うことができる。

【0110】

本発明又は先のその任意の態様の方法は、本発明の範囲内のプロピレンポリマー組成物を生成し、それをさらに調整するための高度に実行可能な手段を可能にし、例えばポリマー組成物の特性は、公知のように、例えば以下のプロセスパラメータ、例えば気相反応器内の温度、水素供給量、モノマー供給量、プロピレン供給量、触媒、外部ドナー（donor）の種類及び量（使用する場合）、諸成分の分割（split）の1つ又は複数を用いて調節又は制御することができる。

【0111】

先の方法は、反応器で製造される先に規定のポリプロピレンを得るための非常に実現可能な手段を可能にする。

【0112】

コンデンサフィルムは、当技術分野で公知の従来の延伸方法によって調製することができる。したがって、本発明のコンデンサフィルムの製造方法は、本明細書に規定のポリプロピレンの使用、及び好ましくは当技術分野で公知のテンター法によってそれをフィルムに生成することを含む。

【0113】

テンター法は特に、先に規定のポリプロピレンを、T-ダイなどのスリットダイから熔融押し出し、冷却ドラムで冷却して未延伸シートを得る方法である。前記シートを、例えば加熱した金属ロールを用いて予熱し、次いで複数のロール間で長さ方向に延伸し（ロール上では周辺速度の差異が作り出される）、次いで両端をグリッパーで掴み、テンターを用いてオープン内でそのシートを横方向に延伸して、二軸延伸フィルムを生成する。長手方向の延伸中の前記延伸シートの温度は、好ましくは本明細書に規定のポリプロピレンの融点の温度範囲内（-15 又は+5）となるように制御される。横延伸の際のフィルム厚の均一性は、フィルム上の固定領域を、長さ方向に延伸した後にマスキングし、横延伸後に前記マスキングの間隔を測定することにより実際の延伸率を測定する方法によって評価することができる。

【0114】

その後、そのフィルムを、空気、窒素、二酸化炭素ガス又はそれらの混合物のいずれかにおいて、金属化される表面上にコロナ放電することによって処理して、蒸着する金属に対する接着強度を改善し、巻取り機によって巻き取ることができる。

【0115】

得られたフィルムは、真空金属化装置内に置くことができ、好ましくはグラビアコーター等を使用して、フィルムを油で被覆して、当該の目的に適した絶縁溝を形成する。次いで、当該の目的に適した金属を蒸着して、所定の層耐性を達成する。さらに、必要に応じて、蒸着予防用の櫛型の板を介して金属化を実施して、フィルムの横方向の抵抗値を連続的に変化させる。金属化フィルムを細長く切って、コンデンサ装置を製造するための一対として、2つの金属化リールを製造する。次いで、それらのリールを巻き取って装置を形成し、その装置を、熱加圧によって平坦になるように形成し、その後端部を金属噴霧し、リードを接着し、必要に応じて絶縁油を含浸させ、包装してコンデンサを製造する。さらに本発明は、本明細書に規定のコンデンサフィルムをコンデンサに使用することを対象とする。

10

【0116】

さらに本発明は、本明細書に規定のコンデンサフィルムを含む少なくとも1つの層を含むコンデンサを対象とする。さらにコンデンサは、金属層、特に上記の方法によって得られた金属層を含むことが好ましい。ここに、本発明を以下の例によってさらに詳説する。

【0117】

例

1. 規定 / 測定方法

別段規定されない限り、以下の用語の規定及び決定方法を、本発明の先の一般説明並びに以下の例に適用する。

20

【0118】

A. ペンタッド濃度

本明細書ではペンタッド濃度分析とも呼ばれるメソペンタッド (meso pentad) 濃度分析のために、T Hayashi、Pentad concentration、R. Chujō及びT. Asakura、Polymer 29 138~43 (1988年)並びにChujō Rら、Polymer 35 339 (1994年)に従って、割当て (assignment) 分析を行う。

