



(19)
Bundesrepublik Deutschland
Deutsches Patent- und Markenamt

(10) **DE 699 16 068 T2** 2005.02.24

(12)

Übersetzung der europäischen Patentschrift

(97) **EP 1 099 131 B1**

(21) Deutsches Aktenzeichen: **699 16 068.5**

(86) PCT-Aktenzeichen: **PCT/US99/13156**

(96) Europäisches Aktenzeichen: **99 928 564.6**

(87) PCT-Veröffentlichungs-Nr.: **WO 00/07044**

(86) PCT-Anmeldetag: **11.06.1999**

(87) Veröffentlichungstag
der PCT-Anmeldung: **10.02.2000**

(97) Erstveröffentlichung durch das EPA: **16.05.2001**

(97) Veröffentlichungstag
der Patenterteilung beim EPA: **31.03.2004**

(47) Veröffentlichungstag im Patentblatt: **24.02.2005**

(51) Int Cl.⁷: **G02B 5/30**

G02B 5/08, G02F 1/1335, A61C 19/00

(30) Unionspriorität:

127137 31.07.1998 US

(73) Patentinhaber:

**3M Innovative Properties Co., Saint Paul, Minn.,
US**

(74) Vertreter:

Vossius & Partner, 81675 München

(84) Benannte Vertragsstaaten:

DE, FR, GB, IT

(72) Erfinder:

**BRETSCHER, R., Kathryn, Saint Paul, US; MITRA,
B., Sumita, Saint Paul, US; BENSON, Jr., Olester,
Saint Paul, US; JONZA, M., James, Saint Paul, US;
MERRILL, W., William, Saint Paul, US;
OUDERKIRK, J., Andrew, Saint Paul, US; WEBER,
F., Michael, Saint Paul, US; GUST, R., Janis, Saint
Paul, US**

(54) Bezeichnung: **ZAHNAERZTLICHE GEGENSTAENDE MIT NACHFORMBAREN OPTISCHEN MEHRSCHICHTFO-
LIEN**

Anmerkung: Innerhalb von neun Monaten nach der Bekanntmachung des Hinweises auf die Erteilung des europäischen Patents kann jedermann beim Europäischen Patentamt gegen das erteilte europäische Patent Einspruch einlegen. Der Einspruch ist schriftlich einzureichen und zu begründen. Er gilt erst als eingelegt, wenn die Einspruchsgebühr entrichtet worden ist (Art. 99 (1) Europäisches Patentübereinkommen).

Die Übersetzung ist gemäß Artikel II § 3 Abs. 1 IntPatÜG 1991 vom Patentinhaber eingereicht worden. Sie wurde vom Deutschen Patent- und Markenamt inhaltlich nicht geprüft.

Beschreibung

[0001] Die Erfindung betrifft das Gebiet zahnärztlicher bzw. stomatologischer Gegenstände. Insbesondere betrifft die Erfindung zahnärztliche Gegenstände mit nachformbaren optischen Mehrschichtfolien, die mindestens ein doppelbrechendes Material aufweisen.

Hintergrund

[0002] Die Verwendung und/oder die Steuerung von Lichtenergie ist bei vielen zahnärztlichen Verfahren von Bedeutung, insbesondere bei solchen, wo photochemisch härtende Kleber, Dichtmittel und konservierende bzw. wiederherstellende zahnärztliche Materialien verwendet werden. Photochemisch härtende Materialien härten vorzugsweise, wenn sie Licht mit einer gewählten Wellenlänge oder gewählten Wellenlängen, normalerweise im sichtbaren Spektrum, ausgesetzt sind.

[0003] Photochemisch härtbare zahnärztliche Materialien sind für den Zahnarzt vorteilhaft, da der Härtingsprozeß ausgelöst werden kann, wenn es gewünscht ist. Beispielsweise können Zahnfüllungen in einem Zahnhohlraum in Kontakt mit einem photochemisch härtenden Dentalkleber eingebracht werden, und es kann nach Bedarf mit diesem umgegangen werden, bis der Zahnarzt sicher ist, daß die Füllung in ihrer richtigen Position ausgerichtet ist. Eine Lichtquelle mit der gewählten Wellenlänge oder den gewählten Wellenlängen wird dann aktiviert, um die Polymerisation des Klebers auszulösen und die Füllung sicher an Ort und Stelle zu befestigen. Auch bei den zahnärztlichen Verfahren, bei denen photochemisch härtende zahnärztliche Materialien nicht verwendet werden, ist die Abgabe und Steuerung des Lichts wichtig, damit das zahnärztliche Personal die durchzuführenden Behandlungsverfahren beobachten kann.

[0004] Herkömmliche Verfahren zur Bereitstellung reflektierender optischer Flächen in Verbindung mit zahnärztlichen Gegenständen schließen normalerweise die Verwendung von Metall oder von Substraten ein, die mit dünnen Schichten aus Metallen beschichtet sind. Die Ausbildung von zahnärztlichen Gegenständen mit reflektierenden optischen Flächen vollständig aus Metall ist normalerweise teuer und kann weitere Nachteile haben, z. B. ein höheres Gewicht usw. Metallbeschichtete optische Flächen sind normalerweise Kunststoff- oder andere Substrate, die mit einer reflektierenden metallischen Schicht beispielsweise durch Vakuum-, Dampf- oder chemischer Beschichtung beschichtet sind. Diese Beschichtungen sind mit einer Anzahl von Problemen behaftet, einschließlich Absplittern oder Abblättern der metallischen Beschichtung, sowie Korrosion der metallischen Schicht.

[0005] Diese Probleme verschlimmern sich bei vielen zahnärztlichen Anwendungen, da die zahnärztlichen Gegenstände, einschließlich der optischen Flächen, die in mehreren Behandlungsverfahren verwendet werden, normalerweise zwischen den Verfahren sterilisiert werden müssen. Durch die Sterilisation werden die Gegenstände der Wärme und der Feuchtigkeit ausgesetzt, die die Zersetzungsraten der optischen Flächen erhöhen können. Bei diesen zahnärztlichen Gegenständen mit optischen Flächen, die nur metallbeschichtet sein können, können die Probleme der Zersetzung noch gravierender sein, wenn sie der Sterilisation unterzogen werden. In vielen Fällen müssen die zahnärztlichen Gegenstände mit metallbeschichteten optischen Flächen nach einmaligem Gebrauch entsorgt werden, was die Kosten der Behandlungsverfahren, in denen diese zahnärztlichen Gegenstände verwendet werden, erhöhen kann.

[0006] Bei Verwendung in Verbindung mit photochemisch härtenden zahnärztlichen Wiederherstellungsmitteln ist ein weiterer Nachteil vieler optischer Flächen der zahnärztlichen Gegenstände ihre Unfähigkeit, gewünschte Lichtwellenlängen selektiv zu reflektieren oder durchzulassen. Viele photochemisch härtende zahnärztliche Materialien werden durch Licht in einem relativ schmalen Wellenlängenbereich, normalerweise im sichtbaren Spektrum, aktiviert oder gehärtet. Bekannte optische Flächen von zahnärztlichen Gegenständen sind jedoch normalerweise lichtundurchlässig (d. h. sie reflektieren und/oder absorbieren einfallendes Licht), oder sie sind für das sichtbare Spektrum durchlässig, so daß die Beobachtung der photochemisch härtenden zahnärztlichen Materialien während der Verwendung verhindert oder erschwert wird, ohne zumindest einen Teil des Lichts in den photochemisch härtenden Wellenlängen abzugeben. Infolgedessen kann die Notwendigkeit, den Arbeitsbereich zu beobachten, zumindest eine bestimmte photochemische Härtung der zahnärztlichen Materialien bewirken.

[0007] Neben den oben beschriebenen Überlegungen weisen zahnärztliche Gegenstände häufig optische Flächen auf, die keine planare Form haben, das heißt, die optischen Flächen haben die Form von einfachen oder komplexen Kurven. Beispiele sind u. a. ein Zahnspiegel mit einer optischen Fläche in Form einer konvexen Fläche und ein Lichtleiter, der in Verbindung mit der Abgabe von photochemisch härtendem Licht verwen-

det wird und der eine gekrümmte reflektierende Röhre verwendet, um das Licht von einer Quelle an einen Ort im Mund des Patienten abzugeben usw.

[0008] In US-A-5 278 694 ist ein mehrschichtiger reflektierender Polymerkörper beschrieben, der wärmeformbar ist und zu Folien, Bahnen und vielerlei Teilen verarbeitet werden kann, wobei ein gleichmäßiges reflektierendes Erscheinungsbild erhalten bleibt.

[0009] WO 94/09 392 beschreibt einen rein polymeren Kaltspiegel, der sichtbare Wellenlängen reflektiert, während er einen wesentlichen Teil der infraroten Wellenlängen durchläßt.

[0010] US-A-5 278 694 beschreibt einen mehrschichtigen Polymerkörper, der Licht reflektiert und der so hergestellt werden kann, daß er ein silbriges oder getöntes metallisches oder unkonventionell getöntes Erscheinungsbild hat.

[0011] US-A-5 217 794 beschreibt einen Polymerkörper aus optisch dicken und/oder sehr dünnen plattenartigen oder streifenartigen Schichten aus einem oder mehreren Polymeren in einer Matrix eines anderen Polymers.

Zusammenfassung der Erfindung

[0012] Die Erfindung stellt zahnärztliche Gegenstände nach Anspruch 1 bereit.

[0013] Der Begriff "zahnärztliche Werkzeuge", wie er in Verbindung mit der vorliegenden Erfindung verwendet wird, schließt Vorrichtungen mit mindestens einer optischen Fläche ein, die zur Verwendung in einem zahnärztlichen Behandlungsverfahren geeignet ist, einschließlich Zahnspiegel, Lichtleiter zur Verwendung in Verbindung mit photochemisch härtenden zahnärztlichen Materialien, Matrixbänder zur Verwendung beim Formen von photochemisch härtenden zahnärztlichen Wiederherstellungsmitteln usw., ohne darauf beschränkt zu sein. In Verbindung mit der vorliegenden Erfindung schließt der Begriff "zahnärztliche Gegenstände" Vorrichtungen ein, die in Verbindung mit zahnärztlichen Behandlungsverfahren verwendet werden. Infolgedessen schließen zahnärztliche Gegenstände zahnärztliche Werkzeuge ein, die zur Verwendung im Mund eines Patienten geeignet sind, sowie Vorrichtungen, die dazu geeignet sind, Zahnärzten bei Zahnbehandlungsverfahren zu unterstützen, z. B. Zahnarztpraxisleuchten, Raumbeluchtungsabdeckungen usw. Zahnärztliche Gegenstände weisen auch mindestens eine optische Fläche auf. Der Begriff "optische Fläche", wie er hier verwendet wird, bedeutet eine Fläche, die Licht auf eine gewünschte Weise reflektiert, absorbiert und/oder durchläßt. In bestimmten Fällen kann die optische Fläche Licht bestimmter Wellenlängen reflektieren und Licht anderer Wellenlängen durchlassen, die optische Fläche kann im wesentlichen das gesamte einfallende Licht reflektieren, oder die optische Fläche kann im wesentlichen das gesamte einfallende Licht durchlassen usw.

[0014] Zu den Vorteilen der Erfindung zählt die Fähigkeit, bei Zahnbehandlungsverfahren die Sichtverhältnisse im Mund eines Patienten zu verbessern. Durch Einbeziehung der erfindungsgemäßen, stark reflektierenden optischen Mehrschichtfolien sind die Zahnarztwerkzeuge in der Lage, einen größeren Teil des verfügbaren Lichts zu reflektieren, was zu verbesserten Sichtverhältnissen für Zahnärzte führt. Wenn Licht verwendet wird, um zahnärztliche Materialien einer Lichthärtung zu unterziehen, kann die verbesserte Reflektionsfähigkeit der optischen Mehrschichtfolien außerdem die Härtingszeit reduzieren, so daß sowohl für den Zahnarzt als auch für den Patienten Zeit gespart wird.

[0015] Unter einem Aspekt stellt die Erfindung einen zahnärztlichen Gegenstand nach Anspruch 1 bereit. Die zahnärztlichen Gegenstände können zahnärztliche Werkzeuge, z. B. Zahnspiegel, zahnärztliche Lichtleiter, Matrixbänder usw., sein.

[0016] Unter einem weiteren Aspekt stellt die Erfindung einen zahnärztlichen Gegenstand nach Anspruch 19 bereit.

[0017] Weitere Einzelheiten zur Erfindung sind in den Merkmalen der Unteransprüche definiert.

Kurzbeschreibung der Zeichnungen

[0018] Fig. 1 ist eine schematische Darstellung einer erfindungsgemäßen optischen Mehrschichtfolie.

[0019] Fig. 2 ist eine Draufsicht eines Abschnitts einer erfindungsgemäßen nachgeformten optischen Mehr-

schichtfolie mit Bereichen, die entlang zweier in einer Ebene liegenden Richtungen verformt sind.

[0020] Fig. 2A ist eine vergrößerte Teilschnittansicht einer nachgeformten optischen Mehrschichtfolie in Fig. 2, geschnitten entlang der Linie 2A-2A.

[0021] Fig. 2B und 2C sind vergrößerte Teilschnittansichten von alternativen nachgeformten optischen Mehrschichtfolien, die entlang zweier in einer Ebene liegenden Richtungen verformt sind.

[0022] Fig. 3 ist eine Draufsicht eines Abschnitts einer erfindungsgemäßen nachgeformten optischen Mehrschichtfolie mit Bereichen, die entlang einer in einer Ebene liegenden Richtung verformt sind.

[0023] Fig. 3A ist eine vergrößerte Teilschnittansicht der nachgeformten optischen Mehrschichtfolie in Fig. 3, geschnitten entlang der Linien 3A-3A.

[0024] Fig. 3B und 3C sind vergrößerte Teilschnittansichten von alternativen nachgeformten optischen Mehrschichtfolien, die entlang einer in einer Ebene liegenden Richtung verformt sind.

[0025] Fig. 4 ist eine perspektivische Ansicht eines Abschnitts einer erfindungsgemäßen nachgeformten optischen Mehrschichtfolie.

[0026] Fig. 5 ist eine vergrößerte Teilschnittansicht der optischen Mehrschichtfolie in Fig. 4, geschnitten entlang der Linie 5-5 in Fig. 4.

[0027] Fig. 6 ist eine Teilschnittansicht einer weiteren erfindungsgemäßen nachgeformten optischen Mehrschichtfolie.

[0028] Fig. 7 ist eine Teilschnittansicht einer Zahnarztpraxisleuchtenanordnung mit einer erfindungsgemäßen nachgeformten optischen Mehrschichtfolie.

[0029] Fig. 8 ist eine vergrößerte Schnittansicht eines Abschnitts der Zahnarztpraxisleuchtenanordnung in Fig. 7, geschnitten entlang der Linie 8-8.

[0030] Fig. 9 ist eine vergrößerte Schnittansicht eines Abschnitts der Zahnarztpraxisleuchtenanordnung in Fig. 7, geschnitten entlang der Linie 9-9.

[0031] Fig. 10 ist eine perspektivische Ansicht einer Beleuchtungsabdeckung mit einer erfindungsgemäßen nachgeformten optischen Mehrschichtfolie.

