

發明專利說明書



(本申請書格式、順序及粗體字，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※申請案號：92126098

※申請日期：92年09月22日

※IPC分類： C08F 222/40
C08F 210/00

壹、發明名稱：

(中) 透明耐熱樹脂光學材料及薄膜

(外) Transparent heat-resistant resin optical material and film

貳、申請人：(共 1 人)

1. 姓名：(中) 東曹股份有限公司

(英) 東ソ一株式会社

代表人：(中) 1. 土屋隆

(英)

地址：(中) 日本國山口縣新南陽市開成町四五六〇番地

(英)

國籍：(中英) 日本

JAPAN

參、發明人：(共 2 人)

1. 姓名：(中) 豐增信之

(英) 豐增信之

地址：(中) 日本國三重縣四日市市蒔田三一九一〇

(英)

2. 姓名：(中) 豬飼陽二郎

(英) 猪飼陽二郎

地址：(中) 日本國三重縣四日市市大矢知町四八七一

(英)

肆、聲明事項：

◎本案申請前已向下列國家(地區)申請專利 主張國際優先權：

【格式請依：受理國家(地區)；申請日；申請案號數 順序註記】

1. 日本 ; 2002/09/30 ; 2002-286212 有主張優先權

2. 日本 ; 2003/01/16 ; 2003-008138 有主張優先權

3. 日本 ; 2003/01/16 ; 2003-008139 有主張優先權

4. 日本 ; 2003/07/31 ; 2003-204632 有主張優先權

發明專利說明書



(本申請書格式、順序及粗體字，請勿任意更動，※記號部分請勿填寫)

※申請案號：92126098

※申請日期：92年09月22日

※IPC分類： C08F 222/40
C08F 210/00

壹、發明名稱：

(中) 透明耐熱樹脂光學材料及薄膜

(外) Transparent heat-resistant resin optical material and film

貳、申請人：(共 1 人)

1. 姓名：(中) 東曹股份有限公司

(英) 東ソ一株式会社

代表人：(中) 1. 土屋隆

(英)

地址：(中) 日本國山口縣新南陽市開成町四五六〇番地

(英)

國籍：(中英) 日本 JAPAN

參、發明人：(共 2 人)

1. 姓名：(中) 豐增信之

(英) 豐增信之

地址：(中) 日本國三重縣四日市市蒔田三一九一〇

(英)

2. 姓名：(中) 豬飼陽二郎

(英) 猪飼陽二郎

地址：(中) 日本國三重縣四日市市大矢知町四八七一

(英)

肆、聲明事項：

◎本案申請前已向下列國家(地區)申請專利 主張國際優先權：

【格式請依：受理國家(地區)；申請日；申請案號數 順序註記】

1. 日本 ; 2002/09/30 ; 2002-286212 有主張優先權

2. 日本 ; 2003/01/16 ; 2003-008138 有主張優先權

3. 日本 ; 2003/01/16 ; 2003-008139 有主張優先權

4. 日本 ; 2003/07/31 ; 2003-204632 有主張優先權

(1)

玖、發明說明

【發明所屬之技術領域】

本發明係關於具負雙折射值的透明耐熱樹脂光學材料，其製自耐熱性和動力性質極佳並具有高折射指數和高 Abbe 數的透明耐熱樹脂，本發明特別係關於膜、片和阻滯膜 (retardation film)。

【先前技術】

至目前為止，無機玻璃常被用來作為光學材料。近年來，因為質輕、產量和成本，常使用聚合物材料。

可利用這樣的聚合物材料優點的材料例包括聚丁烯酸甲酯 (下文中簡稱為 "PMMA")、聚苯乙烯 (下文中簡稱為 "PS")、聚碳酸酯 (下文中簡稱為 "PC") 和環狀聚烯烴 (下文中簡稱為 "環狀 PO")。

至目前為止，就光學材料功用而言，希望材料不僅具有極佳耐熱性、耐環境性和動力性，並亦具有高透光度、高折射指數、高 Abbe 數和低雙折射值。同樣地，研究和發展無光學各向異性且無雙折射性的材料。

雖然 PMMA 和 PS 透光率極佳，但是它們因為玻璃化溫度 (下文中稱為 "Tg") 約 100°C，使得利用受限且耐熱性不足且易碎。

透明樹脂中，PC 透光率和韌度極佳且 Tg 約 140°C，因此，常作為耐熱樹脂。但是因為分子鏈中之含有雙酚的骨架構形，使得 PC 有著雙折射值高的問題。

(2)

近年來，液晶顯示器(下文中稱爲"LCD")..等被視爲光學顯示器元件。就控制光學特性的目的而言，控制聚合物材料的光學各向異性的需求提高，針對此議題的研究增加。同樣地，作爲用於光學補償目的的光學材料之一，有光學補償膜(以阻滯膜爲代表)存在。

於此情況下，PMMA 或 PS 被視爲具有負雙折射值的材料，使得當其分子鏈拉伸和有方向性時，其具有光學各向異性，其中，在與指向方向不同的方向(如：與其垂直的方向)之折射指數變大。但是，PMMA 或 PS 的耐熱性不足。

另一方面，PC 或環狀 PO 是具正雙折射值的材料，當其分子鏈拉伸和被賦予方向性時，其具有光學各向異性，其中，於指向方向的折射指數變大。PC 或環狀 PO 常用於，如：能夠光學補償液晶晶胞以改善 LCD 的可見角度的膜。但就相同應用而言，尙無法成爲可資利用之通常須具足夠耐熱性(與 PC 相仿的 T_g ，即， 140°C)並具有負雙折射值(光學各向異性)的光學材料。

至於控制光各向異性(即，雙折射性)的方法，研究報導指出，具正雙折射值的材料和具負雙折射值的材料摻合或共聚而具有低雙折射值，例如，請參考 J. Appl. Polym. Sci., 13, pp. 2541 (1969), Plaste und Kautschuk, 29, pp. 618 (1982) and Kino Zairyo (Functional Materials), March (1987)。

此外，報導指出，摻合兩種不同類型之具負雙折射值

的聚合物材料和具正雙折射值的聚合物材料並拉伸此摻合物及使其具方向性，能夠簡單地計算和運算估計雙折射值並使其達最適狀態(例如，請參考 JP-A-2002-071956)。另一方面，報導指出，拉伸以具正雙折射值的材料和負雙折射值的材料之組成物為基礎的摻合物並使其具有方向性，其雙折射值評估結果顯示有其他性質(JP-A-2002-071956)無法被利用(例如，請參考 Polymer,35,No.7,pp.1452-1461(1994))。據此，難以估計各種類型的共聚物和聚合物摻合物的雙折射值。

Kino Zairyo (Functional Materials),March(1987)報導具負雙折射值的例子，包括苯乙烯和馬來酞的交替共聚物、苯乙烯和丙烯腈的共聚物、苯乙烯和月桂基馬來醯亞胺的交替共聚物、苯乙烯和苯基馬來醯亞胺的交替共聚物及苯乙烯和環己基馬來醯亞胺的交替共聚物。另一方面，報導指出，N-烷基馬來醯亞胺單元具有正雙折射值(例如，請參考 Polymer Preprints, Japan,39,No.10,pp.3824-3826(1990))。此外，報導指出 N-烷基馬來醯亞胺和苯乙烯之共聚物具負雙折射值(例如，請參考 Kobunshi no Kotai Kozo (聚合物固態構造) II,pp.390(Kyoritsu Shuppan))。

但苯乙烯單元並非總顯現負雙折射值。例如，根據 Polymer,35,No.7,pp.1452-1461(1994)和 Kubunshi no Kotai Kozo (聚合物固態構造)II,pp.390(Kyoritsu Shuppan)..等，已經知道，有苯基作為分子鏈軸方向平行之側鏈取代基

(4)

時，即使聚苯乙烯也具有正雙折射值，只有在苯基與分子鏈軸正交時，才具有負雙折射值。

構成高分子量材料之極化的原子團單元的各向異數據述於 Kubunshi no Kotai Kozo (聚合物固態構造)II,pp.390 (Kyoritsu Shuppan)..等。除非將單體構成單元比例、聚合法的立體規則性及分子方向性或應力張力性質..等全數列入考慮，否則僅這樣的資訊無法估計聚合物材料的光學各向異性，且難控制光學各向異性。尙未曾闡明分子結構與展現正或負雙折射值之機構之間的關係。

曾有提出一種方法揭露展現負雙折射值的關係，其使用具有正雙折射值的材料，利用特定模塑法(例如，請參考 JP-A-2000-162439、JP-A-2000-304924、JP-A-2000-304925 和 JPA-2000-329939)。