【0119】

B. 元素分析

ポリマー内の主に触媒由来の元素残渣、特にAl、B及びSi残渣の含量を決定するために、以下に記載の元素分析を使用する。前記Al、B及びSi残渣は、任意の形態、例えば元素又はイオン形態であってよく、それらは以下に記載のICP法を使用してポリプロピレンから回収かつ検出することができる。該方法は、ポリマーのTi含量を決定するために使用することもできる。類似の結果をもたらす他の公知の方法も使用できることが理解されよう。

30

【0120】

ICP分光法 (誘導結合プラズマ発光)

ICP装置: Al、B及びSi含量を決定するための装置は、装置のソフトウェアを備えたICP Optima 2000DV、PSN620785 (供給者Perkin Elmer Instruments、ベルギー)とする。

40

【0121】

検出限界は0.10 ppm (Al)、0.10 ppm (B)、0.10 ppm (Si)である。

【0122】

最初にポリマーサンプルを公知のように洗浄し、次いで適切な酸性溶媒に溶解した。校正曲線の標準の希釈物を、サンプルと同じ溶媒に溶解し、したがってサンプルの濃度が標準校正曲線の範囲内に含まれるように、濃度を選択した。

【0123】

ppm: 重量100万部当たりの部数を意味する。

【0124】

50

灰分：灰分は、ISO 3451-1 (1997) 標準に従って測定する。

【0125】

算出灰分、Al、Si及びB含量：

灰分及び先に列挙した元素Al及び/又はSi及び/又はBは、例で例示されるように、触媒の重合活性をベースとしてポリプロピレンから算出することもできる。これらの値は、触媒に由来する前記残渣の存在の上限を示すことになる。

【0126】

したがって、触媒残渣の推定値は、触媒の組成及び重合生産率をベースとし、ポリマーの触媒残渣は、

$$\text{全触媒残渣 [ppm]} = 1 / \text{生産率 [kg}_{\text{pp}} / \text{g}_{\text{触媒}}] \times 100 \quad 10$$

$$\text{Al残渣 [ppm]} = W_{\text{Al、触媒}} [\%] \times \text{全触媒残渣 [ppm]} / 100$$

$$\text{Zr残渣 [ppm]} = W_{\text{Zr、触媒}} [\%] \times \text{全触媒残渣 [ppm]} / 100 \quad (\text{B、Cl及びSi残渣についても類似の計算を適用する})$$

に従って推定することができる。

【0127】

塩素残渣含量：X線蛍光(XRF)分光法を使用して、公知の方法でCl残渣の含量をサンプルから測定する。装置は、X線蛍光分析 Philips PW2400、PSN 620487 (供給者：Philips、ベルギー) ソフトフェア X47であった。Clの検出限界は1ppmである。

【0128】

C. 粒径分布

粒径分布は、媒体としてn-ヘプタンを用いて、コールターカウンターLS200によって室温で測定する。

【0129】

D. NMR

NMR分光測定：

ポリプロピレンの ^{13}C -NMRスペクトルを、Bruker 400MHz分光計で、1,2,4-トリクロロベンゼン/ベンゼン-d₆(90/10w/w)に溶解したサンプルから130において記録した。ペンタッド分析について、文献に記載の方法に従って割当てを行う(T. Hayashi、Y. Inoue、R. Chujo、及びT. Asakura、Polymer 29 138-43 (1988年)並びにChujo Rら、Polymer 35 339 (1994年))。

【0130】

当技術分野で周知の方法でmmmmペンタッド濃度を決定するために、NMR測定を使用した。

【0131】

E. M_n 、 M_w 、MWD

数平均分子量(M_n)、重量平均分子量(M_w)及び分子量分布(MWD)は、オンライン粘度計を備えたWaters Alliance GPCV 2000装置を使用して、サイズ排除クロマトグラフィー(SEC)によって決定する。オープンの温度は140とする。溶媒としてトリクロロベンゼンを使用する(ISO 16014)。

【0132】

F. キシレン可溶物(XS)

キシレン可溶物(XS、wt%)：公知の方法に従う分析：ポリマー2.0gを、135において攪拌下でp-キシレン250mlに溶解する。30±2分後、その溶液を周囲温度に15分間静置して冷却し、次いで25±0.5において30分間安定させる。溶液を濾過し、窒素流内で蒸発させ、一定の重量に達するまで残渣を90で真空乾燥させる。