[0032] Fig. 11 ist eine perspektivische Ansicht eines Zahnspiegels mit einer erfindungsgemäßen nachgeformten optischen Mehrschichtfolie.

[0033] Fig. 11A ist eine vergrößerte Teilschnittansicht des Zahnspiegels in Fig. 11.

[0034] Fig. 11B ist eine Draufsicht einer optischen Fläche eines Zahnspiegels.

[0035] Fig. 11C ist eine Schnittansicht der optischen Fläche des Zahnspiegels in Fig. 11B, geschnitten entlang der Linie 11C-11C.

[0036] Fig. 12 ist eine Draufsicht eines zahnärztlichen Lichtleiters und einer Lichtquelle.

[0037] Fig. 12A ist eine Schnittansicht des Lichtleiters in Fig. 12, geschnitten entlang der Linie 12A-12A.

[0038] Fig. 13A bis 13C sind Schnittansichten alternativer zahnärztlicher Lichtleiter.

[0039] Fig. 14 ist eine Draufsicht eines Zahnmatrixbandes, das mit einer erfindungsgemäßen nachgeformten optischen Mehrschichtfolie hergestellt ist.

[0040] Fig. 15 ist ein Diagramm, das die Beziehung zwischen dem Streckverhältnis (horizontale Achse) und der Kristallinität (vertikale Achse) in doppelbrechenden Materialien einer optischen Mehrschichtfolie darstellt.

[0041] Fig. 15A stellt den Brechungsindex in der Richtung der Streckung (vertikale Achse) als Funktion des Streckverhältnisses (horizontale Achse) bei einer uniaxial gestreckten PEN-Folie dar, bei der die Dimension der in der gleichen Ebene liegenden orthogonalen Achse im allgemeinen konstant gehalten wird.

[0042] Fig. 16 ist ein Diagramm, das die Temperatur (horizontale Achse) gegen die Kristallisationsrate (vertikale Achse) bei einem exemplarischen doppelbrechenden Material darstellt.

[0043] Fig. 17 ist eine perspektivische Ansicht eines Gegenstands mit einer nachgeformten optischen Mehrschichtfolie mit Bereichen mit verschiedenen optischen Eigenschaften.

[0044] Fig. 18 ist eine Schnittansicht eines Verbundmaterials, das eine optische Mehrschichtfolie und ein Substrat aufweist.

[0045] Fig. 19 ist eine Draufsicht des Verbundmaterials in Fig. 18 und zeigt, daß das Substrat in gewählten Bereichen vorhanden sein kann.

Ausführliche Beschreibung von illustrativen Ausführungsformen der Erfindung

[0046] Die Erfindung betrifft zahnärztliche Gegenstände mit mindestens einer optischen Fläche einer nachgeformten optischen Mehrschichtfolie mit Schichten aus mindestens einem dehnungsinduzierten doppelbrechenden Material. Die erfindungsgemäßen nachgeformten optischen Mehrschichtfolien, die bei zahnärztlichen Gegenständen verwendet werden, sind insofern geeignet, als sie gewünschte Wellenlängen des Lichts auf gewünschte Weise reflektieren oder durchlassen können, um gewünschte Ergebnisse zu erreichen.

[0047] Optische Folien und Verfahren zum Nachformen dieser Folien finden sich in der US-Patentanmeldung 09/126 917 mit dem Titel POST-FORMABLE MULTILAYER OPTICAL FILMS AND METHODS OF FORMING und in der US-Patentanmeldung 09/127 314 mit dem Titel POST-FORMING CONTINUOUS/DISPERSE PHASE OPTICAL BODIES, die beide zum gleichen Datum mit dieser angemeldet worden sind.

[0048] Durch die Verwendung optischer Mehrschichtfolien in den erfindungsgemäßen zahnärztlichen Gegenständen können die folgende Vorteile der optischen Mehrschichtfolien ausgenutzt werden, nämlich z. B. hohes Reflektionsvermögen, selektive Transmission/Reflektion des Lichts mit gewünschten Wellenlängen, leichtes Gewicht usw. Die selektive Transmission/Reflektion des Lichts mit gewünschten Wellenlängen kann besonders vorteilhaft sein, wenn sie in Verbindung mit photochemisch härtenden zahnärztlichen Materialien verwendet wird, um die Abgabe des Lichts in der/den photochemisch härtenden Wellenlänge(n) zu steuern. Die Verwendung optischer Mehrschichtfolien kann besonders für UV-Absorption und/oder IR-Reflektion in zahnärztlichen Anwendungen geeignet sein.

[0049] Da die optischen Flächen vieler zahnärztlicher Gegenstände nichtplanar sind, erfordert die Fähigkeit, optische Mehrschichtfolien für diese optischen Flächen bereitzustellen, ein bestimmtes Nachformen der optischen Mehrschichtfolien ausgehend von ihrer im allgemeinen planaren Folienform, wie sie hergestellt werden. Das Nachformen von optischen Mehrschichtfolien bringt Probleme mit sich, da die meisten, wenn nicht alle Nachformprozesse, zu Verformungen der Folie in bezug auf ihren Herstellungszustand führen. Diese Verformungen können die optischen und mechanischen Eigenschaften der optischen Mehrschichtfolie ungünstig beeinflussen.

[0050] Die Erfindung wird hier zwar häufig mit Bezug auf den sichtbaren Bereich des Spektrums beschrieben, aber verschiedene Ausführungsformen der optischen Mehrschichtfolien, die in erfindungsgemäßen zahnärztlichen Gegenständen verwendet werden, können mit verschiedenen Wellenlängen (und somit. Frequenzen) der elektromagnetischen Strahlung arbeiten. Der Einfachheit halber wird der Begriff "Licht" hier verwendet, um jede elektromagnetische Strahlung (unabhängig von der Wellenlänge/Frequenz der elektromagnetischen Strahlung) zu bezeichnen, die in der Lage ist, von den erfindungsgemäßen optischen Mehrschichtfolien reflektiert zu werden. Beispielsweise können optische Mehrschichtfolien in der Lage sein, sehr hohe, ultrahohe, Mikro- und Millimeterwellenfrequenzen der elektromagnetischen Strahlung zu reflektieren. Insbesondere bezeichnet der Begriff "Licht" elektromagnetische Strahlung, einschließlich des ultravioletten bis infraroten Spektrums (einschließlich des sichtbaren Spektrums). Besonders bevorzugt kann "Licht", wie es in Verbindung mit der Erfindung verwendet wird, als elektromagnetische Strahlung im sichtbaren Spektrum definiert werden.

[0051] Ferner beruhen die optischen Mehrschichtfolien und Verfahren zur Nachformung optischer Mehrschichtfolien gemäß der Erfindung auf dehnungsinduzierten Brechungsindexdifferenzen zwischen den Schich-

ten in den Folien. Normalerweise werden diese Differenzen hier nicht numerisch ausgedrückt. Wenn sie mit Bezug auf die spezifischen Brechungsindizes beschrieben werden, so versteht es sich jedoch, daß die verwendeten Werte unter Verwendung von Licht mit einer Wellenlänge von 632,8 nm bestimmt werden.

[0052] Die Begriffe "Reflektion" und "Reflektionsgrad" und deren Varianten bezeichnen den Reflektionsgrad von Lichtstrahlen von einer Fläche. Ebenso werden die Begriffe "Transmission" und "Transmissionsgrad" und deren Varianten hier mit Bezug auf die Transmission bzw. Durchlässigkeit des Lichts durch eine Fläche, einen optischen Stapel, eine Folie usw. verwendet. Außer wenn Farbstoffe oder Färbungsmittel absichtlich hinzugesetzt werden, weisen die erfindungsgemäßen optischen Stapel vorzugsweise niedrige oder minimale Absorptionsverluste auf (normalerweise weniger als 1% des einfallenden Lichts), und im wesentlichen wird das gesamte einfallende Licht, das nicht von der Fläche eines optischen Stapels reflektiert wird, durch diesen hindurchgelassen.

Optische Mehrschichtfolien

[0053] Viele optische Mehrschichtfolien, die in Verbindung mit der Erfindung verwendet werden, und Verfahren zur Herstellung derselben sind beschrieben im US-Patent 5 882 774; in der veröffentlichten EP-Anmeldung 754 311; und unter den Eingangsnummern 09/006 085; 09/006 118; 09/006 288; 09/006 455; 09/006 591 (alle am 13. Januar 1998 angemeldet); sowie in verschiedenen anderen Patenten und Patentanmeldungen, auf die hierin Bezug genommen wird. Das heißt jedoch, optische Mehrschichtfolien, wie sie hier verwendet werden, bezeichnen optische Folien mit mindestens einem doppelbrechenden Material, das in zusammenhängenden Schichten mit mindestens einem anderen Material vorhanden ist, so daß gewünschte dehnungsinduzierte Brechungsindexdifferenzen zwischen den Schichten, die die Folien bilden, entstehen. Die optischen Mehrschichtfolien weisen vorzugsweise eine relativ niedrige Absorption des einfallenden Lichts sowie ein hohes Reflektionsvermögen für außeraxiale und senkrechte Lichtstrahlen auf.

[0054] Die Reflektionseigenschaften gelten im allgemeinen unabhängig davon, ob die Folien für reine Reflektion oder für Reflektionspolarisation des Lichts verwendet werden. Die einzigartigen Eigenschaften und Vorteile von optischen Mehrschichtfolien bieten Gelegenheit, hochreflektierende nachgeformte Gegenstände zu entwickeln, die niedrige Absorptionsverluste aufweisen. Eine optische Mehrschichtfolie, die in den erfindungsgemäßen Verfahren und Gegenständen verwendet wird, ist in **Fig. 1** dargestellt und weist einen Mehrschichtstapel **10** mit alternierenden Schichten von mindestens zwei Materialien **12** und **14** auf.

[0055] Die erfindungsgemäßen optischen Mehrschichtfolien weisen alle einen optisch aktiven Abschnitt auf, der hier als der "optische Stapel" bezeichnet wird, das sind diejenigen Schichten, die aufgrund der Brechungsindexdifferenzen im optischen Stapel die gewünschten reflektierenden Eigenschaften der optischen Mehrschichtfolien aufweisen. Andere Schichten und/oder Materialien können zusätzlich zum optischen Stapel vorgesehen sein. Beispielweise können Außenschichten auf der Außenseite des optischen Stapels vorgesehen sein, um die mechanischen Eigenschaften der Folien zu verbessern oder eine bestimmte andere gewünschte Eigenschaft oder Eigenschaften, einschließlich sekundäre optische Effekte, z. B. Retardierung oder Polarisationsumwandlung, bereitzustellen, aber die Masse der reflektierenden optischen Merkmale der Folien wird durch die Eigenschaften der optischen Stapel bestimmt.

[0056] Obwohl nur zwei Schichten **12** und **14** dargestellt sind, versteht es sich, daß der optische Stapel der optischen Mehrschichtfolie **10** das Mehrfache von zehn, hundert oder tausend Schichten aufweisen kann, wobei jede Schicht aus irgendeiner Anzahl verschiedener Materialien bestehen kann, vorausgesetzt, daß mindestens eines der Materialien doppelbrechend ist. Die Merkmale, die die Wahl der Materialien für einen bestimmten optischen Stapel bestimmen, hängen von dem gewünschten optischen Verhalten der Folie ab. Der optische Stapel kann so viele Materialien enthalten, wie Schichten im Stapel vorhanden sind. Um die Herstellung zu vereinfachen, enthalten jedoch bevorzugte optische Dünnschichtstapel nur wenige verschiedene Materialien. Einige Überlegungen in bezug auf die Auswahl der Materialien für optische Stapel von erfindungsgemäßen optischen Mehrschichtfolien werden nachstehend in dem Abschnitt mit der Überschrift "Wahl der Materialien" beschrieben.

[0057] Die Grenzen zwischen den Materialien oder zwischen chemisch identischen Materialien mit verschiedenen physikalischen Eigenschaften im Stapel können abrupt oder graduell sein. Mit Ausnahme bestimmter einfacher Fälle mit analytischen Lösungen wird die Analyse des letzteren Schichtmediumtyps mit kontinuierlich variierendem Index normalerweise behandelt wie eine viel größere Anzahl dünner gleichmäßiger Schichten mit abrupten Grenzen, allerdings nur mit einer geringen Änderung der Eigenschaften zwischen angrenzenden Schichten.

[0058] Weitere Überlegungen in bezug auf die Wahl der Materialien und die Herstellung solcher optischer Mehrschichtfolien findet man mit Bezug auf das US-Patent 5 882 774 und die Eingangsnummern 09/006 085; 09/006 118; 09/006 288; 09/006 455; 09/006 591 (alle am 13. Januar 1998 angemeldet).

[0059] Der bevorzugte optische Stapel weist Paare von niedrig/hochbrechenden Folienschichten auf, wobei jedes Paar von niedrig/hochbrechende Schichten eine kombinierte optische Dicke hat, die $1/2$ der Mittenwellenlänge des Bandes entspricht, das er bei senkrechtem Einfall reflektieren soll. Die optische Dicke ist die physische Schichtdicke, multipliziert mit dem Brechungsindex des Materials in der Schicht bei einer gegebenen Wellenlänge und einem gegebenen Polarisations Ebenenquerschnitt. Stapel dieser Folien werden im allgemeinen als Viertelwellenstapel bezeichnet.

[0060] Wie oben ausgeführt, ist mindestens eines der Materialien doppelbrechend, so daß der Brechungsindex (n) des Materials entlang einer Richtung durch Strecken des Materials entlang dieser Richtung beeinflusst wird. Die Brechungsindizes jeder Schicht sind n_{1x} , n_{1y} und n_{1z} für die Schicht **12** und n_{2x} , n_{2y} und n_{2z} für die Schicht **14**. Erfindungsgemäß gehen wir davon aus, daß die x - und y -Achse im allgemeinen in der Ebene der Folie und senkrecht zueinander liegen. Die z -Achse ist senkrecht zur x - und y -Achse und ist im allgemeinen senkrecht zur Ebene der Folie.

[0061] Der Stapel **10** kann in zwei (normalerweise) senkrechten, in einer Ebene liegenden Richtungen gestreckt werden, um das doppelbrechende Material in der Schicht **14** biaxial auszurichten, oder der Stapel **10** kann nur in einer in der Ebene liegenden Richtung (uniaxial orientiert) gestreckt werden. Durch Streckung des Mehrschichtstapels über einen Bereich der uniaxialen bis biaxialen Orientierung kann eine Folie mit einem Reflektionsbereich für verschieden orientiertes einfallendes Licht hergestellt werden. Der Mehrschichtstapel kann also als reflektierende Polarisatoren oder Spiegel verwendet werden.

[0062] Wenn der Stapel **10** in der x - und y -Richtung gestreckt wird, weist jedes angrenzende Paar von Schichten **12** und **14** Brechungsindexdifferenzen zwischen den Schichten in jeder der beiden zueinander senkrechten, in einer Ebene liegenden Richtungen (x und y) auf. Die Werte der Brechungsindexdifferenzen können dargestellt werden durch Δx (das $(n_{1x} - n_{2x})$ entspricht, wobei n_{1x} größer ist als n_{2x}) und durch Δy (wobei $\Delta y = n_{1y} - n_{2y}$). Es versteht sich, daß ein reflektierender Polarisator vorzugsweise ein Δx im Stapel **10** aufweist, das so hoch ist, daß ein gewünschtes Reflektionsvermögen erreicht wird, und daß der Stapel **10** ferner ein Δy aufweist, das so niedrig ist, daß ein wesentlicher prozentualer Anteil des Lichts mit übereinstimmender Polarisation durchgelassen wird.