PC 膜作為具正雙折射值的耐熱透明樹脂，於適當條件單軸拉伸時，三維折射指數 $n_x > n_y \geq n_z$ 的關係示於附圖 2，其中，如附圖 1 所示者，膜平面內的拉伸方向是 x 軸，膜平面的垂直方向是 y 軸，膜平面外的直立方向是 z 軸， n_x 代表 x 軸方向的折射指數， n_y 代表 y 軸方向的折射指數，而 n_z 代表 z 軸方向的折射指數。同樣地，雙軸拉伸及賦予方向性時，這樣的 PC 膜具 $n_x \geq n_y > n_z$ 或 $n_y \geq n_x > n_z$ ，此如附圖 3 所示者，其中，膜平面內的拉伸方向是 x 軸和 y 軸，膜平面外的直立方向是 z 軸， n_x 代表 x 軸方向的折射指數， n_y 代表 y 軸方向的折射指數，而 n_z 代表 z 軸方向的折射指數。

(5)

JP-A-2000-162436、JP-A-2000-304924、JP-A-2000-304925 和 JP-A-2000-329939 中提出的任何方法中，熱縮膜堆疊於 PC 膜的一面或兩面，於拉伸操作階段提高 z 軸方向(膜平面外的直立方向)的折射指數，以控制於膜平面內的方向之收縮。

但在實際情況中，使用 PC 作為具正雙折射值的材料，以提高 z 軸方向的折射指數時，很難藉拉伸和賦予方向性地控制折射指數。

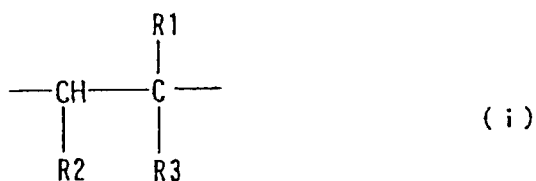
因此，就前述事實，本發明針對提供具負雙折射值的透明耐熱樹脂光學材料，其具極佳耐性和動力性質並具高折射指數和高 Abbe 數，特別是膜、片和阻滯膜。

【發明內容】

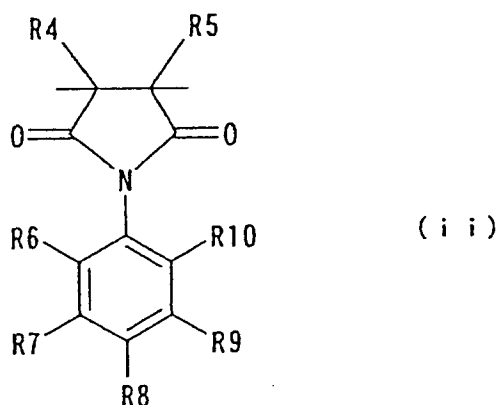
本發明者致力於前述問題之研究。結果發現一種包含特定烯烴基團單元和特定 N-苯基-取代的馬來醯亞胺基團單元構成之具特定重量平均分子量的共聚物之透明耐熱樹脂光學材料具有負雙折射值，藉此完成本發明。

特定言之，本發明係關於透明耐熱樹脂光學材料，其包含了包含以下列式(i)表示的烯烴基團單元和下列式(ii)表示的 N-苯基-取代的馬來醯亞胺基團單元且重量平均分子量(以聚苯乙烯作為標準品測得)由 5×10^3 至 5×10^6 之共聚物，此透明耐熱樹脂光學材料具負雙折射值。

(6)



其中 R1、R2 和 R3 各代表氫或具 1 至 6 個碳原子的烷基。



其中 R4 和 R5 各代表氫或具 1 至 8 個碳原子的直鏈或支鏈烷基；R7、R8 和 R9 各代表氫、以鹵素為基礎的元素、羧酸、羧酸酯、羥基、氰基、硝基或具 1 至 8 個碳原子的直鏈或支鏈烷基；而 R6 和 R10 各代表氫、以鹵素為基礎的元素、羧酸、羧酸酯、羥基、氰基、硝基或具 1 至 8 個碳原子的直鏈或支鏈烷基；至少一個 R6 或 R10 代表氫時，另一者不可為氫，而是代表以鹵素為基礎的元素、羧酸、羧酸酯、羥基、氰基、硝基或具 1 至 8 個碳原子的直鏈或支鏈烷基。

【實施方式】

現將詳細描述本發明。

本發明之透明耐熱樹脂光學材料包含共聚物，其包含前文式(i)表示的烯烴基團單元和前文式(ii)表示的 N-苯基-取代的馬來醯亞胺基團單元且重量平均分子量(以聚苯乙烯作為標準品測得)由 5×10^3 至 5×10^6 。

用於本發明之共聚物的構成單元式(i)中，R1、R2 和 R3 各代表氫或具 1 至 6 個碳原子的烷基。具 1 至 6 個碳原子的烷基例包括甲基、乙基、正丙基、異丙基、正丁基、第二丁基、第三丁基、戊基、己基、環丙基、環丁基和環己基。其中，烷基的碳原子數超過 6 時，共聚物的耐熱性可能會降低或會結晶，此會損及透光性。

式(i)表示之烯烴基團單元的代表例包括異丁烯、2-甲基-1-丁烯、2-甲基-1-戊烯、2-甲基-1-己烯、2-甲基-1-庚烯、1-異辛烯、2-甲基-1-辛烯、2-乙基-1-戊烯、2-甲基-2-戊烯、2-甲基-2-己烯、乙烯、丙烯、1-丁烯和 1-己烯。以 1,2-二取代的烯烴(特定言之，異丁烯)為佳，這是因為它們可提供具良好耐熱性和機械性的共聚物之故。此烯烴可單獨使用或二或多者併用，未限制其比例。

在本發明之共聚物中作為構成單元的式(ii)中，R4 和 R5 各代表氫或具 1 至 8 個碳原子的直鏈或支鏈烷基。具 1 至 8 個碳原子的烷基例包括甲基、乙基、正丙基、異丙基、正丁基、第二丁基、第三丁基、戊基、己基、辛基、環丙基、環丁基和環己基。其中，直鏈或支鏈烷基的碳原

子數超過 8 時，共聚物的耐熱性可能會受損或引發部分結晶。R7、R8 和 R9 各代表氫、以鹵素為基礎的元素、羧酸、羧酸酯、羥基、氰基、硝基或具 1 至 8 個碳原子的直鏈或支鏈烷基。以鹵素為基礎的元素包括氟、氯、溴和碘。羧酸酯例包括羧酸甲酯、羧酸乙酯、羧酸丙酯、羧酸丁酯、羧酸苯酯和羧酸環己酯。具 1 至 8 個碳原子的直鏈或支鏈烷基例包括甲基、乙基、正丙基、異丙基、正丁基、第二丁基、第三丁基、戊基、己基、辛基、環丙基、環丁基和環己基。其中，直鏈或支鏈烷基的碳原子數超過 8 時，共聚物的耐熱性可能會受損或引發部分結晶。此外，R6 和 R10 各代表氫、以鹵素為基礎的元素、羧酸、羧酸酯、羥基、氰基、硝基或具 1 至 8 個碳原子的直鏈或支鏈烷基，至少一個 R6 或 R10 代表氫時，另一者不為氫，而是代表以鹵素為基礎的元素、羧酸、羧酸酯、羥基、氰基、硝基或具 1 至 8 個碳原子的直鏈或支鏈烷基。以鹵素為基礎的元素包括氟、氯、溴和碘。羧酸酯例包括羧酸甲酯、羧酸乙酯、羧酸丙酯、羧酸丁酯、羧酸苯酯和羧酸環己酯。具 1 至 8 個碳原子的直鏈或支鏈烷基例包括甲基、乙基、正丙基、異丙基、正丁基、第二丁基、第三丁基、戊基、己基、辛基、環丙基、環丁基和環己基。此處，直鏈或支鏈烷基的碳原子數超過 8 時，共聚物的耐熱性可能會受損或引發部分結晶。

R6 和 R10 各代表氫時(即，苯基的鄰位無取代基時)，所得共聚物的 Abbe 數低。自這樣的共聚物得到的光

學材料不具有負雙折射值。

至於衍生出式(ii)表示之 N-苯基-取代的馬來醯亞胺基團單元的 N-苯基-取代的馬來醯亞胺，可以使用其鄰位具特定取代基(作為馬來醯亞胺化合物的 N-取代基)的 N-苯基-取代的馬來醯亞胺。例子包括 N-(2-甲基苯基)馬來醯亞胺、N-(2-乙基苯基)馬來醯亞胺、N-(2-正丙基苯基)馬來醯亞胺、N-(2-異丙基苯基)馬來醯亞胺、N-(2-正丁基苯基)馬來醯亞胺、N-(2-第二丁基苯基)馬來醯亞胺、N-(2-第三丁基苯基)馬來醯亞胺、N-(2-正戊基苯基)馬來醯亞胺、N-(2-第三戊基苯基)馬來醯亞胺、N-(2,6-二甲基苯基)馬來醯亞胺、N-(2,6-二乙基苯基)馬來醯亞胺、N-(2,6-二正丙基苯基)馬來醯亞胺、N-(2,6-二異丙基苯基)馬來醯亞胺、N-(2-甲基-6-乙基苯基)馬來醯亞胺、N-(2-甲基-6-異丙基苯基)馬來醯亞胺、N-(2-氯苯基)馬來醯亞胺、N-(2-溴苯基)馬來醯亞胺、N-(2,6-二氯苯基)馬來醯亞胺、N-(2,6-二溴苯基)馬來醯亞胺、N-(2-聯苯基)馬來醯亞胺、N-(2-二苯基醚)馬來醯亞胺、N-(2-氰基苯基)馬來醯亞胺和 N-(2-硝基苯基)馬來醯亞胺。這些化合物可單獨使用或二或多者併用，未限制其比例。其中，特別佳的情況中，一或多種 N-苯基-取代的馬來醯亞胺選自 N-(2-甲基苯基)馬來醯亞胺、N-(2,6-二甲基苯基)馬來醯亞胺、N-(2,6-二乙基苯基)馬來醯亞胺和 N-(2,6-二異丙基苯基)馬來醯亞胺，這是因為此可得到耐熱性和機械性質極佳且負雙折射值相當高的透明耐熱樹脂光學材料之故。

