



(10) **DE 11 2013 000 539 T5** 2014.09.25

(12)

Veröffentlichung

der internationalen Anmeldung mit der
(87) Veröffentlichungs-Nr.: **WO 2013/105552**
in deutscher Übersetzung (Art. III § 8 Abs. 2 IntPatÜG)
(21) Deutsches Aktenzeichen: **11 2013 000 539.5**
(86) PCT-Aktenzeichen: **PCT/JP2013/050120**
(86) PCT-Anmeldetag: **08.01.2013**
(87) PCT-Veröffentlichungstag: **18.07.2013**
(43) Veröffentlichungstag der PCT Anmeldung
in deutscher Übersetzung: **25.09.2014**

(51) Int Cl.: **H01G 4/18** (2006.01)
C08F 4/655 (2006.01)
C08F 10/06 (2006.01)
C08J 5/18 (2006.01)
C08K 5/13 (2006.01)
C08L 23/12 (2006.01)

(30) Unionspriorität:
PCT/JP2012/002849 11.01.2012 JP

(71) Anmelder:
Oji Holdings Corporation, Tokyo, JP

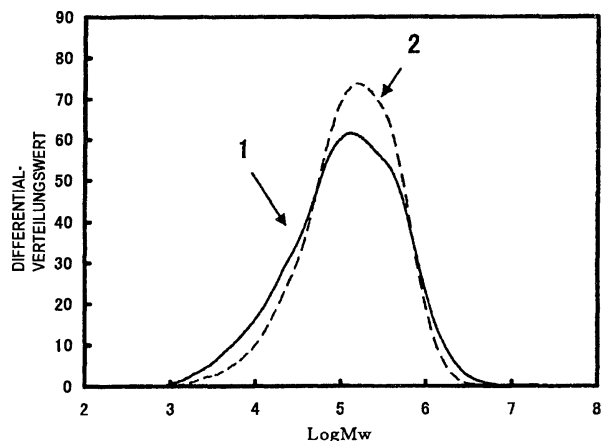
(74) Vertreter:
zacco Dr. Peters und Partner, 80335 München, DE

(72) Erfinder:
**Ishiwata, Tadakazu, c/o Oji Holdings Corporation,
Konan-shi, Shiga, JP; Shishido, Yuichi, c/o Oji F-
Tex Co. Ltd., Konan-shi, Shiga, JP**

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

(54) Bezeichnung: **Biaxial gestreckter Polypropylenfilm für Kondensatoren**

(57) Zusammenfassung: Die vorliegende Erfindung betrifft einen biaxial gestreckten Polypropylenfilm für einen Kondensator der ein isotaktisches Polypropylen enthält, wobei das gewichtsgemittelte Molekulargewicht (M_w) des isotaktischen Polypropylens, gemessen durch Gelpermeationschromatographie (GPC) 250.000 bis 450.000 ist, die Molekulargewichtsverteilung M_w/M_n 7 bis 12 ist, M_z/M_n 20 bis 40 ist und der Wert einer Differenz, die durch Subtrahieren eines Differentialverteilungswertes, wenn das logarithmische Molekulargewicht $\text{Log}(M) = 6$ ist, von einem Differentialverteilungswert, wenn das logarithmische Molekulargewicht auf einer Molekulargewichtsverteilungskurve $\text{Log}(M) = 4,5$ ist, erhalten wird, 8% bis 20% in Bezug auf den Differentialverteilungswert ist, wenn $\text{Log}(M) = 4,5$ ist. Gemäß der vorliegenden Erfindung kann ein ultradünner biaxial gestreckter Polypropylenfilm für einen Kondensator bereitgestellt werden, der eine bessere Wärmebeständigkeitsleistung und Stehspannungsleistung aufweist.



Beschreibung

TECHNISCHES GEBIET

[0001] Die vorliegende Erfindung betrifft eine Verbesserung einer Wärmebeständigkeit und Stehspannungskennlinie eines ultradünnen Kondensatorfilms, der in elektronischen und elektrischen Geräten verwendet wird, und insbesondere einen biaxial gestreckten Polypropylenfilm für Kondensatoren, der für Kondensatoren hoher Kapazität mit besseren Stehspannungskennlinien (verbessertem Durchschlags Spannungswert) bei hohen Temperaturen und einer extrem dünnen Filmstärke bevorzugt ist.

[0002] Die vorliegende Erfindung beansprucht Priorität auf Grundlage der Japanischen Patentanmeldung Nr. 2012-002849, eingereicht in Japan am 11. Januar 2012, deren Inhalt hiermit zum Zwecke der Bezugnahme eingegliedert wird.

ALLGEMEINER STAND DER TECHNIK

[0003] Biaxial gestreckte Polypropylenfilme haben bessere elektrische Eigenschaften, wie eine hohe Stehspannungsleistung und geringen dielektrischen Verlust, und werden aufgrund ihrer hohen Feuchtigkeitsbeständigkeit allgemein als dielektrische Filme für Kondensatoren verwendet.

[0004] Polypropylenfilme für Kondensatoren werden vorzugsweise in Hochspannungskondensatoren wie auch verschiedenen Arten von Schaltnetzteilen, Konvertern, Invertern wie Filtern und Kondensatoren, die zum Glätten verwendet werden, eingesetzt. In den letzten Jahren ist der Bedarf an Kondensatoren mit geringerer Größe und höherer Kapazität extrem stark geworden und der Bedarf an einer verringerten Stärke von Filmen für Kondensatoren ist auch im Steigen.

[0005] Ferner beginnen Polypropylenfilmkondensatoren allgemein als Glättungskondensatoren in Inverter-Stromversorgungskreisen zur Steuerung von Antriebsmotoren allgemein Anwendung zu finden, die in Elektrofahrzeugen, Hybridfahrzeugen und dergleichen verwendet werden, an welchen der Bedarf in den letzten Jahren gestiegen ist.

[0006] Die Kondensatoren für die Inverter-Stromversorgungsgeräte, die in solchen Fahrzeugen und dergleichen werden, müssen kompakt, von geringem Gewicht sein und eine hohe Kapazität haben, während sie weiterhin stabil arbeiten und einer hohen Gleichspannung über eine lange Zeitperiode und über einen weiten Temperaturbereich von -40°C bis 90°C widerstehen, oder mit anderen Worten, müssen weiterhin ihre elektrostatische Kapazität beibehalten.

[0007] Folglich müssen dielektrische Filme für Kondensatoren, die in den obengenannten Kondensatoren für Inverter-Stromversorgungsgeräte verwendet werden, eine hohe Streckungsleistung haben, die ihnen ermöglicht, auf eine extrem geringe Stärke von $1\ \mu\text{m}$ bis $6\ \mu\text{m}$ gestreckt zu werden, und eine hohe Stehspannungskennlinie haben, so dass der Film nicht bricht, selbst wenn er höheren Gleichspannungen bei höheren Temperaturen ausgesetzt wird, oder mit anderen Worten, müssen eine verbesserte Durchschlagsspannung haben. Zusätzlich ist in Kondensatoren, die aus einem solchen Film bestehen, eine Verbesserung der langfristigen Haltbarkeit, wesentlich, so dass der Film selbst dann nicht bricht, wenn er ständig hohen Temperaturen und hohen Spannungen, wie oben beschrieben, über einen langen Zeitraum ausgesetzt ist, das heißt, eine Minimierung von zeitbasierten Änderungen in der elektrostatischen Kapazität.

[0008] Ein seit langem bekanntes Verfahren zur Verbesserung der Stehspannungskennlinie besteht in der Verbesserung des Durchschlags Spannungswertes eines Films durch Kontrolle der Kristallinität eines Polypropylenharzes und der Glättungsleistung der Filmoberfläche. Zum Beispiel offenbart Patentdokument 1 einen Kondensator, der aus einem hoch stereoregulären Polypropylenharz besteht, das ein Antioxidans enthält. Zusätzlich offenbart zum Beispiel Patentdokument 2 eine Technologie, die sich auf einen Film bezieht, der eine hohe Schmelzkristallisierungstemperatur (hohe Kristallinität) und Kontrolle einer Oberflächenglättungsleistung des Films realisiert, und einen Kondensator daraus durch Verwendung eines Polypropylenharzes mit hoher Schmelzspannung. Da jedoch einfach ein Erhöhen der Stereoregularität oder Kristallinität eines Polypropylenharzes zu einer Abnahme in der Filmstreckfähigkeit führt, wodurch der Film im Streckungsprozess leicht bricht, ist dies im Sinne der Produktion nicht bevorzugt. Zusätzlich ist die in Patentdokument 2 beschriebene Technologie nicht imstande, angemessen auf den Bedarf des sich rasch entwickelnden Kondensatormarktes anzusprechen.

[0009] Um einen ultradünnen Film wie oben beschrieben zu erhalten, ist es wesentlich, die Streckfähigkeit des Harzes und des gegossenen Folienmaterials zu verbessern. Eine Verbesserung dieser Eigenschaft, nämlich der Streckfähigkeit, steht jedoch üblicherweise mit Techniken zur Verbesserung der Stehspannungskennlinie in Konflikt, oder mit anderen Worten, einer Erhöhung der Kristallinität wie zuvor beschrieben.

[0010] Im Gegensatz dazu offenbart Patentdokument 3 einen fein oberflächengerauten Film, der durch Strecken aus einem gegossenen Material mit einem vergleichsweise geringen Wert an β -Kristallen unter Verwendung eines Polypropylenharzes mit einer Molekulargewichtsverteilung und Stereoregularität innerhalb spezifischer Bereiche erhalten wird. Da der fein oberflächengeraute Film, der aus einem gegossenen Material mit einem vergleichsweise geringen Wert an β -Kristallen gestreckt wird, ein dünner Film mit einer Stehspannungskennlinie und geeigneten Rauheit ist, handelt es sich um einen fein oberflächengerauten Film, der einen Wert erreicht, der imstande ist die oben genannten drei Eigenschaften zu erfüllen, nämlich Streckleistung, Stehspannungskennlinie und langfristige Haltbarkeit. Es ist jedoch noch immer Raum für Verbesserung, um strenge erforderliche Standards in Bezug auf Stehspannungseigenschaft bei hohen Temperaturen zu erfüllen.

[0011] Ferner offenbart Patentdokument 4 die Realisierung sowohl einer hohen Stehspannungsleistung wie auch verringerten Filmstärke ohne Erhöhung der Stereoregularität eines Polypropylenharzes infolge einer Einstellung der Molekulargewichtsverteilung, indem eine Komponenten geringen Molekulargewichts im Polypropylenharz enthalten ist. Damit ist es jedoch nicht möglich, die Stehspannungsleistung zu erbringen, die vom Markt verlangt wird.

[0012] Andererseits offenbart Patentdokument 5 eine Technologie zur Einstellung eines Z-durchschnittlichen Molekulargewichts (M_z) zur Realisierung einer breiten Molekulargewichtsverteilung, nämlich jener, bei der M_w/M_n 5,4 und $M_z/M_n \geq 20$, als ein Beispiel einer Technologie zur Einstellung von Komponenten hohen Molekulargewichts eines Polypropylenharzes. Hier bezieht sich M_w auf das gewichtsgemittelte Molekulargewicht und M_n bezieht sich auf das zahlengemittelte Molekulargewicht. Obwohl Effekte, die sich auf eine β -Kristallbildung und Filmformbarkeit beziehen, infolge einer Realisierung einer Molekulargewichtsverteilung mit einem solchen Bereich verbessert sind, wurden keine angemessenen Studien in Bezug auf eine hohe Wärmebeständigkeit und hohe Stehspannung ausgeführt und es kann behauptet werden, dass es noch Raum für Verbesserung gibt.

[0013] Ferner wurden eine Technologie zum Erhalten eines Polypropylenharzes mit einer breiten Molekulargewichtsverteilung durch Einstellen von Komponenten hohen Molekulargewichts unter Verwendung eines einzigen Polymerisierungsschritts, das heißt, eines einfachen Verfahrens, durch die Verwendung einer Katalysatortechnologie und eine Technologie, die sich auf einen Film bezieht, der dieses Harz verwendet, offenbart (Patentdokument 6). Selbst gemäß diesen Technologien jedoch wird es nach wie vor als schwierig erachtet, angemessen auf die Marktbedürfnisse zu reagieren, indem sowohl eine extrem dünne Filmstärke wie auch eine Stehspannungseigenschaft bereitgestellt werden.

[0014] Zusätzlich, wie auch in Patentdokument 1 offenbart, ist von einem Antioxidans bekannt, dass es zumindest eine gewisse Auswirkung auf eine langfristige Stehspannungsleistung und elektrische Leistung des Kondensators hat.

[0015] Patentdokument 7 offenbart eine Technologie zur Unterdrückung des dielektrischen Verlusts eines Films auf einen niederen Wert unter Verwendung einer geeigneten Kombination und Eingliederung von Mengen von Antioxidantien auf Phenolbasis. Es werden jedoch keine Beispiele oder Vorschläge bezüglich der Betriebsdauer eines Kondensators angeführt, wenn dieser einer hohen Spannung ausgesetzt wird, oder mit anderen Worten, der langfristigen Haltbarkeit und Stehspannungseigenschaft bei hohen Temperaturen. Zusätzlich offenbart Patentdokument 8 als eine jüngere Technologie eine Technologie zur Verbesserung der Isolierbeständigkeit eines Films bei hohen Temperaturen unter Verwendung eines Antioxidans mit hohem Schmelzpunkt. In der Technologie von Patentdokument 8 werden jedoch keine Beispiele oder Vorschläge bezüglich einer Stehspannungseigenschaft bei hohen Temperaturen angeführt, wenn eine hohe Spannung vorliegt.

[0016] Daher sind die in den Patentdokumenten 1 bis 8 beschriebenen Technologien noch immer nicht imstande, die rigorosen Anforderungen der sich rasch entwickelnden Kondensatorindustrie zu erfüllen, nämlich die rigorosen Anforderungen, die sich auf eine Stehspannungsleistung von Filmen beziehen, wenn diese mit höheren Spannungen bei hohen Temperaturen belastet sind.

[0017]

- Patentdokument 1: Ungeprüfte Japanische Patentanmeldung, Erstveröffentlichung Nr. H10-119127 (S. 2–5)
- Patentdokument 2: Ungeprüfte Japanische Patentanmeldung, Erstveröffentlichung Nr. 2006-93689 (S. 2–4)
- Patentdokument 3: Ungeprüfte Japanische Patentanmeldung, Erstveröffentlichung Nr. 2007-137988 (S. 2–4)
- Patentdokument 4: Internationale Veröffentlichung Nr. WO2009-060944 (S3–11)
- Patentdokument 5: Ungeprüfte Japanische Patentanmeldung, Erstveröffentlichung Nr. 2004-175932 (S. 2–4)
- Patentdokument 6: Ungeprüfte Japanische Patentanmeldung, Erstveröffentlichung Nr. 2009-57473 (S. 2–3)
- Patentdokument 7: Ungeprüfte Japanische Patentanmeldung, Erstveröffentlichung Nr. 2007-146026 (S. 2–3)
- Patentdokument 8: Ungeprüfte Japanische Patentanmeldung, Erstveröffentlichung Nr. 2009-231705 (S. 2–4)

OFFENBARUNG DER ERFINDUNG

Probleme, die durch die Erfindung zu lösen sind

[0018] Eine Aufgabe der vorliegenden Erfindung ist die Bereitstellung eines ultradünnen, biaxial gestreckten Polypropylenfilms für einen Kondensator mit hoher Durchschlagsspannungskennlinie unter Hochtemperaturbedingungen und eines metallisierten Polypropylenfilms daraus für einen Kondensator.

Mittel zur Problemlösung

[0019] Die vorliegende Erfindung enthält eine Erfindung eines biaxial gestreckten Polypropylenfilms für einen Kondensator, wie in der Folge beschrieben.

- (1) Ein biaxial gestreckter Polypropylenfilm für einen Kondensator, umfassend ein isotaktisches Polypropylen, wobei das gewichtsgemittelte Molekulargewicht (M_w), gemessen durch Gelpermeationschromatographie (GPC) 250.000 bis 450.000 ist, die Molekulargewichtsverteilung M_w/M_n 7 bis 12 ist, M_z/M_n 20 bis 40 ist und die Differenz, die durch Subtrahieren eines Differentialverteilungswertes, wenn das logarithmische Molekulargewicht $\text{Log}(M) = 6$ ist, von einem Differentialverteilungswert, wenn das logarithmische Molekulargewicht auf einer Molekulargewichtsverteilungskurve $\text{Log}(M) = 4,5$ ist, erhalten wird, 8% bis 20% ist.
- (2) Der biaxial gestreckte Polypropylenfilm für einen Kondensator wie in (1) beschrieben, wobei das isotaktische Polypropylen eine Stereoregularität aufweist, in der ein Mesopentad-Anteil ($[mmmm]$), wie durch Hochtemperatur-Kernmagnetresonanz-(Hochtemperatur-NMR)Messung bestimmt, 94% oder mehr bis weniger als 98% ist.
- (3) Der biaxial gestreckte Polypropylenfilm für einen Kondensator wie in (1) oder (2) beschrieben, wobei das isotaktische Polypropylen mindestens eine Art von gehindertem Antioxidans auf Phenolbasis mit einer Carbonylgruppe enthält und der Restgehalt davon im Film 4000 ppm (auf das Gewicht bezogen) bis 6000 ppm (auf das Gewicht bezogen) ist.
- (4) Der biaxial gestreckte Polypropylenfilm für einen Kondensator wie in einem von (1) bis (3) beschrieben, wobei der biaxial gestreckte Polypropylenfilm fein oberflächenaufgeraut ist, so dass die Oberflächenrauheit an zumindest einer seiner Seiten derart ist, dass die durchschnittliche Mittellinienrauheit (R_a) 0,05 μm bis 0,15 μm ist und die maximale Höhe (R_z , R_{max} , wie früher in JIS definiert) 0,5 μm bis 1,5 μm ist.
- (5) Der biaxial gestreckte Polypropylenfilm für einen Kondensator wie in einem von (1) bis (3) beschrieben, wobei die Stärke des biaxial gestreckten Polypropylenfilms 1 μm bis 6 μm ist.
- (6) Der biaxial gestreckte Polypropylenfilm für einen Kondensator wie in einem von (1) bis (5) beschrieben, wobei das isotaktische Polypropylen durch Polymerisieren in Gegenwart eines olefinartigen Polymerisationskatalysators erhalten wird, der eine feste Titankatalysatorkomponente (I) enthält, die durch Reagieren einer Organometallverbindungs-Katalysatorkomponente (II) mit Titanetrachlorid, und ferner Kontaktieren mit einem Elektronenspender (a) und einem Elektronenempfänger (b) und der Organometallverbindungs-Katalysatorkomponente (II) erhalten wird.
- (7) Der biaxial gestreckte Polypropylenfilm für einen Kondensator wie in (6) beschrieben, wobei die feste Titankatalysatorkomponente (I) eine feste Titankatalysatorkomponente ist, die durch Reagieren der Orga-

nometallverbindungs-Katalysatorkomponente (II), des Elektronenspenders (a) und des Titan-tetrachlorids und ferner Kontaktieren mit dem Elektronenspender (a) und dem Elektronenempfänger (b) erhalten wird.

(8) Der biaxial gestreckte Polypropylenfilm für einen Kondensator wie in (6) oder (7) beschrieben, wobei der olefinartige Polymerisationskatalysator ein olefinartiger Polymerisationskatalysator ist, der die feste Titankatalysatorkomponente (I), die Organometallverbindungs-Katalysatorkomponente (II) und einen aromatischen Carboxylsäureester enthält.

[0020] Das heißt, die vorliegende Erfindung hat die in der Folge angegebenen Aspekte.

[1] Ein biaxial gestreckter Polypropylenfilm für einen Kondensator, der ein isotaktisches Polypropylen enthält, wobei

das gewichtsgemittelte Molekulargewicht (M_w) des isotaktischen Polypropylens, gemessen durch Gelpermeationschromatographie (GPC) 250.000 bis 450.000 ist,

die Molekulargewichtsverteilung M_w/M_n des isotaktischen Polypropylens 7 bis 12 ist, M_z/M_n 20 bis 40 ist und

der Wert einer Differenz, die durch Subtrahieren eines Differentialverteilungswertes, wenn das logarithmische Molekulargewicht $\text{Log}(M) = 6$, von einem Differentialverteilungswert, wenn das logarithmische Molekulargewicht $\text{Log}(M) = 4,5$ erhalten wird, auf einer Molekulargewichtsverteilungskurve 8% bis 20% in Bezug auf den Differentialverteilungswert ist, wenn $\text{Log}(M) = 4,5$.

[2] Der biaxial gestreckte Polypropylenfilm für einen Kondensator wie in [1] beschrieben, wobei das isotaktische Polypropylen eine Stereoregularität aufweist, in der ein Mesopentad-Anteil ($[mmmm]$), wie durch Hochtemperatur-Kernmagnetresonanz-(Hochtemperatur-NMR) Messung bestimmt, 94% oder mehr bis weniger als 98% ist.

[3] Der biaxial gestreckte Polypropylenfilm für einen Kondensator wie in [1] oder [2] beschrieben, wobei das isotaktische Polypropylen mindestens eine Art von gehindertem Antioxidans auf Phenolbasis mit einer Carbonylgruppe enthält und der Restgehalt des gehinderten Antioxidans auf Phenolbasis im Film 4000 Gewichts-ppm bis 6000 Gewichts-ppm, in Bezug auf das Gesamtgewicht des Films ist.