【0133】

$$\text{XS}\% = (100 \times m_1 \times v_0) / (m_0 \times v_1)、\text{ここで}$$

10

20

30

40

50

m_0 = 最初のポリマーの量 (g)
 m_1 = 残渣の重量 (g)
 v_0 = 最初の体積 (ml)
 v_1 = 分析されるサンプルの体積 (ml)

【0134】

G. 溶融温度

溶融温度 T_m 、結晶化温度 T_c 、及び結晶化度：サンプル 5 ~ 10 mg で Mettler TA 820 示差走査熱量測定 (DSC) を用いて測定した。結晶化曲線及び溶融曲線の両方を、30 及び 225 の間での 10 / 分の冷却及び加熱走査中に得た。溶融及び結晶化温度を、吸熱及び発熱ピークとして記録した。溶融及び結晶化エンタルピー (H_m 及び H_c) も、ISO 11357-3 に従って DSC 法によって測定した。

10

【0135】

H. 溶融流れ速度

【0136】

I. MFR₂ : ISO 1133 に従って測定した (230、荷重 2.16 kg)。

【0137】

J. コモノマー含量

コモノマー含量を、校正したフーリエ変換赤外分光 (FTIR) で、¹³C-NMR によって測定する。ポリプロピレン中のエチレン含量を測定する場合、サンプルの薄フィルム (厚さ約 250 μm) を、加熱プレスによって調製した。-CH₂-吸収ピークの領域 (800 ~ 650 cm⁻¹) を、Perkin Elmer FTIR 1600 分光計を用いて測定した。この方法を、¹³C-NMR により測定したエチレン含量のデータによって校正した。

20

【0138】

K. 剛性

剛性フィルム TD (横方向)、剛性フィルム MD (機械方向)、破断伸び TD 及び破断伸び MD : これらは、ISO 527-3 に従って決定する (クロスヘッド速度 : 1 mm / 分)。キャストフィルムは 100 μm の厚さを有する一方、延伸フィルムの厚さを表 3 及び 4 に示す。

【0139】

30

L. ヘイズ及び透明性 :

ヘイズ及び透明性を決定する。ASTM D 1003-92 (厚さ 100 μm)。

【0140】

M. 固有粘度

固有粘度を、DIN ISO 1628 / 1、1999年10月 (135 のデカリン中) に従って測定する。

【0141】

N. 多孔率

多孔率を DIN 66135 に従って測定する。

【0142】

40

O. 表面積

表面積を ISO 9277 に従って測定する。

【0143】

P. SIST

段階的等温凝離法 (SIST) : SIST 分析のための等温結晶化を、200 及び 105 の間で温度を低下して、Mettler TA 820 DSC 中、サンプル 3 ± 0.5 mg で実施した。

【0144】

(i) サンプルを 225 で 5 分間溶融し、
 (ii) 次に 80 / 分で 145 に冷却し、

50

(i i i) 1 4 5 で 2 時間 保持 し、
 (i v) 次 い で 8 0 / 分 で 1 3 5 に 冷 却 し、
 (v) 1 3 5 で 2 時間 保持 し、
 (v i) 次 い で 8 0 / 分 で 1 2 5 に 冷 却 し、
 (v i i) 1 2 5 で 2 時間 保持 し、
 (v i i i) 次 い で 8 0 / 分 で 1 1 5 に 冷 却 し、
 (i x) 1 1 5 で 2 時間 保持 し、
 (x) 次 い で 8 0 / 分 で 1 0 5 に 冷 却 し、
 (x i) 1 0 5 で 2 時間 保持 する。

【 0 1 4 5 】

最後のステップ後、サンプルを周囲温度に冷却し、加熱速度 1 0 / 分で、最高 2 0 0 に冷却サンプルを加熱することによって、溶融曲線を得た。全ての測定を、窒素雰囲気下で実施した。溶融エンタルピーを温度の関数として記録し、例えば表 6 ~ 8 の E 1 で示すように、温度間隔内で溶融する画分の溶融エンタルピーを測定することによって評価する。