至於引至式(ii)中之苯基中的取代基，就所欲光學功能觀點，使用有特定取代基位於鄰位者是很重要的。此外，其他取代基可引至間位和 / 或對位。這樣的 N-苯基-取代的馬來醯亞胺的例子包括 N-(2,4,6-三甲基苯基)馬來醯亞胺、N-(2,4-二甲基苯基)馬來醯亞胺、N-全溴苯基)馬來醯亞胺、N-(2-甲基-4-羥基苯基)馬來醯亞胺和 N(2,6-二乙基-4-羥基苯基)馬來醯亞胺。

本發明之透明耐熱樹脂光學材料所用共聚物的重量平均分子量(以聚苯乙烯作為標準品測得)由 5×10^3 至 5×10^6 。共聚物的重量平均分子量超過 5×10^6 時，難將其模塑成光學材料。另一方面，共聚物的重量平均分子量低於 5×10^3 時，所得共聚物非常易碎，使其難作為光學材料。測定共聚物之凝膠滲透層析法(下文中稱為"GPC")的沖提曲線，測得此重量平均分子量，此處使用聚苯乙烯作為標準品。

特別佳情況中，本發明中所用共聚物是交替共聚物，其中，式(i)表示的烯烴單元和式(ii)表示之 N-苯基-取代的馬來醯亞胺交替共聚，這是因為此可得到耐熱性和機械性質極佳的透明耐熱樹脂光學材料之故。

本發明所用之包含式(i)表示的烯烴基團單元和式(ii)表示之 N-苯基-取代的馬來醯亞胺基團單元的共聚物可製自，如，前述烯烴和前述 N-苯基-取代的馬來醯亞胺於已知聚合法(如：自由基聚合法)中之聚合反應。自由基聚合法是可資利用的各式各樣聚合法，如：嵌段聚合法、溶液

聚合法、懸浮液聚合法和乳液聚合法。

至於其他方法，共聚物亦可得自使前述烯烴與馬來酞共聚得到烯烴－馬來酞共聚物，之後於其中添加具取代基位於至少一個對位的苯胺，藉由與苯胺之反應，將馬來酞予以醯胺化，之後予以亞醯胺化以驅動環化反應。可用的苯胺例包括 2-甲基苯胺、2-乙基苯胺、2-正丙基苯胺、2-異丙基苯胺、2-正丁基苯胺、2-第二丁基苯胺、2-第三丁基苯胺、2-正戊基苯胺、2-第三戊基苯胺、2,6-二甲基苯胺、2,6-二乙基苯胺、2,6-二正丙基苯胺、2,6-二異丙基苯胺、2-甲基-6-乙基苯胺、2-甲基-6-異丙基苯胺、2-氯苯胺、2-溴苯胺、2,6-二氯苯胺和 2,6-二溴苯胺。這些化合物可單獨使用或二或多者併用，未限制其比例。特別佳的情況中，一或多種苯胺選自 2-甲基苯胺、2,6-二甲基苯胺、2,6-二乙基苯胺和 2,6-二異丙基苯胺，這是因為能夠得到耐熱性和機械性質極佳且具相當高負雙折射值的透明耐熱樹脂光學材料之故。

因為馬來醯亞胺基團單元的 N-取代基，所以本發明中所用共聚物的苯基取代基具有大原子團極化作用，使其具有高折射指數。此亦可由 Lorentz-Lorentz 等式得知，分子結構和折射指數之間的關係述於 *Polymer Science, One Point 10: Optical Properties of Polymers (Chapter 1: Refractive Index)*(Yasuhiro Koike 著作，The Society of Polymer Science, Japan 編輯，Kyoritsu Shuppan(1994)印行)。

同樣地，本發明中所用共聚物的 Abbe 數高。通常，估計 Abbe 數因芳族基團(如：引入的苯基，作為馬來醯亞胺基團單元的 N-取代基)而變低，於短波長區域，折射指數提高。但在用於本發明的共聚物中，將作為苯基的鄰位取代基(即，R6 和 R10)的官能基引入作為 N-取代基，能夠獲致 Abbe 數改善效果。此外，藉由引入官能基作為間位和對位取代基(即，R7、R8 和 R9)，能夠進一步增進 Abbe 數的改善效果。

本發明之透明耐熱樹脂光學材料是具負雙折射值的光學材料。

在本發明之透明耐熱樹脂光學材料中，藉由在模塑期間內賦予包含式(i)表示的烯烴基團單元和式(ii)表示之 N-苯基-取代的馬來醯亞胺基團單元的共聚物方向性，獲致雙折射性。

至於賦予分子鏈方向性的方法，可以使用使分子鏈具方向性的方法，例子包括各式各樣方法，如：拉伸、研光和牽引。就產製而言，拉伸是特別佳者，這是因為可以良好產率製得具負雙折射值的透明耐熱樹脂光學材料之故。可資利用的拉伸例包括單軸拉伸(如：未固定寬度單軸拉伸和固定寬度單軸拉伸)和雙軸拉伸(如：先後雙軸拉伸和同時雙軸拉伸)。此外，至於實施研光的裝置，已經知道如：滾輪拉伸機和張力型拉伸機。此外，至於小尺寸實驗用雙軸拉伸裝置，可以使用能夠實施未固定寬度單軸拉伸、固定寬度單軸拉伸、先後雙軸拉伸或同時雙軸拉伸的

任何裝置。

因爲本發明之透明耐熱樹脂光學材料作爲光學材料的情況特別佳，所以，較佳情況中，折射指數 1.50 或以上，Abbe 數 30 或以上且 T_g 100°C 或以上，以 120°C 或以上爲佳，特別是 140°C 或以上。

本發明之透明耐熱樹脂光學材料可以，例如，作爲膜或片。以藉單軸拉伸或雙軸拉伸製造膜或片爲佳。以膜爲例，特別佳的情況中，使用膜作爲具負雙折射值的阻滯膜和作爲具正雙折射值的阻滯膜。此處的"膜"之厚度不超過約 200 微米，此處的"片"厚度超過此範圍。此外，本發明之透明耐熱樹脂光學材料適合作爲光學補償膜(阻滯膜)用於液晶顯示元件。

根據本發明之具負雙折射值的透明耐熱樹脂光學材料可製自藉拉伸或研光而賦予分子鏈方向性的方法。至於製法，可以是藉一般模塑法(如：注射模塑法、壓出模塑法、吹塑法、膨脹模塑法、滾筒模塑法和溶液澆鑄法)進行首次模塑，分子鏈之後藉前述單軸拉伸(如：未固定寬度單軸拉伸和固定寬度單軸拉伸)、雙軸拉伸(如：先後雙軸拉伸和同時雙軸拉伸)、滾筒拉伸、張力機拉伸之類地二次模塑賦予方向性。

特定言之，在製造膜或片(特別是阻滯膜)作爲透明耐熱樹脂光學材料時，較佳情況中，於首次模塑(如：射模塑、壓出模塑、膨脹模塑和溶液澆鑄)，藉一般製造膜或片的方法，製得膜或片的原料捲，及單軸拉伸(如：未固

定寬度單軸拉伸和固定寬度單軸拉伸)或雙軸拉伸(如：先後雙軸拉伸和同時雙軸拉伸)此膜，因為膜或片具良好品質和高負雙折射值，特定言之，可製得效能良好的減速膜。同樣地，在拉伸中，以實施拉伸及於 $[T_g(\text{聚合物})-20^\circ\text{C}]$ 至 $[T_g+30^\circ\text{C}]$ 的溫度範圍內，特別是在 $[T_g-20^\circ\text{C}]$ 至 $[T_g+20^\circ\text{C}]$ 的溫度範圍內賦予方向性，因為此方式可以良好產能製得具特別高的負雙折射值並適合作為阻滯膜的透明耐熱樹脂光學材料。

