(19)日本国特許庁(JP)　(12)公開特許公報(A)　(11)特許出願公開番号
特開2015-201610
(P2015-201610A)
(43)公開日　平成27年11月12日(2015.11.12)

(51)Int.Cl.		F I			テーマコード（参考）
H01G 4/18	***(2006.01)***	H01G	4/24	321C	4F071
C08J 5/18	***(2006.01)***	C08J	5/18	CES	4J100
C23C 14/20	***(2006.01)***	H01G	4/18	321	4K029
C08F 10/06	***(2006.01)***	C23C	14/20	A	5E082
		C08F	10/06		

審査請求 未請求　請求項の数 6　ＯＬ　（全 24 頁）

(21)出願番号　特願2014-132997(P2014-132997)
(22)出願日　平成26年6月27日(2014.6.27)
(31)優先権主張番号　特願2014-73192(P2014-73192)
(32)優先日　平成26年3月31日(2014.3.31)
(33)優先権主張国　日本国(JP)

(71)出願人　000122298
王子ホールディングス株式会社
東京都中央区銀座４丁目７番５号
(74)代理人　100081422
弁理士　田中　光雄
(74)代理人　100101454
弁理士　山田　卓二
(74)代理人　100104592
弁理士　森住　憲一
(74)代理人　100172605
弁理士　岩木　郁子

最終頁に続く

(54)【発明の名称】コンデンサ用二軸延伸ポリプロピレンフィルム

(57)【要約】
【課題】高い耐電圧性を有する、絶縁破壊特性に優れたコンデンサ用二軸延伸ポリプロピレンフィルムを提供することである。さらに、高温下で高電圧が印加される高容量のコンデンサに好適に使用可能である、好ましくは厚さの薄い、コンデンサ用二軸延伸ポリプロピレンフィルムを提供することである。
【解決手段】コンデンサ用二軸延伸ポリプロピレンフィルムであって、該ポリプロピレンフィルムを構成するポリプロピレン樹脂は、数平均分子量が４万以上１０万以下、Ｚ平均分子量が９５万以上１５０万以下、分子量分布曲線において、対数分子量Ｌｏｇ（Ｍ）＝４．５のときの微分分布値からＬｏｇ（Ｍ）＝６．０のときの微分分布値を引いた差が－１５％以上１１％以下である、ポリプロピレンフィルム。
【選択図】なし

【特許請求の範囲】
【請求項１】
コンデンサ用二軸延伸ポリプロピレンフィルムであって、該ポリプロピレンフィルムを構成するポリプロピレン樹脂は、
・数平均分子量が４万以上１０万以下、
・Ｚ平均分子量が９５万以上１５０万以下、
・分子量分布曲線において、対数分子量Ｌｏｇ（Ｍ）＝４．５のときの微分分布値からＬｏｇ（Ｍ）＝６．０のときの微分分布値を引いた差が－１５％以上１１％以下
である、ポリプロピレンフィルム。
【請求項２】
前記ポリプロピレンフィルムの結晶子サイズは、広角Ｘ線回折法により測定したα晶（０４０）面反射ピークの半価幅からScherrerの式を用いて算出して１２．２ｎｍ以下である、請求項１に記載のコンデンサ用二軸延伸ポリプロピレンフィルム。
【請求項３】
前記ポリプロピレンフィルムはポリプロピレン樹脂組成物を二軸延伸してなり、該ポリプロピレン樹脂組成物は、メルトフローレートが４ｇ／１０分以下であるポリプロピレン樹脂を、該ポリプロピレン樹脂組成物に含まれるポリプロピレン樹脂の総量に基づいて１質量％以上７０質量％以下の量で含有する、請求項１または２に記載のコンデンサ用二軸延伸ポリプロピレンフィルム。
【請求項４】
前記ポリプロピレンフィルムはポリプロピレン樹脂組成物を二軸延伸してなり、該ポリプロピレン樹脂組成物は、数平均分子量（Ｍｎ）が４万以上１５万以下であり、Ｚ平均分子量が１２０万以上２６０万以下であるポリプロピレン樹脂を、該ポリプロピレン樹脂組成物に含まれるポリプロピレン樹脂の総量に基づいて１質量％以上７０質量％以下の量で含有する、請求項１～３のいずれかに記載のコンデンサ用二軸延伸ポリプロピレンフィルム。
【請求項５】
請求項１～４のいずれかに記載のコンデンサ用二軸延伸ポリプロピレンフィルムの片面または両面に金属蒸着が施された、コンデンサ用金属化ポリプロピレンフィルム。
【請求項６】
請求項５に記載のコンデンサ用金属化ポリプロピレンフィルムを用いて製造したコンデンサ。
【発明の詳細な説明】
【技術分野】
【０００１】
本発明は、高温下での高い耐電圧性を有する、絶縁破壊特性に優れたコンデンサ用二軸延伸ポリプロピレンフィルムに関する。さらにより詳細には、高温下、高電圧が印加される高容量型コンデンサに好適に使用可能であり、好ましくは厚さの薄い、コンデンサ用二軸延伸ポリプロピレンフィルムに関する。
【背景技術】
【０００２】
二軸延伸ポリプロピレンフィルムは、ポリプロピレンフィルムの耐電圧性および低い誘電損失特性等の優れた電気特性、並びに高い耐湿性を生かして、電子および電気機器において、例えば高電圧コンデンサ、各種スイッチング電源、コンバータおよびインバータ等のフィルタ用コンデンサおよび平滑用コンデンサ等のコンデンサ用誘電体フィルムとして好ましく利用されている。ポリプロピレンフィルムは、近年需要が高まっている電気自動車およびハイブリッド自動車等の駆動モーターを制御するインバータ電源機器用コンデンサとしても利用され始めている。
【０００３】
このような自動車等に用いられるインバータ電源機器用のコンデンサに対しては、車両

の小型化と軽量化に伴い、コンデンサ自体のさらなる小型化および軽量化が求められている。コンデンサを小型化および軽量化するためには、コンデンサ用フィルムとして高延伸性能を有するポリプロピレンフィルムを用いて、例えば１～６μｍの厚みに極薄化することが考えられる。その一方で、極薄化されたフィルムであっても、より高温下、より高い電圧を印加しても絶縁破壊されない高い耐電圧性が必要とされていること、また、そのようなフィルムに基づくコンデンサにおいては、－４０℃～９０℃という広い温度範囲、特に高温下で、高電圧が印加されても、高い耐電圧性を有すること、特に高い初期耐電圧性および長期耐電圧性を有することが求められる。

【０００４】

ポリプロピレンフィルムに関し、例えば特許文献１には、電気絶縁性、アンチブロッキング性および機械特性に優れたキャパシターフィルムを得るために、所定の数平均分子量（Ｍｎ）、分子量分布（Ｍｗ/Ｍｎ またはＭｚ/Ｍｎ）、メルトフローレートとしたポリプロピレン樹脂を二軸延伸し、ポリプロピレンフィルムを得ることが提案されている。しかしながら、特許文献１に記載のフィルムは、コンデンサ用の誘電体フィルムとして使用することが想定されるものではなく、高温下での耐電圧性に与える影響については何らの検討もなされていない。

【０００５】

特許文献２には、巻き加工適性に優れた極薄の粗面化二軸延伸ポリプロピレンフィルムを得るために、特定のメルトフローインデックス（ＭＦＲ）を有するアイソタクチックポリプロピレンの単重合体（Ａ）に、ＭＦＲが当該樹脂（Ａ）より１～３０ｇ／１０分大きいアイソタクチックポリプロピレンの単重合体（Ｂ）を１質量％以上３０質量％以下添加してなる樹脂混合物からなる二軸延伸ポリプロピレンフィルムが提案されている。しかし、低分子量成分の構成が大きい樹脂からなる当該ポリプロピレンフィルムは、コンデンサ素子自体のさらなる小型化と高温下での高い初期耐電圧性及び長期耐用性に関する近年の市場からの高度な要請に対して必ずしも十分とは言えない場合があった。

【先行技術文献】

【特許文献】

【０００６】

【特許文献１】特開２００４－１７５９３２号公報

【特許文献２】特開２０１０－２５４７９４号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【０００７】

高温下で高電圧が印加される高容量型コンデンサにおいて、さらなる小型化と、高温下でのさらなる高い耐電圧性、特に初期耐電圧性および長期耐電圧性に関する近年の市場からの高度な要請を十分に満足する、コンデンサ用二軸延伸ポリプロピレンフィルムを得ることは困難であった。

そこで、本発明の目的は、高温下での耐電圧性を有する、絶縁破壊特性に優れたコンデンサ用二軸延伸ポリプロピレンフィルムを提供することである。さらに、高温下で高電圧が印加される高容量のコンデンサに好適に使用可能である、好ましくは厚さの薄い、コンデンサ用二軸延伸ポリプロピレンフィルムを提供することである。さらに、上記のコンデンサ用二軸延伸ポリプロピレンフィルムに金属蒸着が施されたコンデンサ用金属化ポリプロピレンフィルム、ならびに、このようなポリプロピレンフィルムを用いて製造した、高温下での耐電圧性を有するコンデンサを提供することである。