【 0 1 4 6 】

Thomson - Gibbs 等式 (等式 1) に従ってラメラの厚さの分布を算出するために、この方法で結晶化した材料の溶融曲線を使用することができる。

【 数 1 】

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

式中、 $T_0 = 457 \text{ K}$ 、 $H_0 = 184 \times 10^6 \text{ J / m}^3$ 、 $\sigma = 0,049.6 \text{ J / m}^2$ であり、 L はラメラの厚さである。

【 0 1 4 7 】

Q . 絶縁破壊強度 (E B 6 3 %)

標準の I E C 6 0 2 4 3 - p a r t 1 (1 9 8 8) に従う。

【 0 1 4 8 】

該方法には、圧縮成形したブランク上での絶縁材料の絶縁破壊強度を測定する方法が記載されている。

【 0 1 4 9 】

規定

【 数 2 】

$$E_b = \frac{U_b}{d}$$

Eb:

【 0 1 5 0 】

破壊が生じる試験サンプルの電場強度。均質なブランク及びフィルムでは、これは、ブランク / フィルム (d) の厚さで割った絶縁破壊強度、単位 : kV / mm に相当する。

【 0 1 5 1 】

絶縁破壊強度を、I E C 6 0 2 4 3 - 1 (4 . 1 . 2) に記載のように、電極として金属棒を使用して高圧キャビネット内で 5 0 H z において決定する。フィルム / ブランクへの電圧を、破壊が生じるまで 2 kV / s で上昇させる。

【 0 1 5 2 】

3 . 例

本発明の例 1 (E 1)

触媒の調製

前記例で与えられたAl及びZr比 ($Al/Zr = 250$) で、WO₃/O₅1934の例5に記載のように触媒を調製した。

【0153】

触媒の特徴

Al及びZr含量は、前述の方法によってAl₃₆, 27wt%及びZr_{0.42}wt%と分析された。平均粒径(コールターカウンターで分析する)は20μmであり、粒径分布を図3に示す。

【0154】

重合

プロピレン重合のために、5リットルのステンレス鋼の反応器を使用した。液体プロピレン(Borealis重合グレード)1100gを反応器に供給した。トリエチルアルミニウム(100%、Cromptonから購入)0.2mlを捕捉剤として、水素(質6.0、agaから供給)15mmolを連鎖移動剤として供給した。反応温度を30に設定した。触媒29.1mgを窒素過圧で反応器に勢いよく入れた。約14分で、反応器を最大70に加熱した。70で50分間重合を継続し、次いでプロピレンを勢いよく出し、水素5mmolを供給し、(ガス性)プロピレンを供給することによって、反応器圧を20バールに上昇した。重合を気相内で144分間継続し、次いで反応器をフラッシュし、ポリマーを乾燥して秤量した。ポリマーの収量は重量901gであったが、これは触媒1g当たりPP31kgの生産率に等しい。市販の安定剤Irganox B 215(FF)(Ciba)1000ppmを粉末に添加した。その粉末を、Prism TSE16研究室用ニーダーを用いて、250rpmにおいて220~230の温度で溶融混合した。

【0155】

本発明の例2(E2)

I1で使用した触媒を使用した。

【0156】

プロピレン重合のために5リットルのステンレス鋼反応器を使用した。液体プロピレン(Borealis重合グレード)1100gを反応器に供給した。トリエチルアルミニウム(100%、Cromptonから購入)0.5mlを捕捉剤として、水素(質6.0、Agaから供給)50mmolを連鎖移動剤として供給した。反応温度を30に設定した。触媒19.1mgを窒素過圧で反応器に勢いよく入れた。約14分で、反応器を最大70に加熱した。70で40分間重合を継続し、次いでプロピレンを勢いよく出し、(ガス性)プロピレンを供給することによって、反応器圧を20バールに上昇した。重合を気相内で273分間継続し、次いで反応器をフラッシュし、ポリマーを乾燥して秤量した。

【0157】

ポリマーの収量は、重量871gであったが、これは触媒1g当たりPP44kgの生産率に等しい。市販の安定剤Irganox B 215(FF)(Ciba)1000ppmを粉末に添加した。その粉末を、Prism TSE16研究室用ニーダーを用いて、250rpmにおいて220~230の温度で溶融混合した。