[4] Der biaxial gestreckte Polypropylenfilm für einen Kondensator wie in einem von [1] bis [3] beschrieben, wobei der biaxial gestreckte Polypropylenfilm fein oberflächenaufgeraut ist, so dass die Oberflächenrauheit an zumindest einer seiner Seiten derart ist, dass die durchschnittliche Mittellinienrauheit (R_a) 0,05 μm bis 0,15 μm ist und die maximale Höhe (R_z) 0,5 μm bis 1,5 μm ist.

[5] Der biaxial gestreckte Polypropylenfilm für einen Kondensator wie in einem von [1] bis [4] beschrieben, wobei die Stärke des biaxial gestreckten Polypropylenfilms 1 μm bis 6 μm ist.

[6] Der biaxial gestreckte Polypropylenfilm für einen Kondensator wie in einem von [1] bis [5] beschrieben, wobei das isotaktische Polypropylen durch ein Verfahren erhalten wird, das die folgenden Schritte (1) und (2) enthält:

Schritt (1): Erhalten einer festen Titankatalysatorkomponente (I) durch Kontaktieren eines Elektronenspenders (a) und eines Elektronenempfängers (b) mit einem Reaktionsprodukt, das durch Reagieren einer Organometallverbindungs-Katalysatorkomponente (II) mit Titan-tetrachlorid erhalten wird; und

Schritt (2): Erhalten eines isotaktischen Polypropylens durch Polymerisation von Propylen in Gegenwart eines olefinartigen Polymerisationskatalysators, der die feste Titankatalysatorkomponente (I) und die Organometallverbindungs-Katalysatorkomponente (II) enthält.

[7] Der biaxial gestreckte Polypropylenfilm für einen Kondensator wie in [6] beschrieben, wobei Schritt (1) das Erhalten der festen Titankatalysatorkomponente (I) durch Reagieren von Titan-tetrachlorid mit dem Reaktionsprodukt der Organometallverbindungs-Katalysatorkomponente (II) und des Elektronenspenders (a) und ferner Kontaktieren des Elektronenspenders (a) und des Elektronenempfängers (b) mit dem erhaltenen Reaktionsprodukt ist.

[8] Der biaxial gestreckte Polypropylenfilm für einen Kondensator wie in [6] oder [7] beschrieben, wobei der olefinartige Polymerisationskatalysator ein olefinartiger Polymerisationskatalysator ist, der die feste Titankatalysatorkomponente (I), die Organometallverbindungs-Katalysatorkomponente (II) und einen aromatischen Carboxylsäureester enthält.

Wirkungen der Erfindung

[0021] Der biaxial gestreckte Polypropylenfilm für einen Kondensator der vorliegenden Erfindung (einfach auch als "Polypropylenfilm", "Film" oder "Kondensatorfilm" bezeichnet) und das isotaktische Polypropylen, das einen metallisierten Polypropylenfilm für einen Kondensator bildet, umfassen eine spezifische Molekulargewichtsverteilung, da die Molekulargewichtsverteilung durch Eingliederung einer extrem großen Menge einer Komponente niederen Molekulargewichts mit einem durchschnittlichen Molekulargewicht in der Größenordnung von mehreren zehntausend eingestellt wird. Folglich zeigen der Film und das isotaktische Polypropylen

eine hohe Durchschlagsstärke und haben eine bessere Toleranz, wenn sie einer hohen Spannung bei hohen Temperaturen ausgesetzt werden.

[0022] Zusätzlich, da das oben genannte isotaktische Polypropylen (auch als "Polypropylenharz" bezeichnet) eine extrem breite Molekulargewichtsverteilung hat und ferner zweckdienlich eine Komponenten hohen Molekulargewichts enthält, ist die Streckleistung des Harzes hoch und ist es möglich, daraus einen dünnen Film zu bilden. Folglich kann es auch bei einem Kondensatorfilm mit einer extrem geringen Filmstärke von 1 µm bis 6 µm angewendet werden.

[0023] Wie bereits oben beschrieben wurden, ermöglicht die Verwendung eines biaxial gestreckten Polypropylenfilms für einen Kondensator der vorliegenden Erfindung die effektive Realisierung einer höheren Temperatur, bei der der Polypropylenfilmkondensator verwendet werden kann, eine Erhöhung in der Nennspannung, eine Verringerung in der Größe des Kondensators und eine höhere Kapazität.

KURZE BESCHREIBUNG DER ZEICHNUNGEN

[0024] Fig. 1 ist eine Grafik, die Beispiele der Molekulargewichtsverteilungskurven eines Polypropylenharzes **1** der vorliegenden Erfindung, das zahlreiche Komponenten niederen Molekulargewichts enthält und eine breite Molekulargewichtsverteilung hat, und eines Polypropylenharzes **2** mit einer herkömmlichen Molekulargewichtsverteilung zeigt.

BESTE AUSFÜHRUNGSFORM DER ERFINDUNG

[0025] Der biaxial gestreckte Polypropylenfilm für einen Kondensator der vorliegenden Erfindung ist vorzugsweise ein Film, der durch Formen eines Harzes mit einem isotaktischen Polypropylen als Rohmaterial erhalten wird, das durch ein Verfahren erhalten wird, das einen Schritt (1) zum Erhalten einer festen Titankatalysator-Komponente (I) durch Kontaktieren eines Elektronenspenders (a) und eines Elektronenempfängers (b) mit einem Reaktionsprodukt, das durch Reagieren einer Organometallverbindungs-Katalysator-Komponente (II), bei Bedarf eines Elektronenspenders (a) und Titan-tetrachlorid erhalten wird, und einen Schritt (2) zum Erhalten eines isotaktischen Polypropylens durch Polymerisation von Propylen in Gegenwart eines olefinartigen Polymerisationskatalysators, der die feste Titankatalysator-Komponente (I), die Organometallverbindungs-Katalysator-Komponente (II) und bei Bedarf einen Elektronenspender (III) enthält, erhalten wird; wobei das gewichtsmittelte Molekulargewicht (M_w) des isotaktischen Polypropylens, das den Film bildet, gemessen durch Gel-permeationschromatographie (GPC), 250.000 bis 450.000 ist, die Molekulargewichtsverteilung M_w/M_n 7 bis 12 ist, M_z/M_n 20 bis 40 ist und der Wert der Differenz, der durch Subtrahieren eines Differentialverteilungswertes, wenn das logarithmische Molekulargewicht $\text{Log}(M) = 6$, von einem Differentialverteilungswert, wenn das logarithmische Molekulargewicht $\text{Log}(M) = 4,5$ erhalten wird, auf einer Molekulargewichtsverteilungskurve, in Bezug auf den Differentialverteilungswert, wenn $\text{Log}(M) = 4,5$, 20%, 8% bis 20% ist.

[0026] Der oben genannte olefinartige Polymerisationskatalysator, der in der vorliegenden Erfindung verwendet wird, ist bevorzugt, da er dazu neigt, ein Polymer mit hoher Stereoregularität und einer breiten Molekulargewichtsverteilung zu liefern.

[0027] Das Polypropylenharz, das den biaxial gestreckten Polypropylenfilm für einen Kondensator der vorliegenden Erfindung bildet, ist ein kristallines isotaktisches Polypropylenharz und ist ein Homopolymer von Polypropylen.

[0028] Obwohl das Polypropylenharz, das in dem biaxial gestreckten Polypropylenfilm für einen Kondensator der vorliegenden Erfindung verwendet wird, auch durch eine mehrstufige Polymerisation oder Mischen mehrerer Arten von Polypropylen erzeugt werden kann, ist es bevorzugt ein Harz, das durch eine einstufige Polymerisation, oder mit anderen Worten, eine einstufige Polymerisationsreaktion erhalten wird. Da das Rohmaterialharz unter Verwendung einer einfachen Polymerproduktionsvorrichtung erzeugt werden kann, wenn das Rohmaterialharz ein Harz ist, das durch eine einstufige Polymerisationsreaktion erhalten wird, ist die Komponente mit hohem Molekulargewicht in dem Polypropylenharzrohmaterial nicht nur wirtschaftlich, sondern auch in einem fein dispergierten Zustand, wodurch sie bevorzugt ist.

<Verfahren zur Herstellung von Polypropylenharzrohmaterial>

[0029] Das Polypropylenharzrohmaterial, das zur Herstellung des biaxial gestreckten Polypropylenfilms für einen Kondensator der vorliegenden Erfindung verwendet wird, wird vorzugsweise unter Verwendung des folgenden olefinartigen Polymerisationskatalysators erzeugt.

(Olefinartiger Polymerisationskatalysator)

[0030] Das Polypropylenharzrohmaterial, das in dem biaxial gestreckten Polypropylenfilm für einen Kondensator der vorliegenden Erfindung verwendet wird, wird vorzugsweise durch Polymerisieren von Polypropylen in Gegenwart eines olefinartigen Polymerisationskatalysators erhalten, der eine feste Titankatalysatorkomponente (I), eine Organometallverbindungs-Katalysatorkomponente (II) und nach Bedarf einen Elektronenspender (III) enthält.

[0031] Das heißt, der olefinartige Polymerisationskatalysator in der vorliegenden Erfindung enthält vorzugsweise eine feste Titankatalysatorkomponente (I) und eine Organometallverbindungs-Katalysatorkomponente (II). Zusätzlich kann der oben genannte olefinartige Polymerisationskatalysator bei Bedarf auch einen Elektronenspender (III) enthalten.

(Feste Titankatalysatorkomponente (I))

[0032] Die feste Titankatalysatorkomponente (I) kann zum Beispiel durch ein Verfahren hergestellt werden, das den folgenden Schritt (1) enthält.

[0033] Schritt (1): Erhalten einer festen Titankatalysatorkomponente (I) durch weiteres Kontaktieren eines Elektronenspenders (a) und eines Elektronenempfängers (b) mit einem Reaktionsprodukt, das durch Reagieren einer Organometallverbindungs-Katalysatorkomponente (II) und Titan-tetrachlorid oder einem Reaktionsprodukt erhalten wird, das durch Reagieren des Reaktionsprodukts der Organometallverbindungs-Katalysatorkomponente (II) und des Elektronenspenders (a) mit Titan-kohlenstoff-tetrachlorid erhalten wird.

[0034] Hier ist der oben erwähnte Schritt (1) vorzugsweise ein Schritt zum Erhalten der festen Titankatalysatorkomponente (1) durch weiteres Kontaktieren eines Elektronenspenders (a) und eines Elektronenempfängers (b) mit einem Reaktionsprodukt, das durch Reagieren des Reaktionsprodukts der Organometallverbindungs-Katalysatorkomponente (II) und des Elektronenspenders (b) mit Titan-tetrachlorid erhalten wird.

[0035] Das oben genannte Titan-tetrachlorid kann nach Bedarf zu einer Titanverbindung, wie unten angegeben, geändert werden. Zusätzlich kann das Titan-tetrachlorid, das in dem Verfahren zur Herstellung der festen Titankatalysatorkomponente (I) beschrieben ist, die anschließend beschrieben wird, auch durch eine Titanverbindung, wie unten angeführt, ersetzt werden.

(Titanverbindung, die zur Erzeugung der festen
Titankatalysatorkomponente (I) der vorliegenden Erfindung verwendet wird)

[0036] Beispiele für Titanverbindungen, die zur Herstellung der festen Titankatalysatorkomponente (I) der vorliegenden Erfindung verwendet werden, enthalten tetravalente Titanverbindungen, die durch die folgende allgemeine Formel dargestellt sind:



(In der oben stehenden Formel stellt R vorzugsweise eine Kohlenwasserstoffgruppe mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen dar, X stellt ein Halogenatom dar und g stellt eine ganze Zahl dar, die durch $0 \leq g \leq 4$ dargestellt ist).

[0037] Spezifische Beispiele enthalten:

Titan-tetrahalide wie TiCl_4 oder TiBr_4 ;

Alkoxytitantrihalide wie $\text{Ti(OCH}_3\text{)Cl}_3$, $\text{Ti(OC}_2\text{H}_5\text{)Cl}_3$, $\text{Ti(O-n-C}_4\text{H}_9\text{)Cl}_3$, $\text{Ti(OC}_2\text{H}_5\text{)Br}_3$ oder $\text{Ti(O-iso-C}_4\text{H}_9\text{)Br}_3$;

Alkoxytitan-dihalide wie $\text{Ti(OCH}_3\text{)}_2\text{Cl}_2$ oder $\text{Ti(OC}_2\text{H}_5\text{)}_2\text{Cl}_2$;

Aloxytitanhalide wie $\text{Ti(OCH}_3\text{)}_3\text{Cl}$, $\text{Ti(O-n-C}_4\text{H}_9\text{)}_3\text{Cl}$ oder $\text{Ti(OC}_2\text{H}_5\text{)}_3\text{Br}$; und

Tetralkoxytitanium wie $\text{Ti(OCH}_3\text{)}_4$, $\text{Ti(OC}_2\text{H}_5\text{)}_4$, $\text{Ti(OC}_4\text{H}_9\text{)}_4$ oder $\text{Ti(O-2-ethylhexyl)}_4$.

[0038] Von diesen sind Titantetrahalide bevorzugt und Titantetrachlorid ist besonders bevorzugt. Diese Titanverbindungen können alleine verwendet werden oder zwei oder mehr Arten können in Kombination verwendet werden.

(Verfahren zur Herstellung der festen Titankatalysatorkomponente (I))

[0039] In Bezug auf das Verfahren zur Herstellung der festen Titankatalysatorkomponente (I) wird in der Folge eine Zusammenfassung angeführt, auch wenn die Einzelheiten eines Verfahrens zum Erhalten der festen Titankatalysatorkomponente (I) durch Reagieren von Titantetrachlorid mit dem Reaktionsprodukt der Organometallverbindungs-Katalysatorkomponente (II) und dem Elektronenspender (a) und ein weiteres Kontaktieren des Elektronenspenders (a) und eines Elektronenempfängers (b) mit dem erhaltenen Reaktionsprodukt zum Beispiel in der Ungeprüften Japanischen Patentanmeldung, Erstveröffentlichung Nr. S56-110707 beschrieben sind.

[0040] Zuerst wird ein Reaktionsprodukt der Organometallverbindungs-Katalysatorkomponente (II) und des Elektronenspenders (a) erhalten.

[0041] Die Reaktion zwischen der Organometallverbindungs-Katalysatorkomponente (II) und dem Elektronenspender (a) wird vorzugsweise in einem Lösemittel, das anschließend beschrieben wird, 30 Sekunden bis 5 Stunden bei einer Reaktionstemperatur von -20°C bis 200°C und vorzugsweise -10°C bis 100°C ausgeführt. Es gibt keine Einschränkungen bezüglich der Reihenfolge, in der die oben erwähnte Organometallverbindungs-Katalysatorkomponente (II) und der Elektronenempfänger (b) kontaktiert werden, das Gewichtsverhältnis, bei dem sie verwendet werden, ist 0,1 Mol bis 8 Mol und vorzugsweise 1 Mol bis 4 Mol des Elektronenspenders (a) in Bezug auf 1 Mol des Metallelements der Organometallverbindungs-Katalysatorkomponente. Die Menge an verwendetem Lösemittel ist vorzugsweise 0,5 Liter bis 5 Liter und besonders bevorzugt 0,5 Liter bis 2 Liter.

[0042] Zusätzlich ist das oben erwähnte Lösemittel vorzugsweise ein aliphatischer Kohlenwasserstoff.

[0043] Das Reaktionsprodukt, das in dieser Stufe erhalten wird, kann in der nächsten Reaktion noch im flüssigen Zustand nach Vollendung der Reaktion verwendet werden, ohne eine Fest-Flüssig-Trennung zu erfahren.

[0044] Anschließend werden das oben erwähnte Reaktionsprodukt und Titantetrachlorid in Kontakt gebracht.

[0045] Die Reaktion zwischen dem oben erwähnten Reaktionsprodukt und Titantetrachlorid wird vorzugsweise 5 Minuten bis 8 Stunden bei einer Reaktionstemperatur von 0°C bis 200°C und vorzugsweise 10°C bis 90°C durchgeführt. Obwohl ein aliphatischer Kohlenwasserstoff oder aromatischer Kohlenwasserstoff als Lösemittel bei der Reaktion des oben erwähnten Reaktionsprodukts und Titantetrachlorids verwendet werden kann, wird die Reaktion vorzugsweise ohne diese Lösemittel ausgeführt.

[0046] Der Kontakt des oben genannten Reaktionsprodukts und Titantetrachlorids mit einem vorzugsweise verwendeten Lösemittel kann in beliebiger Reihenfolge erfolgen. Zusätzlich wird dieser Kontaktvorgang, das heißt, ein Schritt für die Zugabe von Titantetrachlorid zu dem oben erwähnten Reaktionsprodukt, in einem vorzugsweise verwendeten Lösemittel vorzugsweise innerhalb von 5 Stunden vollendet. Nach Vollendung des Kontakts von vorgeschriebenen Mengen wird ein Gemisch des Reaktionsprodukts, Titantetrachlorids und Lösemittels vorzugsweise bei 10°C bis 90°C gehalten. Die Zeit, in der das Gemisch bei dieser Temperatur gehalten wird, ist vorzugsweise nicht länger als 8 Stunden.

[0047] Die Mengen des oben erwähnten Reaktionsprodukts, Titantetrachlorids und Lösemittels, die in der Reaktion verwendet werden, sind derart, dass die Menge an Lösemittel 0 ml bis 3000 ml in Bezug auf 1 mol Titantetrachlorid ist und das Verhältnis der Anzahl von Metallatomen in dem oben erwähnten Reaktionsprodukt zu der Anzahl von Ti-Atomen in Titantetrachlorid (Anzahl von Metallatomen der Organometallverbindungs-Katalysatorkomponente (II)/Ti) vorzugsweise 0,05 bis 10 und bevorzugter 0,06 bis 0,2 ist.

[0048] Nach Vollendung des oben erwähnten Schritts wird der flüssige Anteil abgetrennt und durch Filtration oder Dekantieren entfernt, gefolgt von einem wiederholten Waschen mit Lösemittel, um ein festes Produkt zu erhalten. Das erhaltene feste Produkt kann im nächsten Schritt verwendet werden, während es noch im Lösemittel suspendiert ist, oder kann nach Trocknung und Entfernung als Feststoff verwendet werden.

[0049] Anschließend werden der Elektronenspender (a) und der Elektronenempfänger (b) mit dem oben erwähnten festen Produkt zur Reaktion gebracht.

[0050] Obwohl diese Reaktion ohne Lösemittel ausgeführt werden kann, wird sie vorzugsweise mit einem aliphatischen Kohlenwasserstoff ausgeführt. Die Menge des verwendeten Elektronenspenders (a) ist vorzugsweise 10 g bis 100 g und bevorzugter 50 g bis 200 g in Bezug auf 100 g des oben erwähnten festen Produkts. Zusätzlich ist die Menge des verwendeten Elektronenempfängers (b) vorzugsweise 10 g bis 1000 g und bevorzugter 20 g bis 500 g in Bezug auf 100 g des oben erwähnten festen Produkts. Zusätzlich ist die Menge des verwendeten Lösemittels vorzugsweise 0 ml bis 3000 ml und bevorzugter 100 ml bis 1000 ml.

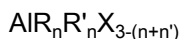
[0051] Nach dem Kontaktieren dieser Komponenten für 30 Sekunden bis 60 Minuten bei -10°C bis 40°C werden sie 30 Sekunden bis 5 Stunden, vorzugsweise bei 40°C bis 200°C und bevorzugter bei 50°C bis 100°C gehalten. Die Reihenfolge, in der das feste Produkt, der Elektronenspender (a), der Elektronenempfänger (b) und das Lösemittel in Kontakt gebracht werden, ist beliebig. Zum Beispiel können der Elektronenspender (a) und der Elektronenempfänger (b) vorbereitend vor dem Mischen mit dem festen Produkt in Kontakt gebracht werden und in diesem Fall werden der Elektronenspender (a) und der Elektronenempfänger (b) vorzugsweise 30 Minuten bis 2 Stunden bei 10°C bis 100°C in Kontakt gebracht, gefolgt von einer Kühlung auf 40°C oder weniger und einem anschließenden Mischen mit dem festen Produkt.

[0052] Sobald das feste Produkte, der Elektronenspender (a) und der Elektronenempfänger (b) in Kontakt gebracht und bei der oben erwähnten Temperatur gehalten wurden, wird der flüssige Anteil durch Filtration oder Dekantieren entfernt, gefolgt von einem wiederholten Waschen mit Lösemittel, um die feste Titankatalysatorkomponente (I) zu erhalten.

[0053] Die erhaltene feste Titankatalysatorkomponente (I) kann dann getrocknet und als Feststoff entfernt werden oder kann in der nächsten Reaktion verwendet werden, während sie noch in Lösemittel suspendiert ist.

(Organometallverbindungs-Katalysatorkomponente (II), die zum Erzeugen der festen Titankatalysatorkomponente (I) verwendet wird)

[0054] Eine Verbindung ähnlich der Organometallverbindungs-Katalysatorkomponente (II), die zum Polymerisieren von Polypropylen verwendet wird, die anschließend beschrieben wird, wird für die Organometallverbindungs-Katalysatorkomponente (II) verwendet, die zum Erzeugen der festen Titankatalysatorkomponente (I) verwendet wird. Sie ist bevorzugt eine organische Aluminiumverbindung, dargestellt durch die folgende allgemeine Formel:



(In der oben stehenden Formel stellen R und R' Kohlenwasserstoffgruppen dar, wie Alkylgruppen, Arylgruppen, Alkarylgruppen, oder Cycloalkylgruppen, R und R' können auch Alkoxygruppen darstellen, X stellt ein Halogen wie Fluor, Chlor, Brom oder Jod dar und n und n' stellen willkürliche ganze Zahlen dar, die den Ausdruck $0 < n + n' \leq 3$ erfüllen).