【課題を解決するための手段】

【０００８】

本発明者等は、鋭意検討の結果、以下に記載する手段により上記目的を達成できることを見出し、本発明を完成させるに至った。

すなわち、本発明は、以下の好適な態様を包含する。

〔１〕コンデンサ用二軸延伸ポリプロピレンフィルムであって、該ポリプロピレンフィル

ムを構成するポリプロピレン樹脂は、
・数平均分子量が４万以上１０万以下、
・Ｚ平均分子量が９５万以上１５０万以下、
・分子量分布曲線において、対数分子量Ｌｏｇ（Ｍ）＝４．５のときの微分分布値からＬｏｇ（Ｍ）＝６．０のときの微分分布値を引いた差が－１５％以上１１％以下
である、ポリプロピレンフィルム。
〔２〕前記ポリプロピレンフィルムの結晶子サイズは、広角Ｘ線回折法により測定したα晶（０４０）面反射ピークの半価幅からScherrerの式を用いて算出して１２．２ｎｍ以下である、前記〔１〕に記載のコンデンサ用二軸延伸ポリプロピレンフィルム。
〔３〕前記ポリプロピレンフィルムはポリプロピレン樹脂組成物を二軸延伸してなり、該ポリプロピレン樹脂組成物は、メルトフローレートが４ｇ／１０分以下であるポリプロピレン樹脂を、該ポリプロピレン樹脂組成物に含まれるポリプロピレン樹脂の総量に基づいて１質量％以上７０質量％以下の量で含有する、前記〔１〕または〔２〕に記載のコンデンサ用二軸延伸ポリプロピレンフィルム。
〔４〕前記ポリプロピレンフィルムはポリプロピレン樹脂組成物を二軸延伸してなり、該ポリプロピレン樹脂組成物は、数平均分子量（Ｍｎ）が４万以上１５万以下であり、Ｚ平均分子量が１２０万以上２６０万以下であるポリプロピレン樹脂を、該ポリプロピレン樹脂組成物に含まれるポリプロピレン樹脂の総量に基づいて１質量％以上７０質量％以下の量で含有する、前記〔１〕～〔３〕のいずれかに記載のコンデンサ用二軸延伸ポリプロピレンフィルム。
〔５〕前記〔１〕～〔４〕のいずれかに記載のコンデンサ用二軸延伸ポリプロピレンフィルムの片面または両面に金属蒸着が施された、コンデンサ用金属化ポリプロピレンフィルム。
〔６〕前記〔５〕に記載のコンデンサ用金属化ポリプロピレンフィルムを用いて製造したコンデンサ。
【発明の効果】
【０００９】
本発明によれば、高温下での高い耐電圧性を有する、絶縁破壊特性に優れたコンデンサ用二軸延伸ポリプロピレンフィルムを提供することができる。また、高温下、高電圧が印加される高容量のコンデンサに好適に使用可能である、好ましくは厚さの薄い、コンデンサ用二軸延伸ポリプロピレンフィルムを提供することができる。また、本発明によれば、高温下での高い耐電圧性を有するコンデンサを得ることができる。
【発明を実施するための形態】
【００１０】
本発明のポリプロピレンフィルムを構成するポリプロピレン樹脂の数平均分子量（Ｍｎ）は、４万以上１０万以下である。ポリプロピレン樹脂の数平均分子量（Ｍｎ）は、フィルムの熱－機械的特性や延伸性の観点から、４．１万以上であることが好ましく、４．２万以上であることがより好ましい。ポリプロピレン樹脂の数平均分子量（Ｍｎ）は、フィルムの厚み精度の観点から、８万以下であることが好ましく、６万以下であることがより好ましい。
【００１１】
本発明のポリプロピレンフィルムを構成するポリプロピレン樹脂のＺ平均分子量（Ｍｚ）は、９５万以上１５０万以下である。ポリプロピレン樹脂のＺ平均分子量（Ｍｚ）は、耐電圧性の観点から、９６万以上であることが好ましく、９８万以上であることがより好ましい。ポリプロピレン樹脂のＺ平均分子量（Ｍｚ）は、延伸性の観点から、１４５万以下であることが好ましく、１４０万以下であることがより好ましい。
【００１２】
ポリプロピレン樹脂の数平均分子量（Ｍｎ）およびＺ平均分子量（Ｍｚ）は、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）法によって測定することができる。ＧＰＣ法に使用されるＧＰＣ装置には特に制限はなく、ポリオレフィン類の分子量分析が可能な市

販の高温型ＧＰＣ測定機、例えば、東ソー株式会社製、示差屈折計（ＲＩ）内蔵型高温ＧＰＣ測定機、ＨＬＣ－８１２１ＧＰＣ-ＨＴ等を使用することができる。この場合、例えば、ＧＰＣカラムとして東ソー株式会社製、ＴＳＫｇｅｌ ＧＭＨＨＲ－Ｈ（２０）ＨＴを３本連結させたものが用いられ、カラム温度は１４０℃に設定され、溶離液としてトリクロロベンゼンが用いられ、流速１．０ｍｌ／分にて測定される。通常、標準ポリスチレンを用いて検量線を作製し、ポリスチレン換算により数平均分子量（Ｍｎ）およびＺ平均分子量（Ｍｚ）を得る。また、こうして得られる重量平均分子量の対数値を、対数分子量（「Ｌｏｇ（Ｍ）」）と称する。

【００１３】

本発明のポリプロピレンフィルムを構成するポリプロピレン樹脂において、分子量微分分布曲線おける対数分子量Ｌｏｇ（Ｍ）＝４．５のときの微分分布値から、Ｌｏｇ（Ｍ）＝６．０のときの微分分布値を引いた差は、－１５％以上１１％以下である。上記差が－１０％以上１１％以下であることが好ましく、－８以上１１％以下であることがより好ましい。このようなポリプロピレン樹脂は、分子量１００万前後の高分子量成分に対して、分子量１万から１０万程度の成分を所定の割合で含む。その結果、フィルムの厚み精度を保持しつつ、結晶子サイズがより小さくなり、所望の配向性及び粗化された表面を得やすくなる。

【００１４】

ここで、上記の微分分布値の差は、ポリプロピレン樹脂の有する数平均分子量（Ｍｎ）の値（４万～１０万）に近い分子量１万から１０万の成分（以下、「低分子量成分」ともいう）の代表的な分布値として対数分子量Ｌｏｇ（Ｍ）＝４．５における微分分布値を用い、ポリプロピレン樹脂の有するＺ平均分子量（Ｍｚ）の値（９５万～１５０万）に近い分子量１００万前後の成分（以下、「高分子量成分」ともいう）の代表的な分布値としてＬｏｇ（Ｍ）＝６．０の微分分布値を用い、対数分子量Ｌｏｇ（Ｍ）が４～５の間（低分子量成分）の分布値が、対数分子量Ｌｏｇ（Ｍ）が６前後（高分子量成分）の分布値に比較して、所定の割合となることを意味している。ここで、例えば分子量分布Ｍｚ／Ｍｎ等の範囲を規定するとしても単に分子量分布幅の広さを表しているに過ぎず、その中の高分子量成分と低分子量成分との量的な関係までを表すものではない。本発明のポリプロピレンフィルムを構成するポリプロピレン樹脂は、上記の所定の数平均分子量およびＺ平均分子量を有すると同時に、上記のように、分子量１００万の成分に対して、分子量１万から１０万の成分を上記所定の範囲の割合で含む。

【００１５】

このような微分分布値は、次のような方法で測定することができる。まず、ＧＰＣの示差屈折検出計（ＲＩ検出計）を用いて検出される、強度分布の時間曲線（一般には、「溶出曲線」ともいう）を、上記標準ポリスチレンを用いて作製した検量線を用いて、標準ポリスチレンの分子量Ｍ（Ｌｏｇ（Ｍ））に対する分布曲線に変換した。次に、分布曲線の全面積を１００％とした場合のＬｏｇ（Ｍ）に対する積分分布曲線を得て、この積分分布曲線をＬｏｇ（Ｍ）で微分することによって、Ｌｏｇ（Ｍ）に対する微分分布曲線を得る。この微分分布曲線から、Ｌｏｇ（Ｍ）＝４．５およびＬｏｇ（Ｍ）＝６．０のときの微分分布値を読み取る。なお、上記微分分布曲線を得るまでの一連の操作は、ＧＰＣ測定装置に内蔵されている解析ソフトウェアを用いて行うことができる。

【００１６】

ポリプロピレンフィルムを構成するポリプロピレン樹脂の重量平均分子量（Ｍｗ）は、２５万以上４５万以下であることが好ましい。このようなポリプロピレン樹脂を用いると、二軸延伸時に適度な樹脂流動性が得られ、キャスト原反シートの厚さの制御が容易となり、例えば小型かつ高容量型のコンデンサ用に適した、極薄化された二軸延伸ポリプロピレンフィルムを得ることが容易となるため好ましい。また、キャスト原反シートおよび二軸延伸ポリプロピレンフィルムの厚みのムラが発生し難くなるため好ましい。ポリプロピレン樹脂の重量平均分子量（Ｍｗ）は、二軸延伸ポリプロピレンフィルムの厚みの均一性、力学特性、熱-機械特性等の観点から、２７万以上であることがより好ましく、２９万

以上であることがさらに好ましい。ポリプロピレン樹脂の重量平均分子量（Ｍｗ）は、ポリプロピレン樹脂組成物の流動性および極薄化された二軸延伸ポリプロピレンフィルムを得る際の延伸性の観点から、４０万以下であることがより好ましい。

【００１７】

ポリプロピレンフィルムを構成するポリプロピレン樹脂の、重量平均分子量（Ｍｗ）と数平均分子量（Ｍｎ）との比として算出される分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は、６以上１２以下であることが好ましい。分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は、７以上であることがより好ましく、７．５以上であることがさらに好ましい。分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は、１１以下であることがより好ましく、１０以下であることがさらに好ましい。このようなポリプロピレン樹脂を用いると、二軸延伸時に適度な樹脂流動性が得られ、厚みムラのない極薄化された二軸延伸プロピレンフィルムを得ることが容易となるため好ましい。また、このようなポリプロピレン樹脂組成物は、二軸延伸ポリプロピレンフィルムの耐電圧性の観点からも好ましい。

【００１８】

ポリプロピレンフィルムを構成するポリプロピレン樹脂の、Ｚ平均分子量（Ｍｚ）と数平均分子量（Ｍｎ）との比として算出される分子量分布（Ｍｚ／Ｍｎ）は、２０以上７０以下であるポリプロピレン樹脂を含有することが好ましい。分子量分布（Ｍｚ／Ｍｎ）は、２４以上であることがより好ましい。分子量分布（Ｍｚ／Ｍｎ）は、６０以下であることがより好ましく、５０以下であることがさらに好ましい。このようなポリプロピレン樹脂を用いると、二軸延伸時に適度な樹脂流動性が得られ、厚みムラのない極薄化された二軸延伸プロピレンフィルムを得ることが容易となるため好ましい。また、このようなポリプロピレン樹脂組成物は、二軸延伸ポリプロピレンフィルムの耐電圧性の観点からも好ましい。

【００１９】

なお、ポリプロピレン樹脂の重量平均分子量（Ｍｗ）は、上記の数平均分子量（Ｍｎ）およびＺ平均分子量（Ｍｚ）と同様にして、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）法によって測定することができる。また、分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は、重量平均分子量（Ｍｗ）と数平均分子量（Ｍｎ）との比、重量平均分子量（Ｍｗ）／数平均分子量（Ｍｎ）として算出され、分子量分布（Ｍｚ／Ｍｎ）は、Ｚ平均分子量（Ｍｚ）と数平均分子量（Ｍｎ）との比、Ｚ平均分子量（Ｍｚ）／数平均分子量（Ｍｎ）として算出される。

【００２０】

ポリプロピレンフィルムを構成するポリプロピレン樹脂は、例えばアイソタクチックポリプロピレン、シンジオタクチックポリプロピレン等のポリプロピレンのホモポリマー、および、ポリプロピレンとポリエチレンとのコポリマーが挙げられる。耐熱性の観点から、ポリプロピレン樹脂は、アイソタクチックポリプロピレンであることが好ましく、オレフィン重合用触媒の存在下でポリプロピレンを単独重合して得られるアイソタクチックポリプロピレンであることがより好ましい。

【００２１】

本発明のコンデンサ用二軸延伸ポリプロピレンフィルムは、ポリプロピレン樹脂組成物を二軸延伸することにより得ることができる。

【００２２】

ポリプロピレン樹脂組成物に含まれるポリプロピレン樹脂としては、例えばアイソタクチックポリプロピレン、シンジオタクチックポリプロピレン等のポリプロピレンのホモポリマー、および、ポリプロピレンとポリエチレンとのコポリマーが挙げられる。耐熱性の観点から、ポリプロピレン樹脂は、アイソタクチックポリプロピレンであることが好ましく、オレフィン重合用触媒の存在下でポリプロピレンを単独重合して得られるアイソタクチックポリプロピレンであることがより好ましい。