膜或片藉壓出模塑法作為首次模塑法製得時，共聚物受壓通過鑄具(所謂 T-鑄具)的薄間隙，能夠得到具任意厚度的膜或片。此期間內，希望事先於 80 至 130°C 加熱和乾燥此共聚物。因此，藉模塑期間內的氯化作用..等，能夠防止外觀欠佳。壓出模塑時，以視所欲厚度和光學純度而定地設定濾器過濾污染物為佳。至於壓出模塑條件，為控制分子鏈方向性，希望於比 T_g 高出足夠溫度地使共聚物因切剪應力熔流及於切剪速率低於 1,000 / 秒時實施模塑。欲冷卻以使熔融態的膜於通過鑄具之後固化，可利用低溫金屬滾輪或鋼帶。

在藉溶液澆鑄作為首次模塑法而製得膜或片的例子中，選擇共聚物會溶解於其中的溶劑，可視情況選自多種溶劑。可用於溶液澆鑄的溶劑例包括二氯甲烷、氯仿、氯苯、甲苯、二甲苯和丁酮，但溶劑不限於這些化合物。特定言之，共聚物的良好溶劑(如：二氯甲烷和氯仿)可以與不良溶劑(如：醇，包括甲醇和乙醇))合併以控制溶劑的

揮發速率。

在藉溶液澆鑄乾燥底質時，重要的是，藉由設定加熱條件，不要在膜中形成氣泡或內部孔洞，此相當重要，後續二次模塑的拉伸操作時，殘餘溶劑濃度以不超過 2 重量 % 為佳。同樣地，就於拉伸之後獲致均勻負雙折射值地得到膜或片而言，希望藉首次模塑得到的膜或片沒有不均勻方向性或殘餘張力且具光學同向性。至於這樣的方法，以溶液澆鑄為佳。

在作為二次模塑的拉伸步驟中，希望實施拉伸操作的溫度範圍由 $[T_g(\text{共聚物}) - 20^\circ\text{C}]$ 至 $[T_g + 30^\circ\text{C}]$ 。所謂 "T_g" 是指共聚物的儲存模量隨著目標材料開始降低而開始降低的溫度範圍(藉此，損失的模量變得比儲存模量來得高)至聚合物鏈的方向性因為馳豫而消失的溫度。可以藉差示掃描卡計(DSC)測定此 T_g。

此外，可以適當地選擇拉伸期間內之拉伸操作的拉伸溫度、拉伸期間內的膜拉伸率、變形速率之類，以達本發明之目的。此可參考 Polymer Processing, One Point 2 (To Make Filme) (Kiyochi Matsumoto 纂寫，The Society of Polymer Science, Japan 編輯，Kyoritsu Shuppan(1993)印行)。

本發明之透明耐熱樹脂光學材料具有負雙折射值且藉首次模塑製得的膜是經單軸拉伸的光學補償膜(如：阻滯膜)，此示於附圖 4，其中，拉伸方向是膜平面內的 x 軸，膜平面內的垂直方向是 y 軸，膜平面外的直立方向是

z 軸， n_x 代表 x 軸方向的折射指數， n_y 代表 y 軸方向的折射指數，而 n_z 代表 z 軸方向的折射指數時，其三維關係是 $n_z \geq n_y > n_x$ 。這樣的光學補償膜可製自共聚物之模塑，此共聚物包含式 (i) 表示的烯烴基團單元和式 (ii) 表示的 N-苯基-取代的馬來醯亞胺基團單元，其重量平均分子量 (以聚苯乙烯作為標準品測得) 由 5×10^3 至 5×10^6 ，藉前述壓出模塑法、溶液澆鑄法..等作為首次模塑法而製成膜，並對膜施以單軸拉伸 (如：未固定寬度單軸拉伸和固定寬度單軸拉伸)，此為二次模塑，此實施的溫度範圍以共聚物的玻璃化溫度為基礎，自 $(T_g - 20^\circ\text{C})$ 至 $(T_g + 30^\circ\text{C})$ ，以自 $(T_g - 20^\circ\text{C})$ 至 $(T_g + 20^\circ\text{C})$ 為佳。

此外，本發明之透明耐熱樹脂光學材料具負雙折射值且膜係藉首次模塑為雙軸拉伸方式製得者時，當雙軸拉伸方向是膜平面內的 x 軸和膜平面內的 y 軸，且膜平面外的直立方向是 z 軸， n_x 代表 x 軸方向的折射指數， n_y 代表 y 軸方向的折射指數，而 n_z 代表 z 軸方向的折射指數時，光學補償膜 (如：阻滯膜) 的三維折射指數關係是 $n_z > n_y \geq n_x$ 或 $n_z > n_x \geq n_y$ ，此如附圖 5 所示者。這樣的光學補償膜可製自共聚物之模塑，此共聚物包含式 (i) 表示的烯烴基團單元和式 (ii) 表示的 N-苯基-取代的馬來醯亞胺基團單元，其重量平均分子量 (以聚苯乙烯作為標準品測得) 由 5×10^3 至 5×10^6 ，藉前述壓出模塑法、溶液澆鑄法..等作為首次模塑法而製成膜，並對膜施以雙軸拉伸 (如：先後雙軸拉伸和同時雙軸拉伸)，此為二次模塑，此實施的

溫度範圍以共聚物的玻璃化溫度為基礎，自 $(T_g - 20^\circ\text{C})$ 至 $(T_g + 30^\circ\text{C})$ ，以自 $(T_g - 20^\circ\text{C})$ 至 $(T_g + 20^\circ\text{C})$ 為佳。

本發明之透明耐熱樹脂光學材料中，特別是阻滯膜，能夠藉由使用阻滯量發揮阻滯作用地獲致雙折射性。此處所謂的阻滯量，在透明耐熱樹脂光學材料是膜時，此阻滯量可以藉拉伸所得膜 x 軸、y 軸和 z 軸方向的三維雙折射值 $(n_x$ 、 n_y 和 $n_z)$ 的差值乘以膜厚度所得的積表示。特定言之，計算出的 $(n_x - n_y)$ 作為膜平面內的折射指數差， $(n_x - n_z)$ 和 $(n_y - n_z)$ 是膜平面以外的差值。以阻滯量評估雙折射性時，特定言之，以單軸拉伸膜為例，拉伸方向是 x 軸時，平面內的垂直方向是 y 軸，平面外的直立方向是 z 軸，膜平面的阻滯量可以 $Re = (n_x - n_y)d$ 表示，膜平面外的阻滯量可分別以 $Re = (n_x - n_z)d$ 和 $Re = (n_y - n_z)d$ 表示。以雙軸拉伸膜為例，拉伸方向是 x 軸和 y 軸時，平面外的直立方向是 z 軸，如果在 x 軸和 y 軸上的拉伸率相同，於膜平面內的阻滯量 $Re = (n_x - n_y)d$ 可能無法獲致雙折射性。這樣的情況中，阻滯量的有效表示方式是 $Re = (n_x - n_z)d$ 和 $Re = (n_y - n_z)d$ 。

本發明之透明耐熱樹脂光學材料可以視情況須要地另含添加物，如：安定劑和抗紫外光安定劑、潤滑劑和塑化劑，只要不損及本發明目的即可。這樣的添加劑包括安定劑、潤滑劑和塑化劑，可以使用用於樹脂材料的已知添加劑。

本發明之透明耐熱樹脂光學材料可以有硬塗層用以保

護其表面。可以使用已知硬塗覆劑。

雖然本發明之透明耐熱樹脂光學材料可單獨使用，當其與相同類型的光學材料和 / 或不同類型的光學材料層合時，能夠進一步控制光學特性。層合的光學材料例包括極化板，其包含聚乙烯醇 / 顏料 / 乙醯基纖維素和聚碳酸酯製的拉伸和方向性膜，但本發明不在此限。

根據本發明之具負雙折射值的透明耐熱樹脂光學材料適用於供液晶顯示元件使用的光學補償膜。例子包括阻滯膜，如：STN 型 LCD、TFT-TN 型 LCD、OCB 型 LCD、VA 型 LCD 和 IPS 型 LCD；1/2 波長板；1/4 波長板；逆波長分散特性膜；光學補償膜；濾色器；具極化板的層合膜；和極性板光學補償膜。本發明之應用不在此限，本發明可以廣泛用於利用負雙折射值的情況。

現將參考下列實例地說明本發明，但本發明不在此限。

以下列方法評估所得透明耐熱樹脂光學材料。

透光率之測定：

評估透光率，根據 JIS K7105(1981)測定透光率。

濁度之測定：

評估透光率，根據 JIS K7105(1981)測定濁度。

正和負雙折射值之判斷：

使用 $\lambda/4$ 板，使用極化顯微鏡，以添加顏色法判斷正和負雙折射值，此述於 *Primer of Polarization Microscope of Polymer Materials* (Hiroshi Awaya 纂寫，

Agune Gijutsu Center 印行，第 5 章 78-82 頁(2001))。

阻滯量之測定：

藉極化顯微鏡(Senarmont 補償法)，使用 Senarmont 補償器測定阻滯量，此述於 Primer of Polarization Microscope of Polymer Materials (Hiroshi Awaya 纂寫，Agune Gijutsu Center 印行，第 5 章 78-82 頁(2001))。