[0055] Spezifische Beispiele dafür enthalten Trialkylaluminiumverbindungen wie Trimethylaluminium, Triethylaluminium, Tri-n-propylaluminium, Tri-n-butylaluminium, Tri-i-butylaluminium, Tri-n-hexylaluminium, Tri-i-hexylaluminium, Tri-2-methylpentylaluminium, Tri-n-octylaluminium oder Tri-n-decylaluminium, Diethylaluminiummonohalide wie Diethylaluminiummonochlorid, Di-n-propylaluminiummonochlorid, Di-i-butylaluminiummonochlorid, Diethylaluminiummonofluorid, Diethylaluminiummonobromid oder Diethylaluminiummonojodid, Alkylaluminiumhydride wie Diethylaluminiumhydrid und Alkylaluminiumhalide wie Methylaluminiumsesquichlorid, Ethylaluminiumsesquichlorid, Ethylaluminiumdichlorid oder i-Butylaluminiumdichlorid. Zusätzlich können auch Alkoxyalkylaluminiumverbindungen wie Monoethoxydiethylaluminium oder Diethoxymonoethylaluminium verwendet werden.

[0056] Zwei oder mehr Arten dieser organischen Aluminiumverbindungen können auch nach einem Mischen verwendet werden.

(Elektronenspender (a), der zur Erzeugung der festen Titankatalysatorkomponente (I) verwendet wird)

[0057] Obwohl die verschiedenen, unten angeführten Komponenten für den Elektronenspender (a) verwendet werden können, werden in der vorliegenden Erfindung vorzugsweise vorwiegend Ether verwendet und andere Elektronenspender werden in Kombination damit verwendet.

[0058] Beispiele für Verbindungen, die für den Elektronenspender (a) verwendet werden, enthalten organische Verbindungen mit einem Sauerstoff-, Stickstoff-, Schwefel- oder Phosphoratom, oder mit anderen Worten, Ether, Alkohole, Ester, Aldehyde, Fettsäuren, Ketone, Nitrile, Amine, Amide, Harnstoff oder Thioharnstoffe, Isocyanate, Azoverbindungen, Phosphine, Phosphite, Phosphinite, Thioether und Thioalkohole.

[0059] Spezifische Beispiele des oben genannten Elektronenspenders (a) enthalten Ether wie Diethylether, Di-n-propylether, Di-n-butylether, Diisomyalether, Di-n-pentylether, Di-n-hexylether, Di-i-hexylether, Di-n-octylether, Di-i-octylether, Di-n-dodecylether, Diphenylether, Ethylenglycolmonomethylether, Diethylenglycoldimethylether oder Tetrahydrofuran, Alkohole, wie Methanol, Ethanol, Propanol, Butanol, Pentanol, Hexanol, Octanol, Phenol, Cresol, Xylenol, Ethylphenol oder Naphthol, Ester wie Methylmethacrylat, Ethylacetat, Butylformat, Amylacetat, Vinylbutyrat, Vinylacetat, Ethylbenzoat, Propylbenzoat, Butylbenzoat, Octylbenzoat, 2-Ethylhexylbenzoat, Methyltoluylat, Ethyltoluylat, 2-Ethylhexyltoluylat, Methylanisat, Ethylanisat, Propylanisat, Ethylcinnamat, Methylnaphthoat, Ethyl-naphthoat, Propyl-naphthoat, Butyl-naphthoat, 2-Ethylhexyl-naphthoat oder Ethylphenylacetat, Aldehyde wie Acetaldehyd oder Benzaldehyd, Fettsäuren wie Ameisensäure, Essigsäure, Propionsäure, Buttersäure, Oxalsäure, Bernsteinsäure, Acrylsäure oder Maleinsäure, aromatische Säuren wie Benzoesäure, Ketone wie Methylethylketon, Methylisobutylketon oder Benzophenon, Nitrile wie Acetonitril, Amine wie Methylamin, Diethylamin, Tributylamin, Triethanolamin, β -(N,N-Dimethylamino)ethanol, Pyridin, Chinolin, α -Picolin, N,N,N',N'-Tetramethylhexaethylendiamin, Anilin oder Dimethylanilin, Amide wie Formamid, Hexamethylphosphortriamid, N,N,N',N',N''-Pentamethyl-N'- β -diethylaminomethylphosphortriamid oder Octamethylpyrophosphoramid, Harnstoffe wie N,N,N',N'-Tetramethylharnstoff, Isocyanate wie Phenylisocyanat oder Toluylisocyanat, Azoverbindungen wie Azobenzol, Phosphine wie Ethylphosphin, Triethylphosphin, Tri-n-butylphosphin, Tri-n-octylphosphin, Triphenylphosphin oder Triphenylphosphinoxid, Phosphite wie Dimethylphosphit, Di-n-octylphosphit, Triethylphosphit, Tri-n-butylphosphit, Triphenylphosphit, Diethylphosphit, Ethylbutylphosphit oder Diphenylphosphit, Thioether wie Diethylthioether, Diphenylthioether, Methylphenylthioether, Ethylensulfid oder Propylensulfid und Thioalkohole wie Ethylthioalkohol, n-Propylthioalkohol oder Thiophenol.

[0060] Andere Beispiele des Elektronenspenders (a) enthalten aromatische polyvalente Carbonsäureester wie Phthalsäureester. Insbesondere sind Alkylphthalate wie Ethylphthalat, n-Butylphthalat, Isobutylphthalat, Hexylphthalat oder Heptylphthalat bevorzugt und Diisobutylphthalat ist bevorzugter.

[0061] Von diesen sind Ether für den Elektronenspender (a) bevorzugt und Verbindungen, die besonders bevorzugt verwendet werden, sind Isoamylether. Zwei oder mehr dieser Elektronenspenders (a) können gemischt oder in Kombination verwendet werden.

(Elektronenempfänger (b), der zur Erzeugung der festen Titankatalysatorkomponente (I) verwendet wird)

[0062] Der Elektronenempfänger (b) ist vorzugsweise ein Halid eines Elements der Gruppen 3 oder 6 oder Gruppen 13 bis 16 des Periodensystems. Spezifische Beispiele dafür enthalten wässriges Aluminiumchlorid, Siliziumtetrachlorid, Zinn(II)chlorid, Zinnchlorid, Titan-tetrachlorid, Zirkoniumtetrachlorid, Phosphor-trichlorid, Phosphor-pentachlorid, Vanadiumtetrachlorid und Antimon-pentachlorid. Zwei oder mehr Arten dieser Verbindungen können auch nach dem Mischen verwendet werden. Von den oben erwähnten Verbindungen ist Titan-tetrachlorid am bevorzugtesten.

[0063] Ein Katalysator, der ermöglicht, ein Olefinpolymer mit einer breiten Molekulargewichtsverteilung und hoher Stereoregularität zu erhalten, kann auch für die feste Titankatalysatorkomponente (I) der vorliegenden Erfindung zusätzlich zu jenem verwendet werden, das gemäß dem oben erwähnten Herstellungsverfahren erhalten wird.

(Verfahren zur Herstellung eines olefinartigen Polymerisationskatalysators)

[0064] Der olefinartige Polymerisationskatalysator der vorliegenden Erfindung kann durch Kombinieren vorgeschriebener Mengen der festen Titankatalysatorkomponente (I), die im oben erwähnten Schritt (1) erhalten wird, der Organometallverbindungs-Katalysatorkomponente (II) und bei Bedarf eines Elektronenspenders (III) erhalten werden.

[0065] In der vorliegenden Erfindung ist der oben erwähnte olefinartige Polymerisationskatalysator vorzugsweise ein olefinartiger Polymerisationskatalysator, der die feste Titankatalysatorkomponente (I), die Organometallverbindungs-Katalysatorkomponente (II) und den Elektronenspender (III) enthält.

[0066] In dem olefinartigen Polymerisationskatalysator der vorliegenden Erfindung werden 0,1 g bis 500 g der Organometallverbindungs-Katalysatorkomponente (II) in Bezug auf 1 g der festen Titankatalysatorkomponente (I) in Kombination damit verwendet.

(Organometallverbindungs-Katalysatorkomponente (II), die als olefinartiger Polymerisationskatalysator verwendet wird)

[0067] Eine Verbindung, die zum Beispiel ein Metall der Gruppe 13 wie eine organische Aluminiumverbindung, ein komplexes Alkylat eines Metalls der Gruppe 1 und eine Alkylaluminiumverbindung oder eine Organometallverbindung eines Metalls der Gruppe 2 enthält, kann für die Organometallverbindungs-Katalysatorkomponente (II) verwendet werden, die den olefinartigen Polymerisationskatalysator in Kombination mit der oben erwähnten festen Titankatalysatorkomponente (I) bildet. Von diesen ist die Verwendung einer organischen Aluminiumverbindung bevorzugt.

[0068] Insbesondere sind Organometallverbindungs-Katalysatorkomponenten, die in der bekannten Literatur beschrieben sind, wie EP585869A1, als bevorzugte Beispiele der oben erwähnten Organometallverbindungs-Katalysatorkomponente (II) angeführt.

[0069] Spezifische bevorzugte Beispiele der Organometallverbindungs-Katalysatorkomponente (II) enthalten Trialkylaluminiumverbindungen, wie Trimethylaluminium, Triethylaluminium, Tributylaluminium oder Tioctylaluminium und halogenhaltige Alkylaluminiumverbindungen wie Diethylaluminiumchlorid, Dibutylaluminiumchlorid, Ethylaluminiumsesquichlorid oder Ethylaluminiumdichlorid. Von diesen sind halogenhaltige Alkylaluminiumverbindungen bevorzugt und Diethylaluminiumchlorid, Dibutylaluminiumchlorid und Ethylaluminiumsesquichlorid sind bevorzugt.

(Elektronenspender (III), der als olefinartiger Polymerisationskatalysator verwendet wird)

[0070] Der olefinartige Polymerisationskatalysator, der vorzugsweise in der vorliegenden Erfindung verwendet wird, kann den Elektronenspender (III) bei Bedarf gemeinsam mit der oben erwähnten Organometallverbindungs-Katalysatorkomponente (II) enthalten. Bevorzugte Beispiele des Elektronenspenders (III) sind dieselben wie jene, die als Beispiel des oben erwähnten Elektronenspenders (a) angeführt sind.

[0071] Zusätzlich können aromatische Polycarbonsäureester für den Elektronenspender (III) verwendet werden, für die Beispiele aromatische Monocarbonsäureester wie Ethylbenzoat, Propylbenzoat, Butylbenzoat, Octylbenzoat, 2-Ethylhexylbenzoat, Methyltoluylat, Ethyltoluylat, 2-Ethylhexyltoluylat, Methylanisat, Ethylanisat, Propylanisat, Ethylcinnamat, Methylnaphthoat, Propylnaphthoat, Butylnaphthoat, 2-Ethylhexylnaphthoat oder Ethylphenylacetat und aromatische Polycarbonsäureester wie Phthalsäureester enthalten.

[0072] Der Katalysator der vorliegenden Erfindung zur Verwendung als olefinartiger Polymerisationskatalysator der vorliegenden Erfindung wird bevorzugter durch vorbereitende Aktivierung durch Reaktion mit einem α -Olefin, gefolgt von der Zugabe des oben erwähnten Esters erhalten.

[0073] Eine organische Siliziumverbindung kann für den Elektronenspender (III) zusätzlich zu den oben erwähnten Verbindungen verwendet werden. Eine Verbindung, die durch die allgemeine Formel (4) dargestellt ist, kann für diese organische Siliziumverbindung verwendet werden:

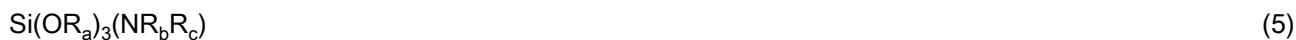


(In der oben stehenden Formel stellen R und R' Kohlenwasserstoffgruppen dar und n ist eine ganze Zahl $0 < n < 4$).

[0074] Spezifische Beispiele organischer Siliziumverbindungen, die durch die oben beschriebene allgemeine Formel (4) dargestellt sind, enthalten Diisopropyldimethoxysilan, t-Butylmethyldimethoxysilan, t-Butylmethyldiethoxysilan, t-Amylmethyldimethoxysilan, Dicyclohexyldimethoxysilan, Cyclohexylmethyldimethoxysilan, Cyclomethyldiethoxysilan, Vinyltrimethoxysilan, Vinyltriethoxysilan, t-Butyltriethoxysilan, Phenyltriethoxysilan, Cyclohexyltrimethoxysilan, Cyclopentyltrimethoxysilan, 2-Methylcyclopentyltrimethoxysilan, Cyclopentyltriethoxysilan, Dicyclopentyltrimethoxysilan, Dicyclopentyltriethoxysilan, Tricyclopentylmethoxysilan, Dicyclopentylmethoxysilan, Dicyclopentylethylmethoxysilan und Cyclopentylmethylethoxysilan.

[0075] Von diesen werden Vinyltriethoxysilan, Diphenyldimethoxysilan, Dicyclohexyldimethoxysilan, Cyclohexylmethyldimethoxysilan und Dicyclopentyldimethoxysilan bevorzugt verwendet.

[0076] Zusätzlich kann auch eine Silanverbindung, die durch die folgende Formel (5) dargestellt ist, die in der Internationalen Veröffentlichung Nr. 2004/016662 beschrieben ist, vorzugsweise für den Elektronenspender (III) der vorliegenden Erfindung verwendet werden.



[0077] In der oben stehenden Formel (5) stellt R_a eine Kohlenwasserstoffgruppe mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen dar, Beispiele für R_a enthalten ungesättigte oder gesättigte aliphatische Kohlenwasserstoffgruppen mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen und Kohlenwasserstoffgruppen mit 2 bis 6 Kohlenstoffatomen sind besonders bevorzugt. Spezifische Beispiele dafür enthalten eine Methylgruppe, Ethylgruppe, n-Propylgruppe, Isopropylgruppe, n-Butylgruppe, Isobutylgruppe, sec-Butylgruppe, n-Pentylgruppe, Isopentylgruppe, Cyclopentylgruppe, n-Hexylgruppe und Cyclohexylgruppe und von diesen ist eine Ethylgruppe besonders bevorzugt.

[0078] In Formel (5) stellt R_b eine Kohlenwasserstoffgruppe mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen oder ein Wasserstoffatom dar. Beispiele für R_b enthalten ungesättigte aliphatische Kohlenwasserstoffgruppen oder gesättigte aliphatische Kohlenwasserstoffgruppen mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen und einem Wasserstoffatom. Spezifische Beispiele dafür enthalten ein Wasserstoffatom, eine Methylgruppe, Ethylgruppe, n-Propylgruppe, Isopropylgruppe, n-Butylgruppe, Isobutylgruppe, sec-Butylgruppe, n-Pentylgruppe, Isopentylgruppe, Cyclopentylgruppe, n-Hexylgruppe, Cyclohexylgruppe und Octylgruppe und von diesen ist eine Ethylgruppe besonders bevorzugt.

[0079] In Formel (5) stellt R_c eine Kohlenwasserstoffgruppe mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen oder ein Wasserstoffatom dar. Beispiele für R_c enthalten ungesättigte aliphatische Kohlenwasserstoffgruppen oder gesättigte aliphatische Kohlenwasserstoffgruppen mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen und einem Wasserstoffatom. Spezifische Beispiele dafür enthalten eine Methylgruppe, Ethylgruppe, n-Propylgruppe, Isopropylgruppe, n-Butylgruppe, Isobutylgruppe, sec-Butylgruppe, n-Pentylgruppe, Isopentylgruppe, Cyclopentylgruppe, n-Hexylgruppe, Cyclohexylgruppe und Octylgruppe und von diesen ist eine Ethylgruppe besonders bevorzugt.

[0080] Spezifische Beispiele für Verbindungen, die durch die oben erwähnten Formel (5) dargestellt sind, enthalten:

Dimethylaminotriethoxysilan, Diethylaminotrimethoxysilan, Diethylaminotriethoxysilan, Diethylaminotri-n-propoxysilan, Di-n-propylaminotriethoxysilan, Methyl-n-propylaminotriethoxysilan, t-Butylaminotriethoxysilan, Ethyl-n-propylaminotriethoxysilan, Ethylisopropylaminotriethoxysilan und Methylethylaminotriethoxysilan.

[0081] Zusätzlich enthalten andere Beispiele der oben erwähnten organischen Siliziumverbindungen, die für den Elektronenspender (III) verwendet werden, Verbindungen, die durch die folgende Formel (6) dargestellt sind:



(In Formel (6) stellt RN eine cyclische Aminogruppe dar und R_a stellt eine Alkylgruppe dar).

[0082] Beispiele der oben erwähnten cyclischen Aminogruppe enthalten eine Perhydrochinolingruppe, Perhydroisochinolinogruppe, 1,2,3,4-Tetrahydrochinolingruppe, 1,2,3,4-Tetrahydroisochinolingruppe und Octamethyleniminogruppe.

[0083] Spezifische Beispiele für Verbindungen, die durch die oben erwähnten Formel (6) dargestellt sind, enthalten:

(Perhydrochinolin)triethoxysilan, (Perhydroisochinolin)triethoxysilan, (1,2,3,4-Tetrahydrochinolin)triethoxysilan, (1,2,3,4-Tetrahydroisochinolin)triethoxysilan und Octamethylenimintriethoxysilan.

[0084] Zwei oder mehr Arten dieser organischen Siliziumverbindungen können auch in Kombination verwendet werden. Zusätzlich enthalten bevorzugte Beispiele von anderen nützlichen Verbindungen, die für den Elektronenspender (III) verwendet werden, sogenannte Polyetherverbindungen in der Form von Verbindungen mit zwei oder mehr Etherbindungen durch mehrere Kohlenstoffatome. Beispiele für solche Verbindungen sind zum Beispiel in der Ungeprüften Japanischen Patentanmeldung, Erstveröffentlichung Nr. H4-218507 offenbart.

[0085] Von diesen Polyetherverbindungen sind 1,3-Diether bevorzugt, während 2-Isopropyl-2-isobutyl-1,3-dimethoxypropan, 2,2-Diisobutyl-1,3-dimethoxypropan, 2-Isopropyl-2-isopentyl-1,3-dimethoxypropan, 2,2-Dicyclohexyl-1,3-dimethoxypropan und 2,2-Bis(cyclohexylmethyl)-1,3-dimethoxypropan besonders bevorzugt sind.

[0086] Diese Verbindungen können alleine verwendet werden oder zwei oder mehr Arten können in Kombination verwendet werden.

[0087] In der vorliegenden Erfindung werden aromatische Carbonsäureester besonders bevorzugt für den Elektronenspender (III) verwendet. Das heißt, in der vorliegenden Erfindung ist der oben erwähnte olefinartige Polymerisationskatalysator besonders bevorzugt ein olefinartiger Polymerisationskatalysator, der die oben erwähnte feste Titankatalysatorkomponente (I), die Organometallverbindungs-Katalysatorkomponente (II) und einen aromatischen Carbonsäureester enthält.

[0088] Ferner kann der oben erwähnte olefinartige Polymerisationskatalysator bei Bedarf auch andere Komponenten, die für eine Olefinpolymerisation nützlich sind, zusätzlich zu jeder der oben beschriebenen Komponenten enthalten. Beispiele für diese anderen Komponenten enthalten einen anorganischen Oxidträger wie Siliziumdioxid, ein antistatisches Mittel, ein Partikelaggregationsmittel und einen Lagerungsstabilisator. Im Falle einer Verwendung eines Harzes, das aus dem oben erwähnten olefinartigen Polymerisationskatalysator erhalten wird, als Kondensatorfilm wird jedoch die Verwendung eines anorganischen Oxids wie Siliziumdioxid vorzugsweise soweit wie möglich vermieden.

[0089] Das Polypropylenharzrohmaterial gemäß der vorliegenden Erfindung wird vorzugsweise durch Polymerisieren von nur Polypropylen in Gegenwart eines olefinartigen Polymerisationskatalysators wie dem zuvor beschriebenen erhalten.

[0090] Gemäß dem Verfahren zur Herstellung eines Polypropylenharzrohmaterials unter Verwendung des oben erwähnten olefinartigen Polymerisationskatalysators kann ein Polypropylen mit einer breiten Molekulargewichtsverteilung durch Polymerisieren in einer geringen Anzahl von Polymerisationsstufen erhalten werden, wie durch Einzelstufenpolymerisation, ohne eine mehrstufige Polymerisation ausführen zu müssen. Insbesondere wird das Polypropylenharzrohmaterial erhalten, das ein vergleichsweise hohes Verhältnis von Komponenten mit hohem Molekulargewicht und ein hohes Verhältnis von Komponenten mit niedrigerem Molekulargewicht im Vergleich zu Olefinpolymeren hat, die einen herkömmlichen festen Titankatalysator verwenden, der Titan, Magnesium und Halogen enthält, und eine gleiche Schmelzflussrate (auch als "MFR" bezeichnet) haben. Diese Eigenschaft kann durch Messung durch Gelpermeationschromatographie (GPC) bestätigt werden, die anschließend beschrieben wird. Das heißt, ein Polypropylenharzrohmaterial kann erhalten werden, das hohe Werte sowohl für den Wert des gewichtsgemittelten Molekulargewichts (MW)/zahlengemittelten Molekulargewichts (Mn) wie auch Z-durchschnittlichen Molekulargewichts (Mz)/zahlengemittelten Molekulargewichts (Mn) hat, die die Molekulargewichtsverteilung darstellen.