【００２３】

ポリプロピレン樹脂組成物に含まれるポリプロピレン樹脂は、本発明のポリプロピレン

フィルムを構成するポリプロピレン樹脂が、上記の数平均分子量（Ｍｎ）、Ｚ平均分子量（Ｍｚ）および微分分布値の差を有する限り特に限定されず、例えば多段重合等により得た１種類のポリプロピレン樹脂であってもよいし、２種以上のポリプロピレン樹脂を組み合わせて得たポリプロピレン樹脂のブレンドであってもよい。

【００２４】

本発明のポリプロピレンフィルムを構成するポリプロピレン樹脂の数平均分子量（Ｍｎ）、Ｚ平均分子量（Ｍｚ）および微分分布値の差等の調整方法としては、例えば、ポリプロピレン樹脂組成物に含まれるポリプロピレン樹脂の重合条件を調節して分子量分布を調整することによる方法、分解剤を使用する方法、高分子量成分を選択的に分解処理する方法、異なる分子量の樹脂をブレンドする方法などが挙げられる。

【００２５】

重合条件によって数平均分子量（Ｍｎ）、Ｚ平均分子量（Ｍｚ）および微分分布値の差等を調整する場合には、後述の重合触媒を用いることが、調整しやすさの観点から好ましい。多段重合反応によってポリプロピレン樹脂を得る場合には、例えば、次のような方法が例示できる。触媒の存在下、高分子量成分用の重合反応器と低分子量または中分子量成分用の反応器の複数の反応器によって重合反応を行う。複数の反応器は、例えば直列又は並列に使用することができる。まず、反応器中へプロピレンおよび触媒を供給する。これらの成分とともに、要求されるポリマーの分子量に到達するために必要な量の分子量調整剤、例えば水素を混合して第１の重合反応を行う。反応温度は、例えばスラリー重合の場合、７０～１００℃程度、滞留時間は２０分～１００分程度である。第１の重合反応による生成物を、追加のプロピレン、触媒、分子量調整剤とともに逐次又は連続的に次の反応器に送り、第１の重合反応より低分子量あるいは高分子量の生成物が得られるように調整して第２の重合反応を行う。第１および第２の重合反応による収量（生産量）を調整することによって、高分子量成分及び低分子量成分の組成（構成）を調整することができる。

【００２６】

例えば、前段の重合で相対的に高分子量のポリプロピレンを製造し、後段の重合で相対的に低分子量のポリプロピレンを製造することができる。具体的には、２段重合の場合、第１段目において極限粘度［η_{1st}］が２．５～１０ｄｌ／ｇ、好ましくは２．５～７ｄｌ／ｇのポリプロピレンを最終的に得られるポリプロピレン樹脂中の含有量が０．５～４０質量％となる量で製造し、次いで第２段目において極限粘度［η_{2nd}］が０．１～５ｄｌ／ｇ、好ましくは０．３～３ｄｌ／ｇのポリプロピレンを最終的に得られるポリプロピレン樹脂中の含有量が９９．５～６０質量％となる量で製造することが好ましい。

また３段重合の場合、第１段目において極限粘度［η_{1st}］が２．５～１０ｄｌ／ｇ、好ましくは２．５～７ｄｌ／ｇのポリプロピレンを最終的に得られるポリプロピレン樹脂中の含有量が０．５～４０質量％となる量で製造し、次いで第２段目において極限粘度［η_{2nd}］が０．１～５ｄｌ／ｇ、好ましくは０．３～３ｄｌ／ｇのポリプロピレンを最終的に得られるポリプロピレン樹脂中の含有量が２０～９９質量％となる量で製造し、次いで第３段目において極限粘度［η_{3rd}］が０．００１～５ｄｌ／ｇ、好ましくは０．０５～３ｄｌ／ｇのポリプロピレンを最終的に得られるポリプロピレン樹脂中の含有量が０．５～４０質量％となる量で製造することが好ましい。

【００２７】

触媒としては、一般的なチーグラー・ナッタ触媒が好適に用いられる。また、用いる触媒は助触媒成分やドナーを含んでいてもよい。触媒や重合条件を適宜調整することにより、分子量分布をコントロールすることができる。

【００２８】

過酸化分解によって、ポリプロピレン原料樹脂の高分子量成分及び低分子量成分の組成（構成）を調整する場合には、過酸化水素や有機過酸化物などの分解剤を用いて過酸化処理を行う方法を採用することが好ましい。ポリプロピレンのような崩壊型ポリマーに過酸化物を添加すると、ポリマーからの水素引抜き反応が起こり、生じたポリマーラジカルは一部再結合し架橋反応も起こすが、殆どのラジカルは二次分解（β開裂）を起こし、より

分子量の小さな二つのポリマーに分かれることが知られている。したがって、高分子量成分からの分解が高い確率で進行し、その結果、低分子量成分が増大することにより、分子量分布の構成を調整することができる。低分子量成分を適度に含有する樹脂を過酸化分解により得る方法としては、例えば、次のような方法が例示できる。すなわち、重合反応により得られたポリプロピレン樹脂の粉末あるいはペレットと、有機過酸化物として、例えば、１，３－ビス－（ターシャリー－ブチルパーオキサイドイソプロピル）－ベンゼンなどを０．００１質量％～０．５質量％程度、目標とする高分子量成分及び低分子量成分の組成（構成）を考慮しながら調整添加して、溶融混練器機にて、１８０℃～３００℃程度の溶融混練する方法が挙げられる。

【００２９】

樹脂のブレンドによって、上記の数平均分子量（Ｍｎ）、Ｚ平均分子量（Ｍｚ）および微分分布値の差を調整する場合、異なる分子量を有する少なくとも２種以上の樹脂を、ドライあるいは溶融状態で混合してポリプロピレン樹脂組成物を得ることが、調整の容易さの観点から好ましい。

【００３０】

樹脂のブレンドによってポリプロピレン樹脂組成物を得る本発明の一実施形態においてポリプロピレン樹脂組成物は、以下に記載するポリプロピレン樹脂Ａを含むことが好ましい。ポリプロピレン樹脂Ａの重量平均分子量は、２５万以上４５万以下であることが好ましく、２５万以上４０万以下であることがより好ましい。このようなポリプロピレン樹脂Ａを含むポリプロピレン樹脂組成物を用いると、樹脂流動性が適度であり、キャスト原反シートの厚さの制御が容易であり、薄い延伸フィルムを作製することが容易になり得る。更に、シートおよびフィルムの厚みにムラを発生し難くなり、シートが適度な延伸性を有し得るので、好ましい。

【００３１】

ポリプロピレン樹脂Ａの、重量平均分子量（Ｍｗ）と数平均分子量（Ｍｎ）との比として算出される分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は、７．０以上１２．０以下であることが好ましい。分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は、７．０以上１１．０以下であることがより好ましく、７．２以上１０．０以下であることがさらに好ましい。このようなポリプロピレン樹脂Ａを含むポリプロピレン樹脂組成物を用いると、二軸延伸時に適度な樹脂流動性が得られ、厚みムラのない極薄化された二軸延伸プロピレンフィルムを得ることが容易となるため好ましい。また、このようなポリプロピレン樹脂組成物は、二軸延伸ポリプロピレンフィルムの耐電圧性の観点からも好ましい。

【００３２】

ポリプロピレン樹脂Ａの、Ｚ平均分子量（Ｍｚ）と数平均分子量（Ｍｎ）との比として算出される分子量分布（Ｍｚ／Ｍｎ）は、２０以上７０以下であることが好ましい。分子量分布（Ｍｚ／Ｍｎ）は、２５以上６０以下以上であることがより好ましく、２５以上５０以下であることがさらに好ましい。このようなポリプロピレン樹脂Ａを含むポリプロピレン樹脂組成物を用いると、二軸延伸時に適度な樹脂流動性が得られ、厚みムラのない極薄化された二軸延伸プロピレンフィルムを得ることが容易となるため好ましい。また、このようなポリプロピレン樹脂組成物は、二軸延伸ポリプロピレンフィルムの耐電圧性の観点からも好ましい。

【００３３】

なお、ポリプロピレン樹脂Ａの重量平均分子量（Ｍｗ）、数平均分子量（Ｍｎ）およびＺ平均分子量（Ｍｚ）は、上記のポリプロピレン樹脂の重量平均分子量（Ｍｗ）等と同様にして、ゲルパーミエーションクロマトグラフィー（ＧＰＣ）法によって測定することができる。また、分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）は、重量平均分子量（Ｍｗ）と数平均分子量（Ｍｎ）との比、重量平均分子量（Ｍｗ）／数平均分子量（Ｍｎ）として算出され、分子量分布（Ｍｚ／Ｍｎ）は、Ｚ平均分子量（Ｍｚ）と数平均分子量（Ｍｎ）との比、Ｚ平均分子量（Ｍｚ）／数平均分子量（Ｍｎ）として算出される。

【００３４】

また、平均分子量の目安として、メルトフローレート（ＭＦＲ）を用いることもできる。この場合、ポリプロピレン樹脂ＡのＭＦＲは、延伸性の観点から７ｇ／１０分以下であることが好ましく、６ｇ／１０分以下であることがより好ましい。また、本発明の二軸延伸ポリプロピレンフィルムの厚みの精度を高める観点から４ｇ／１０分以上であることが好ましく、４．５ｇ／１０分以上であることがより好ましい。

【００３５】

ポリプロピレン樹脂Ａのメソペンタッド分率（［ｍｍｍｍ］）は、９４．０％以上９８．０％以下であることが好ましい。メソペンタッド分率は、９５．０％以上９７．０％以下であることがより好ましい。ポリプロピレン樹脂Ａを含むポリプロピレン樹脂を用いると、適度に高い立体規則性によって樹脂の結晶性が適度に向上し、初期耐電圧性および長期間に渡る耐電圧性が向上する一方、キャスト原反シートを成形する際の適度な固化（結晶化）速度によって所望の延伸性を得ることができる。

【００３６】

メソペンタッド分率（［ｍｍｍｍ］）は、高温核磁気共鳴（ＮＭＲ）測定によって得ることができる立体規則性の指標である。具体的には、例えば、日本電子株式会社製、高温型フーリエ変換核磁気共鳴装置（高温ＦＴ－ＮＭＲ）、ＪＮＭ－ＥＣＰ５００を利用して測定することができる。観測核は、^{13}Ｃ（１２５ＭＨｚ）であり、測定温度は、１３５℃、ポリプロピレン樹脂を溶解する溶媒にはｏ－ジクロロベンゼン（ＯＤＣＢ：ＯＤＣＢと重水素化ＯＤＣＢの混合溶媒（混合比＝４／１）を用いることができる。高温ＮＭＲによる測定方法は、例えば、「日本分析化学・高分子分析研究懇談会編、新版　高分子分析ハンドブック、紀伊国屋書店、１９９５年、第６１０頁」に記載の方法を参照して行うことができる。