【0158】

本発明の例3(E3)

プロピレン重合のために5リットルのステンレス鋼反応器を使用した。液体プロピレン(Borealis重合グレード)1100gを反応器に供給した。トリエチルアルミニウム(100%、Cromptonから購入)0.1mlを捕捉剤として、水素(質6.0、Agaから供給)30mmolを連鎖移動剤として供給した。反応温度を30に設定した。触媒21.8mgを窒素過圧で反応器に勢いよく入れた。約14分で、反応器を最大70に加熱した。70で30分間重合を継続し、次いでプロピレンを勢いよく出し、その後(ガス性)プロピレンを供給することによって、反応器圧を20バールに上昇

10

20

30

40

50

した。重合を気相内で256分間継続し、次いで反応器をフラッシュし、ポリマーを乾燥して秤量した。ポリマーの収量は、重量953gであったが、これは触媒1g当たりPP43.72kgの生産率に等しい。市販の安定剤Irganox B 215 (FF) (Ciba) 1000ppmを粉末に添加した。その粉末を、Prism TSE16研究室用ニーダーを用いて、250rpmにおいて220~230の温度で熔融混合した。

【0159】

比較例1 (CE1)

Borealisの市販のポリプロピレンホモポリマーを使用した。

【0160】

比較例2 (CE2)

Borealisの市販のポリプロピレンホモポリマーを使用した。

【0161】

表1、2及び3に、サンプルCE1、CE2、E1及びE2の特性をまとめる。

【0162】

表1：本発明及び比較例のポリプロピレンの特性

【表1】

	単位	CE 1	CE 2	E 1	E 2	E 3
灰分	ppm	15	13	85	n.a.	74
ラセミ	%			98	98	98
MFR	g/10'	2,1	2,1	2	5,3	1,1
Mw	g/mol	412000	584000	453000	405000	207000
Mw/Mn	-	9,9	8,1	2,8	5,3	4,5
XS	wt%	1,2	3,5	0,85	0,66	0,70
mmmm	-			0,95	0,95	0,95
Tm	°C	162	162	150,6	150,8	150,9
Hm	J/g	107	100	99,5	100,1	98,7
Tc	°C	115	113	111,9	111,2	105,9
Hc	J/g	101	94	74,6	92,8	90,5

【0163】

表2：キャストフィルムの調製及び特徴付け

OCS装置を用いたキャストフィルム、90~110µmの一定の厚さ

【表2】

	単位	CE 1	CE 2	E 1	E 2	E 3
剛性フィルムTD	MPa	960	756	1011	n.a.	710
剛性フィルムMD	MPa	954	752	1059	n.a.	716
破断伸びTD	%	789	792	700	n.a.	601
破断伸びMD	%	733	714	691	n.a.	723
透明性	%	94	94	94	n.a.	94
ヘイズ	%	24,2	19,9	7,8	n.a.	3

【0164】

表 3 : BOPPフィルムの調製及び特徴付け
V T T Tamper e、4 x 4 延伸

【表 3】

コード	単位	CE 1	CE 2	E 1	E 2	E 3	
EB63%	kV/mm	210	224	291	388	431	
90%信頼区間下限:	kV/mm	197	203	267	349	383	
90%信頼区間上限:	kV/mm	223	244	311	425	480	
ベータ:	なし	10,4	6,9	8,3	6,5		10
応力MD4	MPa	4,3	3,8	3,6	2,7	ca. 4	
応力TD4	MPa	3,4	3,1	3,0	2,5	ca. 4	
剛性フィルム 4x4 MD	MPa	3003	3138	2550	2020	2105	
剛性フィルム 4x4 TD	MPa	2943	2691	2824	2554	1835	
破断伸びフィルム 4x4 MD	%	52	53	80	62	72	
破断伸びフィルム 4x4 TD	%	50	60	34	41	54	
Tm 開始フィルム 4x4	°C	141	136	137	n.a.	148	20
Tm フィルム (第1溶融 4x4)	°C	156	158	154	157	158	
Hm フィルム (第1溶融 4x4)	J/g	56	66	70	92	80	
Tc フィルム 4x4	°C	111	112	112	114	108	
Hc フィルム 4x4	J/g	80	78	77	90	96	
Tm フィルム (第2溶融 4x4)	°C	167	165	156	154	153	
Hm フィルム (第2溶融 4x4)	J/g	74	73	69	89	96	
フィルムの厚さ	µm	30	30	30	30	30	30