<Polypropylenharz, das den biaxial gestreckten Polypropylenfilm bildet>

[0091] Der biaxial gestreckte Polypropylenfilm der Erfindung der vorliegenden Anmeldung kann durch Formen eines Polypropylenharzrohmaterials, das mit dem oben erwähnten olefinartigen Polymerisationskatalysator erhalten wird, zu einem gegossenen Folienmaterial und Ausführen einer biaxialen Streckung an dem oben erwähnten gegossenen Folienmaterial erhalten werden.

[0092] Das Polypropylenharz, das den Film der vorliegenden Erfindung bildet, hat ein gewichtsgemitteltes Molekulargewicht ((Mw) von 250.000 bis 450.000 und vorzugsweise 250.000 bis 400.000, gemessen durch Gelpermeationschromatographie (GPC). Die Molekulargewichtsverteilung, berechnet aus dem Verhältnis des gewichtsgemittelten Molekulargewichts (MW)/zahlengemittelten Molekulargewichts (Mn), das durch GPC erhalten wird, ist vorzugsweise 7 bis 12, besonders bevorzugt 7,5 bis 12 und noch bevorzugter 7,5 bis 11. Ferner ist die Molekulargewichtsverteilung, berechnet aus dem Verhältnis Z-durchschnittliches Molekulargewicht (Mz)/zahlengemitteltes Molekulargewicht (Mn), vorzugsweise 20 bis 40, bevorzugter 20 bis 30 und noch bevorzugter 25 bis 30. Hier bezieht sich ein "Polypropylenharz" auf ein Polypropylenharz, das einen biaxial gestreckten Polypropylenfilm bildet, der durch Formen des oben erwähnten Polypropylenharzrohmaterials zu einem gegossenen Folienmaterial und Ausführen einer biaxialen Streckung an dem oben erwähnten gegossenen Folienmaterial gebildet wird.

[0093] Wenn in dem Polypropylenharz, das den Film der vorliegenden Erfindung bildet, das gewichtsgemittelte Molekulargewicht 450.000 übersteigt, nimmt die Harzfluidität deutlich ab und es wird schwierig, die Stärke

des gegossenen Folienmaterial zu kontrollieren. Infolgedessen, da es nicht mehr möglich ist, ein Objekt der vorliegenden Erfindung in der Form einer Herstellung eines extrem dünnen gestreckten Films mit einer Stärke von 1 µm bis 6 µm mit günstiger Exaktheit in Stärkenrichtung zu erzeugen, ist dies im Sinne einer praktischen Verwendung nicht bevorzugt. Zusätzlich, wenn das gewichtsgemittelte Molekulargewicht geringer als 250.000 ist, ist zwar die Formbarkeit durch Extrusionsformen günstig, aber zusätzlich zu einer Anfälligkeit für das Auftreten einer ungleichförmigen Folien- und Filmstärke nehmen dynamische Eigenschaften, thermische Eigenschaften und mechanische Eigenschaften der erhaltenen Folie ab und die Streckbarkeit nimmt deutlich ab, was zu Problemen im Sinne der Produktion, da eine biaxiale Streckformung nicht mehr ausgeführt werden kann, wie auch im Sinne von Produktqualität führt, wodurch dies unerwünscht ist. Das heißt, wenn in dem biaxial gestreckten Polypropylenfilm der vorliegenden Erfindung das gewichtsgemittelte Molekulargewicht des Polypropylenharzes, das den oben erwähnten Film bildet, 250.000 bis 450.000 ist, kann die Stärke des gegossenen Folienmaterials kontrolliert werden, ohne eine Abnahme in der Harzfluidität oder Filmstreckbarkeit zu bewirken, und es kann ein extrem dünner gestreckter Film mit einer Filmstärke von 1 µm bis 6 µm exakt produziert werden, wodurch dies bevorzugt ist.

[0094] Insbesondere wird ein Polymer mit einem hohen M_z/M_n -Verhältnis durch Ausführen einer Polymerisation von Propylen mit dem oben erwähnten olefinartigen Polymerisationskatalysator erhalten.

[0095] Polypropylenharzrohmaterialien mit einer breiten Molekulargewichtsverteilung, das heißt einem hohen M_w/M_n -Wert, sind allgemein bei Fachleuten wegen ihrer besseren Formbarkeit und Steifigkeit bekannt. Andererseits ist ein hohes M_w/M_n -Verhältnis ein Anzeichen für einen hohen Gehalt an Komponenten mit hohem Molekulargewicht, was als vorteilhaft für eine Weiterverbesserung der Streckbarkeit und der Bildung von β -Kristallen angesehen wird.

[0096] Da das Polypropylenharzrohmaterial, das mit dem oben erwähnten olefinartigen Polymerisationskatalysator polymerisiert wird, einen hohen M_w/M_n -Wert hat, ohne eine mehrstufige Polymerisation auszuführen, wird angenommen, dass es einen hohen Gehalt an Komponenten hohen Molekulargewichts hat und es wird angenommen, dass diese Komponenten hohen Molekulargewichts in dem Polypropylenharzrohmaterial auf katalytischer Ebene dispergiert sind, das heißt, auf Nanometerebene. Folglich nimmt die Gleichförmigkeit der internen Struktur weiter zu, was als vorteilhaft für eine Weiterverbesserung der Streckbarkeit und der Bildung von β -Kristallen angesehen wird.

[0097] Es gibt keine besonderen Einschränkungen bezüglich der Vorrichtung für die Gelpermeationschromatographie (GPC), um Messwerte für das gewichtsgemittelte Molekulargewicht und die Molekulargewichtsverteilung des Polypropylenharzes zu erhalten, das den biaxial gestreckten Polypropylenfilm bildet, und ein übliches, im Handel erhältliches Hochtemperatur-GPC-System, das zu einer Molekulargewichtsanalyse von Polyolefinen imstande ist, kann verwendet werden, wie der HLC-8121GPC-HT-Hochtemperatur-GPC-Analysator mit eingebautem Differentialrefraktometer (RI), hergestellt von TOSOH CORPORATION. Spezifische Messbedingungen bestehen aus der Verwendung von drei gekoppelten TSKgel GMHHR-H(20)HT-Säulen zur Verwendung als GPC-Säulen. Zusätzlich werden Messungen durch Einstellen der Säulentemperatur auf 140°C, Verwendung von Trichlorbenzol als Eluent und Einstellen der Strömungsrate auf 1,0 ml/min ausgeführt. Standardpolystyrol, das von der TOSOH CORPORATION erhältlich ist, wird zur Erstellung der Kalibrierungskurve verwendet und Messergebnisse werden in Polypropylenwerte umgewandelt. Logarithmische Werte des gewichtsgemittelten Molekulargewichts, die auf diese Weise erhalten werden, werden als logarithmisches Molekulargewicht "Log(M)" bezeichnet.

[0098] Ferner erfordert das Polypropylenharz, das den biaxial gestreckten Polypropylenfilm für einen Kondensator der vorliegenden Erfindung bildet, neben den erforderlichen, oben erwähnten Bereichen eines gewichtsgemittelten Molekulargewichts und einer Molekulargewichtsverteilung, dass der Wert, der durch Subtrahieren eines Differentialverteilungswertes, wenn das logarithmische Molekulargewicht $\text{Log}(M) = 6$ ist, von einem Differentialverteilungswert, wenn $\text{Log}(M) = 4,5$ ist, erhalten wird, auf einer Molekulargewichtsverteilungskurve davon in Bezug auf den Differentialverteilungswert, wenn $\text{Log}(M) = 4,5$, 8% bis 20% ist, vorzugsweise 12% bis 18% und bevorzugter 16% bis 18%. Dies bedeutet, dass die Zusammensetzung derart ist, dass der Verteilungswert, wenn das logarithmische Molekulargewicht $\text{Log}(M)$ zwischen 4 und 5 ist, oder mit anderen Worten, wenn es an der niederen Molekulargewichtsseite des gewichtsgemittelten Molekulargewichts ist, nämlich Komponenten mit einem gewichtsgemittelten Molekulargewicht von 10.000 bis 100.000 (als "Komponenten mit niederem Molekulargewicht" bezeichnet) bis zu einem gewissen Grad im Vergleich zu jenen an der hohen Molekulargewichtsseite des gewichtsgemittelten Molekulargewichts, oder mit anderen Worten, wenn $\text{Log}(M)$ etwa 6 ist, nämlich Komponenten mit einem gewichtsgemittelten Molekulargewicht von etwa 1.000.000 (die als "Komponenten hohen Molekulargewichts" bezeichnet werden) hoch ist (siehe Fig. 1). In der vorliegenden

Erfindung wurde der Differentialverteilungswert, wenn $\text{Log}(M) = 4,5$ ist, als repräsentativer Wert von Komponenten niederen Molekulargewichts verwendet, während der Differentialverteilungswert wenn $\text{Log}(M) = 6$ ist, als repräsentativer Wert von Komponenten hohen Molekulargewichts verwendet wurde.

[0099] Mit anderen Worten, selbst wenn die Molekulargewichtsverteilung M_w/M_n 7 bis 12 ist, kann der Zusammensetzungsstatus des Komponenten hohen Molekulargewichts und der Komponenten niederen Molekulargewichts nicht bestimmt werden, da dieser Wert nur die Breite der Molekulargewichtsverteilung darstellt. Daher werden im vorliegenden Aspekt sowohl Streckbarkeit wie auch Stehspannungseigenschaft realisiert, indem ermöglicht wird, dass die Molekulargewichtszusammensetzung des Polypropylenharzes, das den biaxial gestreckten Polypropylenfilm für einen Kondensator der vorliegenden Erfindung bildet, eine breite Molekulargewichtsverteilung hat, während gleichzeitig eine Molekulargewichtsverteilung vorliegt, die gewisse Komponenten mit einem gewichtsgemittelten Molekulargewicht von 10.000 bis 100.000 bei einem gewissen konstanten Verhältnis oder mehr in Bezug auf Komponenten mit einem gewichtsgemittelten Molekulargewicht von 1.000.000 enthält.

[0100] Da das Polypropylenharz, das den biaxial gestreckten Polypropylenfilm für einen Kondensator der vorliegenden Erfindung bildet, eine Zusammensetzung aus Komponenten niederen Molekulargewichts aufweisen muss, die höher ist als die Zusammensetzung aus Komponenten hohen Molekulargewichts, muss der Wert, der durch Subtrahieren des Differentialverteilungswertes, wenn $\text{Log}(M) = 6$ ist, an der hohen Molekulargewichtsseite des gewichtsgemittelten Molekulargewichts von dem Differentialverteilungswert, wenn $\text{Log}(M) = 4,5$ ist, an der niederen Molekulargewichtsseite des gewichtsgemittelten Molekulargewichts erhalten wird, positiv sein und dieser Wert muss 8% oder mehr in Bezug auf den Differentialverteilungswert sein, wenn $\text{Log}(M) = 4,5$ ist. Wenn diese Differenz jedoch 20% übersteigt, treten Probleme in Bezug auf Filmformbarkeit und mechanische Wärmebeständigkeit auf, da die Menge an Komponenten niederen Molekulargewichts übermäßig groß wird, wodurch dies im Sinne der praktischen Verwendung unerwünscht ist.

[0101] Die oben erwähnten Differentialverteilungswerte können allgemein durch GPC in der in der Folge beschriebenen Weise gemessen werden. Eine Zeitkurve (typischerweise als Elutionskurve bezeichnet) der Intensitätsverteilung, wie mit einem GPC-Differentialrefraktometer (RI-Detektor) nachgewiesen, wird als Verteilungskurve in Bezug auf das logarithmische Molekulargewicht ($\text{Log}(M)$) unter Verwendung einer Kalibrierungskurve verwendet, die von einer Substanz mit bekanntem Molekulargewicht erhalten wird. Da hier die RI-nachgewiesene Intensität in einem proportionalen Verhältnis zur Komponentenkonzentration vorliegt, kann eine integrale Verteilungskurve in Bezug auf das logarithmische Molekulargewicht ($\text{Log}(M)$) im Falle einer Zuordnung eines Wertes von 100% zu der Gesamtfläche der Verteilungskurve erhalten werden. Eine Differentialverteilungskurve kann dann durch Differenzieren dieser integralen Verteilungskurve für $\text{Log}(M)$ erhalten werden. Somit bezieht sich "Differentialverteilung" in der vorliegenden Erfindung auf die Differentialverteilung von Konzentrationsprozent in Bezug auf das Molekulargewicht. Das Verhältnis gemäß dem vorliegenden Aspekt kann aus dieser Kurve erhalten werden, indem der Differentialverteilungswert für einen spezifischen $\text{Log}(M)$ abgelesen wird.

[0102] Obwohl eine hohe Stehspannungseigenschaft nach dem Stand der Technik durch Erhöhen des Wertes der Stereoregularität (Kristallinität) realisiert werden kann, führt dies alleine noch immer zu einer Abnahme in Streckbarkeit und einer Schwierigkeit, einen extrem dünnen Film zu erhalten. Eine erhöhte Stehspannungseigenschaft und Streckbarkeit kann durch Einstellen des gewichtsgemittelten Molekulargewichts, der Molekulargewichtsverteilung und des zusammengesetzten Verhältnisses zwischen Komponenten hohen Molekulargewichts und Komponenten niederen Molekulargewichts des Polypropylenharzes, das den biaxial gestreckten Polypropylenfilm bildet, so dass sie in die oben erwähnten Bereiche fallen, erhalten werden.

[0103] In dem biaxial gestreckten Polypropylenfilm der vorliegenden Erfindung sind in der Zusammensetzung der Molekulargewichtsverteilung des Polypropylenharzes, das den oben erwähnten Film bildet, Komponenten mit einem gewichtsgemittelten Molekulargewicht von etwa 31.600 ($\text{Log}(M) = 4,5$), wobei das gewichtsgemittelte Molekulargewicht an der niederen Molekulargewichtsseite ist, in einer größeren Menge vorhanden als Komponenten mit einem gewichtsgemittelten Molekulargewicht von 1.000.000 ($\text{Log}(M) = 6$), wobei das gewichtsgemittelte Molekulargewicht an der hohen Molekulargewichtsseite ist. In einem Film mit annähernd derselben Stereoregularität und Molekulargewichtsverteilung wie dem oben erwähnten Polypropylenharz ist bekannt, dass ein geringeres gewichtsgemitteltes Molekulargewicht des Polypropylenharzes zu einer höheren Durchschlagsspannung führt oder mit anderen Worten, einer besseren Stehspannungseigenschaft. Auf diese Weise kann die Stehspannungseigenschaft des biaxial gestreckten Polypropylenfilms verbessert werden, indem eine größere Menge an Komponenten niederen Molekulargewichts vorhanden ist, während die Molekulargewichtsverteilung, das heißt, M_w/M_n und M_z/M_n , innerhalb der oben erwähnten Bereiche gehalten wird.

[0104] Das Polymerisationsverfahren, das zur Herstellung des Polypropylenharzrohmaterials zur Herstellung des biaxial orientierten Films der vorliegenden Erfindung verwendet wird, ist nicht auf das oben erwähnte Herstellungsverfahren beschränkt, sondern es kann vielmehr ohne Einschränkung ebenso ein allgemein bekanntes Polymerisationsverfahren verwendet werden. Beispiele für allgemein bekannte Polymerisationsverfahren enthalten Dampfphasenpolymerisation, Blockpolymerisation und Aufschlammungspolymerisation.

[0105] Das Verfahren, das zum Polymerisieren von Polypropylenharzrohmaterial der vorliegenden Erfindung verwendet wird, kann eine einstufige (Ein-Schritt-)Polymerisationsreaktion sein, die einen einzigen Polymerisationsreaktor verwendet, oder eine mehrstufige Polymerisationsreaktion, die mindestens zwei oder mehr Polymerisationsreaktoren verwendet. Ferner kann das Polymerisationsverfahren auch jenes sein, das durch Hinzufügen von Wasserstoff oder Comonomer zum Reaktor als Molekulargewichtsmodifikator ausgeführt wird.

[0106] Zusätzlich enthalten Beispiele für Verfahren, die zum Einstellen des Differenzwertes des Polypropylenharzes, das den biaxial gestreckten Polypropylenfilm der vorliegenden Erfindung bildet, der durch Subtrahieren des Differentialverteilungswertes, wenn $\text{Log}(M) = 6$ an der hohen Molekulargewichtsseite ist, vom Differentialverteilungswert, wenn $\text{Log}(M) = 4,5$ ist, erhalten wird, auf 8% bis 20% in Bezug auf den Differentialverteilungswert, wenn $\text{Log}(M) = 4,5$, verwendet werden, ein Verfahren zur Herstellung eines biaxial gestreckten Polypropylenfilms unter Verwendung eines Polypropylenharzrohmaterials, für das das Molekulargewicht durch Polymerisationsbedingungen eingestellt wurde, ein Verfahren zur Herstellung eines biaxial gestreckten Polypropylenfilms unter Verwendung eines Polypropylenharzrohmaterials, in dem Komponenten hohen Molekulargewichts selektiv einer Zersetzungsbehandlung mit einem Zersetzungsmittel unterzogen wurden, und ein Verfahren zur Herstellung eines biaxial gestreckten Polypropylenfilms unter Verwendung eines Polypropylenharzrohmaterials, in dem Harze mit unterschiedlichen Molekulargewichten gemischt wurden.

[0107] Wenn im Fall der Verwendung eines Verfahrens zur Herstellung eines biaxial gestreckten Polypropylenfilms unter Verwendung eines Polypropylenharzrohmaterials, in dem die Zusammensetzung der Molekulargewichtsverteilung eingestellt wurde, das oben erwähnte Verfahren zur Herstellung eines Polypropylenharzrohmaterials unter Verwendung eines olefinartigen Polymerisationskatalysators verwendet wurde, können die Molekulargewichtsverteilung und die Zusammensetzung des gewichtsgemittelten Molekulargewichts leicht durch eine einstufige Polymerisationsreaktion eingestellt werden, wodurch dies bevorzugt ist.

[0108] Andererseits kann im Falle der Herstellung des Films unter Verwendung eines Polypropylenharzrohmaterials, das durch eine mehrstufige Polymerisationsreaktion hergestellt wird, das Polypropylenharzrohmaterial nach einem Verfahren wie dem in der Folge beschriebenen hergestellt werden.

[0109] Eine Polymerisation wird bei einer hohen Temperatur unter Verwendung mehrerer Reaktoren ausgeführt, die aus einem Polymerisationsreaktor hohen Molekulargewichts und einem Polymerisationsreaktor niederen Molekulargewichts oder mittleren Molekulargewichts bestehen. Komponenten hohen Molekulargewichts und Komponenten niederen Molekulargewichts des gebildeten Harzes können unabhängig von der Reihenfolge der Reaktoren eingestellt werden. Zunächst werden in einem ersten Polymerisationsschritt das Rohmaterial in Form von Polypropylen und eine Katalysator zu einem ersten Polymerisationsreaktor geleitet. Ein Molekulargewichtsmodifikator in der Form von Wasserstoff wird mit diesen Komponenten in einer Menge gemischt, die erforderlich ist, um ein erforderliches Polymermolekulargewicht zu erreichen. Im Falle einer Aufschlammungspolymerisation zum Beispiel ist die Reaktionstemperatur vorzugsweise etwa 70°C bis 100°C und die Verweilzeit ist vorzugsweise etwa 20 Minuten bis 100 Minuten. Die mehreren Reaktoren können verwendet werden, während sie zum Beispiel in Serie verbunden sind, und in diesem Fall wird das Polymerisationsprodukt des ersten Schritts kontinuierlich gemeinsam mit zusätzlichem Polypropylen, Katalysator und Molekulargewichtsmodifikator zum nächsten Reaktor geleitet. Eine zweite Polymerisation wird fortlaufend ausgeführt, um ein Gemisch mit einem geringeren gewichtsgemittelten Molekulargewicht oder höherem gewichtsgemittelten Molekulargewicht als das Polymerisationsprodukt des ersten Polymerisationsschritts zu erhalten. Die Zusammensetzung aus Komponenten hohen Molekulargewichts und Komponenten niederen Molekulargewichts kann durch Einstellen der Ausbeute (des Produktionsertrags) der ersten und zweiten Reaktoren eingestellt werden.

[0110] Der oben erwähnte olefinartige Polymerisationskatalysator gemäß der vorliegenden Erfindung wird vorzugsweise für den Katalysator verwendet. Zusätzlich kann auch eine Co-Katalysatorkomponente oder ein Spender enthalten sein. Die Molekulargewichtsverteilung kann durch geeignete Einstellung des Katalysators und der Polymerisationsbedingungen kontrolliert werden, wodurch dies bevorzugt ist.

[0111] Im Falle einer Verwendung eines Verfahrens zur Herstellung eines biaxial gestreckten Polypropylenfilms unter Verwendung eines Polypropylenharzrohmaterials, in dem die Molekulargewichtsverteilung durch

Peroxidzersetzung eingestellt wurde, wird vorzugsweise ein Polypropylenharzrohmaterial verwendet, für das die Molekulargewichtsverteilung des Polypropylenharzrohmaterials eingestellt wurde, indem es einer Peroxidbehandlung mit einem Zersetzungsmittel wie Wasserstoffperoxid oder einem anorganischen Peroxid unterzogen wurde.

[0112] Wenn ein Peroxid zu einem zersetzungsartigen Polymer in der Art von Polypropylen zugegeben wird, erfolgt eine Reaktion, die Wasserstoff aus dem Polymer extrahiert, und obwohl ebenfalls eine Vernetzungsreaktion eintritt, durch die sich ein Teil der erhaltenen Polymerradikale vereint, ist von nahezu allen Radikalen bekannt, dass sie eine sekundäre Zersetzung (β -Spaltung) erfahren und sich in zwei Polymere mit niedrigerem Molekulargewicht teilen. Somit schreitet eine Zersetzung von Komponenten hohen Molekulargewichts mit hoher Wahrscheinlichkeit fort und infolgedessen nehmen Komponenten niedrigeren Molekulargewichts zu und die Zusammensetzung der Molekulargewichtsverteilung kann eingestellt werden. Ein Beispiel eines Verfahrens zum Erhalten eines Polypropylenharzrohmaterials, das eine geeignete Menge an Komponenten niedrigeren Molekulargewichts enthält, durch Peroxidzersetzung ist unten beschrieben.