【００３７】

測定モードは、シングルパルスプロトンブロードバンドデカップリング、パルス幅は、９．１μｓｅｃ（４５°パルス）、パルス間隔５．５ｓｅｃ、積算回数４５００回、シフト基準は、CH_3（ｍｍｍｍ）＝２１．７ｐｐｍとすることができる。

【００３８】

立体規則性度を表すペンタッド分率は、同方向並びの連子「メソ（ｍ）」と異方向の並びの連子「ラセモ（ｒ）」の５連子（ペンタッド）の組み合わせ（ｍｍｍｍ及びｍｒｒｍ等）に由来する各シグナルの強度の積分値に基づいて百分率で計算される。ｍｍｍｍ及びｍｒｒｍ等に由来する各シグナルは、例えば、「Ｔ．Ｈａｙａｓｈｉ　ｅｔ　ａｌ．，Ｐｏｌｙｍｅｒ，２９巻，１３８頁（１９８８）」等を参照して帰属することができる。

【００３９】

ポリプロピレン樹脂組成物は、ポリプロピレン樹脂組成物中に含まれるポリプロピレン樹脂の総量に基づいて、ポリプロピレン樹脂Ａを、５５質量％以上、９０質量％以下含むことが好ましく、６０質量％以上、８５質量％以下含むことがより好ましく、６０質量％以上８０質量％以下含むことが特に好ましい。

【００４０】

本発明の一実施形態において、ポリプロピレン樹脂組成物は、結晶子サイズを小さくし、耐電圧性の高いコンデンサフィルムを得る観点から、数平均分子量（Ｍｎ）が４万以上１５万以下であり、Ｚ平均分子量が１２０万以上２６０万以下であるポリプロピレン樹脂Ｂ１を含有することが好ましい。

【００４１】

ポリプロピレン樹脂Ｂ１の数平均分子量（Ｍｎ）は、延伸性の観点から、４万以上１５万以下であることが好ましく、４．５万以上１３万以下であることがより好ましい。ポリプロピレン樹脂Ｂ１のＺ平均分子量は、本発明の二軸延伸ポリプロピレンフィルムの厚みの精度を高める観点から、１２０万以上２６０万以下であることが好ましく、１２０万以上２４０万以下であることがより好ましく、１２０万以上２００万以下であることがさらに好ましく、１２５万以上１９０万以下であることが特に好ましい。

【００４２】

上記範囲の数平均分子量（Ｍｎ）およびＺ平均分子量を有するポリプロピレン樹脂Ｂ１は、結晶子サイズを小さくし、耐電圧性の高いコンデンサフィルムを得る観点から、ポリプロピレン樹脂組成物中に含まれるポリプロピレン樹脂の総量に基づいて、好ましくは１質量％以上、より好ましくは５質量％以上、さらに好ましくは１０質量％以上であって、好ましくは７０質量％以下、より好ましくは６０質量％以下、さらに好ましくは５０質量％以下の量で含まれることが好ましい。

【００４３】

また、平均分子量の目安として、メルトフローレート（ＭＦＲ）を用いることもできる。この場合、ポリプロピレン樹脂組成物は、結晶子サイズを小さくし、耐電圧性の高いコンデンサフィルムを得る観点からメルトフローレートが４ｇ／１０分以下であるポリプロピレン樹脂Ｂ２を含むことが好ましい。

【００４４】

ポリプロピレン樹脂Ｂ２のメルトフローレートは、結晶子サイズを小さくし、耐電圧性の高いコンデンサフィルムを得る観点から４ｇ／１０分以下であることが好ましく、３．５ｇ／１０分以下であることがより好ましく、２．０ｇ／１０分以下であることが特に好ましい。上記のメルトフローレートは、本発明の二軸延伸ポリプロピレンフィルムの厚みの精度を高める観点から０．１ｇ／１０分以上であることが好ましく、０．２ｇ／１０分以上であることがより好ましく、０．３ｇ／１０分以上であることがさらに好ましい。

【００４５】

上記範囲のメルトフローレートを有するポリプロピレン樹脂Ｂ２は、結晶子サイズを小さくし、耐電圧性の高いコンデンサフィルムを得る観点から、ポリプロピレン樹脂組成物中に含まれるポリプロピレン樹脂の総量に基づいて、好ましくは１質量％以上、より好ましくは５質量％以上、さらに好ましくは１０質量％以上であって、好ましくは７０質量％以下、より好ましくは６０質量％以下、さらに好ましくは５０質量％以下の量で含まれることが好ましい。

【００４６】

樹脂のブレンドによって高分子量成分の含有量を調整する場合には、上記のポリプロピレン樹脂Ａに対して、より高い分子量を有するポリプロピレン樹脂Ｂ１、または、より低いＭＦＲを有するポリプロピレン樹脂Ｂ２を、ドライあるいは溶融状態で混合してポリプロピレン樹脂組成物を得ることが好ましい。例えば、主成分としてのポリプロピレン樹脂Ａ１００質量％に対して、ポリプロピレン樹脂Ｂ１またはＢ２を好ましくは１～７０質量％、より好ましくは５～６０質量％、さらに好ましくは１０～５０質量％の量で混合し、２種のポリプロピレン樹脂混合系であるポリプロピレン樹脂組成物を得る方法は、高分子量成分量の調整が容易であるため、好ましく採用される。ここで、これらの樹脂は、その重合粉あるいはペレットをミキサー等によってドライブレンドする方法、その重合粉あるいはペレットを混練機によって溶融混練してブレンド樹脂を得る方法などを含む非限定的な任意の混合方法に従って混合してよい。

【００４７】

本発明において、ポリプロピレン樹脂組成物に、ポリプロピレン樹脂以外の他の樹脂（以下「他の樹脂」ともいう）を本発明の効果を損なわない範囲内で混合してよい。ここで、「他の樹脂」は特に限定されず、ポリプロピレン樹脂以外の樹脂であってコンデンサ用途に適したものとされる従来公知の樹脂を本発明においても適宜用いることができる。他の樹脂としては、例えば、ポリエチレン、ポリ（１－ブテン）、ポリイソブテン、ポリ（１－ペンテン）、ポリ（１－メチルペンテン）などのポリプロピレン以外の他のポリオレフィン、エチレン－プロピレン共重合体、プロピレン－ブテン共重合体、エチレン－ブテン共重合体などの、α－オレフィン同士の共重合体、スチレン－ブタジエンランダム共重合体などのビニル単量体－ジエン単量体ランダム共重合体、スチレン－ブタジエン－スチレンブロック共重合体などのビニル単量体－ジエン単量体－ビニル単量体ランダム共重合体等が挙げられる。このような他の樹脂の配合量は、ポリプロピレン樹脂組成物に含まれるポリプロピレン樹脂の総量に基づいて、１０質量部以下であることが好ましく、より好

ましくは５質量部以下である。

【００４８】

ポリプロピレン樹脂組成物は、ポリプロピレン樹脂の他に、必要に応じて少なくとも１種の添加剤を含有してよい。添加剤とは、一般的に、ポリプロピレン樹脂に使用される添加剤である限り特に制限されない。このような添加剤には、例えば酸化防止剤、塩素吸収剤、紫外線吸収剤等の安定剤、滑剤、可塑剤、難燃化剤、帯電防止剤、着色剤等が含まれる。このような添加剤を、本発明の効果を損なわない範囲内でポリプロピレン樹脂組成物に添加してよい。

【００４９】

「酸化防止剤」は、ポリプロピレンに対して通常使用されるものである限り、特に制限されない。酸化防止剤は、一般的に２種類の目的で使用される。一つの目的は、押出機内での熱劣化および酸化劣化を抑制することであり、他の目的は、フィルムコンデンサとしての長期使用における劣化抑制およびコンデンサ性能の向上に寄与することである。押出機内での熱劣化および酸化劣化を抑制する酸化防止剤を「１次剤」ともいい、コンデンサ性能の向上に寄与する酸化防止剤を「２次剤」ともいう。これらの２つの目的のために、２種類の酸化防止剤を用いてもよいし、２つの目的のために１種類の酸化防止剤を使用してもよい。

【００５０】

２種類の目的で酸化防止剤を用いる場合、ポリプロピレン樹脂組成物は、１次剤として、例えば、２，６－ジ－ターシャリー－ブチル－パラ－クレゾール（一般名称：ＢＨＴ）を、ポリプロピレン樹脂を基準（１００質量部）に対して、１０００ｐｐｍ～４０００ｐｐｍ程度含むことができる。この目的の酸化防止剤は、押出機内での成形工程にてほとんどが消費され、製膜成形後のフィルム中には、ほとんど残存しない（一般的には、残存量１００ｐｐｍより少ない）。

【００５１】

２次剤として、カルボニル基を有するヒンダードフェノール系酸化防止剤を使用することができる。本発明において使用できるカルボニル基を有するヒンダードフェノール系酸化防止剤としては、特に制限されないが、例えば、トリエチレングリコール－ビス［３－（３－ターシャリー－ブチル－５－メチル－４－ヒドロキシフェニル)プロピオネート］（商品名：イルガノックス２４５）、１，６－ヘキサンジオール－ビス［３－（３，５－ジ－ターシャリー－ブチル－４－ヒドロキシフェニル)プロピオネート］（商品名：イルガノックス２５９）、ペンタエリスルチル・テトラキス［３－（３，５－ジ－ターシャリーブチル－４－ヒドロキシフェニル）プロピオネート］（商品名：イルガノックス１０１０）、２，２－チオ－ジエチレンビス［３－（３，５－ジ－ターシャリー－ブチル－４－ヒドロキシフェニル)プロピオネート］（商品名：イルガノックス１０３５）、オクタデシル－３－（３，５－ジ－ターシャリー－ブチル－４－ヒドロキシフェニル)プロピオネート（商品名：イルガノックス１０７６）、Ｎ，Ｎ’－ヘキサメチレンビス（３，５－ジ－ターシャリー－ブチル－４－ヒドロキシ－ヒドロシンナマミド)（商品名：イルガノックス１０９８）などが挙げられる。なかでも、高分子量であってポリプロピレンとの相溶性に富み、低揮発性かつ耐熱性に優れたペンタエリスルチル・テトラキス［３－（３，５－ジ－ターシャリーブチル－４－ヒドロキシフェニル）プロピオネート］が、最も好ましい。

【００５２】

カルボニル基を有するヒンダードフェノール系酸化防止剤は、押出機内で少なからず消費されることを考慮して、ポリプロピレン樹脂組成物に含まれるポリプロピレン樹脂の総量に基づいて、好ましくは２０００ｐｐｍ以上７０００ｐｐｍ以下、より好ましくは３０００ｐｐｍ以上７０００ｐｐｍ以下の量で、ポリプロピレン樹脂組成物中に含まれる。