折射指數和 Abbe 數之測定：

此測定根據 JIS K7142(1981)進行。

玻璃化溫度之測定：

此測定使用差示掃描卡計(Seiko Instruments Inc., 製造，註冊名稱：DSC2000)以升溫速率 10°C / 分鐘測得。

重量平均分子量和數均分子量之測定：

以聚乙烯為標準，使用凝膠滲透層析儀(Tosoh Corporation 製造，註冊名稱：HLC-802A)測定共聚物沖提曲線，測得分子量。

使用簡單傾斜型自動雙折射值分析儀(Oji Scientific 製造，註冊名稱：KOBRA-21)實施此測定。

實例 1

在一升壓熱器中引入 400ml 甲苯作為聚合反應溶劑、0.001 莫耳新癸酸過氧丁酯作為聚合反應引發劑、0.42 莫耳 N-(2-甲基苯基)馬來醯亞胺和 4.05 莫耳異丁烯，此混合物於聚合溫度 60°C 的聚合條件下進行聚合反應達聚合時間 5 小時，得到 N-(2-甲基苯基)馬來醯亞胺-異丁烯交

替共聚物。藉此得到的 N-(2-甲基苯基)馬來醯亞胺－異丁烯交替共聚物之重量平均分子量(Mw)(以聚苯乙烯為標準品)是 160,000，分子量分佈(Mw/Mn，以重量平均分子量(Mn) / 數均分子量(Mw)表示)是 2.7。

製得包含 20 重量%所得 N-(2-甲基苯基)馬來醯亞胺－異丁烯交替共聚物和 80 重量%二氯甲烷的溶液並澆鑄於聚對苯乙二酯膜(下文稱為"PET 膜")上。二氯甲烷蒸發之後，形成 N-(2-甲基苯基)馬來醯亞胺－異丁烯交替共聚物膜，自溶液固化並撕下。撕下的膜於 100℃ 乾燥 4 小時，以 10℃ / 小時速率自 120℃ 升溫至 160℃ 地進一步乾燥。之後，使用真空乾燥機，所得膜於真空、180℃ 乾燥 4 小時，得到厚約 100 微米的膜。所得膜透光率 92%，濁度 0.3%，折射指數 1.57，Abbe 數 37，阻滯量 0 奈米，T_g 206℃。

將此膜切成 5cm x 5cm，其之後於 220℃、拉伸速率 15mm/min，使用雙軸拉伸機(Shibayama Scientific Co., Ltd. 製造)未固定寬度單軸拉伸 +50%，得到經拉伸膜。所得經拉伸膜具負雙折射值，阻滯量 $Re=(n_x-n_y)d$ 是 -125 奈米 / 100 微米經拉伸膜厚度。其中，d 代表膜厚度。

實例 2

在一升壓熱器中引入 400ml 甲苯作為聚合反應溶劑、0.001 莫耳新癸酸過氧丁酯作為聚合反應引發劑、0.42 莫耳 N-(2,6-二乙基苯基)馬來醯亞胺和 4.05 莫耳異丁烯，此

混合物於聚合溫度 60℃ 的聚合條件下進行聚合反應達聚合時間 5 小時，得到 N-(2,6-二乙基苯基)馬來醯亞胺－異丁烯交替共聚物。藉此得到的 N-(2,6-二乙基苯基)馬來醯亞胺－異丁烯交替共聚物之重量平均分子量 (M_w) (以聚苯乙烯為標準品) 是 170,000，分子量分佈 (M_w/M_n ，以重量平均分子量 (M_n) / 數均分子量 (M_w) 表示) 是 2.6。

製得包含 20 重量% 所得 N-(2,6-二乙基苯基)馬來醯亞胺－異丁烯交替共聚物和 80 重量% 二氯甲烷的溶液並澆鑄於 PET 膜上。二氯甲烷蒸發之後，形成 N-(2,6-二乙基苯基)馬來醯亞胺－異丁烯交替共聚物膜，自溶液固化並撕下。撕下的膜於 100℃ 乾燥 4 小時，以 10℃ / 小時速率自 120℃ 升溫至 160℃ 地進一步乾燥。之後，使用真空乾燥機，所得膜於真空、180℃ 乾燥 4 小時，得到厚約 100 微米的膜。所得膜透光率 92%，濁度 0.3%，折射指數 1.55，Abbe 數 40，阻滯量 0 奈米， T_g 209℃。

將此膜切成 5cm x 5cm，其之後於 220℃、拉伸速率 15mm/min，使用雙軸拉伸機 (Shibayama Scientific Co., Ltd. 製造) 未固定寬度單軸拉伸 +50%，得到經拉伸膜。所得經拉伸膜具負雙折射值，阻滯量 $Re=(n_x-n_y)d$ 是 -120 奈米 / 100 微米經拉伸膜厚度。其中，d 代表膜厚度。三維折射指數是 $n_x=1.53913$ ， $n_y=1.54042$ ， $n_z=1.54045$ 。因此，顯示所得膜適合作為具負雙折射值的阻滯膜。

實例 3

實例 2 中得到的 N-(2,6-二乙基苯基)馬來醯亞胺－異丁烯交替共聚物於 T-鑄具於 285°C 加工溫度使用 20mm 直徑雙軸壓出機 (Toyo Seiki Seisaku-Sho, Ltd., 製造, 註冊名稱: Labo Plastomill) 模塑成膜。藉此得到的膜厚度 100 微米。所得膜的透光率是 92%, 濁度是 0.5%, 折射指數 1.55, Abbe 數 40。此膜於 240°C 爐中加熱 1 小時。所得膜的阻滯量是 2nm, Tg 209°C。

所得膜施以與實例 2 相同的未固定寬度單軸拉伸, 得到經拉伸膜。所得經拉伸膜具負雙折射值, 膜平面內的阻滯量 $Re=(n_x-n_y)d$ 是 -120 奈米 / 100 微米經拉伸膜厚度。其中, d 代表膜厚度。三維折射指數是 $n_x=1.53913$, $n_y=1.5404$, $n_z=1.54045$ 。因此, 顯示所得膜適合作為具負雙折射值的阻滯膜。

實例 4

以與實例 2 相同方式得到拉伸膜, 但與實例 2 不同地, 拉伸此膜的溫度由 220°C 改為 230°C。所得拉伸膜具負雙折射值, 膜平面內的阻滯量 $Re=(n_x-n_y)d$ 是 -68 奈米 / 100 微米經拉伸膜厚度。其中, d 代表膜厚度。三維折射指數是 $n_x=1.53946$, $n_y=1.54023$, $n_z=1.54031$ 。因此, 顯示所得膜適合作為具負雙折射值的阻滯膜。

實例 5

以與實例 2 相同方式得到拉伸膜, 但與實例 2 不同

地，使用雙軸拉伸機(Imoto Machinery Co., Ltd.製造)同時雙軸拉伸而非使用雙軸拉伸機(Shibayama Scientific Co., Ltd..製造)未固定寬度單軸拉伸，使得膜的 x 軸方向和 y 軸方向分別拉伸+50%。所得拉伸膜具負雙折射值且膜平面外的阻滯量 $Re=(n_x-n_z)d$ 是 -120 奈米 / 100 微米經拉伸膜厚度。其中，d 代表膜厚度。三維折射指數是 $n_x=1.53990$ ， $n_y=1.53986$ ， $n_z=1.54021$ 。因此，顯示所得膜適合作為具負雙折射值的阻滯膜。

實例 6

以與實例 3 相同方式得到拉伸膜，但與實例 3 不同地，使用雙軸拉伸機(Imoto Machinery Co., Ltd.製造)同時雙軸拉伸而非使用雙軸拉伸機(Shibayama Scientific Co., Ltd..製造)未固定寬度單軸拉伸，使得膜的 x 軸方向和 y 軸方向分別拉伸+50%。所得拉伸膜具負雙折射值且膜平面外的阻滯量 $Re=(n_x-n_z)d$ 是 -120 奈米 / 100 微米經拉伸膜厚度。其中，d 代表膜厚度。三維折射指數是 $n_x=1.53994$ ， $n_y=1.53986$ ， $n_z=1.54026$ 。因此，顯示所得膜適合作為具負雙折射值的阻滯膜。

實例 7

在一升壓熱器中引入 400ml 甲苯作為聚合反應溶劑、0.001 莫耳新癸酸過氧丁酯作為聚合反應引發劑、0.42 莫耳 N-(2,6-二異丙基苯基)馬來醯亞胺和 4.05 莫耳異丁烯，

此混合物於聚合溫度 60°C 的聚合條件下進行聚合反應達聚合時間 5 小時，得到 N-(2,6-二異丙基苯基)馬來醯亞胺-異丁烯交替共聚物。藉此得到的 N-(2,6-二異丙基苯基)馬來醯亞胺-異丁烯交替共聚物之重量平均分子量 (Mw)(以聚苯乙烯為標準品)是 158,000，分子量分佈 (Mw/Mn，以重量平均分子量 (Mn) / 數均分子量 (Mw)表示)是 2.6。