[0113] Polymerpulver oder Pellets eines Polypropylenharzrohmaterials, das durch Polymerisation erhalten wird, und ein organisches Peroxid, wie 1,3-Bis(tertiär-butylperoxyisopropyl)-benzol werden zugegeben und auf etwa 0,001 Gew.-% bis 0,5 Gew.-% in Bezug auf das Gesamtgewicht des Polypropylenharzrohmaterials eingestellt, wobei die Zielzusammensetzung aus Komponenten hohen Molekulargewichts und Komponenten niedrigeren Molekulargewichts berücksichtigt wird. Ein Polypropylenharzrohmaterial mit einer Ziel-Molekulargewichtsverteilung kann durch Schmelzen und Kneten des Polymerpulvers oder der Pellets des Polypropylenharzrohmaterials mit der Zielzusammensetzung bei etwa 180°C bis 300°C mit einer Schmelz-Knetvorrichtung erhalten werden.

[0114] Im Fall der Verwendung eines Verfahrens zur Herstellung eines biaxial gestreckten Polypropylenfilms unter Verwendung eines Polypropylenharzrohmaterials, für das der Gehalt an Komponenten niedrigeren Molekulargewichts durch Mischen eingestellt wurde (Harzmischen), wird vorzugsweise ein Polypropylenharzrohmaterial verwendet, das durch Mischen im trockenen Zustand oder nach dem Schmelzen von mindestens zwei oder mehr Arten von Harzrohmaterialien mit unterschiedlichen Molekulargewichten erhalten wurde.

[0115] Im Allgemeinen wird vorzugsweise ein gemischtes System von zwei Arten von Polypropylenen für das Polypropylenharzrohmaterial verwendet, das durch Mischen eines primären Harzes (A) mit einem hinzugefügten Harz (B) mit einem gewichtsgemittelten Molekulargewicht, das entweder höher oder geringer als jenes des primären Harzes (A) ist, bei etwa 1 Gew.-% bis 40 Gew.-% in Bezug auf das Gesamtgewicht des primären Harzes erhalten wird. Das oben erwähnte Polypropylen-Mischsystem ist bevorzugt, da es die Einstellung der Menge an Komponenten niedrigeren Molekulargewichts erleichtert.

[0116] Zusätzlich kann im Falle der Verwendung der oben erwähnten Einstellung durch Mischen das durchschnittliche Molekulargewicht des Harzes auch durch MRF gemessen werden. In diesem Fall ist vom Standpunkt einer größeren Bequemlichkeit während der Einstellung bevorzugt, die Differenz zwischen MFR-Werten des primären Harzes (A) und hinzugefügten Harzes (B) auf etwa 1 g/10 min bis 30 g/10 min zu bringen.

[0117] Obwohl es keine besonderen Einschränkungen bezüglich des Verfahrens gibt, das zum Mischen des Polypropylenharzrohmaterials (A) und des hinzugefügten Harzes (B) mit unterschiedlichen Molekulargewichten verwendet wird, kann ein Verfahren, das aus Trockenmischen von Polymerpulver oder Pellets mit einem Mischer und dergleichen besteht, oder ein Verfahren, das aus dem Zuleiten von Polymerpulver oder Pellets des primären Harzes (A) und des hinzugefügten Harzes (B) zu einer Knetvorrichtung, gefolgt vom Schmelzen und Kneten besteht, um ein gemischtes Harz zu erhalten, verwendet werden.

[0118] Es gibt keine besonderen Einschränkungen bezüglich des Mixers oder der Knetvorrichtung, die verwendet werden, und es kann ein Einzelschneckentyp, Doppelschneckentyp oder Mehrfachschnackentyp mit einer größeren Anzahl von Schnecken verwendet werden. Ferner kann im Falle einer Verwendung eines Typs mit zwei oder mehr Schnecken die Art des Knetens jene sein, bei der die Schnecken in derselben Richtung oder in unterschiedlichen Richtungen drehen.

[0119] Auch wenn es beim Mischen durch Schmelzen und Kneten keine besonderen Einschränkungen bezüglich der bereitgestellten Knettemperatur gibt, vorausgesetzt es wird ein günstiges Kneten erhalten, liegt diese im Allgemeinen im Bereich von 200°C bis 300°C und vorzugsweise 230°C bis 270°C. Wenn die Knettemperatur 300°C übersteigt, kann dies zu einer Verschlechterung des Harzes führen, wodurch dies unerwünscht ist. Zur Vermeidung einer Verschlechterung des Harzes während des Knetens oder Mischens kann die Knet-

vorrichtung mit einem inerten Gas wie Stickstoff gespült werden. Gemischte Pellets des Polypropylenharzrohmaterials können durch Pelletieren des geschmolzenen, gekneteten Harzes mit einem allgemein bekannten Pelletierer zu einer geeigneten Größe erhalten werden.

[0120] Der gesamte Aschengehalt, der einem Polymerisationskatalysatorrückstand und dergleichen zuzuschreiben ist, der im biaxial gestreckten Polypropylenfilm der vorliegenden Erfindung enthalten ist, ist vorzugsweise so gering wie möglich, um die elektrischen Eigenschaften zu verbessern, und ist 50 Gewichts-ppm oder weniger und vorzugsweise 40 Gewichts-ppm oder weniger, in Bezug auf das Gesamtgewicht des Polypropylenfilms.

[0121] Gemäß den oben erwähnten Verfahren kann der Wert der Differenz, der durch Subtrahieren des Differentialverteilungswertes, wenn $\text{Log}(M) = 6$ ist, an der hohen Molekulargewichtsseite von dem Differentialverteilungswert, wenn $\text{Log}(M) = 4,5$ ist, des Polypropylenharzes, das den biaxial gestreckten Polypropylenfilm der vorliegenden Erfindung bildet, erhalten wird, auf 8% bis 20% in Bezug auf den Differentialverteilungswert eingestellt werden, wenn $\text{Log}(M) = 4,5$ ist. Der biaxial gestreckte Polypropylenfilm für einen Kondensator der vorliegenden Erfindung wird vorzugsweise durch Formen des Polypropylenharzrohmaterials, das unter Verwendung des oben erwähnten olefinartigen Polymerisationskatalysators erhalten wird, zu einem Film erhalten.

[0122] Zusätzlich ist der biaxial gestreckte Polypropylenfilm der vorliegenden Erfindung vorzugsweise ein biaxial gestreckter Polypropylenfilm für einen Kondensator mit Molekulareigenschaften, so dass, neben einem gewichtsgemittelten Molekulargewicht und einer Molekulargewichtsverteilung wie zuvor beschrieben, das Polypropylenharz, das den biaxial gestreckten Polypropylenfilm der vorliegenden Erfindung bildet, vorzugsweise einen Mesopentad-Anteil ([mmmm]), der der Grad an Stereoregularität ist, wie durch Hochtemperatur-Kernmagnetresonanz (NRM) bestimmt, von 94% oder mehr bis weniger als 98% und bevorzugter 95 bis 97% aufweist.

[0123] Wenn der Mesopentad-Anteil ([mmmm]) 94% oder mehr ist, verbessert sich die Harzkristallinität und es wird eine hohe Stehspannungseigenschaft aufgrund der Komponenten mit hoher Stereoregularität gezeigt. Wenn andererseits der Mesopentad-Anteil ([mmmm]) geringer als 94% ist, neigen die Stehspannungseigenschaft und mechanische Wärmebeständigkeit dazu, schlechter zu sein. Zusätzlich, wenn der Mesopentad-Anteil ([mmmm]) auf 98% oder mehr eingestellt ist, wird die Verfestigungsrate (Kristallisierungsrate) beim Formen eines gegossenen Folienmaterials übermäßig hoch, was zu einer größeren Anfälligkeit für das Auftreten einer Trennung von der Metalltrommel, die für die Folienformung verwendet wird, und einer verminderten Streckbarkeit führt. Das heißt, wenn der Mesopentad-Anteil ([mmmm]) des Polypropylenharzes, das den biaxial gestreckten Polypropylenfilm der vorliegenden Erfindung bildet, 94% oder mehr bis weniger als 98% ist, wird neben einer verbesserten Harzkristallinität und hoher Stehspannungseigenschaft die Verfestigungsrate beim Formen eines gegossenen Folienmaterials nicht übermäßig schnell und es besteht eine geringere Wahrscheinlichkeit einer Trennung von der Metalltrommel, die für die Folienformung verwendet wird, wodurch dies bevorzugt ist.

[0124] Hier bezieht sich "Mesopentad-Anteil ([mmmm])" auf einen Indikator zur Bestimmung des stereoregulären Gehalts von fünf benachbarten Monomereinheiten.

[0125] Es gibt keine besonderen Einschränkungen bezüglich des Hochtemperatur-NMR-Systems zum Messen des Mesopentad-Anteils ([mmmm]) und es kann ein normales, im Handel erhältliches Hochtemperatur-Kernmagnetresonanz-(NMR)System, das imstande ist die Stereoregularität von Polyolefinen zu messen, verwendet werden, wie das HNM-ECP500 Hochtemperatur-Fourier-Transformations-Kernmagnetresonanzsystem (Hochtemperatur-FT-NMR), hergestellt von JEOL Ltd. Der beobachtete Kern ist ^{13}C (125 MHz), die Mess-temperatur ist 135°C und Ortho-Dichlorbenzol (ODCB: gemischtes Lösemittel von ODCB und deuterisiertem ODCB (Mischverhältnis 4/1)) wird als Lösemittel verwendet. Hochtemperatur-NMR kann unter Verwendung eines bekannten Verfahrens wie dem Verfahren, das in "Polymer Analysis Handbook – Neuauflage, Japan Society for Analytical Chemistry, Research Committee of Polymer Analysis, KINOKUNIYA COMPANY LTD., 1995, S. 610" beschrieben ist, verwendet werden.

[0126] Der Messmodus ist auf Einzelpuls-Proton-Breitbandentkopplung eingestellt, die Pulsbreite ist 9,1 μsec (45° Puls), das Pulsintervall ist 5,5 sec, die Anzahl von Integrationen ist 4500 und CH_3 [mmmm] = 21,7 ppm wird als chemische Verschiebungsreferenz verwendet.

[0127] Der Pentad-Anteil, der die Stereoregularität darstellt, wird als Prozentsatz des integrierten Wertes der Intensität jedes Signals berechnet, abgeleitet aus einer Kombination von Pentads (wie "mmmm" oder "mrrm"), die in derselben Richtung (meso (m)) angeordnet und in verschiedenen Richtungen (racemo (r)) angeordnet sind. Die Zuordnung jedes Signals, das von "mmmm" oder "mrrm" und dergleichen abgeleitet ist, kann unter

Bezugnahme auf die Beschreibung von Spektren in zum Beispiel "T. Hayashi, et al., Polymer, Band 29, S. 138 (1988)" erfolgen.

[0128] Auf diese Weise kann, da das Polypropylenharz, das den biaxial gestreckten Polypropylenfilm für einen Kondensator der vorliegenden Erfindung bildet, einen geeigneten Gehalt an den oben erwähnten Komponenten niederen Molekulargewichts hat, oder mit anderen Worten, Komponenten niederen Molekulargewichts mit einem gewichtsgemittelten Molekulargewicht von 10.000 bis 100.000, Streckbarkeit verliehen werden, während eine hohe Stehspannungseigenschaft beibehalten wird, ohne eine extrem hohe Stereoregularität in der Weise zu haben, dass ein Mesopentad-Anteil von mehr als 98% wie nach dem Stand der Technik vorhanden ist.

[0129] Der oben erwähnte Mesopentad-Anteil ([mmmm]) kann durch geeignete Einstellung der oben erwähnten Polymerisationsbedingungen, der Art des Katalysators oder der Menge des Katalysators und dergleichen kontrolliert werden.

[0130] In der vorliegenden Erfindung bezieht sich die Hochtemperatur-Stehspannungseigenschaft (Durchschlagfestigkeit) des biaxial gestreckten Polypropylenfilms auf die Wechselstromdurchschlagsstärke, die durch Messen des Wertes der Durchschlagspannung durch Wechselstrom nach JIS-C2330 (entsprechend dem Standard; IEC60674-3-1 1998), Abschnitt 7.4.11.2 (Durchschlagspannung – Plattenelektrodenmethode: Methode B) und der Gleichstromdurchschlagsstärke, bestimmt durch Messen einer Durchschlagspannung durch Gleichstrom nach JIS-C2330 Abschnitt 7.4.11.2 (Durchschlagspannung – Plattenelektrodenmethode: Methode B) bestimmt wird. In der vorliegenden Erfindung bezieht sich "bessere Stehspannungseigenschaft" auf einen Wert der oben erwähnten Wechselstromdurchschlagsstärke von 300 Vac/ μm oder mehr und einen Wert einer Gleichstromdurchschlagsstärke von 480 Vdc/ μm oder mehr.

[0131] Eine kurzfristige Stehspannungseigenschaft (Durchschlagfestigkeitswert) unter hohen Temperaturen des biaxial gestreckten Polypropylenfilms für einen Kondensator der vorliegenden Erfindung kann auf diese Weise verbessert werden. Auf dem Markt jedoch und insbesondere in Anwendungen in der Automobilindustrie wie zuvor beschrieben, besteht ein noch größerer Bedarf an der Erhöhung der Betriebsdauer (langfristigen Haltbarkeit) des Films, wenn dieser kontinuierlich einer hohen Spannung bei hohen Temperaturen ausgesetzt wird.

[0132] Wenn ein Kondensator kontinuierlich einer hohen Spannung bei hohen Temperaturen ausgesetzt ist, wie oben beschrieben, erfolgt eine spontane Wärmeerzeugung im Inneren des Films im Kondensatorelement, Oxidation und thermische Verschlechterung schreiten im Laufe der Zeit fort, und infolgedessen nimmt die Kondensatorleistung, oder mit anderen Worten, die elektrostatische Kapazität des Kondensators, ab.

[0133] Verfahren zur Auswertung der langfristigen Haltbarkeit eines Kondensatorelements (oder eines Kondensatorfilms) auf diese Weise sind typischerweise gut bekannt und bestehen aus der Auswertung der Betriebsdauer (langfristigen Haltbarkeit) eines Kondensatorelements (oder Kondensatorfilms) durch Einwirkung einer hohen Temperatur, hohen Spannungsbelastung bei einer Temperatur und Spannung, die höher als jene während des tatsächlichen Gebrauch sind. Insbesondere besteht ein allgemein bekanntes Verfahren aus der Aufzeichnung der Änderungsrate in der elektrostatischen Kapazität eines Kondensatorelements über eine lange Zeitperiode (wie über 2000 Stunden oder etwa 80 Tage) im Fall einer kontinuierlichen Aussetzung eines Kondensatorelements einer hohen Gleichspannung (wie 600 V bis 900 V) bei einer Umgebungstemperatur von 100°C oder höher (wie 105°C).

[0134] Da ein Kondensator, der einen Film mit günstiger langfristiger Haltbarkeit, das heißt, einer langen Betriebsdauer, verwendet, ohne ein Fortschreiten einer Verschlechterung zu ermöglichen, eine geringe Filmverschlechterung erfährt, selbst wenn er einer hohen Spannung über 2000 Stunden wie oben beschrieben ausgesetzt wird, gibt es eine geringe Abnahme in der elektrostatischen Kapazität. Andererseits nimmt im Falle eines Kondensators, der einen Film verwendet, in dem eine Verschlechterung rasch voranschreitet und die langfristige Haltbarkeit schlechter ist, die elektrostatische Kapazität im Laufe der Zeit tendenziell merklich ab.

[0135] Auf diese Weise, da eine Testung der langfristigen Haltbarkeit von Kondensatorfilmen aus einer Auswertung des Kondensatorelements anhand einer Veränderung in der elektrostatischen Kapazität bei einem kontinuierlichen Einwirken einer hohen Temperatur und hohen Spannung wie zuvor beschrieben über eine vorgeschriebene Zeitdauer (wie 2000 Stunden oder etwa 80 Tage) besteht, ist eine Verbesserung dieser Veränderung in der elektrostatischen Kapazität eine wichtige technische Anforderung.

[0136] Hier bezieht sich langfristige Haltbarkeit (Veränderung in der elektrostatischen Kapazität) des Films eines Kondensators der vorliegenden Erfindung auf die Änderungsrate in der elektrostatischen Kapazität zwischen einer ersten Runde einer Spannungsbelastung und einer vierten Runde einer Spannungsbelastung, ausgewertet durch Aussetzen des Kondensatorelements einer Gleichspannungslast von 1,0 kV über 1 Minute in einer Hochtemperaturkammer bei 105°C, Messen der Kapazität des Elements nach Beendigung der Spannungsbelastung mit einem LCR-Tester, Zurückbringen des Elements in die Hochtemperaturkammer, Ausführen einer zweiten Runde einer Spannungsbelastung, Bestimmen der zweiten Veränderung in der Kapazität (kumulativ) und viermaliges Wiederholen dieser Prozedur. In der vorliegenden Erfindung bezieht sich "bessere langfristige Haltbarkeit" auf einen Wert der vierten gemessenen Änderungsrate in der elektrischen Kapazität, gemessen nach der obengenannten Prozedur, von -20% oder weniger.

[0137] Ferner betrifft die vorliegende Erfindung auch einen biaxial gestreckten Polypropylenfilm für einen Kondensator, der imstande ist, eine Verschlechterung im Laufe der Zeit bei langfristiger Verwendung zu hemmen. Insbesondere betrifft die vorliegende Erfindung einen biaxial gestreckten Polypropylenfilm für einen Kondensator, dadurch gekennzeichnet, dass ein isotaktisches Polypropylen, das den oben erwähnten biaxial gestreckten Polypropylenfilm bildet, mindestens eine Art von gehindertem Antioxidans auf Phenolbasis mit einer Carbonylgruppe enthält und der Restgehalt des oben erwähnten gehinderten Antioxidans auf Phenolbasis im oben erwähnten Film 4000 Gewichts-ppm bis 6000 Gewichts-ppm, in Bezug auf das Gesamtgewicht des oben erwähnten Films ist.

[0138] Beispiele für das oben erwähnte gehinderte Antioxidans auf Phenolbasis mit einer Carbonylgruppe, das in dem biaxial gestreckten Polypropylenfilm für einen Kondensator der vorliegenden Erfindung verwendet wird, enthalten

Triethylenglycol-bis[3-(3-tertiär-butyl-5-methyl-4-hydroxyphenyl)propionat] (Handelsname: Irganox 245, BASF Corp.),

1,6-Hexandiol-bis[3-(3,5-di-tertiär-butyl-4-hydroxyphenyl)propionat] (Handelsname: Irganox 259, BASF Corp.),

Pentaerythrityl-tetrakis[3-(3,5-di-tertiär-butyl-4-hydroxyphenyl)propionat] (Handelsname: Irganox 1010, BASF Corp.),

2,2-Thiodiethylenbis[3-(3,5-di-tertiär-butyl-4-hydroxyphenyl)propionat] (Handelsname: Irganox 1035 BASF Corp.),

Octadecyl-3-(3,5-di-tertiär-butyl-4-hydroxyphenyl)propionat (Handelsname: Irganox 1076 BASF Corp.) und N,N'-Hexamethylenbis(3,5-di-tertiär-butyl-4-hydroxyhydrocinnamid) (Handelsname: Irganox 1098 BASF Corp.).

Von diesen ist Pentaerythrityl-tetrakis[3-(3,5-di-tertiär-butyl-4-hydroxyphenyl)propionat] aufgrund seines hohen Molekulargewichts, der weitreichenden Kompatibilität mit Polypropylenharz, geringen Flüchtigkeit und besseren Wärmebeständigkeit am bevorzugtesten.

[0139] Der Gehalt an gehindertem Antioxidans auf Phenolbasis mit einer Carbonylgruppe im biaxial gestreckten Polypropylenfilm für einen Kondensator der vorliegenden Erfindung, das heißt, die Restmenge im Film, ist 4000 Gewichts-ppm bis 6000 Gewichts-ppm, in Bezug auf das Gesamtgewicht des oben erwähnten Films ist. Wenn der Gehalt an gehindertem Antioxidans auf Phenolbasis mit einer Carbonylgruppe (Restmenge im Film) geringer als 4000 Gewichts-ppm, in Bezug auf das Gesamtgewicht des oben erwähnten Films, ist, ist die Wirkung zur Hemmung einer oxidativen Verschlechterung in einem langfristigen Betriebsdauertest des biaxial gestreckten Polypropylenfilms unangemessen. Das heißt, die Wirkung einer Verbesserung einer langfristigen Haltbarkeit bei hohen Temperaturen und hoher Spannung, das heißt, die Wirkung einer Hemmung einer Abnahme in der elektrostatischen Kapazität, wird nicht angemessen gezeigt, wodurch dies unerwünscht ist. Wenn andererseits die Restmenge an gehindertem Antioxidans auf Phenolbasis mit einer Carbonylgruppe in dem Film 6000 Gewichts-ppm, in Bezug auf das Gesamtgewicht des oben erwähnten Films, übersteigt, gibt es Fälle, in welchen das Antioxidans an sich ein Ladungsträger (eine Art von Unreinheit) wird und infolgedessen Strom bei hohen Spannungen erzeugt wird und somit Phänomene auftreten, die zu einem Durchschlag führen, der als thermisches Durchgehen oder Bruch bezeichnet wird, während im Gegensatz dazu die langfristige Haltbarkeit verloren geht, was dies unerwünscht macht. Die Restmenge an gehindertem Antioxidans auf Phenolbasis mit einer Carbonylgruppe in dem Film ist vorzugsweise 4500 Gewichts-ppm bis 6000 Gewichts-ppm und bevorzugter 5000 Gewichts-ppm bis 6000 Gewichts-ppm, in Bezug auf das Gesamtgewicht des oben erwähnten Films.