[0063] Ein wichtiger Parameter zur Verbesserung des Reflektionsvermögens von optischen Mehrschichtfolien bei schrägen Einfallswinkeln ist die Steuerung von n_{1z} und n_{2z} in Bezug auf die anderen Indizes. Zuerst nehmen wir an, daß n_{1x} größer ist als n_{1y} und n_{2x} , so daß Δx positiv ist und $|\Delta x| > |\Delta y|$. Um das Reflektionsvermögen des optischen Mehrschichtstapels bei schrägen Einfallswinkeln im Vergleich zum senkrechten Einfall zu erhöhen, kann bevorzugt werden, daß $\Delta z < \Delta x$. Mehr bevorzugt ist $\Delta z \cong 0$ und noch mehr bevorzugt ist $\Delta z < 0$.

[0064] Bei reflektierenden Spiegelfolien hängt die durchschnittliche Transmission für Licht jeder Polarisation und jedes Einfallswinkels im allgemeinen von der beabsichtigten Verwendung der reflektierenden Folie ab. Die durchschnittliche Transmission bei normalem Einfall bei irgendeiner Polarisationsrichtung für eine reflektierende Folie mit einer schmalen Bandbreite, z. B. eine Bandbreite von 100 nm im sichtbaren Spektrum, ist vorzugsweise kleiner als 30%, bevorzugt kleiner als 20% und mehr bevorzugt kleiner als 10%. Eine gewünschte durchschnittliche Transmission entlang jeder Polarisationsrichtung bei senkrechtem Einfall bei einer partiell reflektierenden Folie reicht von beispielsweise 10 bis 50% und kann je nach Anwendung eine Bandbreite beispielsweise zwischen 100 nm und 450 nm überspannen.

[0065] Bei einer hocheffizienten reflektierenden Spiegelfolie ist die durchschnittliche Transmission bei senkrechtem Einfall für jede Polarisationsrichtung im sichtbare Spektrum (400 bis 700 nm) vorzugsweise kleiner als 10%, bevorzugt kleiner als 5% und besonders bevorzugt kleiner als 2% und noch mehr bevorzugt kleiner als 1%. Die durchschnittliche Transmission bei 60° zur senkrechten Achse bei jeder Einfallsebene und Polarisationsrichtung bei einer hocheffizienten reflektierenden Folie von 400 bis 700 nm ist vorzugsweise kleiner als 10%, bevorzugt kleiner als 5%, besonders bevorzugt kleiner als 2% und noch mehr bevorzugt kleiner als 1%.

[0066] Außerdem können asymmetrische reflektierende Folien für bestimmte Anwendungen erwünscht sein. In diesem Fall kann die durchschnittliche Transmission für eine Polarisationsrichtung vorzugsweise kleiner als beispielsweise 50% sein, während die durchschnittliche Transmission entlang einer anderen Polarisationsrich-

tung vorzugsweise kleiner als beispielsweise 20% über eine Bandbreite beispielsweise des sichtbaren Spektrums (400 bis 700 nm) oder über das sichtbare Spektrum und in das Nahinfrarot (z. B. 400 bis 850 nm) hineinreichend sein kann.

[0067] Zusammengefaßt heißt das, optische Mehrschichtfolien, die in den erfindungsgemäßen Verfahren und Gegenständen verwendet werden, sind u. a. ein Mehrschichtstapel **10** mit alternierenden Schichten von mindestens zwei unterschiedlichen Polymermaterialien **12** und **14**, von denen mindestens eine vorzugsweise solche Doppelbrechung aufweist, daß der Brechungsindex des doppelbrechenden Materials durch Strecken beeinflusst wird. Die benachbarten Paare alternierender Schichten weisen vorzugsweise mindestens eine dehnungsinduzierte Brechungsindexdifferenz (Δx , Δy) entlang mindestens einer der beiden senkrechten, in einer Ebene liegenden Achsen auf, wie nachstehend kurz beschrieben wird. Die Wahl der Materialien und/oder der Orientierungsprozeßbedingungen können verwendet werden, um den Wert Δz in bezug auf die Werte Δx und Δy zu steuern.

[0068] Durch Strecken des Mehrschichtstapels über einen Bereich der uniaxialen bis biaxialen Orientierung kann eine optische Mehrschichtfolie mit einem Reflexionsbereich für in verschieden orientierten Ebenen polarisiertes Licht zusammen mit der Einfallsebene oder Polarisationssebene parallel zu verschiedenen Folienachsen (normalerweise entsprechend den Streckrichtungen) auf der Grundlage der Werte Δx , Δy und Δz hergestellt werden. Vorzugsweise sind diese Brechungsindexdifferenzen im allgemeinen in der gesamten Folie gleichmäßig, um gleichmäßige optische Eigenschaften in der gesamten Folie bereitzustellen. Schwankungen dieser Brechungsindexdifferenzen, die unter gewünschte minimale Werte für die gewünschten optischen Merkmale fallen, können unerwünschte Schwankungen der optischen Eigenschaften der Folien bewirken.

[0069] Obwohl die Gegenstände mit nachgeformten optischen Mehrschichtfolien, die Verfahren zur Herstellung dieser Gegenstände und die nachformbaren optischen Mehrschichtfolien häufig beschrieben werden oder nachstehend mit Bezug auf optische Mehrschichtfolien beschrieben sind, die geeignet sind, einen Breitbandreflektionsgrad über das sichtbare Spektrum aufzuweisen, versteht es sich, daß die gleichen Konzepte auch auf Gegenstände, Verfahren und Folien angewendet werden könnten, die einen Reflektionsgrad des Lichts in jedem gewünschten Bereich oder Bereichen von Wellenlängen und jeder gewünschten Polarisationsqualität aufweisen. Das heißt, die Erfindung ist sowohl für polarisierende optische Mehrschichtfolien (die vorzugsweise Licht einer Polarisationsorientierung reflektieren, während sie Licht mit der orthogonalen Polarisationsorientierung durchlassen) als auch für optische Mehrschichtfolien, die gleichmäßige Eigenschaften für Licht mit jeder Polarisationsorientierung aufweisen, geeignet.

Nachformung von optischen Mehrschichtfolien

[0070] Wenn Nachformung in Verbindung mit der Erfindung verwendet wird, kann sie vielerlei Prozesse aufweisen, die geeignet sind, Gegenstände mit vielen verschiedenen Formen herzustellen, die sich von der glatten, planarflächigen Folienform der optischen Mehrschichtfolie, wie sie hergestellt wird, unterscheiden. Bevorzugte Herstellungsprozesse sind u. a. Gießen oder andersartige Ausbildung der Folie, gefolgt von einem Strecken der Folie in einer Richtung bei einer uniaxial gestreckten Folie. Wenn die Folie biaxial zu strecken ist, wird sie normalerweise in der Längsrichtung (Maschinenrichtung) und in der Querrichtung gestreckt, obwohl auch beide Richtungen verwendet werden können (vorzugsweise zwei im allgemeinen senkrechte Richtungen). Sowohl uniaxial als auch biaxial gestreckte optische Mehrschichtfolien werden als im allgemeinen glatte, planare Folien hergestellt, mit Dickenschwankungen von etwa $\pm 5\%$ oder weniger, wie sie hergestellt werden.

[0071] Nachformung, wie sie mit Bezug auf die Erfindung beschrieben ist, weist eine weitere Verarbeitung der optischen Stapel in den optischen Mehrschichtfolien auf, um eine bestimmte dauerhafte Verformung im optischen Stapel zu erreichen. Die Verformung weist vorzugsweise eine Verdünnung des optischen Stapels auf, und sie kann auch eine Verformung zumindest einer Fläche der Folie in bezug auf die gleichmäßig glatte, planarflächige Folienform aufweisen, in der sie hergestellt wird.

[0072] Da die Verformungen bewirken können, daß die Planarität des optischen Stapels gestört wird, versteht es sich, daß man bei einer Beschreibung davon ausgeht, daß die in einer Ebene liegenden Richtungen relativ zu einer örtlich begrenzten Fläche des optischen Stapels oder einem Punkt auf dem optischen Stapel sind. Bei einem gekrümmten optischen Stapel geht man davon aus, daß die in einer Ebene liegenden Achsen in einer Ebene liegen, die durch die Tangenten definiert ist, die an einem bestimmten Punkt am optischen Stapel gebildet werden. Die z-Achse wäre dann senkrecht zu dieser Ebene.

[0073] Nachformung kann auch ein Prägen aufweisen, bei dem die optischen Schichten der optischen Mehr-

schichtfolie, d. h. diejenigen Schichten, die für die reflektierenden Eigenschaften der optischen Mehrschichtfolie verantwortlich sind, verformt werden, um eine Änderung der optischen Eigenschaften der Folie hervorzurufen. Das Prägen, das eine texturierte Fläche auf einer Außenschicht bereitstellt, ohne die optischen Eigenschaften der optischen Schicht erheblich zu beeinflussen, gilt nicht als Nachformung im Sinne des Begriffs, wie er hier verwendet wird. Das Prägen von farbigen Mehrschichtspiegelfolien ist beispielsweise in der US-Patentanmeldung 08/999 624 und 09/006 086 beschrieben worden.

[0074] Wie man anhand der nachstehend beschriebenen Ausführungsformen erkennen kann, werden nachgeformte Gegenstände hergestellt, indem ein im allgemeinen glattes, planarflächiges Folien- oder Bahnmateriale zu einem Gegenstand mit dreidimensionalen Merkmalen verformt wird. Gegenstände mit nachgeformten optischen Mehrschichtfolien können eine nachgeformte optische Mehrschichtfolie mit relativ kleinen Verformungen, z. B. solche, die infolge des Prägens der optischen Schichten der optischen Mehrschichtfolie auftreten, bis zu größeren Verformungen aufweisen, z. B. thermogeformte optische Mehrschichtfolien, die beispielsweise in einem tiefen Lampenhohlraum verwendet werden und ein hohes Seitenverhältnis (d. h. Verhältnis zwischen Tiefe und Breite) aufweisen.

[0075] Nachformungsvorgänge verwenden normalerweise, jedoch nicht unbedingt, Wärme, um die Bearbeitungseigenschaften der optischen Mehrschichtfolie zu verbessern. Die Nachformverfahren können auch Druck, Vakuum, Formwerkzeuge usw. verwenden, um die Bearbeitungseigenschaften der optischen Mehrschichtfolie zu verbessern und um den Durchsatz des Verfahrens zu erhöhen. Ein typisches Nachformverfahren ist beispielsweise die Thermoformung, einschließlich verschiedener Formen der Vakuum- oder Druckformung/verformung, der Formung mittels Prägestempel usw. Die Nachformung kann auch ein Nachstrecken von Folien oder Abschnitten/Bereichen von Folien in planaren Richtungen oder ein Strecken der Folien zu nicht-planaren oder gekrümmten Formen sein.

[0076] Es kann nützlich sein, das Nachformen weiterhin als den im optischen Stapel induzierten Streckungsgrad zu beschreiben. Im allgemeinen kann das Nachformen eine Texturierung des optischen Stapels, ein Flachziehen des optischen Stapels und ein Tiefziehen des optischen Stapels umfassen. In den Fällen, wo das Nachformen eine Texturierung und/oder ein Flachziehen umfasst, kann es möglich sein, daß sowohl vollständig gestreckte oder unvollständig gestreckte optische Mehrschichtfolien verwendet werden, wie nachstehend beschrieben, um die Verfahren durchzuführen, da die Streckverhältnisse, die auftreten können, relativ klein sein können. Wenn Tiefziehen erfolgt, kann es jedoch vorteilhaft sein, wegen ihrer erhöhten Dehnbarkeit im Vergleich zu vollständig gestreckten optischen Mehrschichtfolien unvollständig gestreckte optische Stapel zu verwenden. Bestimmte exemplarische Nachformprozesse und die damit hergestellten Gegenstände werden nachstehend beschrieben.

[0077] Eine Methode zur Kennzeichnung der Verformung des optischen Stapels in einer erfindungsgemäßen nachgeformten optischen Mehrschichtfolie ist in **Fig. 2** und **2A** bis **2C** dargestellt. Der optische Stapel **20** weist eine erste Hauptseite **24** und eine zweite Hauptseite **26** auf (siehe **Fig. 2A**). Außerdem sind gewählte Bereiche **22** dargestellt, in denen der optische Stapel **20** verformt worden ist. Die gewählten Bereiche **22** sind so dargestellt, als hätten sie im wesentlichen die gleiche Größe und seien in einem regelmäßigen, sich wiederholenden Muster angeordnet. Es versteht sich jedoch, daß die ausgewählten Bereiche **22** auch gleichmäßig sein können und/oder in einem Muster, das unregelmäßig/nichtwiederholend ist bereitgestellt werden können.

[0078] Einer der gewählten Bereiche **22** und der ihn umgebende optische Stapel **20** sind in der vergrößerten, teilweise geschnittenen Ansicht in **Fig. 2A** zu sehen. Das Ergebnis der Nachformung besteht darin, daß die Dicke des optischen Stapels **20** schwankt. Eine der Möglichkeiten, bei der sich diese Schwankung zeigt, besteht darin, daß jeder der ausgewählten Bereiche **22** eine Vertiefung in der ansonsten im allgemeinen glatten, planaren ersten Hauptseite **24** des optischen Stapels **20** bilden kann. Diese Nachformung kann als ein Beispiel der Texturierung angesehen werden, d. h. es werden Verformungen auf einer Fläche **24** des optischen Stapels **20** hervorgerufen, die nicht unbedingt eine entsprechende Verformung auf der gegenüberliegenden Fläche **26** des optischen Stapels **20** haben müssen. Die Texturierung unterscheidet sich insofern doch von der Prägung der Außenschichten, als der optische Stapel **20** selbst verformt wird.

[0079] Eine weitere Manifestation der Dickenschwankungen in einem optischen Stapel **120** ist in **Fig. 2B** dargestellt, wo sowohl die erste als auch die zweite Hauptseite **124** und **126** in gewählten Bereichen **122** und **128** verformt sind. Wie der gewählte Bereich **122** auf der ersten Hauptseite **124** ist auch der gewählte Bereich **128** auf der zweiten Hauptseite **126** als Vertiefung in der im übrigen im allgemeinen glatten, planaren zweiten Hauptseite **126** ausgebildet. Dies ist ein Beispiel für ein Flachziehen, das durch Druck oder durch Dehnung bewirkt werden könnte.

[0080] Noch eine weitere Manifestation der Dickenschwankungen in einem optischen Stapel **220** ist in **Fig. 2C** dargestellt, wo sowohl die erste als auch die zweite Hauptseite **224** und **226** in gewählten Bereichen **222** und **228** verformt sind. Während die gewählten Bereiche **222** als Vertiefungen auf der ersten Hauptseite **224** ausgebildet sind, ist der gewählte Bereich **227** auf der zweiten Hauptseite **226** als erhöhter Bereich ausgebildet, der sich von der im übrigen im allgemeinen glatten, planaren zweiten Hauptseite **226** nach außen erstreckt. Wie dargestellt, kann bevorzugt werden, daß sich der erhöhte Bereich **228** auf der zweiten Hauptseite **226** gegenüber dem vertieften Bereich **222** auf der ersten Hauptseite **224** befindet.