製得包含 20 重量%所得 N-(2,6-二異丙基苯基)馬來醯亞胺-異丁烯交替共聚物和 80 重量%二氯甲烷的溶液並澆鑄於 PET 上。二氯甲烷蒸發之後，形成 N-(2,6-二異丙基苯基)馬來醯亞胺-異丁烯交替共聚物膜，自溶液固化並撕下。撕下的膜於 100°C 乾燥 4 小時，以 10°C / 小時速率自 120°C 升溫至 160°C 地進一步乾燥。之後，使用真空乾燥機，所得膜於真空、180°C 乾燥 4 小時，得到厚約 100 微米的膜。所得膜透光率 92%，濁度 0.3%，折射指數 1.55，Abbe 數 42，阻滯量 0 奈米，Tg 235°C。

將此膜切成 5cm x 5cm，其之後於 240°C、拉伸速率 15mm/min，使用雙軸拉伸機 (Shibayama Scientific Co., Ltd. 製造) 未固定寬度單軸拉伸 +50%，得到經拉伸膜。所得經拉伸膜具負雙折射值，阻滯量 $Re=(n_x-n_y)d$ 是 -130 奈米 / 100 微米經拉伸膜厚度。其中，d 代表膜厚度。因此，顯示所得膜適合作為具負雙折射值的阻滯膜。

比較例 1

在一升壓熱器中引入 400ml 甲苯作為聚合反應溶劑、0.001 莫耳新癸酸過氧丁酯作為聚合反應引發劑、0.42 莫耳 N-苯基馬來醯亞胺和 4.05 莫耳異丁烯，此混合物於聚合溫度 60℃ 的聚合條件下進行聚合反應達聚合時間 5 小時，得到 N-苯基馬來醯亞胺－異丁烯交替共聚物。藉此得到的 N-苯基馬來醯亞胺－異丁烯交替共聚物之重量平均分子量 (Mw)(以聚苯乙烯為標準品)是 162,000，Mw/Mn 是 2.6。

製得包含 20 重量%所得 N-苯基馬來醯亞胺－異丁烯交替共聚物和 80 重量%二氯甲烷的溶液並澆鑄於 PET 膜上。二氯甲烷蒸發之後，形成 N-苯基馬來醯亞胺－異丁烯交替共聚物膜，自溶液固化並撕下。撕下的膜於 100℃ 乾燥 4 小時，以 10℃ / 小時速率自 120℃ 升溫至 160℃ 地進一步乾燥。之後，使用真空乾燥機，所得膜於真空、180℃ 乾燥 4 小時，得到厚約 100 微米的膜。所得膜透光率 92%，濁度 0.3%，折射指數 1.55，Abbe 數 42，阻滯量 0 奈米，Tg 192℃。

將此膜切成 5cm x 5cm，其之後於 210℃、拉伸速率 15mm/min，使用雙軸拉伸機 (Shibayama Scientific Co., Ltd. 製造) 未固定寬度單軸拉伸 +50%，得到經拉伸膜。所得經拉伸膜具負雙折射值，阻滯量 $Re=(n_x-n_y)d$ 是 +85 奈米 / 100 微米經拉伸膜厚度。其中，d 代表膜厚度。

比較例 2

在一升壓熱器中引入 400ml 甲苯作為聚合反應溶劑、0.001 莫耳新癸酸過氧丁酯作為聚合反應引發劑、0.42 莫耳 N-甲基馬來醯亞胺和 4.05 莫耳異丁烯，此混合物於聚合溫度 60℃ 的聚合條件下進行聚合反應達聚合時間 5 小時，得到 N-甲基馬來醯亞胺 - 異丁烯交替共聚物。藉此得到的 N-甲基馬來醯亞胺 - 異丁烯交替共聚物之重量平均分子量 (Mw)(以聚苯乙烯為標準品)是 165,000，Mw/Mn 是 2.6。

製得包含 20 重量%所得 N-甲基馬來醯亞胺 - 異丁烯交替共聚物和 80 重量%二氯甲烷的溶液並澆鑄於 PET 膜上。二氯甲烷蒸發之後，形成 N-甲基馬來醯亞胺 - 異丁烯交替共聚物膜，自溶液固化並撕下。撕下的膜於 100℃ 乾燥 4 小時，以 10℃ / 小時速率自 120℃ 升溫至 160℃ 地進一步乾燥。之後，使用真空乾燥機，所得膜於真空、140℃ 乾燥 4 小時，得到厚約 100 微米的膜。所得膜透光率 92%，濁度 0.3%，折射指數 1.53，Abbe 數 47，阻滯量 0 奈米，T_g 159℃。

將此膜切成 5cm x 5cm，其之後於 180℃、拉伸速率 15mm/min，使用雙軸拉伸機 (Shibayama Scientific Co., Ltd. 製造) 未固定寬度單軸拉伸 +50%，得到經拉伸膜。所得經拉伸膜具負雙折射值，阻滯量 $Re=(n_x-n_y)d$ 是 +90 奈米 / 100 微米經拉伸膜厚度。其中，d 代表膜厚度。

比較例 3

在一升壓熱器中引入 400ml 甲苯作為聚合反應溶劑、0.001 莫耳新癸酸過氧丁酯作為聚合反應引發劑、0.42 莫耳 N-(4-乙基苯基)馬來醯亞胺和 4.05 莫耳異丁烯，此混合物於聚合溫度 60℃ 的聚合條件下進行聚合反應達聚合時間 5 小時，得到 N-(4-乙基苯基)馬來醯亞胺－異丁烯交替共聚物。藉此得到的 N-(4-乙基苯基)馬來醯亞胺－異丁烯交替共聚物之重量平均分子量(Mw)(以聚苯乙烯為標準品)是 155,000，Mw/Mn 是 2.6。

製得包含 20 重量%所得 N-(4-乙基苯基)馬來醯亞胺－異丁烯交替共聚物和 80 重量%二氯甲烷的溶液並澆鑄於 PET 膜上。二氯甲烷蒸發之後，形成 N-(4-乙基苯基)馬來醯亞胺－異丁烯交替共聚物膜，自溶液固化並撕下。撕下的膜於 100℃ 乾燥 4 小時，以 10℃ / 小時速率自 120℃ 升溫至 160℃ 地進一步乾燥。之後，使用真空乾燥機，所得膜於真空、180℃ 乾燥 4 小時，得到厚約 100 微米的膜。

所得膜透光率 92%，濁度 0.3%，折射指數 1.56，Abbe 數 28，阻滯量 0 奈米，Tg 187℃。

將此膜切成 5cm x5cm，其之後於 220℃、拉伸速率 15mm/min，使用雙軸拉伸機 (Shibayama Scientific Co., Ltd. 製造) 未固定寬度單軸拉伸 +50%，得到經拉伸膜。所得經拉伸膜具負雙折射值，阻滯量 $Re=(n_x-n_y)d$ 是 +140 奈米 / 100 微米經拉伸膜厚度。

比較例 4

以與比較例 1 相同方式得到拉伸膜，但與比較例 2 不同地，拉伸此膜的溫度由 210℃ 改為 200℃。所得拉伸膜具負雙折射值，膜平面內的阻滯量 $Re=(n_x-n_y)d$ 是 +65 奈米 / 100 微米經拉伸膜厚度。其中，d 代表膜厚度。三維折射指數 n_x 、 n_y 和 n_z 的關係是 $n_x > n_y = n_z$ 。

比較例 6

以與比較例 1 相同方式得到拉伸膜，但與比較 1 不同地，使用雙軸拉伸機 (Imoto Machinery Co., Ltd. 製造) 同時雙軸拉伸而非使用雙軸拉伸機 (Shibayama Scientific Co., Ltd. 製造) 未固定寬度單軸拉伸，使得膜的 x 軸方向和 y 軸方向分別拉伸 +50%。膜的拉伸溫是由 210℃ 改為 220℃。所得拉伸膜具負雙折射值且膜平面外的阻滯量 $Re=(n_x-n_y)d$ 是 +100 奈米 / 100 微米經拉伸膜厚度。其中，d 代表膜厚度。三維折射指數的關係是 $n_x = n_y > n_z$ 。

本發明提出透明耐熱樹脂光學材料，其具極佳耐熱性和動力性質，具負雙折射值並具有高折射指數和高 Abbe 數，其特別可用於光學補償元件 (如：膜、片) 和用於 LCD 顯示元件的阻滯膜。