[0140] Ein Kondensatorfilm, in dem ein gehindertes Antioxidans auf Phenolbasis mit einer Carbonylgruppe, das eine günstige Kompatibilität mit Polypropylenharz auf Molekularebene hat, in dem oben erwähnten optimalen Bereich enthalten ist, hat eine bessere langfristige Haltbarkeit, ohne eine Abnahme in der elektrostatischen Kapazität (ohne eine Fortschreiten einer Verschlechterung zu ermöglichen) über einen langen Zeitraum

von 1000 Stunden, das heißt 40 Tage oder mehr, in einem beschleunigten Lebensdauerstest bei einer extrem hohen Temperatur von 100°C oder höher zu erfahren, während eine hohe Stehspannungseigenschaft (Durchschlagspannungswert) aufrechterhalten wird, die durch Einstellen einer Molekulargewichtsverteilung wie zuvor beschrieben erhalten wird.

[0141] Ein Verfahren zum Kontrollieren des Gehalts des gehinderten Antioxidans auf Phenolbasis mit einer Carbonylgruppe in dem Film auf die oben erwähnten Bereiche wird in dem Abschnitt über Antioxidantien erklärt, die anschließend beschrieben werden.

[0142] Die Molekulareigenschaften des Polypropylenharzes, das den biaxial gestreckten Polypropylenfilm für einen Kondensator der vorliegenden Erfindung bildet (gewichtsgemittelt Molekulargewicht, Molekulargewichtsverteilung, Zusammensetzung aus Molekulargewichtsverteilung und Stereoregularität) geben Werte des Harzes an, das den Film bildet, nachdem es einen Filmbildungsschritt durchlaufen ist, und nicht Werte für das Harzrohmaterial an sich zur Herstellung eines Films. Im Verlauf des Filmbildungsschritts erfährt das Polypropylenharz, das diesen Film bildet, keinen geringen Grad an thermischer Verschlechterung, oxidativer Verschlechterung, Scherverschlechterung oder Dehnungsver schlechterung in einem Extruder und die Zersetzung fährt fort. Damit verbunden unterscheiden sich in vielen Fällen das gewichtsgemittelte Molekulargewicht, die Molekulargewichtsverteilung und Stereoregularität zwischen dem Polypropylenharzrohmaterial und dem Polypropylenharz, das nach der Filmbildung einen Film bildet. Die Molekulareigenschaften des Polypropylenharzes haben eine größere Wirkung auf die Stehspannungseigenschaft und Wärmebeständigkeit eines Films im Zustand eines Films.

[0143] Der Grad des Fortschreitens einer Verschlechterung, das heißt, von Veränderungen in der Molekulargewichtsverteilung und Stereoregularität, kann zum Beispiel danach eingestellt werden, ob die Innenseite des Extruders mit Stickstoff gespült wird oder nicht (Oxidationshemmung), nach der Schneckenform im Extruder (Scherkraft), der Innenform der T-Matrize während des Gusses (Scherkraft), der Menge an zugegebenem Antioxidans (Oxidationshemmung) und der Aufnahmegeschwindigkeit während des Gusses (Dehnungskraft).

[0144] Zusätze wie Antioxidantien zur Hemmung einer Verschlechterung im Extruder, Stabilisatoren wie Chlorabsorptionsmittel oder Ultraviolettabsorptionsmittel, Schmiermittel, Weichmacher, Flammenschutzmittel oder antistatische Mittel können dem Polypropylenharzrohmaterial nach Bedarf in einem Bereich zugegeben werden, der die Wirkungen der vorliegenden Erfindung nicht beeinträchtigt.

[0145] Für die Zugabe zum Polypropylenharzrohmaterial werden Antioxidantien verwendet, die mindestens die zwei Zwecke von Antioxidantien erfüllen, die zur Hemmung einer thermischen Verschlechterung oder oxidativen Verschlechterung im Extruder verwendet werden (auch als "primäre Mittel" bezeichnet), wie auch Antioxidantien, die eine Verschlechterung während einer langfristigen Verwendung als Kondensatorfilm hemmen und zu einer Verbesserung der Kondensatorleistung beitragen (auch als "sekundäre Mittel" bezeichnet).

[0146] Diese primären und sekundären Mittel können dieselben oder unterschiedliche sein.

[0147] Im Falle der Verwendung von verschiedenen Arten von Antioxidantien als primäres und sekundäres Mittel kann zum Beispiel 2,6-Di-tertiär-butyl-para-cresol (generischer Name; BHT) mit etwa 1000 Gewichtsppm bis 4000 Gewichtsppm, in Bezug auf das Gesamtgewicht des Polypropylenharzrohmaterials, zur Verwendung als primäres Mittel zur Hemmung einer Verschlechterung im Extruder zugegeben werden. Ein Antioxidans, das für diesen Zweck verwendet wird, wird im Formungsschritt im Extruder nahezu vollständig verbraucht und es verbleibt kaum etwas im Film nach der Filmbildung, Hier gibt "es verbleibt kaum etwas" an, dass die Restmenge des oben erwähnten primären Mittels im Film weniger als 100 Gewichtsppm in Bezug auf das Gesamtgewicht des Polypropylenharzrohmaterials ist.

[0148] Ein Beispiel für ein zweites Mittel, das eine Verschlechterung während einer langfristigen Verwendung als Kondensator hemmt, das ein Objekt der vorliegenden Erfindung ist und zur Verbesserung einer Kondensatorleistung beiträgt, ist ein gehindertes Antioxidans auf Phenolbasis mit einer Carbonylgruppe.

[0149] Beispiele für gehinderte Antioxidantien auf Phenolbasis mit einer Carbonylgruppe enthalten Triethylenglycol-bis[3-(3-tertiär-butyl-5-methyl-4-hydroxyphenyl)propionat] (Handelsname: Irganox 245), 1,6-Hexandiol-bis[3-(3,5-di-tertiär-butyl-4-hydroxyphenyl)propionat] (Handelsname: Irganox 259), Pentaerythryl-tetrakis[3-(3,5-di-tertiär-butyl-4-hydroxyphenyl)propionat] (Handelsname: Irganox 1010), 2,2-Thiodiethylenbis[3-(3,5-di-tertiär-butyl-4-hydroxyphenyl)propionat] (Handelsname: Irganox 1035, Octadecyl-3-(3,5-di-tertiär-butyl-4-hydroxyphenyl)propionat

(Handelsname: Irganox 1076) und N,N'-Hexamethylenbis(3,5-di-tertiär-butyl-4-hydroxy-hydrocinnamid (Handelsname: Irganox 1098). Von diesen ist Pentaerythryl-tetrakis[3-(3,5-di-tertiär-butyl-4-hydroxyphenyl)propionat aufgrund seines hohen Molekulargewichts, der weitreichenden Kompatibilität mit Polypropylenharz, geringen Flüchtigkeit und besseren Wärmebeständigkeit am bevorzugtesten.

[0150] Die Zugabemenge des gehinderten Antioxidans auf Phenolbasis mit einer Carbonylgruppe liegt vorzugsweise im Bereich von 5000 Gewichts-ppm bis 7000 Gewichts-ppm und bevorzugter im Bereich von 5500 Gewichts-ppm bis 7000 Gewichts-ppm, in Bezug auf das Gesamtgewicht des Polypropylenharzrohmaterials.

[0151] Damit die Restmenge des gehinderten Antioxidans auf Phenolbasis mit einer Carbonylgruppe, die im biaxial gestreckten Polypropylenfilm für einen Kondensator gemäß der vorliegenden Erfindung enthalten ist, im Film 4000 Gewichts-ppm bis 6000 Gewichts-ppm in Bezug auf das Gesamtgewicht des oben erwähnten Films wird, muss die Zugabemenge innerhalb des oben erwähnten Bereichs liegt. Der Grund ist, dass das gehinderte Antioxidans auf Phenolbasis mit einer Carbonylgruppe in keinem geringen Ausmaß im Extruder verbraucht wird, unabhängig vom Vorhandensein oder Fehlen des primären Mittels, das zur Hemmung einer Verschlechterung im Extruder verwendet wird, wie zuvor beschrieben. Die verbrauchte Menge an gehindertem Antioxidans auf Phenolbasis mit einer Carbonylgruppe im Extruder ist normalerweise etwa 1000 Gewichts-ppm bis 2000 Gewichts-ppm, in Bezug auf das Gesamtgewicht des Polypropylenharzrohmaterials.

[0152] Das heißt, wenn die Zugabemenge des gehinderten Antioxidans auf Phenolbasis mit einer Carbonylgruppe in Bezug auf das Gesamtgewicht des Polypropylenharzrohmaterials geringer als 5000 Gewichts-ppm ist, ist die Restmenge des oben erwähnten Antioxidans im biaxial gestreckten Polypropylenfilm für einen Kondensator geringer als 4000 ppm, wodurch verhindert wird, dass die Wirkung einer Verbesserung der langfristigen Haltbarkeit bei hohen Spannungen angemessen gezeigt wird. Wenn andererseits die Zugabemenge des gehinderten Antioxidans auf Phenolbasis mit einer Carbonylgruppe größer als 7000 ppm ist, übersteigt die Restmenge des oben erwähnten Antioxidans in dem Film 6000 ppm, das Antioxidans an sich wird ein Ladungsträger (eine Art von Unreinheit) und die langfristige Haltbarkeit geht umgekehrt tendenziell verloren, wie zuvor beschrieben.

[0153] Falls das oben erwähnte Antioxidans nicht als primäres Mittel verwendet wird, das dem Zweck der Hemmung einer thermischen Verschlechterung oder oxidativen Verschlechterung im Extruder dient, kann es durch ein gehindertes Antioxidans auf Phenolbasis mit einer Carbonylgruppe als Antioxidans für diesen Zweck ersetzt werden. Da in diesem Fall eine beachtliche Menge an gehindertem Antioxidans auf Phenolbasis mit einer Carbonylgruppe verbraucht wird, um eine Verschlechterung im Extruder während des Formungsschritts zu vermeiden, ist die Menge des oben erwähnten gehinderten Antioxidans auf Phenolbasis, wenn kein primäres Mittel verwendet wird, vorzugsweise 6000 Gewichts-ppm bis 7000 Gewichts-ppm, in Bezug auf das Gesamtgewicht des Polypropylenharzrohmaterials.

<Verfahren zum Formen eines gegossenen Folienmaterials>

[0154] Es können verschiedene bekannte Verfahren für das Verfahren verwendet werden, das zum Formen des gegossenen Folienmaterials vor dem Strecken verwendet wird, um den biaxial gestreckten Polypropylenfilm der vorliegenden Erfindung zu bilden. Zum Beispiel werden nach dem Zuleiten von Rohmaterialpellets, die aus Polypropylenrohmaterial-Harzpellets bestehen, die als Rohmaterial dienen, trocken gemischte Polypropylenrohmaterialpellets (und/oder Polymerpulver) oder gemischte Polypropylenrohmaterialpellets, die durch Mischen und Kneten hergestellt wurden, im Voraus einem Extruder zugeleitet, die Pellets werden durch Erwärmen bei 170°C bis 320°C geschmolzen und durch ein Filter geleitet, gefolgt von einem erneuten Schmelzen durch Erwärmen bei 170°C bis 320°C und vorzugsweise 200°C bis 300°C und Schmelzextrudieren aus einer T-Matrize. Anschließend kann ein Verfahren angewendet werden, das aus Kühlen und Verfestigen in mindestens einer oder mehreren Metalltrommel(n) besteht, die bei 80°C bis 140°C gehalten wird, gefolgt vom Formen eines ungestreckten, gegossenen Folienmaterials.

[0155] Während des Formens dieses Materials ist, da die Temperatur der Gruppe von Metalltrommeln bei 80°C bis 140°C und vorzugsweise 90°C bis 120°C gehalten wird, der Prozentsatz an β -Kristallen des Polypropylenharzes, das das resultierende gegossene Folienmaterial bildet, wie durch eine Röntgenmethode bestimmt, 1% bis 50% und vorzugsweise 5% oder mehr bis weniger als 30%. Ferner ist dieser Wert der Wert, wenn kein β -Kristallkernbildungsmittel vorhanden ist.

[0156] Wenn der Prozentsatz an β -Kristallen des Polypropylenharzes, das das gegossene Folienmaterial bildet, übermäßig gering ist, ist die Verarbeitungseignung, wie das Wickeln eines Elements, tendenziell schlecht,

obwohl Kondensatoreigenschaften wie Stehspannungseigenschaft verbessert sind, da die Filmoberfläche glatt wird. Wenn jedoch der oben erwähnte Prozentsatz an β -Kristallen innerhalb der oben erwähnten Bereiche liegt, können sowohl Kondensatoreigenschaften wie auch Elementwickelverarbeitung angemessen erfüllt werden.

[0157] Der oben erwähnte Prozentsatz an β -Kristallen ist ein Wert, der durch Messen einer Röntgenbeugungsintensität erhalten wird. Dieser Wert wird nach der Methode berechnet, die in "A. Turner-Jones, et al., Makromol. Chem., Band 75, S. 134 (1964)" beschrieben ist, und wird normalerweise als K-Wert bezeichnet. Das heißt, der oben erwähnte Prozentsatz an β -Kristallen stellt das Verhältnis von β -Kristallen gemäß der Summe der Höhen von drei Beugungsspitzen, die von α -Kristallen abgeleitet sind, und einem Verhältnis einer einzigen Beugungsspitze, die von β -Kristallen abgeleitet ist, dar.

[0158] Obwohl es keine besonderen Einschränkungen bezüglich der Stärke des oben erwähnten gegossenen Folienmaterials gibt, ist es normalerweise 0,05 mm bis 2 mm und vorzugsweise 0,1 mm bis 1 mm stark.

<Verfahren zum Formen eines biaxial gestreckten Polypropylenfilms>

[0159] Der biaxial gestreckte Polypropylenfilm für einen Kondensator der vorliegenden Erfindung kann durch Ausführung einer Streckbehandlung an dem oben erwähnten gegossenen Polypropylenfolienmaterial hergestellt werden. Das Strecken ist vorzugsweise ein biaxiales Strecken, das entlang der zwei Längs- und Seitenachsen orientiert ist. Zusätzlich ist ein sequenzielles biaxiales Strecken für das Streckverfahren bevorzugt. Ein sequenzielles biaxiales Strecken besteht darin, zuerst das gegossene Folienmaterial bei einer Temperatur von 100°C bis 160°C zu halten, das gegossene Polypropylenfolienmaterial zwischen Walzen mit unterschiedlichen Geschwindigkeiten durchzuleiten, um einen Faktor von 3 bis 7 in Maschinenrichtung zu strecken und sofort auf Raumtemperatur abzukühlen. Durch geeignetes Einstellen der Temperatur dieses Längsstreckungsschritts, das heißt, Halten bei 100°C bis 160°C wie zuvor beschrieben, verschmelzen die β -Kristalle und ändern sich zu α -Kristallen und infolgedessen werden Oberflächenunregelmäßigkeiten in der Filmoberfläche erzeugt. Danach wird der oben erwähnte gestreckte Film zu einem Tender geführt und danach um einen Faktor von 3 bis 11 in seitlicher Richtung bei einer Temperatur von 160°C bis 185°C gestreckt, der Film wird entspannt, verfestigt und aufgewickelt. Der aufgewickelte Film wird einer Alterungsbehandlung bei einer Temperatur von etwa 20°C bis 45°C unterzogen und danach auf eine gewünschte Produktbreite geschnitten.

[0160] Gemäß diesem Streckungsschritt hat der Film eine bessere mechanische Stärke und Starrheit und Oberflächenunregelmäßigkeiten sind artikuliert, was zu einem Film mit feiner Oberflächenrauheit führt.

[0161] Der Oberfläche des Films der vorliegenden Erfindung wird vorzugsweise eine geeignete Oberflächenrauheit verliehen, die zu günstigen Kondensatoreigenschaften führt, während eine Elementwickelung verbessert ist.

[0162] Das heißt, die vorliegende Erfindung ist ferner dadurch gekennzeichnet, dass sie fein oberflächenaufgeraut ist, so dass die Oberflächenrauheit mindestens einer Seite des biaxial gestreckten Polypropylenfilms eine durchschnittliche Mittellinienrauheit (R_a) von 0,05 μm bis 0,15 μm und eine maximale Höhe (R_z) von 0,5 μm bis 1,5 μm aufweist.

[0163] Wenn die Werte für R_a und R_z (vormals in JIS als R_{max} definiert) bis zu einem gewissen Grad groß sind, gleitet der Film zweckdienlich, ist während des Aufwickelns knitterbeständig und ist gegen das Auftreten einer seitlichen Verschiebung bei der Elementwickelverarbeitung, wie Aufwickeln oder Abwickeln, und während der Kondensatorverarbeitung beständig. Wenn diese Werte jedoch übermäßig groß sind, treten Probleme mit Oberflächenglanz, Transparenz und andere Probleme im Sinne einer praktischen Verwendung auf. Zusätzlich erfolgt eine Abnahme in Gewicht und Stärke im Kondensator aufgrund einer Vergrößerung des Spalts zwischen den Filmlagen, die unerwünscht ist, da dies zu einer Abnahme in der Stehspannungseigenschaft führt. Wenn im Gegensatz dazu das Volumen von Vorsprüngen gering ist und die Oberfläche des Films bis zu einem gewissen Grad glatt ist, was dazu führt, dass die Werte von R_a und R_z etwas gering sind, ist dies zwar im Sinne einer Stehspannungseigenschaft vorteilhaft, aber wenn das oben erwähnte Volumen von Vorsprüngen gering ist und R_a und R_z übermäßig gering sind, gleitet der Film nicht leicht, Falten bilden sich leicht während der Wickelverarbeitung und die Produktivität sinkt, wodurch dies unerwünscht ist. Zusätzlich führen feine Falten und dergleichen zu einer Verschlechterung der Stehspannungseigenschaft des Kondensators, was zu Problemen im Sinne der praktischen Verwendung führt.

[0164] R_a und R_z (vormals in JIS als R_{max} definiert) werden mit einem herkömmlichen, allgemein verwendeten stiftartigen oder kontaktlosen Oberflächenrauheitstester und dergleichen nach der Methode gemessen,

die zum Beispiel in JIS-B0601:2001 (entsprechend Standard: ISO4287 1997) definiert ist. Es gibt keine Einschränkungen bezüglich des Vorrichtungsherstellers oder -typs. In Studien, die in der vorliegenden Erfindung durchgeführt wurden, wurden Ra und Rz (vormals in JIS als Rmax definiert) mit einem AY-41 Oberflächenrauheitsanalysegerät unter Verwendung des Oberflächenrauheitsmessinstruments Modell SE-30, hergestellt von Kosaka Laboratory Ltd., nach der Methode bestimmt, die in JIS-B0601 2001 definiert ist. Obwohl diese Werte entweder mit einer Kontaktmethode (stiftartig mit einem Diamantstift und dergleichen) oder einer kontaktlosen Methode (kontaktloses Erfassen mit Laserlicht und dergleichen) gemessen werden können, wurden in der vorliegenden Erfindung Messungen mit einer Kontaktmethode vorgenommen und die Zuverlässigkeit dieser Werte wurde bei Bedarf mit Werten ergänzt und verglichen, die mit einer kontaktlosen Methode erhalten wurden.

[0165] Obwohl verschiedene bekannte Arten von Oberflächenrauheitsmethoden wie Prägen oder Ätzen angewendet werden können, um der Filmoberfläche feine Oberflächenunregelmäßigkeiten zu verleihen, ist von diesen eine Oberflächenrauheitsmethode bevorzugt, die eine Technik verwendet, die keine Unreinheiten einführt und das Bildungsverhältnis von β -Kristallen kontrolliert. Das Bildungsverhältnis von β -Kristallen eines Polypropylenharzes, das einen Polypropylenfilm nach dem Strecken bildet, kann typischerweise mit der Gusstemperatur oder Gussgeschwindigkeit kontrolliert werden. Zusätzlich kann die Walzentemperatur des Längsstreckungsschrittes ebenso zur Kontrolle des Schmelz/Transformationsverhältnisses von β -Kristallen verwendet werden und es kann eine fein aufgeraute Oberfläche an der Filmoberfläche durch Auswahl der optimalen Produktionsbedingungen für diese zwei Parameter einer β -Kristallbildung und Schmelze/Transformation erhalten werden.

[0166] In der vorliegenden Erfindung werden charakteristische Mikrokristalle aufgrund einer Änderung im Kristallisierungsverhalten des Polypropylenharzes, das den biaxial gestreckten Polypropylenfilm bildet, infolge von Komponenten niederen Molekulargewichts gebildet, die in dem Bereich gemäß der vorliegenden Erfindung liegen. Folglich können auch Wirkungen erhalten werden, die für die Bildung von β -Kristallen nützlich sind, um feine Oberflächenunregelmäßigkeiten an der Filmoberfläche zu erhalten. Mit anderen Worten, die Sphärolitgröße kann kontrolliert werden, um nicht übermäßig klein zu sein, und die Sphärolitdichte kann kontrolliert werden, um nicht übermäßig groß zu sein, um das Bildungsverhältnis von β -Kristallen durch Verwendung der charakteristischen Zusammensetzung aus Molekulargewichtsverteilung gemäß der vorliegenden Erfindung einzustellen, ohne die Produktionsbedingungen des Polypropylenharzrohmaterials gegenüber herkömmlichen Bedingungen signifikant zu ändern. Folglich kann die oben erwähnte Oberflächenrauheit gemäß der vorliegenden Erfindung realisiert werden und die Wickelverarbeitungseignung kann effektiv verliehen werden, ohne eine andere Leistung zu beeinträchtigen.