[0081] Das Nachformungsergebnis, das in **Fig. 2C** dargestellt ist, ist ein weiteres Beispiel dafür, was als Flachziehen angesehen werden könnte, nämlich die Verformung des optischen Stapels **220** auf gegenüberliegenden Seiten **224** und **226** des optischen Körpers **220**.

[0082] **Fig. 3** und die Schnittansichten 3A bis 3C stellen eine alternative Ausführungsform einer erfindungsgemäßen nachgeformten optischen Mehrschichtfolie dar. Der optische Stapel **20'** weist eine erste Hauptseite **24'** und eine zweite Hauptseite **26'** auf (siehe **Fig. 3A**). Außerdem sind gewählte Bereiche **22'** dargestellt, in denen der optische Stapel **20'** verformt worden ist. Die gewählten Bereiche **22'** sind so dargestellt, als hätten sie im wesentlichen die gleiche Größe. Es versteht sich jedoch, daß die gewählten Bereiche **22'** ungleichmäßig sein können.

[0083] Wiederum mit Bezug auf **Fig. 2** sind die gewählten Bereiche **22** des optischen Stapels **20** entlang beider in einer Ebene liegenden Achsen (x und y) verformt. Im Gegensatz dazu sind die gewählten Bereiche **22'** des optischen Stapels **20'** vorzugsweise nur entlang einer in einer Ebene liegenden Achse verformt (der x-Achse in **Fig. 3**). Wenn der optische Stapel **20'** dafür ausgelegt ist, als reflektierender Polarisator in den verformten Bereichen **22'** zu arbeiten, kann es erwünscht sein, diese Bereiche in der Richtung der maximalen Indexdifferenz zu verformen. Dadurch sollte die Nachformdehnung in der Richtung des angepaßten Brechungsindex reduziert werden. Infolgedessen kann das Reflektionsverhalten des polarisierenden optischen Stapels **20'** besser erhalten bleiben, und in bestimmten Fällen kann die erhöhte Dehnung entlang der entsprechenden Richtung das gewünschte Reflektionsvermögen des optischen Stapels **20'** erhöhen.

[0084] Einer der gewählten Bereiche **22'** und der ihn umgebende optische Stapel **20'** ist in der vergrößerten Teilschnittansicht in **Fig. 3A** zu sehen. Das Ergebnis der Nachformung besteht darin, daß die Dicke des optischen Stapels **20'** schwankt. Eine der Möglichkeiten, bei der sich diese Schwankung zeigt, besteht darin, daß jeder der gewählten Bereiche **22'** eine Vertiefung in der im übrigen im allgemeinen glatten, planaren ersten Hauptseite **24'** des optischen Stapels **20'** bilden kann.

[0085] Eine weitere Manifestation der Dickenschwankungen in einem optischen Stapel **120'** ist in **Fig. 3B** dargestellt, wo sowohl die erste als auch die zweite Hauptseite **124'** und **126'** in gewählten Bereichen **122'** und **128'** verformt sind. Wie der gewählte Bereich **122'** auf der ersten Hauptseite **124'** ist auch der gewählte Bereich **128'** auf der zweiten Hauptseite **126'** als Vertiefung in der im übrigen im allgemeinen glatten, planaren zweiten Hauptseite **126'** ausgebildet.

[0086] Noch eine weitere Manifestation der Dickenschwankungen in einem optischen Stapel **220'** ist in **Fig. 3C** dargestellt, wo sowohl die erste als auch die zweite Hauptseite **224'** und **226'** in gewählten Bereichen **222'** und **228'** verformt sind. Obwohl die gewählten Bereiche **222'** als Vertiefungen auf der ersten Hauptseite **224'** ausgebildet sind, ist der gewählte Bereich **227'** auf der zweiten Hauptseite **226'** als erhöhter Bereich ausgebildet, der sich von der im übrigen im allgemeinen glatten, planaren zweiten Hauptseite **226'** nach außen erstreckt. Wie dargestellt, kann bevorzugt werden, daß sich der erhöhte Bereich **227'** auf der zweiten Hauptseite **226'** gegenüber dem vertieften Bereich **222'** auf der ersten Hauptseite **224'** befindet.

[0087] Die in **Fig. 2A** bis **2C** und **3A** bis **3C** dargestellten Verformungen können gekennzeichnet sein durch das Verhältnis zwischen der Dicke t_0 in den nichtverformten Abschnitten der optischen Stapel und der Dicke t_f der verformten Abschnitte der optischen Stapel. Diese beiden Dicken werden vorzugsweise zwischen den Hauptflächen der optischen Stapel gemessen, d. h. die Dicke irgendwelcher Außenschichten wird nicht berücksichtigt. Normalerweise kann es erwünscht sein, daß das Verhältnis $t_0 : t_f$ mindestens etwa 1,1 : 1 oder größer ist. In bestimmten Fällen ist es erwünscht, daß das Verhältnis $t_0 : t_f$ mindestens etwa 1,5 : 1 oder größer, mehr bevorzugt mindestens etwa 1,75 : 1 oder größer und noch mehr bevorzugt mindestens etwa 2 : 1 oder größer ist.

[0088] **Fig. 4** und **5** stellen ein extremeres Beispiel des nachgeformten optischen Stapels **220** dar, der in **Fig. 2C** dargestellt ist. Der nachgeformte optische Stapel **30**, der in **Fig. 4** und **5** dargestellt ist, kann als Bei-

spiel eines Tiefziehnachformprozesses angesehen werden. Der optische Stapel **30** in **Fig. 4** weist eine erste Hauptseite **34** (siehe **Fig. 5**) und eine zweite Hauptseite **36** zusammen mit einer Vielzahl von gewählten Bereichen **32** auf, in denen der optische Stapel **30** nachgeformt worden ist, um vertiefte Bereiche **32**, die auf der ersten Hauptseite **34** des optischen Stapels ausgebildet sind, und erhöhte Bereiche **37** herzustellen, die auf der zweiten Hauptseite **36** des optischen Stapels **30** ausgebildet sind.

[0089] Die verformten Bereiche des tiefgezogenen optischen Stapels können gekennzeichnet sein durch das Seitenverhältnis zwischen der Breite (w) der vertieften Bereiche **32**, gemessen über die Öffnung **33** des vertieften Bereichs **32**, und der Tiefe (d) der vertieften Bereiche **32**, gemessen von der ersten Hauptseite **34** des optischen Stapels **30**. Es wird bevorzugt, daß die Breite des vertieften Bereichs **32** über ihre schmalste Abmessung gemessen wird. Es kann erwünscht sein, daß die vertieften Bereiche **32** ein Seitenverhältnis $w : d$ von etwa $10 : 1$ oder kleiner, mehr erwünscht $2 : 1$ oder kleiner, noch mehr erwünscht etwa $1 : 1$ oder kleiner und nochmals mehr erwünscht etwa $0,5 : 1$ oder kleiner haben.

[0090] Als Alternative kann die Verformung des optischen Stapels **30** in absoluten Zahlen gemessen werden. Beispielsweise kann bevorzugt werden, daß die Tiefe d mindestens etwa 0,1 mm oder größer ist; mehr bevorzugt mindestens etwa 1 mm oder größer; und noch mehr bevorzugt mindestens etwa 10 mm oder größer. Es versteht sich, daß, wenn die Tiefe d der vertieften Bereiche **32** die Dicke des optischen Stapels **30** erreicht oder überschreitet, die Wahrscheinlichkeit um so größer ist, daß ein erhöhter Bereich **37** auf der zweiten Hauptseite **36** des optischen Stapels ausgebildet wird.

[0091] Die Messung der Tiefe d der vertieften Bereiche **32**, die auf der ersten Hauptseite **34** des optischen Stapels **30** ausgebildet sind, sind nicht auf diejenigen Fälle beschränkt, bei denen die erste Hauptseite planar ist. Wenden wir uns nun **Fig. 6** zu, wo der optische Stapel **130** einer optischen Mehrschichtfolie in einer gekrümmten Konfiguration dargestellt ist. Der optische Stapel **130** weist einen vertieften Bereich **132**, der auf der ersten Hauptseite **134** des optischen Stapels **130** ausgebildet ist, und einen entsprechenden erhöhten Bereich **137** auf der zweiten Hauptseite **136** des optischen Stapels **130** auf. Die Tiefe d des vertieften Bereichs **132** wird vorzugsweise in bezug auf die geometrische Fläche gemessen, die durch die erste Hauptseite **134** des optischen Stapels **130** definiert ist, und ist normalerweise die größte Tiefe in bezug auf diese geometrische Fläche.

[0092] **Fig. 7** bis **9** stellen einen illustrativen zahnärztlichen Gegenstand mit einer nachgeformten optischen Mehrschichtfolie dar. **Fig. 7** ist eine Schnittansicht einer Zahnarztpraxisleuchtenanordnung **40**. Die Leuchtenanordnung **40** weist eine Linse **42**, einen Lampenhohlraum **44** mit einer reflektierenden Innenfläche **46** und eine Lichtquelle **48**, die im Lampenhohlraum **44** angeordnet ist, auf.

[0093] Bei Verwendung in Verbindung mit photochemisch härtenden zahnärztlichen Materialien kann bevorzugt werden, die Transmission des Lichts durch die Linse **42** zu begrenzen, so daß die photochemisch härtende(n) Wellenlänge(n) des Lichts nicht durch die Linse **42** durchgelassen wird/werden. Durch Begrenzung der Transmission dieser gewählten Wellenlängen des Lichts kann die Bearbeitungszeit der fotohärtenden Materialien verlängert werden. Wie dargestellt, können die Linsen der Zahnarztpraxisleuchten, z. B. die Linse **42**, auch nichtplanar sein.

[0094] Normalerweise wird die fotochemische Reaktion in vielen zahnärztlichen Materialien durch hochintensives blaues Licht mit Wellenlängen im Bereich von etwa 420 nm bis etwa 500 nm ausgelöst. Infolgedessen erstreckt sich ein bevorzugter Bereich der Wellenlängen, die von den nachgeformten optischen Mehrschichtfolien, die in erfindungsgemäßen zahnärztlichen Gegenständen verwendet werden, entweder durchgelassen oder reflektiert werden, von etwa 420 nm bis etwa 500 nm. Die Wahl der selektiven Reflektion oder Transmission beruht auf dem beabsichtigten Effekt und dem tatsächlichen Gegenstand, wie nachstehend beschrieben wird.

[0095] **Fig. 8** ist eine vergrößerte Schnittansicht des Lampenhohlraums **44**, geschnitten entlang der Linie 8-8 in **Fig. 7**, und **Fig. 9** ist eine vergrößerte Schnittansicht des Lampenhohlraums **44**, geschnitten entlang der Linien 9-9 in **Fig. 7**. Beide Ansichten stellen eine Schicht der nachgeformten optischen Mehrschichtfolie **50** auf der Innenfläche **46** des Lampenhohlraums **44** dar. Da die optische Mehrschichtfolie **50** allein normalerweise keine ausreichende Tragfähigkeit hat, kann bevorzugt werden, die optische Mehrschichtfolie **50** durch eine geeignete Technik auf einem Substrat **52** oder auf irgendeiner anderen Form einer tragenden Halterung, z. B. ein Rahmen usw., anzuordnen.

[0096] Es kann auch bevorzugt werden, daß die reflektierende Innenfläche **46** des Lampenhohlraums **44** eine nachgeformte optische Mehrschichtfolie aufweist, die nach den Prinzipien der Erfindung hergestellt ist. In

Zahnarztpraxisleuchten, bei denen die Linse **42** kein Licht in der/den fotohärtenden Wellenlänge(n) durchläßt (d. h. Licht reflektiert), kann bevorzugt werden, daß die optische Mehrschichtfolie, die für die Innenfläche **46** verwendet wird, für sichtbares Licht hochreflektierend ist, und es kann außerdem nützlich sein, wenn die optische Mehrschichtfolie auch für Licht bis in das Infrarotspektrum hinein reflektierend ist, um einen Wärmestau des Lampenhohlraums **44** infolge der Absorption von Infrarotenergie durch das Substrat, auf dem sich die reflektierende Innenfläche **46** befindet, zu begrenzen. Wenn die optische Mehrschichtfolie eine ausreichende Tragfähigkeit hat, so daß der gesamte Lampenhohlraum **44** aus der optischen Mehrschichtfolie besteht, dann kann als Alternative bevorzugt werden, daß die optische Mehrschichtfolie für Infrarotenergie durchlässig ist, um einen Wärmestau in der Leuchtenanordnung **40** zu begrenzen.

[0097] In einer weiteren Variante kann die optische Mehrschichtfolie, die für die Innenfläche **46** der Leuchtenanordnung **40** verwendet wird, für Licht in der/den photochemisch härtenden Wellenlänge(n) durchlässig sein, um die Lichtabgabe aus der Linse **42** zu reduzieren oder zu verhindern. Wenn die optische Mehrschichtfolie, die auf der Innenfläche **46** des Lampenhohlraums **44** verwendet wird, auf einem Substratmaterial angebracht ist, kann dieses Material das photochemisch härtende Licht absorbieren oder durchlassen, so daß es nicht für die Reflektion durch die Linse **42** und in den Mund des Patienten verfügbar ist.

[0098] Ein Vorteil der Verwendung von optischen Mehrschichtfolien für die reflektierende Innenfläche **46** des Lampenhohlraums **44** ist das hohe Reflektionsvermögen der optischen Mehrschichtfolie. Auch wenn die optische Mehrschichtfolie so abgestimmt ist, daß sie Licht in der/den fotohärtenden Wellenlänge(n) nicht reflektiert (d. h. Licht durchläßt), wird das verbleibende Licht im sichtbaren Spektrum normalerweise mit hoher Effizienz reflektiert, wobei die Ausleuchtung des Mundes des Patienten verbessert wird.

[0099] Wie in **Fig. 7** bis **9** zu sehen ist, weisen der Lampenhohlraum **44** und die Linse **42** der Leuchtenanordnung **40** eine Anzahl von nichtplanaren Formen auf, die eine bestimmte Nachformung der optischen Mehrschichtfolie erfordern, die in der Leuchtenanordnung **40** verwendet wird. Nachformverfahren formen normalerweise eine optische Mehrschichtfolie nicht gleichmäßig um, und infolgedessen schwankt die Dicke der optischen Stapel in den erfindungsgemäßen nachgeformten optischen Mehrschichtfolien. Die Schwankungen der Dicke der nachgeformten optischen Mehrschichtfolie stehen im direkten Gegensatz zu der gesteuerten gleichmäßigen Dicke der optischen Mehrschichtfolie, wie sie hergestellt wird. Diese gleichmäßige Dicke ist erwünscht, da die Dicke der optischen Schichten in der optischen Mehrschichtfolie teilweise ihre optischen Eigenschaften definieren. Infolgedessen sind Schwankungen der optischen Mehrschichtfolie bei der Herstellung nicht erwünscht, da sie die gleichmäßigen optischen Eigenschaften der Folie ungünstig beeinflussen können. Beispielsweise können Ungleichmäßigkeiten des optischen Stapels der optischen Mehrschichtfolie nach der Herstellung aus der Irisierung oder anderen optischen Artefakten resultieren und können in bestimmten Fällen zu unerwünschter Reflektion oder Transmission des Lichts in der/den fotohärtenden Wellenlänge(n) führen.