【００５３】

ポリプロピレン樹脂組成物が１次剤を含まない場合、カルボニル基を有するヒンダードフェノール系酸化防止剤をより多く使用することができる。この場合、押出機内における

カルボニル基を有するヒンダードフェノール系酸化防止剤の消費量が増える点から、カルボニル基を有するヒンダードフェノール系酸化防止剤は、ポリプロピレン樹脂１００質量部を基準に、３０００ｐｐｍ以上８０００ｐｐｍ以下の量で添加することが好ましい。

【００５４】

本発明では、二軸延伸ポリプロピレンフィルムの長期使用時における経時的に進行する劣化を抑制する目的で、カルボニル基を有するヒンダードフェノール系酸化防止剤（２次剤）を１種類以上含有し、フィルム中の含有量は、ポリプロピレン樹脂組成物に含まれるポリプロピレン樹脂の総量に基づいて、１０００ｐｐｍ以上６０００ｐｐｍ以下であることが好ましく、１５００ｐｐｍ以上６０００ｐｐｍ以下であることが好ましい。

【００５５】

ポリプロピレンと分子レベルで相溶性が良好であるカルボニル基を有するヒンダードフェノール系酸化防止剤を、最適な特定範囲の量を含有させたフィルムコンデンサは、高い耐電圧性能を維持したまま、非常に高温のライフ試験においても長期に渡って、静電容量を低下させず（劣化が進行せず）、長期耐用性が向上するので好ましい。

【００５６】

ポリプロピレン樹脂組成物は、酸化防止剤として、リン系酸化防止剤を含有してもよい。リン系酸化防止剤は、有機過酸化物の均等開裂を抑制し樹脂の劣化を抑制することができる。リン系酸化防止剤として、例えば、トリス（２，４-ジ-ｔ-ブチルフェニル）ホスファイト（商品名：イルガフォス１６８）、ビス（２，４-ジ-ｔ-ブチル-６-メチルフェニル）エチルホスファイト（商品名：イルガフォス３８）などが挙げられる。リン系酸化防止剤は、ポリプロピレン樹脂１００質量部を基準に、１０００ｐｐｍ～２０００ｐｐｍ程度の量で添加することが好ましい。

【００５７】

ポリプロピレン樹脂組成物は、酸化防止剤として、上記酸化防止剤を単独で含有してもよいし、例えばＢＨＴとヒンダードフェノール系酸化防止剤とを組み合わせて含有してもよく、リン系酸化防止剤とＢＨＴおよび／またはヒンダードフェノール系酸化防止剤とを組み合せて含有してもよい。リン系酸化防止剤とヒンダードフェノール系酸化防止剤との併用は、強い相乗効果が得られるため、好ましい。

【００５８】

「塩素吸収剤」は、ポリプロピレンに対して通常使用されるものである限り、特に制限されない。塩素吸収剤として、例えば、ステアリン酸カルシウムなどの金属石鹸等を例示できる。

【００５９】

「紫外線吸収剤」は、ポリプロピレンに対して通常使用されるものである限り、特に制限されない。紫外線吸収剤として、例えば、ベンゾトリアゾール（ＢＡＳＦ製Ｔｉｎｕｖｉｎ３２８等）、ベンゾフェノン（Ｃｙｔｅｃ製Ｃｙｓｏｒｂ　ＵＶ－５３１等）、ハイドロキシベンゾエート（Ｆｅｒｒｏ製ＵＶ－ＣＨＥＫ－ＡＭ－３４０等）等を例示できる。

【００６０】

「滑剤」は、ポリプロピレンに対して通常使用されるものである限り、特に制限されない。滑剤として、例えば、第一級アミド（ステアリン酸アミド等）、第二級アミド（Ｎ－ステアリルステアリン酸アミド等）、エチレンビスアミド（Ｎ，Ｎ’－エチレンビスステアリン酸アミド等）等を例示できる。

【００６１】

「可塑剤」は、ポリプロピレンに対して通常使用されるものである限り、特に制限されない。可塑剤として、例えば、ＰＰランダム共重合体等を例示できる。

【００６２】

「難燃化剤」は、ポリプロピレンに対して通常使用されるものである限り、特に制限されない。難燃化剤として、例えば、ハロゲン化合物、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、リン酸塩、ボレート、アンチモン酸化物等を例示できる。

【００６３】
「帯電防止剤」は、ポリプロピレンに対して通常使用されるものである限り、特に制限されない。帯電防止剤として、例えば、グリセリンモノエステル（グリセリンモノステアレート等）、エトキシル化された第二級アミン等を例示できる。
【００６４】
「着色剤」は、ポリプロピレンに対して通常使用されるものである限り、特に制限されない。着色剤として、例えば、カドミウム、クロム含有無機化合物からアゾ、キナクリドン有機顔料の範囲まで例示できる。
【００６５】
本発明において、ポリプロピレン樹脂組成物に含まれるポリプロピレン樹脂は、従来公知の方法を用いて製造することができ、重合方法としては、例えば、気相重合法、塊状重合法およびスラリー重合法が挙げられる。重合は、１つの重合反応機を用いる一段重合であってよく、２以上の重合反応器を用いた多段重合であってもよい。また、反応器中に水素又はコモノマーを分子量調整剤として添加して重合を行ってもよい。重合触媒としては、従来公知のチーグラー・ナッタ触媒を使用することができ、重合触媒には助触媒成分やドナーが含まれていてもよい。ポリプロピレン樹脂の分子量、分子量分布および立体規則性等は、重合触媒その他の重合条件を適宜調整することによって制御することができる。
【００６６】
本発明の一態様において、複数のポリプロピレン原料樹脂を混合してポリプロピレン樹脂組成物として使用する場合、混合方法は特に制限されないが、例えば粉末状あるいはペレット状の各樹脂をミキサー等によってドライブレンドする方法、粉末状あるいはペレット状の各樹脂を混練機内で溶融混練することによりブレンド樹脂を得る方法などが挙げられる。
【００６７】
使用できるミキサーには特に制限が無く、ヘンシェルミキサー、リボンブレンダー、バンバリーミキサーなどを使用することができる。また、使用できる混練機にも特に制限は無く、１軸スクリュータイプ、２軸スクリュータイプ、又はそれ以上の多軸スクリュータイプの何れを使用することもできる。２軸以上のスクリュータイプの場合、同方向又は異方向回転のいずれの混練タイプも使用できる。
【００６８】
溶融混練によるブレンドの場合には、良好な混練さえ得られる限り混練温度に特に制限はないが、一般的には、２００℃から３００℃の範囲であり、２３０℃から２７０℃が好ましい。あまり高い温度で混練を行うと、樹脂の劣化を招く場合があるため好ましくない。樹脂の混練混合の際の劣化を抑制するために、混練機中へ窒素などの不活性ガスをパージしてもよい。溶融混練された樹脂は、既知の造粒機を用いて適当な大きさにペレタイズすることによって、混合ポリプロピレン原料樹脂ペレットを得ることができる。
【００６９】
本発明におけるポリプロピレン原料樹脂中に含まれる重合触媒残渣等に起因する総灰分は、電気特性を向上させるために可能な限り少ないことが好ましい。総灰分は、ポリプロピレン樹脂を基準（１００質量部）として、２００ｐｐｍ以下であることが好ましく、１００ｐｐｍ以下であることがより好ましく、７５ｐｐｍ以下であることが特に好ましい。
【００７０】
本発明のコンデンサ用二軸延伸ポリプロピレンフィルムは、上記のポリプロピレン樹脂組成物を二軸延伸してなるポリプロピレンフィルムである。本発明のコンデンサ用二軸延伸ポリプロピレンフィルムは、耐電圧性の観点から、広角Ｘ線回折法により測定したα晶（０４０）面反射ピークの半価幅からScherrerの式を用いて算出して１２．２ｎｍ以下の結晶子サイズを有することが好ましい。
【００７１】
本発明において、ポリプロピレンフィルムの「結晶子サイズ」とは、広角Ｘ線回折法（ＸＲＤ法）を用いて測定される、ポリプロピレンフィルムのα晶（０４０）面の回折反射

ピークの半価幅から、後述するScherrerの式を用いて算出される結晶子サイズをいう。
【００７２】
ポリプロピレンフィルムの結晶子サイズは、より好ましくは１２．０ｎｍ以下である。結晶子サイズが上記の範囲で小さいポリプロピレンフィルムを使用すると、漏れ電流が小さくなり、ジュール発熱による構造破壊の発生が抑制されるため、耐熱性、耐電圧性および長期間にわたる耐熱性および耐電圧性の観点から好ましい。ポリプロピレンフィルムの結晶子サイズは、ポリプロピレンフィルムの機械的強度および融点を維持する観点から、好ましくは１０．０ｎｍ以上であり、より好ましくは１０．５ｎｍ以上である。
【００７３】
本発明のポリプロピレンフィルムの「結晶子サイズ」は、具体的には、以下のようにして求めることができる。まず、二軸延伸ポリプロピレンフィルムまたはその金属化フィルムの広角Ｘ線回折を行い、得られたα晶（０４０）面の回折反射ピークの半価幅を求めた。次に、得られたα晶（０４０）面の回折反射ピークの半価幅から、下記（１）式に示すScherrerの式を用いて、結晶子サイズを求めた。なお、本発明では、形状因子定数Ｋは、０．９４を用いた。
【数１】
$$D = K \times \lambda / (\beta \times \mathrm{Cos}\,\theta) \qquad (1)$$

［ここで、Ｄは、結晶子サイズ（ｎｍ）、Ｋは定数（形状因子）、λは使用Ｘ線波長（ｎｍ）、βは求めた半価幅、θは回折ブラッグ角である。］
【００７４】
本発明の二軸延伸ポリプロピレンフィルムは、上記のポリプロピレン樹脂組成物を通常の方法に従って二軸延伸することによって得ることができる。本発明では、まず、二軸延伸ポリプロピレンフィルムを製造するための「延伸前のキャスト原反シート」を、公知の方法を使用して成形することが好ましい。例えば、ポリプロピレン樹脂ペレット、ドライ混合されたポリプロピレン樹脂ペレット及び／又は粉末、もしくは、予め溶融混練して作製した混合ポリプロピレン樹脂ペレット類を押出機に供給して、加熱溶融し、ろ過フィルタを通した後、１７０℃～３２０℃、好ましくは、２００℃～３００℃に加熱溶融してＴダイから溶融押し出し、通常８０℃～１４０℃、好ましくは９０℃～１２０℃、より好ましくは９０℃～１０５℃に保持された少なくとも１個以上の金属ドラムで、冷却、固化させることによって、未延伸のキャスト原反シートを成形することができる。上記キャスト原反シートの厚さは、０．０５ｍｍ～２ｍｍであることが好ましく、０．１ｍｍ～１ｍｍであることがより好ましい。
【００７５】
二軸延伸ポリプロピレンフィルムは、前記ポリプロピレンキャスト原反シートに延伸処理を行って製造することができる。延伸は、縦および横に二軸に配向させる二軸延伸が行われ、延伸方法としては同時又は逐次の二軸延伸方法が挙げられるが、逐次二軸延伸方法が好ましい。逐次二軸延伸方法としては、例えば、まずキャスト原反シートを１００～１６０℃の温度に保ち、速度差を設けたロール間に通して流れ方向に３～７倍に延伸し、直ちに室温に冷却する。引き続き、当該延伸フィルムをテンターに導いて１６０℃以上の温度で幅方向に３～１１倍に延伸した後、緩和、熱固定を施して、巻き取る。巻き取られたフィルムは、２０～４５℃程度の雰囲気中でエージング処理を施された後、所望の製品幅に断裁することができる。
【００７６】
金属化ポリプロピレンフィルムの作製に用いる二軸延伸ポリプロピレンフィルムの厚さは、小型かつ大容量型のコンデンサ素子を得る点で１～６μｍであることが好ましい。厚さが１．５μｍ以上の二軸延伸ポリプロピレンフィルムを用いることがより好ましい。また、用いる二軸延伸ポリプロピレンフィルムは極薄化されていることが望ましく、その厚さは５μｍ以下であることが好ましく、４μｍ以下であることがより好ましく、３μｍ以下であることがさらに好ましい。フィルムの厚さは、例えば紙厚測定器、マイクロメータ