[0167] Die vorliegende Erfindung betrifft ferner einen ultradünnen biaxial gestreckten Polypropylenfilm für einen Kondensator, dadurch gekennzeichnet, dass die Stärke des biaxial gestreckten Polypropylenfilms 1 μm bis 6 μm , vorzugsweise 1,5 μm bis 4 μm , bevorzugter 1,5 μm bis 3,5 μm und noch bevorzugter 1,8 μm bis 3 μm ist.

[0168] In der vorliegenden Erfindung bezieht sich die Stärke des biaxial gestreckten Polypropylenfilms auf den Stärkenwert des biaxial gestreckten Polypropylenfilms, gemessen nach JIS-C2330 mit einem Mikrometer gemäß JOS B7502 1994 (entsprechender Standard: ISO3611 1978).

[0169] In dem biaxial gestreckten Polypropylenfilm für einen Kondensator der vorliegenden Erfindung kann eine Koronaentladungsbehandlung online oder offline nach Beendigung des Streckens und Thermofixierungsschritts zur Verbesserung von Klebeeigenschaften in einem anschließenden Schritt ausgeführt werden, wie einem Metallabscheidungsbearbeitungsschritt. Obwohl eine bekannte Methode für die Koronaentladungsbehandlung verwendet werden kann, wird die Behandlung vorzugsweise in Luft, Kohlenstoffdioxidgas, Stickstoffgas oder einem gemischten Gas davon als atmosphärisches Gas ausgeführt.

[0170] Zusätzlich zu einem gehinderten Antioxidans auf Phenolbasis mit einer Carbonylgruppe kann dem biaxial gestreckten Polypropylenfilm für einen Kondensator der vorliegenden Erfindung auch ein erforderlicher Stabilisator wie ein Chlorabsorptionsmittel in einem Bereich zugegeben werden, der keine Auswirkung auf die Kondensatoreigenschaft hat, und vorzugsweise wird eine metallische Seife wie Kalziumstearat verwendet.

[0171] Der gesamte Aschengehalt in dem biaxial gestreckten Polypropylenfilm für einen Kondensator der vorliegenden Erfindung ist vorzugsweise so gering wie möglich, um elektrische Eigenschaften zu verbessern und ist 50 Gewichts-ppm oder weniger und vorzugsweise 40 Gewichts-ppm oder weniger, in Bezug auf das Gesamtgewicht des Polypropylenfilms.

[0172] Zusätzlich beziehen sich die oben erwähnten Eigenschaften des biaxial gestreckten Polypropylenfilms für einen Kondensator der vorliegenden Erfindung (wie gewichtsgemittelttes Molekulargewicht, Molekulargewichtsverteilung, Stereoregularität, Filmstärke, Stehspannungseigenschaft, Streckleistung, Antioxidansgehalt und Oberflächenrauheit) auf die Eigenschaften des Polypropylenfilms, der durch biaxiales Strecken eines gegossenen Folienmaterials, das heißt, des Polypropylenfilms, vor einem Metallisierungsschritt erhalten wird.

<Metallisierter Polypropylenfilm für einen Kondensator>

[0173] Es gibt keine besonderen Einschränkungen bezüglich der Elektrode, wenn der biaxial gestreckte Polypropylenfilm für einen Kondensator der vorliegenden Erfindung als Kondensator verarbeitet wird, und obwohl sie vorzugsweise eine Metallfolie oder ein Papier- oder Kunststofffilm mit mindestens einer metallisierten Seite ist, wird in Kondensatoranwendungen, die eine noch geringere Größe und ein geringeres Gewicht erfordern, eine Elektrode, in der eine Seite oder beide Seiten des Films der vorliegenden Erfindung direkt metallisiert ist/sind, bevorzugt. Das heißt, der metallisierte Polypropylenfilm für einen Kondensator der vorliegenden Erfindung kann durch Metallisieren mindestens einer Seite des biaxial gestreckten Polypropylenfilms für einen Kondensator der vorliegenden Erfindung erhalten werden. Zink, Blei, Silber, Chrom, Aluminium, Kupfer oder Nickel, alleine oder ein Gemisch oder eine Legierung aus mehreren Arten davon, können ohne Einschränkungen für das verwendete Metall zur Metallisierung einer Seite oder beider Seiten des Films zu diesem Zeitpunkt verwendet werden. Von diesen werden Zink und Aluminium vorzugsweise unter Berücksichtigung der Umgebung, Wirtschaftlichkeit, Kondensatorleistung und dergleichen verwendet.

[0174] Obwohl Beispiele eines Verfahrens zur direkten Metallisierung des biaxial gestreckten Polypropylenfilms für einen Kondensator der vorliegenden Erfindung Vakuumabscheiden und Sputtern enthalten, gibt es diesbezüglich keine besonderen Einschränkungen. Obwohl Beispiele für eine Vakuumabscheidung typischerweise Tiegelmethoden und Drahtmethoden enthalten, gibt es diesbezüglich keine besonderen Einschränkungen und es kann die optimale Methode zweckdienlich gewählt werden.

[0175] Obwohl es keine besonderen Einschränkungen bezüglich des Randmusters beim Metallisieren durch Abscheidung gibt, ist vom Standpunkt einer Verbesserung von Kondensatoreigenschaften, wie Lagerstabilität, ein Muster, das einen sogenannten Spezialrand wie ein Fischnetzmuster und/oder ein T-Randmuster enthält, bevorzugt. Bei der Bildung dieser Art von Muster auf einer Oberfläche des Films der vorliegenden Erfindung wird die Lagerstabilität verbessert, wodurch auch diese vom Standpunkt eines Kondensatordurchschlags, Vermeidung eines Kurzschlusses und dergleichen effektiv wird.

[0176] Ein allgemein bekanntes Verfahren wie eine Bandmethode oder Ölmethode kann ohne Einschränkungen als Verfahren zur Bildung des Randes verwendet werden.

[0177] Da die Oberfläche des biaxial gestreckten Polypropylenfilms für einen Kondensator der vorliegenden Erfindung fein aufgeraut ist, hat sie bessere Elementwicklungseignung und eine hohe Stehspannungskennlinie. Da der Film zusätzlich ein extrem dünner Film mit einer Stärke von 1 µm bis 6 µm ist, hat er, außer dass er leicht eine hohe elektrostatische Kapazität aufweist, auch eine bessere langfristige Haltbarkeit, wodurch er in der Verwendung als kompakter Kondensator hoher Kapazität mit einer Kapazität von 5 µF oder mehr, vorzugsweise 10 µF oder mehr, noch bevorzugter 20 µF oder mehr besonders bevorzugt ist.

[0178] Obwohl in der Folge eine ausführlichere Beschreibung der vorliegenden Erfindung anhand von Beispielen bereitgestellt ist, ist der Umfang der vorliegenden Erfindung nicht darauf beschränkt. Zusätzlich geben die Begriffe "Teile" und "%" in den Beispielen "Teile auf das Gewicht bezogen" bzw. "% auf das Gewicht bezogen" an, falls nicht ausdrücklich anderes angegeben ist.

[Kennwertmessverfahren und Wirkungsauswertungsverfahren]

[0179] In der Folge sind Verfahren beschrieben, die zur Messung von Kennwerten in jedem der Beispiele und Verfahren verwendet wurden, die zur Auswertung von Wirkungen verwendet wurden.

(1) Messung des gewichtsgemittelten Molekulargewichts (M_w), der Molekulargewichtsverteilung (M_w/M_n , M_z/M_n) und der Differentialverteilungswerte

[0180] Auswertungen des Molekulargewichts (M_w), der Molekulargewichtsverteilung (M_w/M_n , M_z/M_n) und der Differentialverteilungswerte einer Verteilungskurve des Polypropylenharzes, das den biaxial gestreckten

Polypropylenfilm bildet, wurden unter den folgenden Bedingungen unter Anwendung einer Gelpermeationschromatographie (GPC) ausgeführt.

Messinstrument: Hochtemperatur-GPC mit eingebautem Differentialrefraktometer (RI), Tosoh Corp.
 HLC-8121GPC-HT-Säule: Drei gekoppelte TSKgel GMHHR-H(20)HT-Säulen, TOSOH CORPORATION
 Säulentemperatur: 140°C
 Eluent: Trichlorbenzol
 Strömungsrate: 1,0 ml/min

[0181] Die Kalibrierungskurve wurde mit einem Standardpolystyrol, hergestellt von TOSOH CORPORATION, erstellt und die Messergebnisse wurden in Werte für Polypropylen umgewandelt.

[0182] Differentialverteilungswerte wurden mit dem unten beschriebenen Verfahren erhalten.

[0183] Zuerst wurde eine Zeitkurve (Elutionskurve) der Intensitätsverteilung, die mit einem RI-Detektor erfasst wurde, als Verteilungskurve in Bezug auf das gewichtsgemittelte Molekulargewicht (Log(M)) unter Verwendung der Kalibrierungskurve verwendet. Dann, nach dem Erhalt einer integralen Verteilungskurve in Bezug auf Log (M) im Falle einer Zuordnung eines Wertes von 100% zur Gesamtfläche der Verteilungskurve, konnte eine Differentialverteilungskurve in Bezug auf Log(M) durch Differenzieren für Log(M) erhalten werden. Differentialverteilungswerte, wenn Log(M) = 4,5 und wenn Log(M) = 6 wurden aus dieser Differentialverteilungskurve abgelesen. Ferner kann die Reihe von Operationen, bis die Differentialverteilungskurve erhalten wird, normalerweise mit einer analytischen Software ausgeführt werden, die im GPC-Messsystem bereitgestellt ist.

(2) Messung des Mesopentad-Anteils ([mmmm])

[0184] Der Polypropylenfilm wurde in dem unten angegebenen Lösemittel aufgelöst, gefolgt von einer Bestimmung des Mesopentad-Anteils ([mmmm]) unter den folgenden Bedingungen unter Verwendung eines Hochtemperatur-Fourier-Transformations-Kernmagnetresonanz-(FT-NMR)Systems.

Messinstrument: Hochtemperatur-FT-NMR JNM-ECP500, JEOL Ltd.
 Beobachteter Kern: ¹³C (125 MHz)
 Messtemperatur: 135°C
 Lösemittel: Ortho-Dichlorbenzol (ODCB: gemischtes Lösemittel von ODCB und deuterisiertem ODCB (4/1))
 Messmodus: Einzelpuls-Proton-Breitbandentkopplung
 Pulsbreite: 9,1 µsec (45° Puls)
 Pulsintervall: 5,5 sec
 Anzahl von Integrationen: 4500
 Chemische Verschiebungsreferenz: CH₃ [mmmm] = 21,7 ppm

[0185] Der Pentad-Anteil wurde als Prozentsatz des integrierten Wertes der Intensität jedes Signals berechnet, abgeleitet aus einer Kombination von Pentads (wie "mmmm" oder "mrrm"). Es kann auf die Beschreibung von Spektren in zum Beispiel "T. Hayashi, et al., Polymer, Band 29, S. 138 (1988)" bezüglich der Zuordnung jedes Signals verwiesen werden, das von "mmmm" oder "mrrm" und dergleichen abgeleitet ist.

(3) Auswertung der Hochtemperatur-Stehspannungseigenschaft (Wechselstromdurchschlagsfestigkeit) eines biaxial gestreckten Polypropylenfilms

[0186] Die Stehspannungseigenschaft des biaxial gestreckten Polypropylenfilms, der durch Teststreckung erhalten wurde, wurde durch Messen der Durchschlagsspannung durch Wechselstrom (AC) gemäß JIS-C2330, Abschnitt 7.4.11.2 (Durchschlagsspannung – Plattenelektrodenmethode: Methode B) ausgewertet. Die Spannung wurde bei der Rate 100 Vac/sec erhöht, der Unterbrechungsstrom während des Durchschlags war 10 mA und Messungen wurden 18 Mal durchgeführt. Hier wurde der Wert, der durch Dividieren des durchschnittlichen gemessenen Spannungswertes durch die Stärke des Films erhalten wurde, zur Auswertung der Durchschlagsfestigkeit verwendet. Der Film und eine Elektrodeneinspannvorrichtung wurden in eine Luftzirkulations-Hochtemperaturkammer eingebracht und bei einer Auswertungstemperatur von 100°C gemessen.

[0187] Eine Hochtemperatur-Wechselstromdurchschlagsfestigkeit von 300 Vac/µm oder mehr kann als erwünscht angesehen werden.

(4) Auswertung der Filmstärke

[0188] Die Stärke (μm) des biaxial gestreckten Polypropylenfilms wurde nach JIS-C2330 mit einem Mikrometer (JIS-B7502) gemessen.

(5) Einfache Herstellung eines ultradünnen Films

[0189] Die Produktivität (leichtes Strecken), wenn ein ultradünner Film mit Produktionsgeräten hergestellt wird, wurde qualitativ unter Berücksichtigung einer Bruchfrequenz und dergleichen während der Produktion (während des Filmstreckens) bewertet. In der vorliegenden Erfindung wurde ein Film mit geringer Bruchfrequenz als ein Film mit hoher Produktivität für einen ultradünnen Film bewertet, während ein Film mit hoher Bruchfrequenz als ein Film mit geringer Produktivität für einen ultradünnen Film bewertet wurde.

(6) Messung der Restmenge an Antioxidans in einem biaxial gestreckten Polypropylenfilm

[0190] Der biaxial gestreckte Polypropylenfilm wurde geschnitten, gefolgt von der Zugabe eines Lösemittels zur Extraktion von in dem Film verbleibendem Antioxidans durch Ultraschallextraktion.

[0191] In dem erhaltenen Extrakt wurde die Menge des sekundären Mittels mit Hochleistungs-Flüssigchromatographie und einem Ultraviolett-detektor gemessen. Die Restmenge des sekundären Mittels wurde aus der Spitzenintensität des erhaltenen Chromatogramms unter Verwendung einer vorbereitend bestimmten Kalibrierungskurve berechnet.

(7) Messung der Oberflächenrauheit

[0192] Die durchschnittliche Mittellinienrauheit (R_a) und maximale Höhe (R_z , vormals als R_{max} in JIS definiert) des biaxial gestreckten Polypropylenfilms wurde mit dem Oberflächenrauheitsmessinstrument Modell SE-30, hergestellt von Kosaka Laboratory Ltd., gemessen und mit einem AY-41 Oberflächenrauheitsanalysegerät nach der Methode bestimmt, die in JIS-B0601 definiert ist. Die Messungen wurden dreimal ausgeführt und der Durchschnittswert daraus wurde in den Auswertungen verwendet. In den Auswertungen wurden Messungen mit einer Kontaktmethode ausgeführt und die Zuverlässigkeit der Werte wurde bei Bedarf mit Werten ergänzt und verglichen, die mit einer kontaktlosen Methode erhalten wurden.

(8) Auswertung der Hochtemperatur-Stehspannungseigenschaft
(Gleichstromdurchschlagsfestigkeit) des biaxial gestreckten Films

[0193] Die Stehspannungseigenschaft des biaxial gestreckten Films wurde durch Messen des Durchschlagsspannungswertes unter Verwendung von Gleichstrom (DC) nach JIS-C2330, Abschnitt 7.4.11.2 (Durchschlagspannung – Plattenelektrodenmethode: Methode B) gemessen. Die Spannung wurde bei der Rate 100 Vdc/sec erhöht, der Unterbrechungsstrom während des Durchschlags war 10 mA und die Messungen wurden 18 Mal durchgeführt. Hier wurde der Wert, der durch Dividieren des durchschnittlichen gemessenen Spannungswertes durch die Stärke des Films erhalten wurde, zur Auswertung der Durchschlagsfestigkeit verwendet. Der Film und eine Elektrodeneinspannvorrichtung wurden in eine Luftzirkulations-Hochtemperaturkammer eingebracht und bei einer Auswertungstemperatur von 100°C gemessen.

[0194] Eine Durchschlagsfestigkeit von 480 Vdc/ μm oder mehr kann im Sinne der praktischen Verwendung als wünschenswert angesehen werden.

(9) Auswertung einer Eignung als Kondensatorfilm

[0195] Die Eignung als Kondensatorfilm wurde umfangreich unter Berücksichtigung einer Stärkenverringern, Oberflächenverfeinerung und hohen Stehspannungseigenschaft bei hohen Temperaturen ausgewertet. Bevorzugte Filme wurden als "A" bewertet, während jene, die sich von jenen nach dem Stand der Technik nicht unterschieden, als "B" ausgewertet wurden.

(10) Herstellung eines Kondensatorelements

[0196] Ein T-Rand-Abscheidungsmuster wurde auf dem biaxial gestreckten Polypropylenfilm durch Aluminiumabscheidung bei einem Abscheidungswiderstand von 12 Ω/\square gebildet, um einen metallisierten Polypropylenfilm zu erhalten. Nach der Bildung von Schlitzen mit einer geringen Breite darin, wurden die metallisierten

Filme einander gegenüber liegende angeordnet und 1150 Umwicklungen bei einer Aufnahmespannung von 400 g mit einem automatischen Wickler 3KAW-N2, hergestellt von Kaido Mfg. Co., Ltd., aufgewickelt.

[0197] Das aufgewickelte Element wurde dann 6 Stunden einer Wärmebehandlung bei 120°C unterzogen, während es gepresst wurde, und die Enden des Elements wurden mit Zinkmetall besprüht, um einen flachen Kondensator zu erhalten. Die elektrostatische Kapazität des erhaltenen Kondensators war 100 µF (\pm µF).

(11) Hochtemperatur-Stehspannungstest des Kondensatorelements

[0198] Ein Hochtemperatur-Stehspannungstest wurde an dem erhaltenen Kondensatorelement nach der unten beschriebenen Prozedur durchgeführt.

[0199] Zunächst wurde nach dem Vorwärmen des Elements über 1 Stunde oder mehr bei der Testtemperatur (105°C) die anfängliche elektrostatische Kapazität vor dem Testen mit dem LCR Hi-Tester 3522-50, hergestellt von Hioki E. E. Corp., ausgewertet. Anschließend wurde das Kondensatorelement mit einer Gleichspannung von 1,0 kV 1 Minute unter Verwendung einer Hochspannungsenergieversorgung in einer Hochtemperaturkammer bei 105°C belastet. Die Kapazität des Elements nach Beendigung der Spannungsbelastung wurde mit dem LCR Hi-Tester gemessen, gefolgt von einer Berechnung der Änderungsrate in der Kapazität vor und nach der Spannungsbelastung. Anschließend wurde das Element wieder in die Hochtemperaturkammer gebracht und einer zweiten Runde der Spannungsbelastung ausgesetzt, gefolgt von der Bestimmung der zweiten Änderung in der Kapazität (kumulativ) und dies wurde viermal wiederholt. Die Änderungsrate in der Kapazität zwischen dem ersten Mal und dem vierten Mal wurde zur Auswertung verwendet.

[0200] Eine vierte Änderungsrate in der elektrischen Kapazität von -20% oder weniger kann im Sinne einer praktischen Verwendung als bevorzugt angesehen werden.

[Polymerisationskatalysator: Vorbereitung der festen Titankatalysatorkomponente (I)]

[0201] 1,2 Mol Diisoamylether (Elektronenspender (a)) wurden 500 ml gereinigtem n-Heptan und 0,5 Mol Diethylaluminiumchlorid (Organometallverbindungs-Katalysatorkomponente (II)) im Laufe von 2 Minuten bei 25°C zugegeben und diese Temperatur wurde 10 Minuten gehalten (Reaktionsflüssigkeit (I)).

[0202] Nach Zugabe von 4,0 Mol Titantetrachlorid zu einem 2 Liter Reaktor, dessen Innenseite mit Stickstoff getauscht wurde, und Erhöhen der Temperatur auf 35°C wurde die oben erwähnte Reaktionsflüssigkeit (I) im Laufe von 3 Stunden zugegeben, wonach diese Temperatur 30 Minuten gehalten wurde. Anschließend wurde die Temperatur auf 75°C erhöht, wonach diese Temperatur 1 Stunde gehalten wurde.

[0203] Die oben erwähnte Flüssigkeit wurde auf Raumtemperatur gekühlt und der Überstand entfernt, gefolgt von der Zugabe von 1 Liter gereinigtem n-Heptan, dann ungestörtem Stehenlassen, Entfernen des Überstandes und Wiederholen dieses sogenannten Waschvorgangs insgesamt viermal.

[0204] 100 g des erhaltenen Feststoffs wurden in gereinigtem n-Heptan suspendiert, gefolgt von der Zugabe von 80 g Isoamylether bei 20°C (Elektronenspender (a)) und 180 g Titantetrachlorid (Elektronenempfänger (b)) im Verlauf von 1 Stunde bei Raumtemperatur und Halten für 1 Stunde bei 65°C. Anschließend wurde die Flüssigkeit allmählich auf Raumtemperatur abgekühlt und ein Waschvorgang, der aus der Entfernung des Überstands und Zugabe von 2 Litern gereinigtem n-Heptan bestand, wurde insgesamt viermal wiederholt, um die feste Titankatalysatorkomponente (II) zu erhalten.