【 0 1 6 5 】

表 4 : BOPPフィルムの調製及び特徴付け
V T T Tamper e、5 x 5 延伸

【表 4】

コード	単位	E 2	E 3	
EB63%	kV/mm	638	582	
90% 信頼区間下限 :	kV/mm	563	579	
90% 信頼区間上限 :	kV/mm	707	585	
ベータ :	なし	5,6		
応力 MD5	MPa	3,5	ca. 4	10
応力 TD5	MPa	3,4	ca. 4	
剛性フィルム 5x5 MD	MPa	2271	2055	
剛性フィルム 5x5 TD	MPa	2445	2464	
破断伸びフィルム 5x5 MD	%	39	38	
破断伸びフィルム 5x5 TD	%	19	18	
Tm 開始フィルム 5x5	°C	n.a.	142	
Tm フィルム (第1溶融 5x5)	°C	152	154	
Hm フィルム (第1溶融 5x5)	J/g	83	56	20
Tc フィルム 5x5	°C	109	109	
Hc フィルム 5x5	J/g	95	95	
Tm フィルム (第2溶融 5x5)	°C	153	151	
Hm フィルム (第2溶融 5x5)	J/g	100	93	
フィルムの厚さ	μm	30	30	

【 0 1 6 6 】

二軸延伸フィルムを以下のように調製する。二軸延伸用装置 Bruckner Karo IV で、フィルムサンプルを固定し、一定の延伸速度で縦方向及び横方向の両方に伸ばす。縦方向の延伸中に、サンプルの長さを増大し、現在の長さ対元のサンプルの長さの比から、縦方向の延伸比を算出する。その後、サンプルを横方向に延伸し、サンプルの幅を増大する。したがって延伸比は、サンプルの現在の幅対サンプルの元の幅から算出する。

30

【 0 1 6 7 】

表 5 で、サンプルの結晶化挙動を段階的等温凝離法 (SIST) によって決定する。

【 0 1 6 8 】

表 5 : 段階的等温凝離法 (SIST) の結果 - I

40

【表 5】

ピークID	範囲 [°C]	E 1	E 3	CE 1	CE 2
		H _m [J/g]	H _m [J/g]	H _m [J/g]	H _m [J/g]
1	<110	6,0	6,6	0,6	1,0
2	110-120	3,8	3,6	1,0	1,4
3	120-130	4,8	6,7	2,0	2,6
4	130-140	11,4	19,1	3,9	4,8
5	140-150	27,5	35,0	10,6	12,8
6	150-160	29,2	34,1*	25,4	32,1
7	160-170	16,9		50,7	56,6
8	>170	0,1		37,5	14,3

H_m = 溶融エンタルピー

* > 150 °C

【 0 1 6 9 】

表 6 : 段階的等温凝離法 (S I S T) の結果 - I I

【表 6】

Tから	Tまで	E 1	E 3	CE 1	CE 2
		H _m [J/g]	H _m [J/g]	H _m [J/g]	H _m [J/g]
0	110	6	6,6	0,6	1
110	120	3,8	3,6	1	1,4
120	130	4,8	6,7	2	2,6
130	140	11,4	19,1	3,9	4,8
140	150	27,5	35	10,6	12,8
150	160	29,2	34,1	25,4	32,1
160	170	16,9		50,7	56,6
170		0,1		37,5	14,3
		99,7	105,1	131,7	125,6

【 0 1 7 0 】

表 7 : 段階的等温凝離法 (S I S T) の結果 - I I I

【表 7】

L から	L まで	画分 [wt%]			
m	m	E 1	E 3	CE 1	CE 2
0	3,30E-09	6,0%	6,3%	0,5%	0,8%
3,30E-09	3,81E-09	3,8%	3,4%	0,8%	1,1%
3,81E-09	4,52E-09	4,8%	6,4%	1,5%	2,1%
4,52E-09	5,55E-09	11,4%	18,2%	3,0%	3,8%
5,55E-09	7,19E-09	27,6%	33,3%	8,0%	10,2%
7,19E-09	1,02E-08	29,3%	32,4%	19,3%	25,6%
1,02E-08	1,76E-08	17,0%	0,0%	38,5%	45,1%
1,76E-08		0,1%	0,0%	28,5%	11,4%
		100,0%	100,0%	100,0%	100,0%