（ＪＩＳ－Ｂ７５０２）等を用いて、ＪＩＳ－Ｃ２３３０に準拠して測定することができる。

【００７７】

このような延伸工程によって、機械的強度、剛性に優れたフィルムとなり、また、表面の凹凸もより明確化され、微細に粗面化された延伸フィルムとなる。二軸延伸ポリプロピレンフィルムの表面には、巻き適性を向上させつつ、コンデンサ特性をも良好とする適度な表面粗さを付与することが好ましい。

【００７８】

二軸延伸ポリプロピレンフィルムは、少なくとも片方の表面において、その表面粗さが、中心線平均粗さ（Ｒａ）で０．０３μｍ以上０．０８μｍ以下であることが好ましく、かつ、最大高さ（Ｒｚ、旧ＪＩＳ定義でのＲｍａｘ）で０．３μｍ以上０．８μｍ以下に微細粗面化されていることが好ましい。ＲａおよびＲｚが、上述の好ましい範囲にある場合、表面は、微細に粗化された表面になり得、コンデンサ加工の際には、素子巻き加工において巻きシワが発生し難く、好ましく巻上げることができる。更に、フィルム同士の間も均一な接触が可能となるため、耐電圧性および長期間に渡る耐電圧性も向上し得る。

【００７９】

ここで、「Ｒａ」および「Ｒｚ」（旧ＪＩＳ定義のＲｍａｘ）とは、例えばＪＩＳ－Ｂ０６０１：２００１等に定められている方法によって、一般的に広く使用されている触針式表面粗さ計（例えば、ダイヤモンド針等による触針式表面粗さ計）を用いて測定された値をいう。「Ｒａ」および「Ｒｚ」は、より具体的には、例えば、東京精密社製、三次元表面粗さ計サーフコム１４００Ｄ－３ＤＦ－１２型を用い、ＪＩＳ－Ｂ０６０１：２００１に定められている方法に準拠して求めることができる。

【００８０】

フィルム表面に微細な凹凸を与える方法としては、エンボス法、エッチング法など、公知の各種粗面化方法を採用することができ、その中でも、不純物の混入などの必要がないβ晶を用いた粗面化法が好ましい。β晶の生成割合は、一般的には、キャスト温度およびキャストスピードを変更することによって制御することができる。また、縦延伸工程のロール温度によってβ晶の融解／転移割合を制御することができ、これらのβ晶生成とその融解／転移の二つのパラメーターについて最適な製造条件を選択することによって微細な粗表面性を得ることができる。

【００８１】

二軸延伸ポリプロピレンフィルムには、金属蒸着加工工程などの後工程における接着特性を高める目的で、延伸および熱固定工程終了後に、オンラインもしくはオフラインにてコロナ放電処理を行うことができる。コロナ放電処理は、公知の方法を用いて行うことができる。雰囲気ガスとしては、空気、炭酸ガス、窒素ガス、およびこれらの混合ガスを用いることが好ましい。

【００８２】

金属化ポリプロピレンフィルムを作製する工程では、二軸延伸されたポリプロピレンフィルムの片面に金属蒸着膜を形成する。二軸延伸ポリプロピレンフィルムに金属蒸着膜を設ける方法としては、例えば真空蒸着法、スパッタリング法などが挙げられ、生産性や経済性などの点からは真空蒸着法が好ましい。真空蒸着法によって金属蒸着膜を設ける場合には、るつぼ方式、ワイヤー方式など公知の方式から適宜選択して行われる。金属蒸着膜を構成する金属としては、亜鉛、鉛、銀、クロム、アルミニウム、銅、ニッケルなどの単体金属、これらの金属から選択される複数種の金属からなる混合物または合金などを使用することができる。環境面、経済性、およびフィルムコンデンサ性能、とりわけ静電容量や絶縁抵抗の温度特性並びに周波数特性などの点からは、金属蒸着膜を構成する金属として、亜鉛およびアルミニウムから選択される単体金属、金属混合物または合金を採用することが好ましい。

【００８３】

金属蒸着膜の膜抵抗は、コンデンサの電気特性の点から、１～１００Ω／□が好ましい

。この範囲内でも高めであることがセルフヒーリング（自己修復）特性の点から望ましく、膜抵抗は５Ω／□以上であることがより好ましく、１０Ω／□以上であることが更に好ましい。また、コンデンサ素子としての安全性の点から、膜抵抗は５０Ω／□以下であることがより好ましく、２０Ω／□以下であることが更に好ましい。金属蒸着膜の膜抵抗は、例えば当業者に既知のニ端子法によって金属蒸着中に測定することができる。金属蒸着膜の膜抵抗は、例えば蒸発源の出力を調整して蒸発量を調整することによって調節することができる。

【００８４】

フィルムの片面に金属蒸着膜を形成する際、フィルムを巻回した際にコンデンサとなるよう、フィルムの片方の端部から一定幅は蒸着せずに絶縁マージンが形成される。さらに、金属化ポリプロピレンフィルムとメタリコン電極との接合を強固にするため、絶縁マージンと逆の端部に、ヘビーエッジ構造を形成することが好ましく、ヘビーエッジの膜抵抗は通常２～８Ω／□であり、３～６Ω／□であることが好ましい。

【００８５】

形成する金属蒸着膜のマージンパターンには特に制限はないが、フィルムコンデンサの保安性等の点からは、フィッシュネットパターン、Ｔマージンパターン等のいわゆる特殊マージンを含むパターンとすることが好ましい。特殊マージンを含むパターンで金属蒸着膜を二軸延伸ポリプロピレンフィルムの片面に形成すると、得られるフィルムコンデンサの保安性が向上し、フィルムコンデンサの破壊やショートを抑制できるため、好ましい。マージンを形成する方法としては、蒸着時にテープによりマスキングを施すテープ法、オイルの塗布によりマスキングを施すオイル法等、公知の方法を何ら制限なく使用することができる。

【００８６】

金属蒸着膜を設けた二軸延伸ポリプロピレンフィルムは、フィルムの長尺方向に沿って巻き付ける巻き付け加工を経て、金属化ポリプロピレンフィルムコンデンサに加工される。すなわち、上記のように作製された金属化ポリプロピレンフィルムを２枚１対として、金属蒸着膜とポリプロピレンフィルムとが交互に積層されるように重ね合わせて巻回した後、両端面に金属溶射によって一対のメタリコン電極を形成してフィルムコンデンサ素子を作製する。

【００８７】

フィルムコンデンサ素子を作製する工程では、フィルムの巻き付け加工が行われる。例えば、金属蒸着部とポリプロピレンフィルムとが交互に積層されるように、更には、絶縁マージン部が逆サイドとなるように、２枚１対の金属化ポリプロピレンフィルムを重ね合わせて巻回する。この際、２枚１対の金属化ポリプロピレンフィルムを１～２ｍｍずらして積層することが好ましい。用いる巻回機は特に制限されず、例えば、株式会社皆藤製作所製の自動巻取機３ＫＡＷ－Ｎ２型等を利用することができる。

【００８８】

巻回後、通常、得られた巻回物に対して圧力をかけながら熱処理（以下、「熱プレス」と称することがある）が施される。熱プレスによってフィルムコンデンサ素子の巻締まりや結晶構造の変化が適度に起こると、機械的および熱的な安定が得られる。しかし、熱プレスによって過度な素子の巻締まりや結晶構造の変化が起こると、フィルムが熱負けして収縮し、熱シワや型付などの成形不良といった問題が生じる場合がある。このような点から、与える圧力は、ポリプロピレンフィルムの厚さ等によってその最適値は変わるが、１０×１０^{4}～４５０×１０^{4}Ｐａが好ましく、より好ましくは３０×１０^{4}～３００×１０^{4}Ｐａ、更に好ましくは４０×１０^{4}～１５０×１０^{4}Ｐａである。また、熱処理の温度は１００～１２０℃とすることが好ましい。熱処理を施す時間は、機械的および熱的な安定を得る点で、５時間以上とすることが好ましく、１０時間以上とすることがより好ましいが、熱シワや型付などの成形不良を防止する点で、２０時間以下とすることが好ましく、１５時間以下とすることがより好ましい。

【００８９】

続いて、巻回物の両端面に金属を溶射してメタリコン電極を設けることによって、フィルムコンデンサ素子を作製する。メタリコン電極には、通常、リード線が溶接される。また、耐候性を付与し、とりわけ湿度劣化を防止するため、コンデンサ素子をケースに封入してエポキシ樹脂でポッティングすることが好ましい。

【００９０】

上述した方法によって作製された金属化ポリプロピレンフィルムコンデンサ素子に対して、更に所定の熱処理が施される。すなわち、フィルムコンデンサ素子に対し、８０～１１５℃の温度で１時間以上の熱処理を施す（以下、「熱エージング」と称することがある）。

【００９１】

フィルムコンデンサ素子に対して熱処理を施す上記工程において、熱処理の温度は、８０℃以上であって、９０℃以上とすることが好ましく、一方、１１５℃以下であって、１１０℃以下とすることが好ましい。上記の温度で熱処理を施すことによって熱エージングの効果が得られるが、具体的には、金属化ポリプロピレンフィルムに基づくコンデンサ素子を構成するフィルム間の空隙が減少し、コロナ放電が抑制され、しかも金属化ポリプロピレンフィルムの内部構造が変化して結晶化が進み、その結果、耐電圧性が向上するものと考えられる。熱処理の温度が所定温度より低い場合には、熱エージングによる上記効果が十分に得られない。一方、熱処理の温度が所定温度より高い場合には、ポリプロピレンフィルムに熱分解や酸化劣化等が生じることがある。