[Polymerisationsbeispiel]

[0205] 100 Liter Polypropylen und 6200 NL Wasserstoff wurden einem Polymerisationsreaktor mit einem Innenvolumen von 600 Litern bei Raumtemperatur zugegeben, gefolgt von der Zugabe von 100 Millimol Diethylaluminiumchlorid (Organometallverbindungs-Katalysatorkomponente (II)), 80 Millimol Methylpara-toluylat (Elektronenspender (III)) und 15 Millimol fester Titankatalysatorkomponente (I) als Titanatome, und raschem Erhöhen der Temperatur im Inneren des Polymerisationsreaktors auf 70°C. Nach 1 Stunde Halten bei 70°C wurde unreaktiertes Polypropylen aus dem Reaktor gespült, gefolgt vom Suspendieren in 200 Litern gereinigtem Heptan in einer Stickstoffatmosphäre. Anschließend wurde die oben erwähnte Aufschlämmung in einen anderen Reaktor überführt, der eine trockene Stickstoffatmosphäre enthielt, gefolgt von der weiteren Zugabe von 80 Litern Methanol und 400 Millilitern einer 20% wässrigen Natriumhydroxidlösung und Rühren.

[0206] Nach Beendigung des Rührens wurde der Reaktor ungestört stehen gelassen und nach wiederholtem Waschen mit Wasser nach Entfernen der oben erwähnten Wasser-Methanolphase wurde das Heptan herausgefiltert und ein Waschvorgang mit Heptan ausgeführt. Das erhaltene Produkt wurde über Nacht unter vermindertem Druck bei 80°C weiter getrocknet, um Polypropylenpolymergranula zu erhalten.

[Polypropylenharze]

[0207] Polypropylenharzrohmaterial A und Polypropylenharzrohmaterial B, in welchen die Menge an Komponenten niederen Molekulargewichts durch Ändern der Polymerisationsbedingungen eingestellt war, wurden unter Verwendung der oben erwähnten festen Titankatalysatorkomponente (I) erhalten.

[0208] Zusätzlich wurden zu Vergleichszwecken das Polypropylenharzrohmaterial C und Polypropylenharzrohmaterial D durch geeignetes Ändern der Polymerisationsbedingungen unter Verwendung eines olefinartigen Polymerisationskatalysators erhalten, der eine bekannte feste Titankatalysatorkomponente enthielt, die Magnesium, Chlor, Titan und Diisobutylphthalat, nicht aber den Elektronenspender (III) enthielt.

[0209] Ferner wurde das Polypropylenharzrohmaterial D einer Peroxidbehandlung zur Einstellung der Menge an Komponenten niederen Molekulargewichts und Erhalten des Polypropylenharzrohmaterials E unterzogen. Zusätzlich wurde das Polypropylenharzrohmaterial A einer Peroxidbehandlung zur Einstellung der Menge an Komponenten niederen Molekulargewichts und Erhalten des Polypropylenharzrohmaterials F unterzogen.

[0210] Tabellen 1 und 2 gegen die analytischen Werte von Polypropylenharzen an, die einen Film bilden, der aus diesen Polypropylenharzrohmaterialien erzeugt wurde.

<Produktion unter Verwendung einer kompakten Laborstreckvorrichtung>

(Beispiel 1)

[0211] Das Polypropylenharzrohmaterial A, in dem die oben erwähnte feste Titankatalysatorkomponente (I) verwendet wurde, wurde einem Extruder zugeleitet, bei einer Harztemperatur von 250°C geschmolzen, mit einer T-Matrize extrudiert und auf eine Metalltrommel gewickelt und verfestigt, um ein gegossenes Folienmaterial mit einer Stärke von etwa 250 µm zu erzeugen. Danach, nach dem Strecken dieses ungestreckten, gegossenen Folienmaterials um einen Faktor von 5 in Maschinenrichtung bei einer Temperatur von 150°C mit einer kompakten Laborstreckvorrichtung in der Form des KARO IV Laboratory Stretcher, hergestellt von Brückner GmbH, wurde die Folie unmittelbar in die Querrichtung um einen Faktor von 10 gestreckt, um einen dünnen, biaxial gestreckten Polypropylenfilm mit einer Stärke von 5 µm zu erhalten. Die Molekulareigenschaften des erhaltenen Films und die Filmkennwerte sind in Tabelle 1 zusammengefasst. Ferner sind die Differenz in Molekulargewicht-Differentialverteilungswerten, Molekulargewicht (Mw), Molekulargewichtsverteilung (Mw/Mn, Mz/Mn) und Mesopentad-Anteil, die in Tabelle 1 dargestellt sind, analytische Werte des Polypropylenharzes, das den Film bildet.

[Beispiel 2]

[0212] Ein dünner biaxial gestreckter Polypropylenfilm mit einer Stärke von 5 µm wurde auf dieselbe Weise wie in Beispiel 1 erhalten, mit der Ausnahme, dass das Polypropylenharzrohmaterial B mit einem anderen Gehalt an Komponenten niederen Molekulargewichts dem Extruder anstelle des Polypropylenharzrohmaterials A von Beispiel 1 zugeleitet wurde. Die Molekulareigenschaften des erhaltenen Films und die Filmkennwerte sind in Tabelle 1 zusammengefasst. Ferner sind die Differenz in Molekulargewicht-Differentialverteilungswerten, Molekulargewicht (Mw), Molekulargewichtsverteilung (Mw/Mn, Mz/Mn) und Mesopentad-Anteil, die in Tabelle 1 dargestellt sind, analytische Werte des Polypropylenharzes, das den Film bildet.

[Vergleichsbeispiel 1]

[0213] Ein dünner biaxial gestreckter Polypropylenfilm mit einer Stärke von 5 µm wurde auf dieselbe Weise wie in Beispiel 1 erhalten, mit der Ausnahme, dass das Polypropylenharzrohmaterial C, das aus einem Katalysator unter Verwendung von Diisobutylphthalat erhalten wurde, dem Extruder anstelle des Polypropylenharzrohmaterials A von Beispiel 1 zugeleitet wurde. Die Molekulareigenschaften des erhaltenen Films und Filmkennwerte sind in Tabelle 1 zusammengefasst. Ferner sind die Differenz in Molekulargewicht-Differentialverteilungswerten, Molekulargewicht (Mw), Molekulargewichtsverteilung (Mw/Mn, Mz/Mn) und Mesopentad-Anteil, die in Tabelle 1 dargestellt sind, analytische Werte des Polypropylenharzes, das den Film bildet.

[Vergleichsbeispiel 2]

[0214] Ein dünner biaxial gestreckter Polypropylenfilm mit einer Stärke von 5 µm wurde auf dieselbe Weise wie in Beispiel 1 erhalten, mit der Ausnahme, dass das Polypropylenharzrohmaterial D, das aus einem Katalysator unter Verwendung von Diisobutylphthalat erhalten wurde, dem Extruder anstelle des Polypropylenharzrohmaterials A von Beispiel 1 zugeleitet wurde. Die Molekulareigenschaften des erhaltenen Films und Filmkennwerte sind in Tabelle 1 zusammengefasst. Ferner sind die Differenz in Molekulargewicht-Differentialverteilungswerten, Molekulargewicht (Mw), Molekulargewichtsverteilung (Mw/Mn, Mz/Mn) und Mesopentad-Anteil, die in Tabelle 1 dargestellt sind, analytische Werte des Polypropylenharzes, das den Film bildet.

[Vergleichsbeispiel 3]

[0215] Ein dünner biaxial gestreckter Polypropylenfilm mit einer Stärke von 5 µm wurde auf dieselbe Weise wie in Beispiel 1 erhalten, mit der Ausnahme, dass das Polypropylenharzrohmaterial E, das durch Unterziehen des Polypropylenharzrohmaterials D einer Peroxidbehandlung zur Einstellung der Menge an Komponenten niederen Molekulargewichts erhalten wurde, dem Extruder anstelle des Polypropylenharzrohmaterials A von Beispiel 1 zugeleitet wurde. Die Molekulareigenschaften des erhaltenen Films und Filmkennwerte sind in Tabelle 1 zusammengefasst. Ferner sind die Differenz in Molekulargewicht-Differentialverteilungswerten, Molekulargewicht (Mw), Molekulargewichtsverteilung (Mw/Mn, Mz/Mn) und Mesopentad-Anteil, die in Tabelle 1 dargestellt sind, analytische Werte des Polypropylenharzes, das den Film bildet.

<Produktion eines ultradünnen Films unter Verwendung von Produktionsgeräten>

[Beispiel 3]

[0216] Das Polypropylenharzrohmaterial A von Beispiel 1 wurde einem Extruder zugeleitet, bei einer Harztemperatur von 250°C geschmolzen, mit einer T-Matrize extrudiert und auf eine Metalltrommel gewickelt, die bei einer Oberflächentemperatur von 95°C gehalten wurde, und verfestigt, um ein gegossenes Folienmaterial mit einer Stärke von etwa 125 µm zu erzeugen. Danach, nach dem Strecken dieses ungestreckten, gegossenen Folienmaterials um einen Faktor von 5 in Maschinenrichtung bei einer Temperatur von 140°C und unmittelbarem Kühlen auf Raumtemperatur wurde die Folie in die Querrichtung um einen Faktor von 10 mit einem Tender bei 165°C gestreckt, um einen extrem dünnen, biaxial gestreckten Polypropylenfilm mit einer Stärke von 2,5 µm zu erhalten. Die Molekulareigenschaften des erhaltenen Films und die Filmkennwerte sind in Tabelle 2 zusammengefasst. Zusätzlich sind die Stehspannungseigenschaften eines Kondensatorelements, das aus dem resultierenden biaxial gestreckten Polypropylenfilm erzeugt wurde, in Tabelle 3 zusammengefasst. Ferner sind die Differenz in Molekulargewicht-Differentialverteilungswerten, Molekulargewicht (Mw), Molekulargewichtsverteilung (Mw/Mn, Mz/Mn), Mesopentad-Anteil und Restmenge an sekundärem Antioxidansmittel, die in Tabelle 2 dargestellt sind, analytische Werte des Polypropylenharzes, das den Film bildet.

[Beispiel 4]

[0217] Ein extrem dünner biaxial gestreckter Polypropylenfilm mit einer Stärke von 2,5 µm wurde auf dieselbe Weise wie in Beispiel 3 erhalten, mit der Ausnahme, dass das Polypropylenharzrohmaterial F dem Extruder anstelle des Polypropylenharzrohmaterials A von Beispiel 3 zugeleitet wurde. Die Molekulareigenschaften des erhaltenen Films und Filmkennwerte sind in Tabelle 2 zusammengefasst. Zusätzlich sind die Stehspannungseigenschaften eines Kondensatorelements, das aus dem resultierenden biaxial gestreckten Polypropylenfilm erzeugt wurde, in Tabelle 3 zusammengefasst. Ferner sind die Differenz in Molekulargewicht-Differentialverteilungswerten, Molekulargewicht (Mw), Molekulargewichtsverteilung (Mw/Mn, Mz/Mn), Mesopentad-Anteil und Restmenge an sekundärem Antioxidansmittel, die in Tabelle 2 dargestellt sind, analytische Werte des Polypropylenharzes, das den Film bildet.

[Vergleichsbeispiel 4]

[0218] Ein extrem dünner biaxial gestreckter Polypropylenfilm mit einer Stärke von 2,5 µm wurde auf dieselbe Weise wie in Beispiel 3 erhalten, mit der Ausnahme, dass das Polypropylenharzrohmaterial E dem Extruder anstelle des Polypropylenharzrohmaterials A von Beispiel 3 zugeleitet wurde. Die Molekulareigenschaften des erhaltenen Films und Filmkennwerte sind in Tabelle 2 zusammengefasst. Zusätzlich sind die Stehspannungseigenschaften eines Kondensatorelements, das aus dem resultierenden biaxial gestreckten Polypropylenfilm erzeugt wurde, in Tabelle 3 zusammengefasst. Ferner sind die Differenz in Molekulargewicht-Differentialverteilungswerten, Molekulargewicht (Mw), Molekulargewichtsverteilung (Mw/Mn, Mz/Mn), Mesopentad-Anteil und

Restmenge an sekundärem Antioxidansmittel, die in Tabelle 2 dargestellt sind, analytische Werte des Polypropylenharzes, das den Film bildet.

[Tabelle 1]

		Harzrohmaterial											
1	Harz A	Vorhanden	Differenz in Differentialverteilungswerten (%)	28	8,0	31,0	Stereoregularität (NMR) [mmmm] (%)	5,0	309				
2	Harz B	Vorhanden	14,5	28	7,5	28,9	96,0	5,0	311				
Bsp. 1	Harz C	Fehlt	8	27	6,5	16,5	96,5	5,0	280				
Bsp. 2	Harz D	Fehlt	4	32	7,1	21,0	96,2	5,0	280				
Bsp. 3	Harz E	Fehlt	11	25	6,7	17,1	96,5	5,0	295				
		Gegenwart von cyclischem Ester (Elektronen-spender (III))											
		Molekulargewicht $M_w/10^4$											
		Molekulargewichtsverteilung M_w/M_n											
		Molekulargewichtsverteilung M_z/M_n											
		Stärke (μm)											
		Stehspannungseigenschaften ($\text{Vac}/\mu\text{m}$)											

[Tabelle 2]

			Harzrohmaterial
		Differenz in Differential-verteilungswerten (%)	
		Molekulargewicht Mw/10 ⁴	
		Molekulargewichts-Verteilung Mw/Mn	
		Molekulargewichts-Verteilung Mz/Mn	
		Stereoregularität (NMR) [mmmm] (%)	
		Stärke (µm)	
		Restliches sekundäres Mittel (ppm)	
			Oberflächen- rauhheit
		Produktivität für ultradünnen Film	
		Stehspannungs-eigenschaften (Vdc/µm)	
		Eignung des Kondensatorelements	
Bsp. 4	Harz E	11	26
4	Harz F	18	25
3	Harz A	13	28
		8,4	7,5
		32,0	25,0
		96,0	96,0
		2,5	2,5
		4500	5500
		0,08	0,06
		1,05	0,63
		Hoch	Hoch
		485	530
		A	A
		Nieder	465
		B	

[Tabelle 3]

	Hochtemperatur-Stehspannungseigenschaft des Elements Änderungsrate in Kapazität (%) (1. Spannungsbelastung)	Hochtemperatur-Stehspannungseigenschaft des Elements Änderungsrate in Kapazität (%) (4. Spannungsbelastung)	Auswertung der Stehspannungseigenschaft bei Verwendung als Kondensator
Beispiel 3	-0,5	-15,6	A
Beispiel 4	0	-0,5	A
Vgl. Bsp. 4	-5	-69,8	B

[0219] Wie aus Beispielen 1, 2, 3 und 4 klar hervorgeht, da der biaxial gestreckte Polypropylenfilm der vorliegenden Erfindung ein Film ist, der einen hohen Durchschlagsspannungswert hat, ist er als Kondensatorfilm mit besserer Wärmebeständigkeitsleistung und hoher Stehspannungsleistung extrem bevorzugt.

[0220] Im Fall des Standes der Technik jedoch, der eine schmale Molekulargewichtsverteilung und eine Differenz in Differentialverteilungswerten (Menge an Komponenten niederen Molekulargewichts) hat, die außerhalb des Bereichs der vorliegenden Erfindung liegt, waren die Durchschlagsspannungswerte schlechter (Vergleichsbeispiel 1). Wenn die Differenz in Differentialverteilungswerten (Menge an Komponenten niederen Molekulargewichts) außerhalb des Bereichs der vorliegenden Erfindung lag, waren ferner die Durchschlagsspannungswerte trotz einer breiten Molekulargewichtsverteilung schlechter (Vergleichsbeispiel 2). Selbst wenn das Polypropylenharzrohmaterial in (Vergleichsbeispiel 1 einer Peroxidzerersetzung zur Erhöhung der Differenz in Differentialverteilungswerten (Menge an Komponenten niederen Molekulargewichts) unterzogen wurde, war das erhaltene Ergebnis nicht angemessen zufriedenstellend, obwohl eine Wirkung erzielt wurde, die die Stehspannungseigenschaft verbesserte (Vergleichsbeispiel 3).

[0221] Im Falle des biaxial gestreckten Polypropylenfilms der vorliegenden Erfindung kann, im Gegensatz zu dem leichten Erhalten eines Films mit einer Stärke von 2,5 µm, der auch eine hohe Stehspannungseigenschaft und feine Oberflächenleistung aufweist (Beispiel 3), die Stehspannungsleistung, neben zahlreichen Brüchen während des Streckens, die ein leichtes Erhalten eines Films mit einer Stärke von 2,5 µm erschwerten, nicht als angemessen bezeichnet werden (Vergleichsbeispiel 4).

INDUSTRIELLE ANWENDBARKEIT

[0222] Da der biaxial gestreckte Polypropylenfilm der vorliegenden Erfindung eine hohe Stehspannungseigenschaft (Durchschlagsspannungswert) bei hohen Temperaturen aufweist, wird er bevorzugt in einem Filmkondensator verwendet. Da zusätzlich der Film ein extrem dünner biaxial gestreckter Film mit einer Filmstärke von 1 µm bis 6 µm ist, ist er zur Verwendung in kompakten Kondensatoren großer Kapazität wie jenen, die in Automobil- und elektrischen Stromanwendungen verwendet werden, die eine hohe Spannung und Wärmebeständigkeit erfordern, besonders nützlich.

Patentansprüche

1. Biaxial gestreckter Polypropylenfilm für einen Kondensator, der ein isotaktisches Polypropylen enthält, wobei

das gewichtsgemittelte Molekulargewicht (M_w) des isotaktischen Polypropylens, gemessen durch Gelpermeationschromatographie (GPC) 250.000 bis 450.000 ist, die Molekulargewichtsverteilung M_w/M_n 7 bis 12 ist und M_z/M_n 20 bis 40 ist und der Wert einer Differenz, die durch Subtrahieren eines Differentialverteilungswertes, wenn das logarithmische Molekulargewicht $\text{Log}(M) = 6$ ist, von einem Differentialverteilungswert, wenn das logarithmische Molekulargewicht auf einer Molekulargewichtsverteilungskurve $\text{Log}(M) = 4,5$ ist, erhalten wird, 8% bis 20% in Bezug auf den Differentialverteilungswert ist, wenn $\text{Log}(M) = 4,5$ ist.

2. Biaxial gestreckter Polypropylenfilm für einen Kondensator nach Anspruch 1, wobei das isotaktische Polypropylen eine Stereoregularität aufweist, in der ein Mesopentad-Anteil ([mmmm]), wie durch Hochtemperatur-Kernmagnetresonanz-(Hochtemperatur-NMR) Messung bestimmt, 94% oder mehr bis weniger als 98% ist.

3. Biaxial gestreckter Polypropylenfilm für einen Kondensator nach Anspruch 1 oder 2, wobei das isotaktische Polypropylen mindestens eine Art von gehindertem Antioxidans auf Phenolbasis mit einer Carbonylgruppe enthält und der Restgehalt des gehinderten Antioxidans auf Phenolbasis im Film 4000 Gewichts-ppm bis 6000 Gewichts-ppm, in Bezug auf das Gesamtgewicht des Films ist.

4. Biaxial gestreckter Polypropylenfilm für einen Kondensator nach einem der Ansprüche 1 bis 3, wobei der biaxial gestreckte Polypropylenfilm fein oberflächenaufgeraut ist, so dass die Oberflächenrauheit an zumindest einer seiner Seiten derart ist, dass die durchschnittliche Mittellinienrauheit (R_a) $0,05 \mu\text{m}$ bis $0,15 \mu\text{m}$ ist und die maximale Höhe (R_z) $0,5 \mu\text{m}$ bis $1,5 \mu\text{m}$ ist.

5. Biaxial gestreckter Polypropylenfilm für einen Kondensator nach einem der Ansprüche 1 bis 4, wobei die Stärke des biaxial gestreckten Polypropylenfilms $1 \mu\text{m}$ bis $6 \mu\text{m}$ ist.

6. Biaxial gestreckter Polypropylenfilm für einen Kondensator nach einem der Ansprüche 1 bis 5, wobei das isotaktische Polypropylen durch ein Verfahren erhalten wird, das die folgenden Schritte (1) und (2) enthält:
Schritt (1): Erhalten einer festen Titankatalysatorkomponente (I) durch Kontaktieren eines Elektronenspenders (a) und eines Elektronenempfängers (b) mit einem Reaktionsprodukt, das durch Reagieren einer Organometallverbindungs-Katalysatorkomponente (II) mit Titan-tetrachlorid erhalten wird; und
Schritt (2): Erhalten eines isotaktischen Polypropylens durch Polymerisation von Propylen in Gegenwart eines olefinartigen Polymerisationskatalysators, der die feste Titankatalysatorkomponente (I) und die Organometallverbindungs-Katalysatorkomponente (II) enthält.

7. Biaxial gestreckter Polypropylenfilm für einen Kondensator nach Anspruch 6, wobei Schritt (1) das Erhalten der festen Titankatalysatorkomponente (I) durch Reagieren von Titan-tetrachlorid mit dem Reaktionsprodukt der Organometallverbindungs-Katalysatorkomponente (II) und des Elektronenspenders (a) und ferner Kontaktieren des Elektronenspenders (a) und des Elektronenempfängers (b) mit dem erhaltenen Reaktionsprodukt ist.

8. Biaxial gestreckter Polypropylenfilm für einen Kondensator nach Anspruch 6 oder 7, wobei der olefinartige Polymerisationskatalysator ein olefinartiger Polymerisationskatalysator ist, der die feste Titankatalysatorkomponente (I), die Organometallverbindungs-Katalysatorkomponente (II) und einen aromatischen Carboxylsäureester enthält.

Es folgt eine Seite Zeichnungen

Anhängende Zeichnungen

FIG. 1