[0100] Dickenschwankungen des optischen Stapels der nachgeformten optischen Mehrschichtfolie sind zum großen Teil durch Schwankungen der Dehnung verursacht, die während der Nachformung in verschiedenen Bereichen der optischen Mehrschichtfolie auftreten. Das heißt, bestimmte Bereiche der nachgeformten optischen Mehrschichtfolie können eine erhebliche Verformung (Dehnung) erfahren, während andere Bereiche wenig oder keine Verformung während der Nachformung erfahren können.

[0101] Die optischen Stapel der nachgeformten optischen Mehrschichtfolie in Gegenständen weisen infolgedessen häufig Schwankungen der Dicke auf, wie in **Fig. 3A** bis **3C**, **8** und **9** dargestellt. Beispielsweise schwankt die Dicke der optischen Mehrschichtfolie **50** zwischen zwei Punkten im Lampenhohlraum **44**. Die Dicke t_1 des optischen Stapels der nachgeformten optischen Mehrschichtfolie, die in **Fig. 8** zu sehen ist, ist dicker als die Dicke t_2 des optischen Stapels der nachgeformten optischen Mehrschichtfolie, die in **Fig. 9** dargestellt ist. In beiden Bereichen wird jedoch bevorzugt, daß das Reflektionsvermögen der optischen Mehrschichtfolie **50** für den gewünschten Bereich der Wellenlängen bei senkrechtem sowie bei außeraxialem Licht hoch bleibt. Die Bedeutung des außeraxialen Reflektionsvermögens kann in **Fig. 7** erkannt werden, wo sich Licht von der Lichtquelle **48** Abschnitten des Lichthohlraums **44** in großen Winkeln zur Senkrechten nähert.

[0102] Die Dickenschwankungen des optischen Stapels können das bewirken, was normalerweise als Bandverschiebung bezeichnet wird. Das heißt, der Bereich von Wellenlängen, den jede optische Mehrschichtfolie reflektiert, ist teilweise eine Funktion der physischen Dicke der Schichten in der optischen Mehrschichtfolie. Die Änderung der physischen Dicke der Schichten kann bewirken, daß sich der Bereich der Wellenlängen, in dem die Folie reflektierend ist, ändert. Da es sich bei Dickenänderungen normalerweise um eine Verdünnung der optischen Mehrschichtfolie in Bezug auf ihre Herstellungsdicke handelt, erfolgt die Bandverschiebung normalerweise nach unten. Beispielsweise hat eine optische Mehrschichtfolie, die einen Breitbandreflektionsgrad

des Lichts mit Wellenlängen in dem Bereich von 400 bis 900 nm aufweist und während der Nachformung um einen Faktor 2 verdünnt wird, nach der Verdünnung normalerweise einen Breitbandreflektionsgrad für Licht mit Wellenlängen im Bereich von 200 bis 450 nm.

[0103] Eine Methode zur Kompensation der Effekte der Verdünnung von optischen Mehrschichtfolien (oder irgendeines mehrschichtigen Gegenstands, der ein Reflektionsvermögen infolge von Brechungsindexdifferenzen aufweist) ist im US-Patent 5 448 404 (Schrenk et al.) beschrieben. Im wesentlichen können der Verdünnungseffekt und die entsprechende Bandverschiebung durch Regulierung der Bandbreite der optischen Mehrschichtfolie, wie sie hergestellt ist, kompensiert werden, so daß nach der Nachformung die optische Mehrschichtfolie Schichten mit der entsprechenden optischen Dicke hat, um Licht mit den gewünschten Wellenlängen zu reflektieren.

[0104] Obwohl sowohl der obere als auch der untere Bandrand reguliert werden kann, um die Verdünnung zu kompensieren, kann es für Breitbandspiegel bevorzugt sein, nur den oberen Rand des Bereichs der reflektierten Wellenlängen um einen Faktor nach oben zu regulieren, der mindestens so groß ist wie der erwartete maximale Faktor, um den die optische Mehrschichtfolie während der Nachformung verdünnt wird. Durch die Erhöhung der oberen Grenze des Bereichs der Wellenlängen, in dem die optische Mehrschichtfolie Licht reflektiert, vor der Nachformung oder dem Strecken behalten die Abschnitte der nachgeformten optischen Mehrschichtfolie, die während der Nachformung verdünnt werden, ihr Reflektionsvermögen in dem gewünschten Bereich der Wellenlängen bei (vorausgesetzt, der maximale Faktor, um den die optische Mehrschichtfolie während der Nachformung verdünnt wird, überschreitet nicht den Faktor, um den die obere Grenze des Wellenlängenbereichs reguliert worden ist, um der Verdünnung während der Nachformung Rechnung zu tragen).

[0105] Für Breitbandspiegel wird normalerweise nicht bevorzugt, die untere Grenze im reflektieren Wellenlängenbereich zu regulieren, da bestimmte Bereiche der optischen Mehrschichtfolie wenig oder keine Verformung oder Verdünnung während der Nachformung erfahren können. Durch Bereitstellung einer optischen Mehrschichtfolie, die vor der Nachformung bereits Licht am unteren Ende des gewünschten Wellenlängenbereichs reflektiert, kann das Reflektionsvermögen der gesamten nachgeformten optischen Mehrschichtfolie am unteren Ende des gewünschten Wellenlängenbereichs nach der Nachformung beibehalten werden.

[0106] Wenn beispielsweise die nachgeformte optische Mehrschichtfolie in dem Gegenstand im wesentlichen das gesamte sichtbare Licht (d. h. Licht von 400 bis 700 nm) reflektieren soll, dann müßte die optische Mehrschichtfolie vor der Nachformung senkrecht einfallendes Licht mindestens im Wellenlängenbereich von etwa 400 bis etwa 900 nm, multipliziert mit dem erwarteten Verdünnungsfaktor, reflektieren (die Erhöhung der Bandbreite des oberen Randes von 700 bis 900 nm ist vorgesehen, um Licht zu kompensieren, das in Winkeln in Winkeln zur senkrechten Achse eintrifft). Wenn der maximale Faktor, von dem erwartet wird, daß er die nachgeformte optische Mehrschichtfolie während der Nachformung verdünnt, 2 ist, dann reflektiert die optische Mehrschichtfolie vorzugsweise senkrecht einfallendes Licht mindestens im Wellenlängenbereich von etwa 400 bis etwa 1800 nm. Wenn der maximale Faktor, von dem erwartet wird, daß er die nachgeformte optische Mehrschichtfolie während der Nachformung verdünnt, 3 ist, dann reflektiert die optische Mehrschichtfolie vorzugsweise senkrecht einfallendes Licht mindestens im Wellenlängenbereich von etwa 400 bis etwa 2700 nm.

[0107] Wenn der optische Stapel einer optischen Mehrschichtfolie geeignet ist, eine Verdünnung zu kompensieren, können Schwankungen der Dicke der nachgeformten optischen Mehrschichtfolie erlaubt sein, ohne daß das Reflektionsvermögen des optischen Stapels über die gewünschten Wellenlängen erheblich beeinträchtigt wird. Beispielsweise kann das Verhältnis $t_1 : t_2$ in dem Gegenstand mit der nachgeformten optischen Mehrschichtfolie **50**, der in **Fig. 7** bis **9** dargestellt ist, mindestens etwa 2 : 1 oder größer sein, ohne die reflektierenden Eigenschaften der optischen Mehrschichtfolie erheblich zu beeinträchtigen. In bestimmten Fällen kann es möglich sein, optische Mehrschichtfolien, die Dickenverhältnisse von 3 : 1 oder mehr unterstützen, ohne eine erhebliche Verschlechterung der optischen Eigenschaften der nachgeformten optischen Mehrschichtfolie über gewünschte Wellenlängen bereitzustellen.

[0108] **Fig. 10** stellt einen weiteren zahnärztlichen Gegenstand mit einer erfindungsgemäßen nachgeformten optischen Mehrschichtfolie dar. Der Gegenstand ist eine Beleuchtungsabdeckung **52**, die um oder auf eine Lichtquelle **54** gesetzt werden kann, um die Transmission gewählter Wellenlängen des Lichts in den Zahnarztpraxisbereich zu reduzieren oder zu verhindern. Wie bereits beschrieben, kann es erwünscht sein, die Lichtmenge in der/den photochemisch härtenden Wellenlänge(n) des photochemisch härtenden zahnärztlichen Materials, das in einem gegebenen Behandlungsverfahren zu verwenden ist, zu begrenzen, um das vorzeitige Härten zu verhindern und/oder die Bearbeitungszeit der Materialien zu verbessern. In vielen Fällen werden die Beleuchtungsabdeckungen am besten in einer Form implementiert, die Krümmungen, Ecken usw. umfassen

und die eine bestimmte Nachformung der normalerweise planaren optischen Mehrschichtfolie erfordern.

[0109] Beispiele für bestimmte geeignete zahnärztliche Werkzeuge, die eine nachgeformte optische Mehrschichtfolie aufweisen, sind in **Fig. 11** bis **14** dargestellt. **Fig. 11** stellt einen Zahnspiegel **60** mit einem Griff **62** und einem Kopf **64** dar. Es wird bevorzugt, daß der Zahnspiegel **60** eine optische Fläche **66** am Spiegelkopf **64** aufweist, die reflektierend ist, um einem Zahnarzt beim Betrachten des Inneren des Mundes eines Patienten dienlich zu sein.

[0110] Vorteile der Verwendung einer nachgeformten optischen Mehrschichtfolie für Zahnspiegel sind u. a. das hohe Reflektionsvermögen der optischen Mehrschichtfolie. Obwohl herkömmliche Zahnspiegel im Normalfall beispielweise aus nichtrostendem Stahl hergestellt werden, könnte ein Zahnspiegel **60** mit einer nachgeformten optischen Mehrschichtfolie als Spiegelfläche **66** außerdem auch beispielweise aus Kunststoff und der nachgeformten optischen Mehrschichtfolie hergestellt werden, um einen preiswerten Zahnspiegel **60** mit ausgezeichneten Reflektionseigenschaften zu versehen. Es kann bevorzugt werden, einen solchen Spiegel nach einmaliger Verwendung zu entsorgen, anstatt den Spiegel einer Sterilisation zu unterziehen. Als Alternative könnte der Spiegel **60** zwischen den Behandlungsverfahren sterilisiert und bei Bedarf wiederverwendet werden.

[0111] Ein alternativer Aufbau des Spiegels **60** könnte u. a. ein wiederverwendbarer Griff **62** und Kopf **64** sein, die aus einem Material hergestellt sind, das ohne erhebliche ungünstige Effekte wiederholt sterilisiert werden kann. Die reflektierende optische Fläche **66** könnte dann aus einer nachgeformten optischen Mehrschichtfolie hergestellt werden, die beispielweise durch Haftmittel usw. am Kopf **64** befestigt wird. Eine Alternative zur Haftbefestigung der nachgeformten optischen Mehrschichtfolie ist in der vergrößerten Teilschnittansicht in **Fig. 11A** dargestellt, bei der ein Schlitz um den Umfang des Spiegelkopfs **64** vorgesehen ist, um die nachgeformte optische Mehrschichtfolie, die die optische Fläche **66** bildet, durch mechanischen Eingriff zu halten. Weitere Techniken, mechanische oder sonstige, zum Halten eines aus einer nachgeformten optischen Mehrschichtfolie bestehenden Einwegspiegels am Kopf **64** sind dem Fachmann bekannt.

[0112] Ein weiterer Vorteil der Verwendung einer nachgeformten optischen Mehrschichtfolie zur Ausstattung der optischen Fläche **66** besteht darin, daß die optische Mehrschichtfolie zu vielerlei Formen nachgeformt werden kann. **Fig. 11B** ist eine Draufsicht der optischen Fläche **66** des Zahnspiegels **60**. Die dargestellte optische Fläche **66** ist im allgemeinen kreisförmig, obwohl verständlich ist, daß die optische Fläche **66** zu jeder gewünschten Form geformt sein könnte, z. B. rechteckig, oval, elliptisch, mundförmig usw.

[0113] Zusätzlich zu den vielen verschiedenen Formen für die Konturen der optischen Fläche **66** kann die optische Mehrschichtfolie, die für die optische Fläche **66** verwendet wird, zu vielen verschiedenen nichtplanaren Formen nachgeformt werden, um einen gewünschten optischen Effekt zu erreichen, z. B. einen größeren Blickwinkel, eine Vergrößerung usw. Wie in der Schnittansicht in **Fig. 11C** dargestellt, ist die Seite **65** der optischen Fläche **66** im wesentlichen konvex in ihrer Form, und die gegenüberliegende Seite **67** ist konkav. Beide Seiten **65** und **67** könnten bei Bedarf als optische Fläche eines Zahnspiegels verwendet werden. Beispielweise könnte die konkave Seite **67** als Vergrößerungsspiegel verwendet werden, während die konvexe Seite **65** dort verwendet werden könnte, wo ein breiterer Blickwinkel gewünscht würde. Ein Vergrößerungsspiegel kann beispielweise vom Zahnarzt oder von jemandem verwendet werden, der keine Vergrößerungslinse hat. Konvexe Spiegel können verwendet werden, um das Bild zu verkleinern, um beispielweise die Ausrichtung von benachbarten Zähne, beispielweise in der Orthodontie, zu bewerten.

[0114] Da die optische Mehrschichtfolie eine Folie ist, kann sie auf vielerlei verschiedene Weise umgeformt werden, z. B. durch Stanzen, Stempeln, Schneiden, Laminieren usw., um anbringbare Gegenstände herzustellen, die ohne weiteres am Spiegelkopf befestigt werden. Die geformten optischen Flächen können beispielweise zum Abgeben am Ort der Verwerdung oder sonstwo im Format eines herausziehenden Bandes abgegeben werden.

[0115] Für die zahnärztlichen Instrumente, die in oder nahe dem Mund verwendet werden, kann das Beschlagen der optischen Fläche ein Problem sein. Infolgedessen kann es erwünscht sein, eine Antibeschlagbeschichtung auf der optischen Fläche des zahnärztlichen Instruments bereitzustellen. Verschiedene Antibeschlagmittel, die zur erfindungsgemäßen Verwendung geeignet sind, sind dem Fachmann bekannt. Normalerweise sind diese Materialien Substanzen, z. B. Fettsäureester, die der Fläche des optischen Körpers hydrophobe Eigenschaften verleihen und die die Bildung eines durchgehenden, weniger lichtundurchlässigen Wasserfilms fördern.