【００９２】

フィルムコンデンサ素子に対して熱処理を施す方法としては、例えば、大気雰囲気下、真空雰囲気下、又は不活性ガス雰囲気下で、恒温槽を用いる方法や高周波誘導加熱を用いる方法などを含む公知の方法から適宜選択してよいが、恒温槽を用いる方法を採用することが好ましい。

【００９３】

上記方法によって得られるコンデンサ素子は、金属化ポリプロピレンフィルムに基づく小型かつ大容量型のフィルムコンデンサ素子であって、高温下での高い耐電圧性及び高温下での長期耐用性を有するものである。コンデンサ素子の耐用性を調べる試験方法としては、「ステップアップ試験」、「ライフ（寿命）試験」などが挙げられ、これらはいずれも１００℃以上の高温下における耐用性を評価する試験方法である。「ステップアップ試験」は、コンデンサ素子への一定時間（短時間）、一定電圧の電圧印加を、電圧値を少しずつ上げながら繰り返し行う試験方法であって、コンデンサ素子の耐用性を電圧限界（高電圧）の観点から評価する方法である。一方、「ライフ試験」は、コンデンサ素子への一定電圧の電圧印加を長時間に亘って行う試験方法であって、長期間の耐電圧性、すなわちコンデンサ素子の耐用性を静電容量の減少がなく暴走なども起こさない時間の観点から評価する方法である。各試験方法の詳細は後述のとおりである。

【００９４】

本発明のコンデンサ素子は、フィルム厚みにもよるが、例えば２．５μｍ厚の場合に、「ステップアップ試験」に従って評価される容量変化率ΔＣ＝－５％時の電圧が１１００Ｖを超えることが好ましく、１１２０Ｖ以上であることがより好ましく、１１５０Ｖ以上であることが更に好ましく、１１８０Ｖ以上であることが特に好ましい。また、「ステップアップ試験」に従って評価される容量変化率ΔＣ＝－９５％時の電圧が１４５０Ｖを超えることが好ましく、１４６０Ｖ以上であることがより好ましく、１４７０Ｖ以上であることが更に好ましく、１４８０Ｖ以上であることが特に好ましい。

【００９５】

また、本発明のコンデンサ素子は、「ライフ試験」に従って評価される電圧印加後の容量変化率ΔＣ（２００時間後）が－１０％以上であることが好ましく、－８％以上であることがより好ましく、－６％以上であることがさらに好ましく、－５％以上であることが特に好ましい。ハイブリッド自動車用高電圧タイプのコンデンサの定格電圧は４００～８００V_{DC}が一般的であり、例えば印加電圧を６００V_{DC}として「ライフ試験」を行っ

てよい。
【実施例】
【００９６】
次に、本発明を実施例によってさらに具体的に説明するが、これらの例は本発明を説明するためのものであり、本発明を何ら限定するものではない。また、特に断らない限り、「部」および「％」という記載は、それぞれ「質量部」および「質量％」を示す。
【００９７】
［樹脂の各特性値の測定］
（１）重量平均分子量（Ｍｗ）、数平均分子量（Ｍｎ）、Ｚ平均分子量（Ｍｚ）および微分分布値
ＧＰＣ（ゲルパーミエーションクロマトグラフィー）を用い、以下の条件で、ポリプロピレン樹脂の平均分子量および分布曲線の微分分布値を測定した。
測定機：東ソー株式会社製、示差屈折計（ＲＩ）内蔵高温ＧＰＣ装置、ＨＬＣ－８１２１ＧＰＣ－ＨＴ型
カラム：東ソー株式会社製、ＴＳＫｇｅｌ　ＧＭＨＨＲ－Ｈ（２０）ＨＴを３本連結
カラム温度：１４０℃
溶離液：トリクロロベンゼン
流速：１．０ｍｌ／分
なお、検量線の作製には東ソー株式会社製の標準ポリスチレンを用い、ポリスチレン換算により測定結果を得た。ただし、分子量はＱ－ファクターを用いてポリプロピレンの分子量へ換算した。
【００９８】
微分分布値は、次のような方法で得た。まず、ＲＩ検出計を用いて検出される強度分布の時間曲線（溶出曲線）を、上記標準ポリスチレンを用いて作製した検量線を用いて標準ポリスチレンの分子量Ｍ（Ｌｏｇ（Ｍ））に対する分布曲線に変換した。次に、分布曲線の全面積を１００％とした場合のＬｏｇ（Ｍ）に対する積分分布曲線を得た後、この積分分布曲線をＬｏｇ（Ｍ）で、微分することによってＬｏｇ（Ｍ）に対する微分分布曲線を得ることが出来た。この微分分布曲線から、Ｌｏｇ（Ｍ）＝４．５およびＬｏｇ（Ｍ）＝６．０のときの微分分布値を読んだ。なお、微分分布曲線を得るまでの一連の操作は、使用したＧＰＣ測定装置に内蔵されている解析ソフトウェアを用いて行った。
【００９９】
（２）メルトフローレート
ＪＩＳ　Ｋ　７２１０－１９９９に準拠して２３０℃にて測定した。
【０１００】
［ポリプロピレン樹脂］
実施例および比較例のポリプロピレンフィルムの製造に、下記の表１に示す数平均分子量（Ｍｎ）、重量平均分子量（Ｍｗ）、Ｚ平均分子量（Ｍｚ）、分子量分布（Ｍｗ／Ｍｎ）、分子量分布（Ｍｚ／Ｍｎ）およびＭＦＲを有するポリプロピレン樹脂を使用した。なお、これらの値は、原料樹脂ペレットの形態で、上記の測定方法に従い測定した値である。
なお、ＰＰ－４は、Ｍｗ＝３０万、Ｍｗ／Ｍｎ＝５．２、ＭＦＲ＝４．０ｇ／１０分のアイソタクチックポリプロピレン樹脂（プライムポリマー製）を８０質量％、ＭＦＲ＝１０．０ｇ／１０分のアイソタクチックポリプロピレン樹脂（プライムポリマー製）を２０質量％混合して得た。

【表１】

	Mn／10^4	Mw／10^4	Mz／10^4	Mw／Mn	Mz／Mn	MFR（g／10分）
ＰＰ－１	３．６	３１	１２０	８．６	３３．３	４．６
ＰＰ－２	１２	５８	１８０	４．８	１５．０	０．３５
ＰＰ－３	４．５	３４	１３０	７．６	２８．９	３．１
ＰＰ－４	５．５	２５	６３	４．５	１１．５	４．７
ＰＰ－５	７．４	３０	７６	４．１	１０．３	３．０
ＰＰ－６	８．９	５４	２４０	６．１	２７．０	０．５
ＰＰ－７	８．９	５１	１６０	５．７	１８．０	０．５
ＰＰ－８	９．２	４０	１１０	４．３	１２．０	１．６

【０１０１】

ポリプロピレン樹脂ＰＰ－１：アイソタクチックポリプロピレン（プライムポリマー株式会社製）

ポリプロピレン樹脂ＰＰ－２：アイソタクチックポリプロピレン（日本ポリプロ株式会社製）

ポリプロピレン樹脂ＰＰ－３：アイソタクチックポリプロピレン（大韓油化社製）

ポリプロピレン樹脂ＰＰ－４：アイソタクチックポリプロピレン

ポリプロピレン樹脂ＰＰ－５：アイソタクチックポリプロピレン（プライムポリマー株式会社製）

ポリプロピレン樹脂ＰＰ－６：アイソタクチックポリプロピレン（大韓油化社製）

ポリプロピレン樹脂ＰＰ－７：アイソタクチックポリプロピレン（プライムポリマー株式会社製）

ポリプロピレン樹脂ＰＰ－８：アイソタクチックポリプロピレン（プライムポリマー株式会社製）

【０１０２】

ポリプロピレン樹脂ＰＰ－１～ＰＰ－８のいずれも、酸化防止剤（１次剤）としての２、６－ジ－ｔ－ブチル－ｐ－クレゾール（一般名称：ＢＨＴ）２０００ｐｐｍ、カルボニル基を有するヒンダードフェノール系酸化防止剤（２次剤）としてのペンタエリスルチル・テトラキス［３－（３、５－ジ－ｔ－ブチル－４－ヒドロキシフェニル）プロピオネート］（商品名：イルガノックス１０１０）３０００～６５００ｐｐｍ、および、リン系酸化防止剤であるトリス（２，４-ジ-ｔ-ブチルフェニル）ホスファイト（商品名：イルガフォス１６８）１０００～２０００ｐｐｍからなる群から選択される、少なくとも１種の酸化防止剤を含有する。

【０１０３】

上述のポリプロピレン樹脂を用いて、表２および表３に示す組成のポリプロピレン樹脂組成物を以下に示す方法に従い調製した。得られたポリプロピレン樹脂組成物を二軸延伸して、実施例１～６および比較例１～４のポリプロピレンフィルムを製造した。それぞれのフィルムを構成するポリプロピレン樹脂の物性を、上記測定方法に従い測定した。また、得られたポリプロピレンフィルムについて、絶縁破壊電圧および結晶子サイズを以下に示す方法で評価した。得られた結果を表２および表３に示す。

【表２】

ポリプロピレン樹脂	実施例					
	1	2	3	4	5	6
ＰＰ-１	８０	６５	６５	６５	６５	６５
ＰＰ-２	２０	３５	-	-	-	-
ＰＰ-３	-	-	３５	-	-	-
ＰＰ-４	-	-	-	-	-	-
ＰＰ-５	-	-	-	-	-	-
ＰＰ-６	-	-	-	３５	-	-
ＰＰ-７	-	-	-	-	３５	-
ＰＰ-８	-	-	-	-	-	３５
Ｍｎ／１０^4	４．２	４．６	４．０	４．４	５．１	４．２
Ｍｗ／１０^4	３３	３７	２９	３５	３２	２８
Ｍｚ／１０^4	１２０	１３０	９８	１４４	１０４	９５
Ｍｗ／Ｍｎ	７．９	８．０	７．３	７．９	６．２	６．６
Ｍｚ／Ｍｎ	２８．６	２８．３	２４．５	３２．９	２０．２	２２．７
Ｌｏｇ(Ｍ)＝４．５	３０．７	２６．７	３４．１	２８．８	２７．６	２９．８
Ｌｏｇ(Ｍ)＝６．０	２７．６	３１．２	２３．７	２８．５	３０．１	２５．５
微分分布値の差（％）	３．１	－４．５	１０．３	０．３	－２．５	４．３
絶縁破壊電圧（$V_{DC}/\mu m$）	５４３	５７１	５２７	５５８	５４９	５２４
結晶子サイズ（ｎｍ）	１１．６	１１．２	１２．２	１２．１	１１．９	１２．１