10

【 0 1 7 1 】

表 8 : 段階的等温凝離法 (S I S T) の結果 - I V

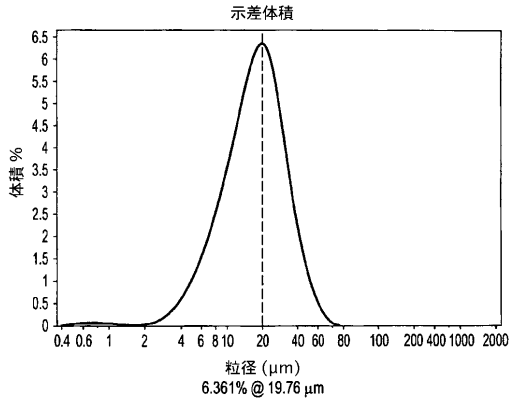
【表 8】

標識	E 1	E 3	CE 1	CE 2
<3,3nm	6%	6%	0%	1%
3,3nm - 3,81nm	4%	3%	1%	1%
3,81nm - 4,52nm	5%	6%	2%	2%
4,52nm - 5,55nm	11%	18%	3%	4%
5,55nm - 7,19nm	28%	33%	8%	10%
7,19nm - 10,21nm	29%	32%	19%	26%
10,21nm - 17,57nm	17%	0%	38%	45%
>17,57nm	0%	0%	28%	11%

20

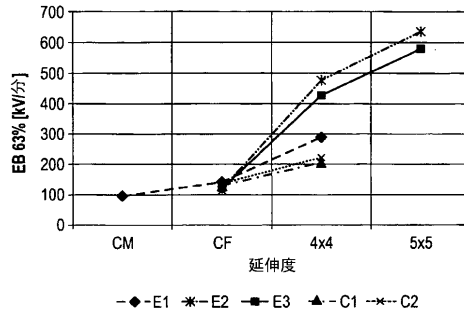
30

【 図 1 】



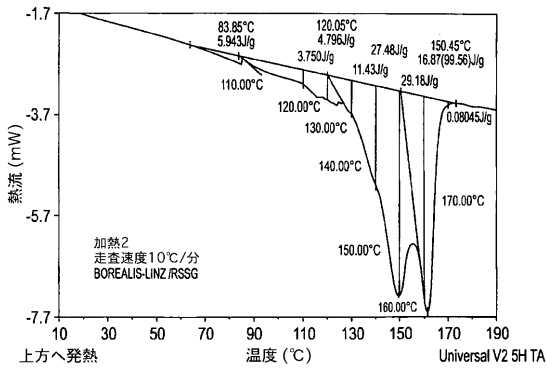
コールターカウンターによる触媒粒径分布

【 図 2 】



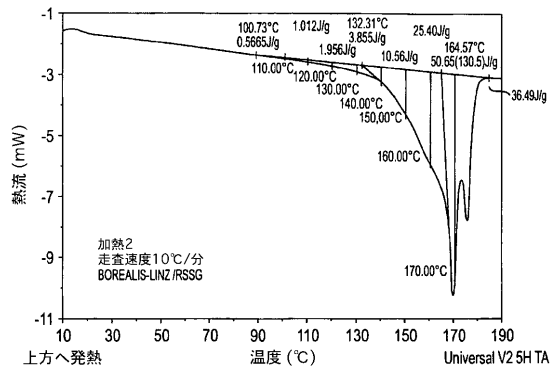
延伸の異なる標本の絶縁破壊強度
 (CM...圧縮成形、CF...キャストフィルム、
 4×4...MD4倍延伸及びTD4倍延伸のBOPP、
 5×5...5×5延伸のBOPP)