[0116] Beschichtungen, die die "Beschlagneigung" von Oberflächen reduzieren, sind bisher von verschiedenen Erfindern beschrieben worden. Beispielsweise offenbart das US-Patent 3 212 909 von Leigh die Verwendung einer Ammoniakseife, z. B. Alkylammoniumcarboxylate, in Beimengung mit einem oberflächenaktiven Mittel, das ein sulfatiertes oder sulfoniertes Fett ist, um ein Antibeschlaggemisch herzustellen. Das US-Patent 3 075 228 von Elias offenbart die Verwendung von Salzen eines sulfatierten Alkylaryloxyalkoxyalkohols sowie von Alkylbenzensulfonaten, um einen Antibeschlaggegenstand herzustellen, der zur Reinigung und Verleihung von Antibeschlageigenschaften an verschiedenen Oberflächen geeignet ist. Das US-Patent 3 819 522 von Zmoda offenbart die Verwendung von oberflächenaktiven Kombinationen mit Derivaten von Decindiol sowie oberflächenaktiven Gemischen, die ethoxylierte Alkylsulfate in einem Antibeschlag-Fensterreiniger-Surfaktantgemisch aufweisen. Das japanische Patent Kokai Hei 6[1994]41 335 offenbart ein Trübungs- oder Tropfverhinderungsgemisch mit colloidalem Aluminiumoxid, colloidalem Siliziumoxyd oder einem anionischen oberflächenaktiven Mittel. Das US-Patent 4 478 909 (Taniguchi et al.) offenbart einen gehärteten Antibeschlagbeschichtungsfilm, der Polyvinylalkohol, ein fein verteiltes Siliziumoxid und eine organische Siliziumverbindung aufweist, wobei das Gewichtsverhältnis zwischen Kohlenstoff und Silizium offensichtlich für die Antibeschlageigenschaften wichtig ist, die in Bezug auf den Film beschrieben werden. Verschiedene oberflächenaktive Mittel, einschließlich fluorhaltige oberflächenaktive Mittel, können verwendet werden, um die Oberflächenglätte der Beschichtung zu verbessern. Weitere Antibeschlagbeschichtungen, die oberflächenaktive Mittel enthalten, sind in den US-Patenten 2 803 552; 3 022 178 und 3 897 356 beschrieben. Das Weltpatent PCT 96/18 691 (Scholtz et al.) offenbart ein Mittel, bei dem Beschichtungen sowohl Antibeschlag- als auch Antireflectionseigenschaften vermitteln können.

[0117] Ein weiteres Beispiel für einen Gegenstand mit einer erfindungsgemäßen nachgeformten optischen Mehrschichtfolie ist in **Fig. 12** und **13** dargestellt. Der Gegenstand **70** ist ein zahnärztlicher Lichtleiter, der speziell zur Verwendung bei der Härtung von photochemisch härtenden zahnärztlichen Materialien geeignet ist. Wie man am besten in **Fig. 12** sehen kann, ist der Lichtleiter **70** zur Verwendung in einer Lichtquelle **72** geeignet, die in der dargestellten Ausführungsform die Form einer Pistolengriffvorrichtung hat, die der ähnlich ist, die in dem ebenfalls auf den Anmelder übertragenen US-Patent 5 147 204 (Patten et al.) beschrieben ist. Der Fachmann wird verstehen, daß auch andere Lichtquellen in Verbindung mit Lichtleitern verwendet werden könnten, die erfindungsgemäß hergestellt sind.

[0118] Zumindest ein Abschnitt des Lichtleiters **70** ist vorzugsweise als Röhre aus einer nachgeformten optischen Mehrschichtfolie hergestellt. Die Fähigkeit, die optische Mehrschichtfolie nachzuformen, hat eine Reihe von Vorteilen, einschließlich hohes Reflektionsvermögen und geringes Gewicht. Zusätzlich kann der Lichtleiter **70** als Einwegeinheit hergestellt sein, so daß die Notwendigkeit der Sterilisation des Lichtleiters **70** zwischen den Behandlungsverfahren vermieden wird.

[0119] Ein weiterer Vorteil eines Lichtleiters **70**, der eine nachgeformte optische Mehrschichtfolie verwendet, besteht darin, daß der Durchmesser des Lichtleiters **70** entlang seiner Länge so schwanken kann, daß beispielsweise eine kegelige, eine sich verjüngende, eine gekrümmte Röhre usw. entsteht. Wie man am besten in der Schnittansicht des Lichtleiters **70** in **Fig. 12A** sehen kann, kann der Lichtleiter **70** entlang seiner Länge spitz zulaufen, um für eine Konzentration des Lichts zu sorgen, das von der Lichtquelle **72** zur Spitze **74** des Lichtleiters **70** ausgestrahlt wird.

[0120] **Fig. 13A** bis **13C** stellen alternative Lichtleiter dar, die aus einer erfindungsgemäßen nachgeformten optischen Mehrschichtfolie bestehen. Der Lichtleiter **170** ist in **Fig. 13A** zusammen mit einer Lichtquelle **172** dargestellt. Es kann bevorzugt werden, daß der Lichtleiter **170** das Licht **173**, das aus dem Ende **164** des Lichtleiters **170** austritt, zumindest teilweise kollimiert, um das Licht zu konzentrieren. Ein weiterer Vorteil besteht darin, daß der eingeschränkte Bereich der Beleuchtung eine genaue Steuerung des Härtungslichts ermöglicht.

[0121] Der Lichtleiter **270**, der mit der Lichtquelle **272** in **Fig. 13B** dargestellt ist, ist ein Beispiel eines Lichtleiters, der für eine verbreiterte Beleuchtung sorgt. Wie in **Fig. 13B** zu sehen ist, tritt das Licht **273** aus dem breiteren Ende **274** des Lichtleiters **270** aus. Das verbreiterte Feld, das vom Licht **273** beleuchtet wird, kann beispielsweise Zahnärzten bei der Betrachtung von Bereichen im Mund eines Patienten dienlich sein.

[0122] Man beachte, daß beide Lichtleiter **170** und **270** aus einer optischen Mehrschichtfolie hergestellt sein könnten, die gemäß den Lehren der EP-Patentanmeldung 835 464 mit dem Titel HIGH EFFICIENCY OPTICAL DEVICES nicht nachgeformt ist.

[0123] Der Lichtleiter **370**, der in **Fig. 13C** dargestellt ist, ist ein Beispiel für einen dreifach verzweigten Lichtleiter, bei dem Licht aus einer einzelnen Quelle **372** in eine gemeinsame Öffnung **371** im Lichtleiter **370** eintritt.

Das austretende Licht **373a**, **373b** und **373c** tritt aus dem Lichtleiter **370** an drei Punkten **374a**, **374b** und **374c** aus. Ein solcher Lichtleiter könnte verwendet werden, um Licht an verschiedene Stellen innerhalb des Mundes eines Patienten zu führen. Man beachte, daß die erfindungsgemäßen Lichtleiter als Alternative in Abhängigkeit von der gewünschten Anzahl der Abgabepunkte mit nur zwei Austrittspunkten, die Licht abgeben, oder mit vier oder mehr Austrittspunkten, versehen sein könnten.

[0124] Zu den Vorteilen der Lichtleiter, die aus einer optischen Mehrschichtfolie bestehen, gehört die Distanzierung, die zwischen der Lichtquelle und dem zu härtenden zahnärztlichen Material möglich ist. In bestimmten Fällen könnte die Lichtquelle auf einem Stativ angeordnet sein, und es könnte erforderlich sein, daß der Zahnarzt den Lichtleiter nur während der Behandlungsverfahren handhabt. Eine Kontamination des Patienten kann reduziert oder verhindert werden, wenn die Lichtleiter nach Verwendung entsorgt werden.

[0125] Noch ein weiterer Vorteil der Lichtleiter, die aus einer nachgeformten optischen Mehrschichtfolie hergestellt sind, besteht darin, daß die Wellenlängen, in denen die optische Mehrschichtfolie reflektierend ist, auf diejenigen Wellenlängen festgelegt sein können, die für die Lichthärtung des zahnärztlichen Materials optimal sind. Infolgedessen können die Lichtleiter für Licht außerhalb der photochemisch härtenden Wellenlängen durchlässig sein. Ein praktischer Effekt dieses Merkmals besteht darin, daß die Zahnärzte bei Verwendung durch den Lichtleiter hindurchsehen können.

[0126] Obwohl die dargestellten Lichtleiter so dargestellt sind, als seien sie vollständig aus einer nachgeformten optischen Mehrschichtfolie hergestellt, versteht es sich, daß es erwünscht sein kann, einen Stützrahmen in Verbindung mit den Lichtleitern bereitzustellen, oder daß eine oder mehrere Schichten eines Substratmaterials, wie nachstehend beschrieben, vorhanden sein können, um die Tragfähigkeit der Lichtleiter zu verbessern.

[0127] Fig. 14 ist eine Draufsicht eines weiteren zahnärztlichen Gegenstands, der eine erfindungsgemäße nachgeformte optische Mehrschichtfolie aufweist. Die Gegenstände **80a** und **80b** (die nachstehend mit **80** bezeichnet sind) sind allgemein als Zahnmatrixbänder bekannt und werden verwendet, um eine bestimmte Form oder Gestalt für zahnärztliche Wiederherstellungsmaterialien zu formen, die während einer Zahnarztpraxisbehandlung in einen Hohlraum **84** eingebracht werden, der in einem Zahn **82** ausgebildet ist. Da viele zahnärztliche Wiederherstellungsmaterialien lichtgehärtet werden, kann es vorteilhaft sein, Zahnmatrixbänder **80** aus einer nachgeformten optischen Mehrschichtfolie mit einer gewünschten Form herzustellen.

[0128] Es kann auch bevorzugt werden, daß die optische Mehrschichtfolie in den Wellenlängen durchlässig ist, auf denen die Lichthärtung beruht, um diesen Prozeß zu unterstützen. Beispielsweise kann eine optische Mehrschichtfolie im wesentlichen für das gesamte Licht in dem Bereich der Wellenlängen von 420 bis 450 nm durchlässig sein, wie es bei der Visilux 2TM (vertrieben von Minnesota Mining and Manufacturing Company, St. Paul, MN) der Fall ist.

[0129] Die Bereitstellung von Matrixbändern, die durchlässig sind, kann den Härungsprozeß verbessern und die Tiefe der Härtung des zahnärztlichen photochemisch härtenden Materials erhöhen. Wenn die durchlässige optische Mehrschichtfolie in Form eines Matrixbandes bereitgestellt wird, ermöglicht sie es, daß das Härungslicht das zahnärztliche Material durch das Matrixband sowie von der Oberseite des Zahns erreicht. Infolgedessen kann die tatsächliche Strecke, die die Härungsstrahlung im zahnärztlichen Material überwinden muß, reduziert werden. Diese Reduzierung kann besonders vorteilhaft sein, wenn gefüllte und/oder stark streuende zahnärztliche Materialien gehärtet werden.

[0130] Als Alternative können Abschnitte der optischen Mehrschichtfolie für die photochemisch härtenden Wellenlängen durchlässig sein, während andere Abschnitte der optischen Mehrschichtfolie für die photochemisch härtenden Wellenlängen reflektierend sind. Durch Bereitstellung reflektierender Abschnitte der nachgeformten optischen Mehrschichtfolie können Bereiche vor den photochemisch härtenden Wellenlängen abgeschirmt werden. Als Alternative kann die Rückseite des Matrixbandes, d. h. der Abschnitt auf der gegenüberliegenden Seite der Lichtquelle, für die photochemisch härtenden Wellenlängen reflektierend sein, um die Härtung zu verbessern, indem die photochemisch härtenden Wellenlängen des Lichts, die durch das zahnärztliche Wiederherstellungsmaterial treten, wieder durch das Material zurückreflektiert werden.

[0131] Obwohl bestimmte spezifische Beispiele von zahnärztlichen Gegenständen mit einer nachgeformten optischen Mehrschichtfolie oben beschrieben worden sind, versteht es sich, daß eine nachgeformte optische Mehrschichtfolie im Aufbau jedes zahnärztlichen Gegenstands enthalten sein kann, von dem gewünscht wird, daß er die Vorteile der einzigartigen optischen Eigenschaften von optischen Mehrschichtfolien ausnutzt.

[0132] Ferner können die erfindungsgemäßen zahnärztlichen Gegenstände vollständig aus einer nachgeformten optischen Mehrschichtfolie bestehen, oder sie können eine optische Mehrschichtfolie in ihrem Aufbau aufweisen. Wenn die nachgeformte optische Mehrschichtfolie nur einen Abschnitt des Gegenstands bildet, so versteht es sich, daß die nachgeformte optische Mehrschichtfolie durch jede geeignete Technik, z. B. durch Montagespritzgießen, Ultraschallschweißen, Verleimen und andere Techniken, in größere Anordnungen einbezogen werden könnte.

Unvollständig gestreckte optische Mehrschichtfolien

[0133] Von den optischen Mehrschichtfolien, die im US-Patent 5 882 774 beschrieben sind, ist der Spiegelaufbau solcher Folien normalerweise für eine hohe Indexdifferenz optimiert. Die Folien haben normalerweise niedrige Dehnbarkeitsgrenzen (d. h. Grenzen, über die hinaus sich die Folien normalerweise verformen, ohne während der Verformung zu brechen oder zu zerreißen), da sie während der Herstellung bis zu einem Grad gestreckt werden, der die gewünschte hohe Brechungsindexdifferenz ermöglicht. Zusätzlich können einige der optischen Mehrschichtfolien während der Herstellung thermofixiert werden.

[0134] Die Thermofixierung induziert eine weitere Kristallisation in der Folie, und diese erhöhte Kristallisation reduziert normalerweise die Dehnbarkeitsgrenzen der Folien weiter.

[0135] Im Ergebnis dieser relativ niedrigen Dehnbarkeitsgrenzen können bekannte optische Mehrschichtfolien, z. B. die, die im US-Patent 5 882 774 beschrieben sind, nur schwer nachgeformt werden, ohne zu erheblichen negativen Effekten bei den optischen Eigenschaften der resultierenden nachgeformten optischen Mehrschichtfolie zu führen. Obwohl die oben beschriebenen Verfahren bei der Bereitstellung von Gegenständen mit einer nachgeformten optischen Mehrschichtfolie und Verfahren zur Nachformung der Gegenstände nützlich sind, kann hier eine weitere Methode zur Bereitstellung von Gegenständen mit nachgeformten optischen Mehrschichtfolien erörtert werden.

[0136] Bei dieser anderen Methode handelt es sich um die Verwendung von optischen Mehrschichtfolien, bei denen die Dehnbarkeitsgrenzen der Folie für die Nachformung erhöht werden, indem die Folie während ihrer Herstellung absichtlich unvollständig gestreckt wird, was nachstehend erfindungsgemäß als "unvollständig gestreckte optische Mehrschichtfolie" oder "unvollständig gestreckte Folie" bezeichnet wird. Eine solche unvollständig gestreckte optische Mehrschichtfolie kann dann in Rollen oder Bahnen zur Verwendung in einem nachfolgenden Nachformverfahren bereitgestellt werden, oder sie kann direkt einem In-line-Nachformungsprozeß zugeführt werden.

[0137] Eine optische Mehrschichtfolie mit Schichten aus einem oder mehreren doppelbrechenden Materialien, die sich mit einem anderen Material abwechseln, kann gekennzeichnet sein durch die dehnungsinduzierte Orientierung und/oder Kristallinität der doppelbrechenden Materialien in den Folien. Bei vollständig gestreckten Folien oder zumindest bei Folien, die erfindungsgemäß als vollständig gestreckt angesehen werden, weisen die doppelbrechenden Materialien normalerweise höhere Orientierungs- und/oder Kristallinitätsgrade auf als eine entsprechende optische Mehrschichtfolie, die aus den gleichen Materialien besteht, die unvollständig gestreckt worden ist.