【０１０４】

【表３】

ポリプロピレン樹脂	比較例			
	1	2	3	4
ＰＰ-1	１００	-	-	-
ＰＰ-2	-	１００	-	-
ＰＰ-3	-	-	-	-
ＰＰ-4	-	-	１００	-
ＰＰ-5	-	-	-	１００
Ｍｎ／１０^4	３．９	１１	５．２	７．３
Ｍｗ／１０^4	２９	５４	２５	３０
Ｍｚ／１０^4	１００	１５０	６３	７５
Ｍｗ／Ｍｎ	７．４	４．９	４．８	４．１
Ｍｚ／Ｍｎ	２５．６	１３．６	１２．１	１０．３
Ｌｏｇ(Ｍ)＝４．５	３５．０	１４．２	３０．５	２４．５
Ｌｏｇ(Ｍ)＝６．０	２３．３	４７．８	１９．１	２４．０
微分分布値の差（%）	１１．７	-３３．６	１１．４	０．５
絶縁破壊電圧（V_{DC}/μｍ）	４３７	-*1	４０４	３５４
結晶子サイズ（ｎｍ）	１３．９	-*1	１２．５	１２．０

*1延伸不可であったため未測定

【０１０５】

実施例１

樹脂ＰＰ－１（酸化防止剤としてイルガノックス１０１０を５０００ｐｐｍ添加）と樹脂ＰＰ－２（酸化防止剤としてイルガノックス１０１０を５０００ｐｐｍ添加）を、ＰＰ－１／ＰＰ－２＝８０／２０（質量比）で、連続的に計量混合したドライブレンド体を、押出機に供給した。ドライブレンド体を２５０℃の温度で溶融した後、Ｔダイから押し出し、表面温度を９２℃に保持した金属ドラムに巻きつけて固化させて、厚さ約１２５μｍのキャスト原反シートを製造した。このキャスト原反シートを１４０℃の温度で、流れ方向に５倍に延伸し、直ちに室温まで冷却した後、テンターにて１６５℃の温度で横方向に１０倍に延伸して、厚さ２．３μｍの非常に薄い二軸延伸ポリプロピレンフィルムを得た。

【０１０６】

実施例２

樹脂ＰＰ－１と樹脂ＰＰ－２を、ＰＰ－１／ＰＰ－２＝６５／３５（質量比）で計量混合したこと以外は、実施例１と同様にして、二軸延伸ポリプロピレンフィルムを得た。

【０１０７】

実施例３

樹脂ＰＰ－１と樹脂ＰＰ－３を、ＰＰ－１／ＰＰ－３＝６５／３５（質量比）で計量混合したこと以外は、実施例１と同様にして、二軸延伸ポリプロピレンフィルムを得た。

【０１０８】

実施例４

樹脂ＰＰ－１と樹脂ＰＰ－６を、ＰＰ－１／ＰＰ－６＝６５／３５（質量比）で計量混合したこと以外は、実施例１と同様にして、二軸延伸ポリプロピレンフィルムを得た。

【０１０９】
実施例５
樹脂ＰＰ－１と樹脂ＰＰ－７を、ＰＰ－１／ＰＰ－７＝６５／３５（質量比）で計量混合したこと以外は、実施例１と同様にして、二軸延伸ポリプロピレンフィルムを得た。
【０１１０】
実施例６
樹脂ＰＰ－１と樹脂ＰＰ－８を、ＰＰ－１／ＰＰ－８＝６５／３５（質量比）で計量混合したこと以外は、実施例１と同様にして、二軸延伸ポリプロピレンフィルムを得た。
【０１１１】
比較例１
樹脂ＰＰ－１を単独で使用したこと以外は、実施例１と同様にして、二軸延伸ポリプロピレンフィルムを得た。
【０１１２】
比較例２
樹脂ＰＰ－２を単独で使用したこと以外は、実施例１と同様にして、キャスト原反シートを製造した。このキャスト原反シートを実施例１と同様にして二軸延伸することを試みたが、延伸工程で破断し、二軸延伸ポリプロピレンフィルムは得られなかった。
【０１１３】
比較例３
樹脂ＰＰ－４を単独で使用したこと以外は、実施例１と同様にして、二軸延伸ポリプロピレンフィルムを得た。
【０１１４】
比較例４
樹脂ＰＰ－５を単独で使用したこと以外は、実施例１と同様にして、二軸延伸ポリプロピレンフィルムを得た。
【０１１５】
[フィルムの各特性値の測定]
（１）フィルムの厚み
フィルムの厚さは、例えば紙厚測定器、マイクロメータ（ＪＩＳ－Ｂ７５０２）等を用いて、ＪＩＳ－Ｃ２３３０に準拠して測定することができる。
【０１１６】
（２）結晶子サイズ
二軸延伸ポリプロピレンフィルムの結晶子サイズを、ＸＲＤ（広角Ｘ線回折）装置を用いて、以下に従い測定した。
測定機：リガク社製のディストップX線回折装置「ＭｉｎｉＦｌｅｘ３００」
Ｘ線発生出力：３０ＫＶ、１０ｍＡ
照射Ｘ線：モノクローメーター単色化ＣｕＫα線（波長０．１５４１８ｎｍ）
検出器：シンチュレーションカウンター
ゴニオメーター走査：２θ／θ連動走査
得られたデータから、解析コンピューターを用い、装置標準付属の統合粉末X線解析ソフトウェアPDXLを用い、α晶（０４０）面の回折反射ピークの半価幅を算出した。
得られたα晶（０４０）面の回折反射ピークの半価幅から、下記（１）式のScherrerの式を用いて、結晶子サイズを求めた。なお、本発明では、形状因子定数Ｋは、０．９４を用いた。
【数２】

$$D=K\times\lambda/(\beta\times\cos\theta) \qquad (1)$$

［ここで、Ｄは、結晶子サイズ（ｎｍ）、Ｋは定数（形状因子）、λは使用Ｘ線波長（ｎｍ）、βは求めた半価幅、θは回折ブラッグ角である。］
【０１１７】

（３）絶縁破壊電圧
ＪＩＳ Ｃ２３３０（２００１）７．４．１１．２ Ｂ法（平板電極法）にならって、直流電源を使用し、１００℃で、絶縁破壊電圧値を測定した。１２回の測定の平均絶縁破壊電圧値（V_{DC}）を、フィルムの厚み（μｍ）で割り、上位２回および下位２回の値を除いた８回の平均値を、絶縁破壊電圧（V_{DC}／μｍ）とした。
【０１１８】
［コンデンサ素子の作製］
上記の実施例１～３で得た二軸延伸ポリプロピレンフィルムに、特殊マージン蒸着パターンを蒸着抵抗１５Ω／□にてアルミニウム蒸着を施し、金属化フィルムを得た。小幅にスリットした後に、２枚の金属化フィルムを相合わせて、株式会社皆藤製作所製、自動巻取機 ３ＫＡＷ－Ｎ２型を用い、１１００ターン巻回を行った。
素子巻きした素子は、プレスしながら１２０℃にて熱処理を施した後、素子端面に亜鉛金属を溶射し、扁平型コンデンサを得た。出来上がったコンデンサの静電容量は、７５μＦ（±２μＦ）であった。
【０１１９】
[コンデンサ素子の各特性値の測定]
（１）コンデンサ素子のライフ試験（長期間にわたる耐電圧性）
上記のコンデンサ素子を、予め１０５℃にて予熱した後、試験前の初期の静電容量を日置電機株式会社製ＬＣＲハイテスター３５２２－５０にて、室温で評価した。次に、１０５℃の高温槽中にて、コンデンサ素子に直流６００Ｖの電圧を２００時間負荷続けた。２００時間経過後の素子の容量をＬＣＲテスターにて室温で測定し、電圧負荷前後の容量変化率を算出した。２００時間経過後の容量変化率を、素子３個の平均値により評価した。２００時間経過後の容量変化率は、実施例１で－１．９％、実施例２で－１．０％、実施例３で－３．０％であった。なお、２００時間経過後の容量変化率は、－５％以上であることが好ましい。
【０１２０】
実施例１～６に示されるように、本発明の二軸延伸ポリプロピレンフィルムは、優れた絶縁破壊電圧を有し、高温下での優れた耐電圧性を有することがわかる。また、厚さ２．３μｍの非常に薄い二軸延伸ポリプロピレンフィルムでありながら、上記の優れた耐電圧性を有することが確認され、高い耐電圧性が要求される小型かつ高容量型のコンデンサ用二軸延伸ポリプロピレンフィルムとして極めて好適である。
【０１２１】
これに対し、比較例１および３のポリプロピレンフィルムは、所定の範囲の微分分布値の差を有するポリプロピレン樹脂から構成されるものではなく、十分な耐電圧性が得られなかった。特に、高分子量成分の構成が小さく、所定のＺ平均分子量を有さないポリプロピレン樹脂からなる比較例３および４のポリプロピレンフィルムでは、絶縁破壊電圧が非常に低い結果となった。また、比較例２のポリプロピレンフィルムは、フィルムに延伸することができなかった。
【産業上の利用可能性】
【０１２２】
本発明のコンデンサ用二軸延伸ポリプロピレンフィルムは、絶縁破壊電圧に優れるので、このフィルムを用いてコンデンサを製造することで、高温下での耐電圧性、特に初期耐電圧性および長期耐電圧性の向上が見込まれる。さらに、本発明のコンデンサ用二軸延伸ポリプロピレンフィルムは、絶縁破壊電圧に優れると共に厚さを薄くすることができるので、高い耐電圧性が要求される小型かつ高容量型のコンデンサに好ましく利用可能である。

フロントページの続き

(72)発明者　石田　立治
滋賀県湖南市朝国６５番地　王子エフテックス株式会社　滋賀工場内　王子ホールディングス株式会社　アドバンストフィルム研究所
(72)発明者　中田　将裕
滋賀県湖南市朝国６５番地　王子エフテックス株式会社　滋賀工場内　王子ホールディングス株式会社　アドバンストフィルム研究所
(72)発明者　石渡　忠和
滋賀県湖南市朝国６５番地　王子エフテックス株式会社　滋賀工場内　王子ホールディングス株式会社　アドバンストフィルム研究所
(72)発明者　筧　明洋
滋賀県湖南市朝国６５番地　王子エフテックス株式会社　滋賀工場内　王子ホールディングス株式会社　アドバンストフィルム研究所
(72)発明者　松尾　祥宜
滋賀県湖南市朝国６５番地　王子エフテックス株式会社　滋賀工場内　王子ホールディングス株式会社　アドバンストフィルム研究所
(72)発明者　依田　勝寛
滋賀県湖南市朝国６５番地　王子エフテックス株式会社　滋賀工場内　王子ホールディングス株式会社　アドバンストフィルム研究所

Ｆターム(参考)　4F071 AA20 AA81 AA88 AA89 AF11 AF39 AH12 BA01 BB06 BB08
BB11 BC01 BC12
4J100 AA03P CA01 CA11 DA01 DA04 DA36 DA42 EA05 JA43
4K029 AA11 AA25 BA02 BB04 CA01 FA05
5E082 AB04 BC35 EE07 EE23 EE37 FF05 FG06 FG34 PP03 PP10