【圖式簡單說明】

附圖 1 所示者是膜平面之三維折射指數的軸方向。

附圖 2 所示者是藉單軸拉伸之具正雙折射值的光學材

料之三維折射指數。

附圖 3 所示者是藉雙軸拉伸之具正雙折射值的光學材料之三維折射指數。

附圖 4 所示者是藉單軸拉伸之具負雙折射值的光學材料之三維折射指數。

附圖 5 所示者是藉雙軸拉伸之具負雙折射值的光學材料之三維折射指數。

伍、中文發明摘要

發明之名稱：透明耐熱樹脂光學材料及薄膜

一種透明耐熱樹脂光學材料，其具良好耐熱性和動力性質，具負雙折射值和高折射指數及高 Abbe 數，特別是光學補償膜，如：膜、片和用於 LCD 顯示器元件的阻滯膜。此透明耐熱樹脂光學材料製自含有特定烯烴基團單元和特定 N-苯基-取代的馬來醯亞胺基團單元之共聚物，其重量平均分子量(以聚苯乙烯為標準品)是 5×10^3 至 5×10^6 ，此透明耐熱樹脂光學材料具負雙折射值；阻滯膜的三維折射指數關係是 $n_z \geq n_y > n_x$ ， $n_z > n_y \geq n_x$ 或 $n_z > n_x \geq n_y$ 。

陸、英文發明摘要

發明之名稱：

TRANSPARENT HEAT-RESISTANT RESIN OPTICAL MATERIAL AND FILM

A transparent heat-resistant resin optical materials having excellent heat resistance and dynamic characteristics, having negative birefringence and exhibiting a high refractive index and a high Abbe number, especially optical compensating members such as films, sheets and retardation films for LCD display element. The transparent heat-resistant resin optical material is made of a copolymer containing a specific olefin residue unit and a specific N-phenyl-substituted maleimide residue unit and having a weight average molecular weight, as reduced into standard polystyrene, of from 5×10^3 to 5×10^6 , the transparent heat-resistant resin optical material exhibiting negative birefringence; and a retardation film having a relationship of three-dimensional refractive indexes of $n_z \geq n_y > n_x$, $n_z > n_y \geq n_x$, or $n_z > n_x \geq n_y$.

圖 1

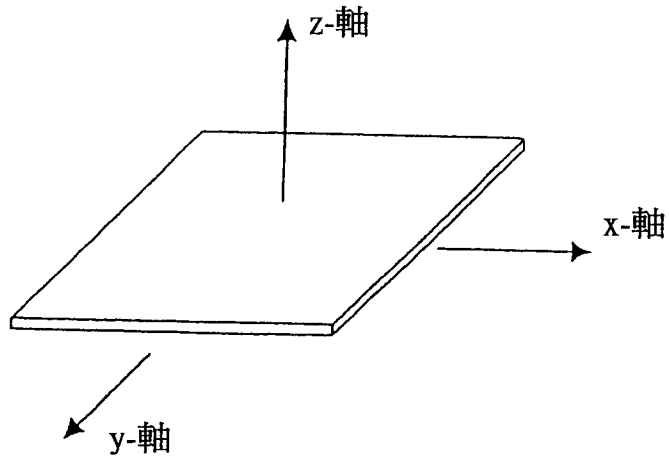


圖 2

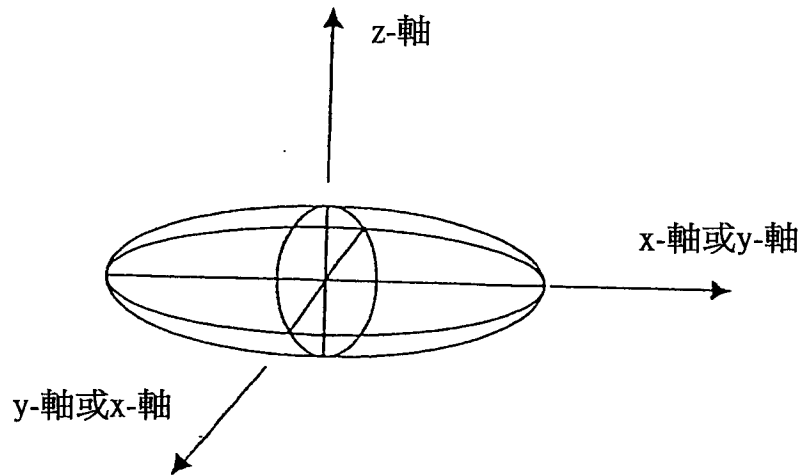


圖 3

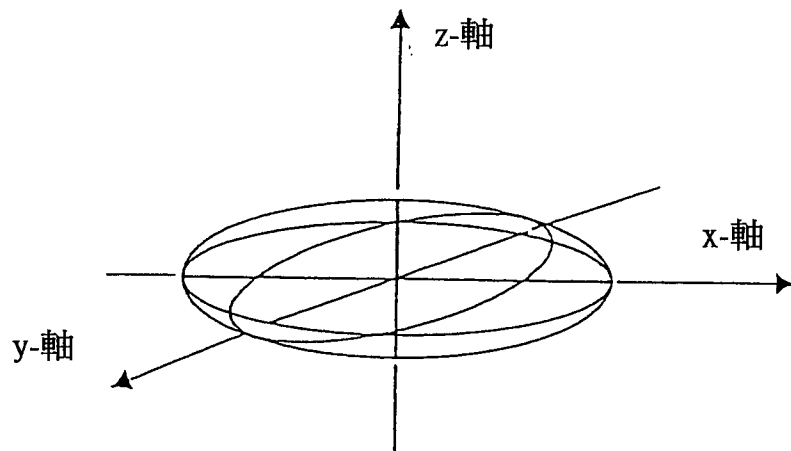


圖4

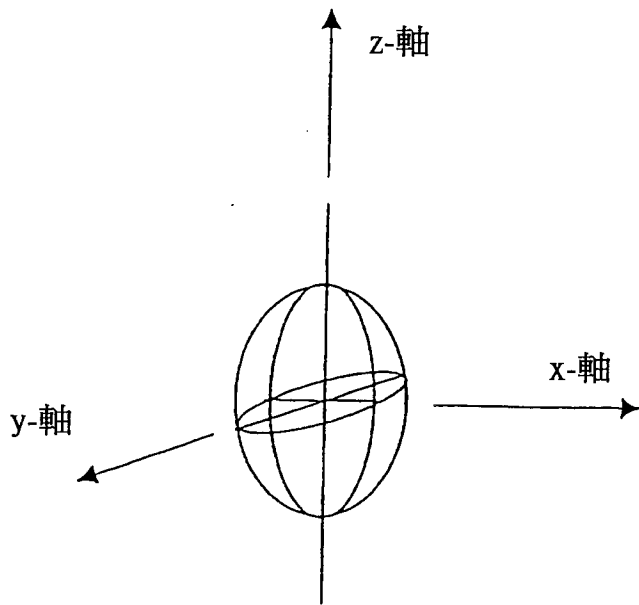
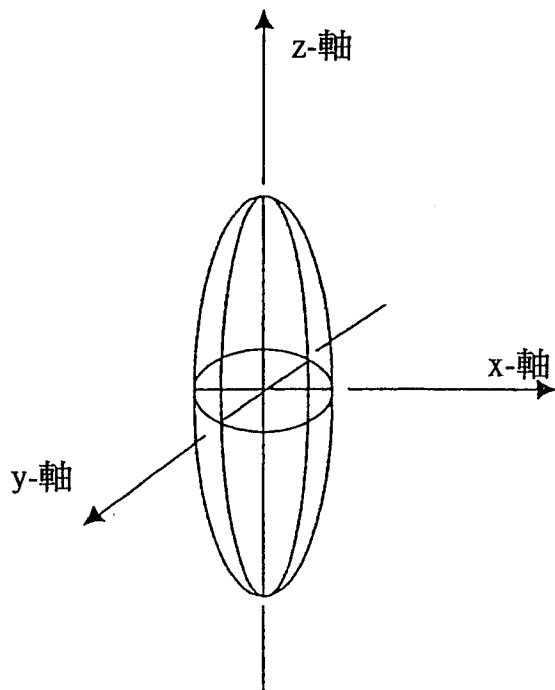


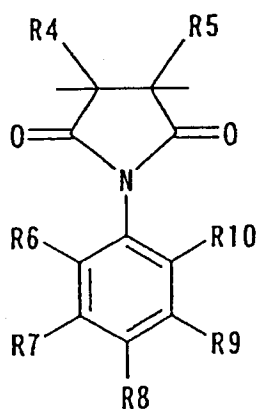
圖5



柒、(一)、本案指定之代表圖為：第 3 圖

(二)、本代表圖之元件代表符號簡單說明：無

捌、本案若有化學式時，請揭示最能顯示發明特徵的化學式：



(i i)