[0138] Der höhere Grad der Kristallinität bei vollständig gestreckten Folien ist zum großen Teil das Ergebnis der erhöhten effektiven Dehnung, der die optische Mehrschichtfolie während der Herstellung ausgesetzt ist. Wie oben beschrieben, werden die vollständig gestreckten Folien normalerweise bis zu höheren Graden gestreckt, um ihre reflektierenden Eigenschaften zu verbessern. Diese reflektierenden Eigenschaften beruhen zum großen Teil auf der Orientierung und/oder der Kristallinität der doppelbrechenden Materialien in der Folie, was mit dem Brechungsindex der doppelbrechenden Materialien korreliert werden kann. Infolgedessen sind Orientierung und/oder Kristallinität in jeder optischen Mehrschichtfolie auch auf die Brechungsindexdifferenzen (Δx , Δy) bezogen.

[0139] Da eine unvollständig gestreckte optische Mehrschichtfolie nicht dem gleichen Grad der effektiven Dehnung wie eine vollständig gestreckte optische Mehrschichtfolie mit dem gleichen Aufbau ausgesetzt ist, weist das doppelbrechende Material in der unvollständig gestreckten optischen Mehrschichtfolie normalerweise eine reduzierte Kristallinität oder zumindest eine reduzierte planare Brechungsindexdifferenz (Δx oder Δy) im Vergleich zu einer vollständig gestreckten optischen Mehrschichtfolie auf, die mit den gleichen Materialien, Schichtdicken und Schichtanzahlen usw. hergestellt ist.

[0140] Die reduzierte Orientierung und/oder Kristallinität kann normalerweise auch zu reduzierten Brechungs-

indexdifferenzen in den unvollständig gestreckten optischen Mehrschichtfolien im Vergleich zum gleichen Aufbau in einem vollständig gestreckten Zustand führen. Infolgedessen kann es nützlich sein, die Anzahl der Schichten zu erhöhen, die normalerweise erforderlich sind, um einen gegebenen Wellenlängenbereich mit einem gegebenen Reflektionsgrad abzudecken. Spitzenwerte zweiter Ordnung aus den dickeren Schichten des breiteren Bandes können die tatsächliche Notwendigkeit für eine Erhöhung der Schichtenanzahl reduzieren. Solche Überlegungen können jedoch auf der Grundlage der Beschreibungen im US-Patent 5 882 774 bestimmt werden.

[0141] Man beachte vor allem, daß zusätzlich zu einer oberen Grenze der Kristallinität bei einer unvollständig gestreckten optischen Mehrschichtfolie vorzugsweise auch eine untere Grenze besteht. Das heißt, eine unvollständig gestreckte optische Mehrschichtfolie mit doppelbrechenden Materialien in ihren Schichten weist mindestens einen bestimmten Grad der dehnungsinduzierten Kristallinität auf. Durch Bereitstellung von unvollständig gestreckten optischen Mehrschichtfolien mit mindestens einem bestimmten Grad der dehnungsinduzierten Kristallinität ist die Nachformung der unvollständig gestreckten optischen Mehrschichtfolien normalerweise besser vorhersagbarer im Vergleich zu einer Folie, bei der keine dehnungsinduzierte Kristallinität in den doppelbrechenden Materialien vorliegt.

[0142] Die Bedeutung der Bereitstellung einer unvollständig gestreckten optischen Mehrschichtfolie mit mindestens einer bestimmten dehnungsinduzierten Kristallinität ist in **Fig. 15** dargestellt, ein idealisiertes Diagramm des Streckverhältnisses (horizontale Achse) gegen Kristallinität (vertikale Achse) bei optischen Mehrschichtfolien mit Schichten aus mindestens einem doppelbrechenden Material, alternierend mit einem anderen Material. Das Verhalten, das in **Fig. 15** dargestellt ist, ist typisch für solche Polyester wie z. B. PEN, PET oder deren Copolymere, die Doppelbrechung entwickeln können und die spritzgegossen und effizient abgeschreckt sein können, was zu einer gegossenen Ausgangsbahn oder -folie mit sehr geringer Kristallinität führt. **Fig. 15** kann auch andere abschreckbare doppelbrechende Polymermaterialien kennzeichnen, die gegen dehnungsinduzierte Kristallisation anfällig sind. Wie bereits ausgeführt, würden solche abgeschreckten Folien vorzugsweise nur niedrige Grade der Kristallinität aufweisen, die durch Kristallisation während der Abschreckung vor dem Strecken verursacht wird. Wenn das Strecken der Folie begonnen hat, kann sich die Kristallinität der doppelbrechenden Materialien in der optischen Mehrschichtfolie zu erhöhen beginnen, aber die Erhöhungen erfolgen in relativ niedrigen Anfangsraten. Die Streckverhältnisse, bei denen die dehnungsinduzierte Kristallinität mit einer relativ niedrigen Anfangsrate zunimmt, sind erfindungsgemäß zusammengefaßt und als Regime I definiert. Wenn das Streckverhältnis am Regime I vorbei ansteigt und in das sogenannte Regime II übergeht, erhöht sich die Kristallinität des doppelbrechenden Materials in der optischen Mehrschichtfolie als Funktion des Streckverhältnisses in einer erheblich schnelleren Rate als im Regime I.

[0143] Im Regime I in **Fig. 15** ist der Effekt des Streckens insofern annähernd reversibel als die Beendigung des Streckens und eine fortgesetzte Erwärmung eine Relaxation der Orientierung (d. h. eine Reduzierung der Brechungsindexdifferenzen in den drei Hauptmaterialrichtungen) mit minimaler Kristallisation zuläßt. Die Reversibilität ist nicht unbedingt vollständig, da das Regime I normalerweise in einem Temperaturbereich einer hohen Unterkühlung auftritt. Somit ist die Kristallisation thermodynamisch günstig, aber kinetisch ungünstig. Die summierte Zeit während des Streckens und der Relaxation bei diesen Temperaturen (z. B. in einem Zyklus) kann schließlich das Material durch eine relativ langsame Akkumulation der Kristallinität in das Regime II versetzen. Dennoch ist es diese annähernde Reversibilität, die das Regime I vom Regime II unterscheidet. Im allgemeinen hängt der Grad der Kristallinität (oder der Gesamtpolarisierbarkeit, wie später beschrieben wird), der in diesem Regime toleriert werden kann, vom jeweiligen Polymer, seine Abschreckbedingungen und seiner Nachprozeßbedingungen vor dem Strecken ab.

[0144] Das Streckverhältnis, bei dem sich die Kristallisationsrate des doppelbrechenden Materials in der optischen Mehrschichtfolie erheblich zu erhöhen beginnt und in das Regime II übergeht, kann von einer Anzahl von Faktoren beeinflusst werden, einschließlich der Streckrate, der Temperatur usw. Nachdem das doppelbrechende Material eine ausreichende dehnungsinduzierte Kristallisation erfahren hat, um in das Regime II überzugehen, folgt diese jedoch normalerweise der Kristallisationskurve, die durch dieses anfängliche Strecken definiert wird. Das heißt, die Folie kann nicht weiter gestreckt werden, ohne in den doppelbrechenden Materialien eine Kristallisation mit den erhöhten Raten, die dem Regime II im Diagramm in **Fig. 15** zugeordnet sind, zu induzieren. Infolgedessen sind die Merkmale der Folie einer geringeren Schwankung unterworfen, wenn sie in den Nachformprozessen weiter gestreckt werden, da die Kristallisationsrate der doppelbrechenden Materialien zum großen Teil durch das Vorstrecken bestimmt wird, das erforderlich ist, um die Folie in das Regime II zu versetzen.

[0145] Für eine optische Mehrschichtfolie mit doppelbrechenden Materialien, die keine ausreichende deh-

nungsinduzierte Kristallisation erfahren haben, um in das Regime II überzugehen, ist eine weitere Streckung während der Nachformung nicht vorhersagbar, da der Punkt, an dem sich die Kristallisationsrate deutlich zu erhöhen beginnt, den Faktoren unterliegt, die oben aufgeführt sind, z. B. der Temperatur und der Streckrate. Infolgedessen könnte die Folie kleinere Erhöhungen der Streckrate erfahren, die zu erheblichen Erhöhungen der Kristallisationsrate der doppelbrechenden Materialien führen, und sie könnte mit einer relativ kleinen Erhöhung der Kristallisationsrate der doppelbrechenden Materialien größere Streckverhältnisse erfahren. In beiden Fällen wird der Grad der Vorhersagbarkeit im Vergleich zu einer Folie reduziert, die eine so hohe dehnungsinduzierte Kristallisation aufweist, daß ihre Kristallisationsrate hoch festgelegt ist, das heißt, die doppelbrechenden Materialien in der optischen Mehrschichtfolie sind in das Regime II übergegangen.

[0146] Bei vielen Polymeren, besonders bei Polyestern mit PEN, PET und bei Copolymeren mit PEN und/oder PET, entsteht das dritte Regime, bei dem sich der Brechungsindex mit einer viel langsameren Rate in Bezug auf das Streckverhältnis erhöht. Häufig ändert sich die Gesamtpolarisierbarkeit auch mit einer viel langsameren Rate. **Fig. 15A** stellt den Brechungsindex in der Streckrichtung (vertikale Achse) als Funktion des gemessenen Streckverhältnisses (horizontale Achse) für eine uniaxial gestreckte PEN-Folie dar, bei der die Dimension der orthogonalen, in der gleichen Ebene liegenden Achse im allgemeinen konstant gehalten wird. Das für diesen illustrativen Fall verwendete PEN hat eine Grenzviskosität von 0,48 und wurde entsprechend dem linearen Streckprofil von 20%/s Anfangsstreckrate bei 130°C gestreckt.

[0147] Bei dem dargestellten Fall beginnt das Regime II mit einem Streckverhältnis von etwa zwei (2), und das Regime III – beginnt mit einem Streckverhältnis von etwa drei (3). Der Beginn dieser Regime hängt vom Verfahren und von den Materialbedingungen ab, beispielsweise können die Erhöhung der Verformungsrate, die Erhöhung der Grenzviskosität, die Verringerung der Temperatur und/oder die Verringerung der Glasübergangstemperatur (z. B. durch Verringerung der Feuchtigkeit und/oder des Weichmacheranteils) alle das Streckverhältnis zu Beginn der Regime II und III verringern, bezogen auf die in **Fig. 15A** dargestellten. Die Molekulargewichtsverteilung und nicht nur einfach die Grenzviskosität, kann auch den Regimebeginn ändern. Analoge Ergebnisse sind für biaxial gestreckte Folien zu erwarten.

[0148] Angesichts der vorstehenden Beschreibung besteht ein Unterschied zwischen einer vollständig gestreckten optischen Mehrschichtfolie und einer unvollständig gestreckten optischen Mehrschichtfolie mit dem gleichen Aufbau darin, daß die vollständig gestreckte optische Mehrschichtfolie doppelbrechende Materialien aufweist, bei denen die Kristallinität höher ist als die Kristallinität der doppelbrechenden Materialien in den unvollständig gestreckten optischen Mehrschichtfolien. Wenn das doppelbrechende Material in der optischen Mehrschichtfolie ein Polyester ist, kann bevorzugt werden, daß die Kristallinität des doppelbrechenden Polymers etwa 18% oder kleiner, besonders bevorzugt etwa 15% oder kleiner ist. Im Vergleich ist die Kristallinität der gleichen doppelbrechenden Polyester in den vollständig gestreckten optischen Mehrschichtfolien mindestens etwa 20% oder größer, häufiger etwa 25% oder größer.

[0149] Zusätzlich zu einer oberen Grenze für die Linearität können unvollständig gestreckte Folien auch gekennzeichnet sein durch eine niedrigere Grenze für die Kristallinität der doppelbrechenden Materialien in der unvollständig gestreckten optischen Mehrschichtfolie, da die doppelbrechenden Materialien in den Folien vorzugsweise einen bestimmten Grad der dehnungsinduzierten Kristallinität aufweisen. Das heißt, es wird bevorzugt, daß die doppelbrechenden Materialien in den optischen Mehrschichtfolien in das Regime II übergegangen sind, wie oben beschrieben. Bei optischen Mehrschichtfolien mit Polyestern als doppelbrechende Materialien kann bevorzugt werden, daß die untere Grenze der Kristallinität der doppelbrechenden Materialien in der optischen Mehrschichtfolie mindestens etwa 3% oder größer, in bestimmten Fällen vorzugsweise mindestens etwa 5% oder größer und in anderen Fällen mehr bevorzugt mindestens etwa 10% oder größer ist. Höhere Grade der Kristallinität haben normalerweise höhere Doppelbrechungsgrade im unvollständig gestreckten Zustand und geben den Grad der unvollständigen Streckung wieder. Höhere Doppelbrechung kann die Leistungsfähigkeit des anfänglichen unvollständig gestreckten Zustands in einem fertigen nachgeformten Gegenstand verbessern.

[0150] Obwohl wir nicht durch eine bestimmte Theorie eingeschränkt werden wollen, gehen wir davon aus, daß die niedrigsten Grade der Kristallinität einen minimalen Grad der Konnektivität zwischen den mikrokristallinen Bereichen haben, z. B. über Bindungsketten, die im wesentlichen die Neigung zur umfassenden Relaxation der Entwicklungsmorphologie reduzieren. In vielen Fällen versetzt die Kristallisation in diesen Graden die doppelbrechenden Materialien in der optischen Mehrschichtfolie in das Regime II. Die genaue Schwelle der niedrigeren Kristallinität hängt von der chemischen Beschaffenheit des Materials ab, einschließlich der Zusammensetzung und des Molekulargewichts, sowie von den Prozeßbedingungen, z. B. Temperatur, Geschwindigkeit und Dauer der Streckung und der Erwärmung.

[0151] Obwohl die Kristallinität verwendet werden kann, um unvollständig gestreckte optische Mehrschichtfolien zu kennzeichnen, können unvollständig gestreckte optische Mehrschichtfolie als Alternative durch die sogenannte "Gesamtpolarisierbarkeit" der Schichten mit doppelbrechenden Materialien gekennzeichnet werden. Die Bestimmung der Gesamtpolarisierbarkeit beruht auf den Brechungsindizes der Schicht oder Schichten mit doppelbrechenden Materialien in der optischen Mehrschichtfolie.

[0152] Die "Gesamtpolarisierbarkeitsdifferenz" ist als die Differenz zwischen der Gesamtpolarisierbarkeit des gestreckten Materials und der des abgeschreckten amorphen Zustands des gleichen Materials definiert. Es wird erwartet, daß jedes gegebene Material in einem bestimmten maximalen vollständig gestreckten Zustand eine maximale Gesamtpolarisierbarkeitsdifferenz besitzt. Wenn die optische Mehrschichtfolie zwei oder mehr verschiedene Schichten mit verschiedenen Zusammensetzungen doppelbrechender Materialien aufweist, wird die Gesamtpolarisierbarkeitsdifferenz vorzugsweise für die Schichten mit doppelbrechenden Materialien mit der größten Gesamtpolarisierbarkeitsdifferenz relativ zu ihrer maximalen Gesamtpolarisierbarkeitsdifferenz gemessen, wie nach den nachstehend beschriebenen Verfahren bestimmt.