【 図 3 】



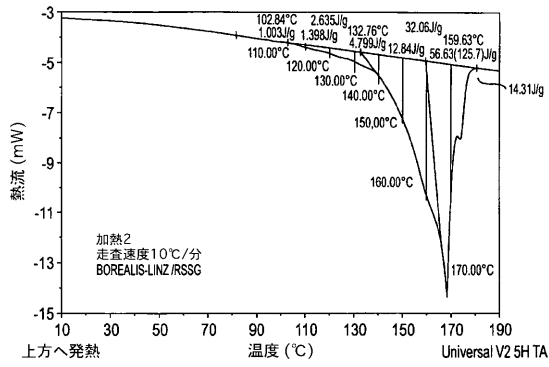
SIST曲線E1 (サンプル6.76mg)

【 図 4 】



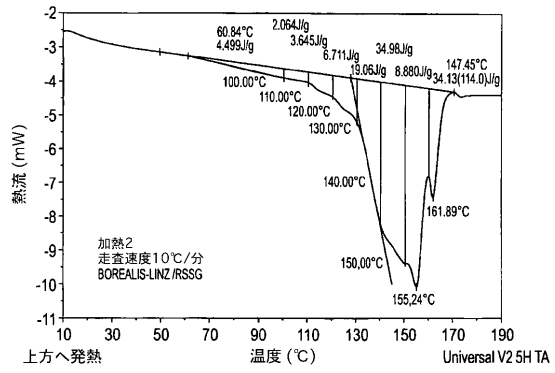
SIST曲線CE1 (サンプル5.21mg)

【 図 5 】



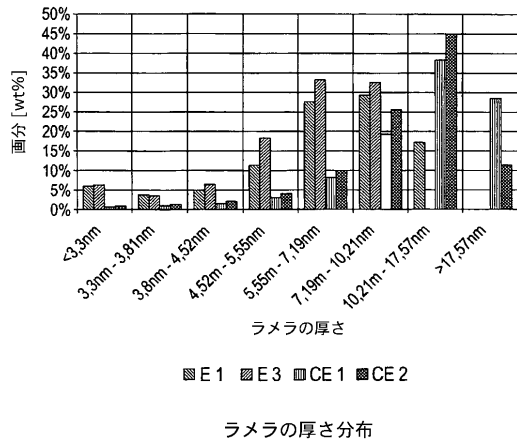
SIST曲線CE2 (サンプル7.27mg)

【 図 6 】



SIST曲線E3 (サンプル8.27mg)

【 図 7 】



フロントページの続き

- (74)代理人 100088926
弁理士 長沼 暉夫
- (74)代理人 100102897
弁理士 池田 幸弘
- (74)代理人 100097870
弁理士 梶原 斎子
- (74)代理人 100140556
弁理士 新村 守男
- (74)代理人 100114719
弁理士 金森 久司
- (74)代理人 100143258
弁理士 長瀬 裕子
- (74)代理人 100132492
弁理士 弓削 麻理
- (74)代理人 100163485
弁理士 渡邊 義敬
- (72)発明者 スタドルパウアー、マンフレッド
オーストリア国、リンツ、ドルナヒェルシュトラッセ 15
- (72)発明者 エルンスト、エーベルハルト
オーストリア国、ウンターウエイテルスドルフ、ハットマンズドルフ 6
- (72)発明者 ユッタネン、ラウリ
フィンランド国、ロビーサ、ペッコブオレンティエ 13
- (72)発明者 ダニエルス、イフォー
ベルギー国、ツォンホーフエン、エングステゲンセウエク 24
- (72)発明者 ヤコブス、フランク
ベルギー国、エフェルヘム、レイブロークシュトラート 58

審査官 小池 秀介

- (56)参考文献 国際公開第2007/006537(WO, A1)
特開2006-229208(JP, A)
特開2007-084813(JP, A)
特開平11-268145(JP, A)
特開平07-070334(JP, A)
特開平11-130923(JP, A)
国際公開第98/04600(WO, A1)
国際公開第2004/111098(WO, A1)

(58)調査した分野(Int.Cl., DB名)

H01G 4/00- 4/10
4/14- 4/22
4/255-4/40
13/00-17/00