拾、申請專利範圍

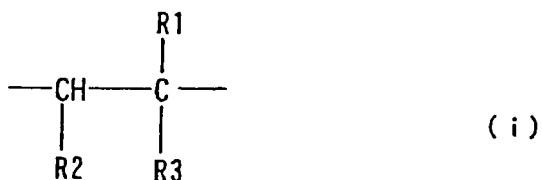
9829

第 92126098 號專利申請案

中文申請專利範圍修正本

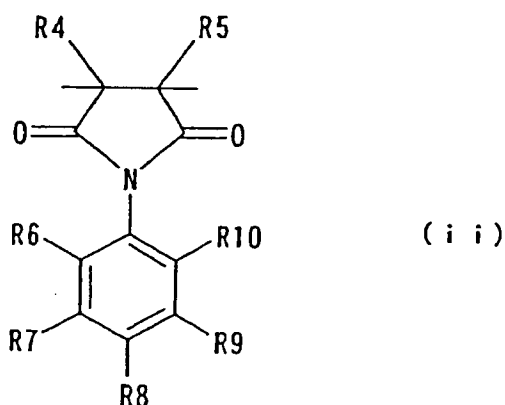
民國 98 年 2 月 9 日修正

1. 一種透明耐熱樹脂光學材料，其由一共聚物所構成，該共聚物包含以下列式 (i) 表示的烯烴基團單元：



其中 R1、R2 和 R3 各代表氫或具 1 至 6 個碳原子的烷基，和

下列式 (ii) 表示的 N-苯基-取代的馬來醯亞胺基團單元：



其中 R4 和 R5 各代表氫或具 1 至 8 個碳原子的直鏈或支鏈烷基；R7、R8 和 R9 各代表氫、以鹵素為基礎的元

素、羧酸、羧酸酯、羥基、氰基、硝基或具 1 至 8 個碳原子的直鏈或支鏈烷基；而 R6 和 R10 各代表氫、以鹵素為基礎的元素、羧酸、羧酸酯、羥基、氰基、硝基或具 1 至 8 個碳原子的直鏈或支鏈烷基；至少一個 R6 或 R10 代表氫時，另一者不可為氫，而是代表以鹵素為基礎的元素、羧酸、羧酸酯、羥基、氰基、硝基或具 1 至 8 個碳原子的直鏈或支鏈烷基，

此共聚物的重量平均分子量(以聚苯乙烯作為標準品)由 5×10^3 至 5×10^6 ，此透明耐熱樹脂光學材料經拉伸後具有負雙折射值。

2. 如申請專利範圍第 1 項之透明耐熱樹脂光學材料，其中包含以式(i)表示的烯烴基團單元和式(ii)表示的 N-苯基-取代的馬來醯亞胺基團單元之共聚物是交替共聚物。

3. 如申請專利範圍第 1 項之透明耐熱樹脂光學材料，其中式(i)表示的烯烴基團單元是衍生自異丁烯的基團單元；式(ii)表示的 N-苯基-取代的馬來醯亞胺基團單元是衍生自選自 N-(2-甲基苯基)馬來醯亞胺、N-(2,6-二乙基苯基)馬來醯亞胺和 N-(2,6-二異丙基苯基)馬來醯亞胺中之一或多者的基團單元。

4. 如申請專利範圍第 1 項之透明耐熱樹脂光學材料，其中透明耐熱樹脂光學材料是膜或片。

5. 如申請專利範圍第 1 項之透明耐熱樹脂光學材料，其中透明耐熱樹脂光學材料是光學補償膜。

6. 如申請專利範圍第 1 項之透明耐熱樹脂光學材料，其中透明耐熱樹脂光學材料是阻滯膜。

7. 如申請專利範圍第 1 項之透明耐熱樹脂光學材料，其中透明耐熱樹脂光學材料是膜或片，係於以共聚物之玻璃化溫度為基礎之自[玻璃化溫度 -20℃]至[玻璃化溫度 +30℃]的溫度範圍內，藉單軸或多軸拉伸模塑共聚物而得，此共聚物包含式(i)表示的烯烴基團單元和式(ii)表示的 N-苯基-取代的馬來醯亞胺基團單元，重量平均分子量(以聚苯乙烯為標準品)是 5×10^3 至 5×10^6 。

8. 如申請專利範圍第 1 項之透明耐熱樹脂光學材料，其中透明耐熱樹脂光學材料是膜或片，係於以共聚物之玻璃化溫度為基礎之自[玻璃化溫度 -20℃]至[玻璃化溫度 +20℃]的溫度範圍內，藉單軸或多軸拉伸模塑共聚物而得，此共聚物包含式(i)表示的烯烴基團單元和式(ii)表示的 N-苯基-取代的馬來醯亞胺基團單元，重量平均分子量(以聚苯乙烯為標準品)是 5×10^3 至 5×10^6 。

9. 如申請專利範圍第 1 項之透明耐熱樹脂光學材料，其中透明耐熱樹脂光學材料是具負雙折射值的阻滯膜，拉伸方向是膜平面內的 x 軸，膜平面內的垂直方向是 y 軸，膜平面外的直立方向是 z 軸， n_x 代表 x 軸方向的折射指數， n_y 代表 y 軸方向的折射指數，而 n_z 代表 z 軸方向的折射指數時，其三維折射指數關係是 $n_z \geq n_y > n_x$ 。

10. 如申請專利範圍第 1 項之透明耐熱樹脂光學材料，其中透明耐熱樹脂光學材料是具負雙折射值的膜，係

製自：將共聚物模塑成膜，此共聚物包含式(i)表示的烯烴基團單元和式(ii)表示的 N-苯基-取代的馬來醯亞胺基團單元，其重量平均分子量(以聚苯乙烯為標準品)是 5×10^3 至 5×10^6 ，及在以共聚物之玻璃化溫度為基礎之自[玻璃化溫度 -20°C]至[玻璃化溫度 $+30^\circ\text{C}$]的溫度範圍內，進一步單軸拉伸此共聚物，此膜是阻滯膜，拉伸方向是膜平面內的 x 軸，膜平面內的垂直方向是 y 軸，膜平面外的直立方向是 z 軸， n_x 代表 x 軸方向的折射指數， n_y 代表 y 軸方向的折射指數，而 n_z 代表 z 軸方向的折射指數時，其三維折射指數關係是 $n_z \geq n_y > n_x$ 。

11. 如申請專利範圍第 1 項之透明耐熱樹脂光學材料，其中透明耐熱樹脂光學材料是具負雙折射值的阻滯膜，雙軸拉伸方向是膜平面內的 x 軸和膜平面內的 y 軸，且膜平面外的直立方向是 z 軸， n_x 代表 x 軸方向的折射指數， n_y 代表 y 軸方向的折射指數，而 n_z 代表 z 軸方向的折射指數時，其三維折射指數關係是 $n_z > n_y \geq n_x$ 或 $n_z > n_x \geq n_y$ 。

12. 如申請專利範圍第 1 項之透明耐熱樹脂光學材料，其中透明耐熱樹脂光學材料是具負雙折射值的膜，係製自：將共聚物模塑成膜，此共聚物包含式(i)表示的烯烴基團單元和式(ii)表示的 N-苯基-取代的馬來醯亞胺基團單元，其重量平均分子量(以聚苯乙烯為標準品)是 5×10^3 至 5×10^6 ，及在以共聚物之玻璃化溫度為基礎之自[玻璃化溫度 -20°C]至[玻璃化溫度 $+30^\circ\text{C}$]的溫度範圍內，進一步雙

軸拉伸此膜，此膜是阻滯膜，在拉伸方向是膜平面內的 x 軸和膜平面內的 y 軸，且膜平面外的直立方向是 z 軸， n_x 代表 x 軸方向的折射指數， n_y 代表 y 軸方向的折射指數，而 n_z 代表 z 軸方向的折射指數時，其三維折射指數關係是 $n_z > n_y \geq n_x$ 或 $n_z > n_x \geq n_y$ 。

13. 如申請專利範圍第 10 項之透明耐熱樹脂光學材料，其中透明耐熱樹脂光學材料是阻滯膜，其係藉由在以共聚物之玻璃化溫度為基礎之自 [玻璃化溫度 -20°C] 至 [玻璃化溫度 $+20^\circ\text{C}$] 的溫度範圍內單軸拉伸此共聚物而製得。

14. 如申請專利範圍第 12 項之透明耐熱樹脂光學材料，其中透明耐熱樹脂光學材料是阻滯膜，其係藉由在以共聚物之玻璃化溫度為基礎之自 [玻璃化溫度 -20°C] 至 [玻璃化溫度 $+20^\circ\text{C}$] 的溫度範圍內雙軸拉伸此共聚物而製得。

15. 如申請專利範圍第 10 項之透明耐熱樹脂光學材料，其中透明耐熱樹脂光學材料是膜，其中共聚物膜在拉伸之前係藉溶液澆鑄或壓出模塑製得。

16. 如申請專利範圍第 12 項之透明耐熱樹脂光學材料，其中透明耐熱樹脂光學材料是膜，其中共聚物膜在拉伸之前係藉溶液澆鑄或壓出模塑製得。

17. 如申請專利範圍第 13 項之透明耐熱樹脂光學材料，其中透明耐熱樹脂光學材料是膜，其中共聚物膜在拉伸之前係藉溶液澆鑄或壓出模塑製得。

18. 如申請專利範圍第 14 項之透明耐熱樹脂光學材料，其中透明耐熱樹脂光學材料是膜，其中共聚物膜在拉

伸之前係藉溶液澆鑄或壓出模塑製得。

19. 一種用於液晶顯示器元件的光學補償膜，包含使用如申請專利範圍第 1 項之透明耐熱樹脂光學材料。