[0153] Brechungsindizes können mit vielerlei Standardverfahren gemessen werden, beispielsweise unter Verwendung eines Abbe-Refraktometers oder eines Prismenkopplungsgeräts (z. B. vertrieben von Metricon, Piscataway, NJ). Obwohl es schwierig ist, die Brechungsindizes der Materialien in den einzelnen Schichten des optischen Stapels der optischen Mehrschichtfolie direkt zu messen, können die Brechungsindizes des optischen Stapels als Ganzes zuverlässig gemessen werden. Ferner sind die Brechungsindizes des optischen Stapels als Ganzes gewichtete Mittelwerte der Brechungsindizes der Materialien in jeder der einzelnen Schichten, die den optischen Stapel bilden.

[0154] Wenn der optische Stapel beispielsweise aus zwei oder mehr Materialien besteht, die Interdiffusionseffekte zwischen den Schichten klein sind und die Brechungsindizes nur eines der Materialien sich als Antwort auf das Strecken erheblich ändern, dann können die Brechungsindizes der einzelnen Schichten auf der Grundlage der Brechungsindizes des optischen Stapels als Ganzes geschätzt werden. Diese Schätzungen beruhen auf der üblicherweise akzeptierten Annahme, daß die Brechungsindizes des optischen Stapels als Ganzes die nach optischer Dicke gewichteten Mittelwerte der Brechungsindizes der Materialien in verschiedenen Schichten des optischen Stapels sind.

[0155] In einer anderen Variante kann bei diesen Filmen, bei denen eines oder mehrere der Materialien, die die Schichten des optischen Stapels ausmachen, auch in dickeren Außenschichten und/oder inneren Schutzgrenzschichten vorhanden sind, normalerweise angenommen werden, daß die Brechungsindizes beim gleichen Material die gleichen sind, ganz gleich, ob dieses Material in den Schichten des optischen Stapels oder woanders in der optischen Mehrschichtfolie vorhanden ist. Wenn infolgedessen die Brechungsindizes nur eines der Materialien, die den optischen Stapel bilden, unbekannt sind und die Brechungsindizes der anderen Materialien in dem optischen Stapel bekannt sind, dann ermöglicht die Messung der Brechungsindizes des optischen Stapels die Berechnung der Brechungsindizes des unbekannten Materials. In bestimmten Fällen kann die Messung der Brechungsindizes ein zerstörendes Abschälen oder andere bekannte Techniken zur Trennung verschiedener Schichten der optischen Mehrschichtfolien erfordern.

[0156] Normalerweise werden die Brechungsindizes der doppelbrechenden Materialien in der optischen Mehrschichtfolie auf der Grundlage der oben beschriebenen Techniken bestimmt, da es die Brechungsindizes der doppelbrechenden Materialien sind, die sich als Antwort auf die Streckung oder Verformung ändern. Wenn man von der Erhaltung der molekularen Polarisierbarkeit innerhalb der doppelbrechenden Materialien des optischen Stapels ausgeht (eine Annahme, die normalerweise eine vernünftige Näherung für viele halbkristalline Polymere ist, einschließlich der Polyester, die in bevorzugten unvollständig gestreckten optischen Mehrschichtfolien, z. B. PEN, PET und PET- und PEN-Copolymere, verwendet werden), ergibt eine anisotrope Entsprechung der Clausius-Mossetti-Gleichung unter Verwendung eines lokalen Lorenz-Lorentzschen Feldes die folgende Gleichung, die zu einer Zahl führt, die als die Gesamtpolarisierbarkeit der doppelbrechenden Materialien bezeichnet wird:

$$(n_1^2 - 1)/(n_1^2 + 2) + (n_2^2 - 1)/(n_2^2 + 2) + (n_3^2 - 1)/(n_3^2 + 2) = \rho K = \text{Gesamtpolarisierbarkeit}$$

wobei n_1 , n_2 und n_3 Brechungsindizes in den Hauptrichtungen einer gegebenen Schicht in der optischen Mehrschichtfolie sind, ρ die Dichte der Materialien in dieser Schicht ist und K eine Volumenpolarisierbarkeit pro Einheitsmasse für die Materialien in dieser Schicht ist. Die Gesamtpolarisierbarkeit ist infolge der Wellenlängenabhängigkeit der Brechungsindizes eine Funktion der Wellenlänge. Wenn man dies hier numerisch bezeichnet, dann wird infolgedessen die Gesamtpolarisierbarkeit in bezug auf Licht mit einer Wellenlänge von 632,8 nm

(z. B. wie es von einer Helium-Neon-Laserlichtquelle abgegeben wird) bestimmt.

[0157] Man beachte, daß auch eine Alternative zu der Gesamtpolarisierbarkeitsgleichung verwendet werden kann. Bei dieser Alternative wird jeder der drei Hauptindizes in der Gleichung dem einfachen Mittelwert der drei gemessenen Hauptindizes gleichgesetzt. Die Gesamtpolarisierbarkeit wird dann als Brechungsvermögen bezeichnet, und es kann eine analoge Brechungsdivergenz definiert werden. Ebenso können die Dichte und die Kristallinität berechnet werden. Diese können von dem unter Verwendung der Gesamtpolarisierbarkeit berechneten Wert abweichen. Zu Beschreibungszwecken wird in den nachfolgenden Beispielen die Gesamtpolarisierbarkeitsberechnung verwendet.

[0158] Viele halbkristalline Polymere, z. B. isotaktisches Polypropylen und Polybutylenterephthalat, lassen sich im amorphen Zustand schwer abschrecken; oder lassen sich, wenn sie abgeschreckt sind, nur schwer so schnell wiedererwärmen oder so kalt verarbeiten, daß eine erhebliche Ruhekristallisation vor dem Strecken verhindert wird. Solche Polymere weisen unter normaler Prozeßbedingungen möglicherweise kein Regime I auf. Vielmehr bedeutet die Konnektivität in der Morphologie, daß alle nachfolgenden Streckvorgänge mindestens teilweise effektiv sind und das Material nach dem Gießen und Abschrecken im wesentlichen im Regime II beginnt. Wie bei Materialien, die das Verhalten des Regimes I aufweisen, können diese Materialien dennoch gestreckt und orientiert werden. Außerdem gilt: Je höher der Grad des unvollständigen Streckens ist (d. h. je niedriger der Grad des Streckens ist), desto höher ist der Grad der Restdehnbarkeit, die während der Nachverarbeitung (z. B. Thermoformung) verfügbar ist.

[0159] Von einem funktionellen Standpunkt aus bestimmt der Beginn des Regimes II einen bestimmten Grad der Dehnbarkeit in bezug auf die äußerste Dehnbarkeit. Diese äußerste Dehnbarkeit schwankt etwas mit den Streckbedingungen. Der Grad der unvollständigen Streckung ist relativ zu dieser äußersten Dehnbarkeit. Vollständig gestreckte Folien werden bis nahe an diese Grenze gestreckt. Unvollständig gestreckte Folien werden bis unter diesen Grad gestreckt, sind jedoch vorzugsweise über den Beginn des Regimes II hinaus gestreckt worden. Der gewünschte Grad der unvollständigen Streckung kann eine Funktion des gewünschten Dehnbarkeitsgrades für den nachfolgenden Nachformprozeß sein.

[0160] Der Grad der unvollständigen Streckung ist auch eine Funktion der Richtung. Zu Beginn des Regimes II ist ein bestimmter Grad der Streckung festgelegt. Dieser Betrag kann in Abhängigkeit von den Prozeßbedingungen zu Beginn in der Richtung variieren. Beispielsweise hat eine uniaxial gestreckte Folie an dem Punkt, wo das Regime II beginnt, einen höheren Grad der unvollständigen Streckung in der nicht gestreckten Richtung. Bei Spiegelfolien kann eine gleiche unvollständige Streckung in beiden Richtungen bevorzugt werden. Dies kann durch Minimierung der planaren Doppelbrechung erreicht werden. Die planare Doppelbrechung, wie der Begriff hier verwendet wird, ist einfach definiert als der absolute Wert oder die Größe der Differenz zwischen dem maximalen und dem minimalen Brechungsindexwert in der Ebene auf der Folie. Bei einer uniaxial gestreckten Folie ist dies normalerweise die Differenz zwischen den Brechungsindizes in der gestreckten und in der nichtgestreckten Richtung. Bei Polarisationsfolien ist eine große planare Doppelbrechung innerhalb der Grenzen der unvollständigen Streckung erwünscht, die erforderlich sind, um einen gewünschten Dehnbarkeitsgrad im nachfolgenden Prozeß zu erreichen.

[0161] Wie man anhand der Richtungsbezogenheit der unvollständigen Streckung erkennen kann, kennzeichnet die Kristallinität und die Gesamtpolarisierbarkeit nicht allein den Grad der unvollständigen Streckung vollständig, obwohl sie nützliche Grenzen in bezug auf den Übergang zwischen Regime I und II und zwischen unvollständig gestreckten und vollständig gestreckten Folien setzt. Man beachte, daß ein bestimmter Grad der Dehnbarkeit einen entsprechenden Grad der unvollständigen Streckung widerspiegelt. Beispielsweise können Folien, die schnell im Regime II gestreckt werden, nicht den gleichen Grad der Kristallinität erreichen wie diejenigen, die langsam gestreckt werden, oder diejenigen, die beider Strecktemperatur nach dem Strecken weiter erwärmt werden, um die Folien einer Thermofixierung zu unterziehen. Die letzteren können weniger dehnbar sein als die ersteren; aber sie können dennoch dehnbarer sein als andere Folien, die geringfügig mehr gestreckt und weniger thermofixiert werden. Dieser maximale und minimale Grad der Kristallinität und/oder die Gesamtpolarisierbarkeitsdifferenz sind besonders zur Beschreibung der Grenzen in bezug auf unvollständig gestreckte Folie geeignet und nicht unbedingt ein alleiniges Maß für das relative Verhalten in dieser Klasse von Folien.

[0162] Die Gesamtpolarisierbarkeitsdifferenz der doppelbrechenden Materialien bei unvollständig gestreckten optischen Mehrschichtfolien mit PEN (und nach den Definitionen, die unten in dem Abschnitt in Bezug auf die Wahl der Materialien aufgeführt sind, vorwiegend PEN-Copolymere), wie in den doppelbrechenden Schichten gemessen, liegt vorzugsweise in einem Bereich von etwa 0,002 bis etwa 0,018, besonders bevorzugt in

einem Bereich von etwa 0,002 bis etwa 0,016. In beiden Bereichen kann es erwünscht sein, daß die maximale planare Doppelbrechung der reflektierenden polarisierenden optischen Mehrschichtfolien kleiner ist als etwa 0,22, mehr bevorzugt kleiner als etwa 0,17 und in bestimmten Fällen noch mehr bevorzugt kleiner als 0,15. Im Falle der unvollständig gestreckten Spiegelfolien wird eine maximale planare Doppelbrechung von weniger als etwa 0,14 in Kombination mit einem der Bereiche für die Gesamtpolarisierbarkeitsdifferenz bei doppelbrechenden Materialien bevorzugt.

[0163] Die Gesamtpolarisierbarkeitsdifferenz der doppelbrechenden Materialien bei unvollständig gestreckten optischen Mehrschichtfolien mit PET (und nach den Definitionen, die unten in dem Teil in Bezug auf die Wahl der Materialien aufgeführt ist, vorwiegend PET-Copolymere) als die gemessene doppelbrechende Schicht ist vorzugsweise in einem Bereich von etwa 0,002 bis etwa 0,030, mehr bevorzugt in einem Bereich von etwa 0,002 bis etwa 0,0024. Bei Spiegelfolien sind diese Bereiche vorzugsweise mit einer maximalen planaren Doppelbrechung von weniger als etwa 0,11, mehr bevorzugt weniger als 0,04 gekoppelt.

[0164] Die Differenzen zwischen den bevorzugten Graden der Gesamtpolarisierbarkeit und der Doppelbrechung für die verschiedenen Polymere geben die Differenzen der amorphen und kristallinen Dichten der verschiedenen Materialien wieder. Die Differenzen geben auch die maximale Eigendoppelbrechung der verschiedenen Polymere sowie die Grenzen der Dehnbarkeit nach dem Beginn des Regimes II wieder, wie oben beschrieben.

[0165] Zusätzlich zu der Gesamtpolarisierbarkeit und der maximalen planaren Doppelbrechung können unvollständig gestreckte optische Mehrschichtfolie auch durch das Reflektionsvermögen gekennzeichnet sein. Wenn beispielsweise die Gesamtpolarisierbarkeitsdifferenz der gemessenen doppelbrechenden Materialien in den verschiedenen, oben beschriebenen Bereichen liegt, kann bevorzugt werden, daß die optische Mehrschichtfolie zumindest etwa 85% des senkrecht einfallenden Lichts gewünschter Wellenlängen reflektiert, das entlang zumindest einer in der gleichen Ebene liegenden Achse polarisiert ist, besonders bevorzugt kann die Folie zumindest etwa 90% des senkrecht einfallenden Lichts gewünschter Wellenlängen reflektieren, das entlang zumindest einer in der gleichen Ebene liegenden Achse polarisiert ist. Wenn die optische Mehrschichtfolie eine Spiegelfolie, d. h. kein reflektierender Polarisator, werden soll, dann kann bevorzugt werden, daß das Reflektionsverhalten der Folie, ausgedrückt in Prozent des Reflektionsgrades, zumindest für eine in der gleichen Ebene liegende Achse gilt, besonders bevorzugt für zwei im allgemeinen senkrechte, in der gleichen Ebenen liegende Achsen.

[0166] Wie in der oben dargestellten Gleichung angegeben, stellt die Gesamtpolarisierbarkeit des Materials bzw. der Materialien in einer gegebenen Schicht des optischen Stapels der optischen Mehrschichtfolie das Produkt aus Dichte und Volumenpolarisierbarkeit pro Einheitsmasse des Materials bzw. der Materialien in dieser Schicht dar. Die Volumenpolarisierbarkeit pro Einheitsmasse (K) wird beim Strecken bei Annahme der Erhaltung der molekularen Polarisierbarkeit normalerweise als Invariante Materialeigenschaft angesehen, wie oben beschrieben. Das Strecken der doppelbrechenden Materialien bewirkt eine dehnungsinduzierte Kristallisation, wie oben beschrieben, und bei den meisten doppelbrechenden Materialien schwankt die Dichte des Materials je nachdem, ob das Material kristallisiert oder amorph ist.

[0167] Infolgedessen ändert sich die Dichte der doppelbrechenden Materialien in den optischen Mehrschichtfolien auf der Grundlage des Grades der dehnungsinduzierten Kristallisation in den doppelbrechenden Materialien. Diese Änderungen der Dichte können genutzt werden, um den Grad der dehnungsinduzierten Kristallisation in den erfindungsgemäßen unvollständig gestreckten optischen Mehrschichtfolien zu schätzen. Dieses Verfahren zur Bestimmung des Grades der dehnungsinduzierten Kristallisation hat jedoch auch seine Grenzen.

[0168] Eine Klasse oder ein Typ von bevorzugten doppelbrechenden Materialien, die in den erfindungsgemäßen optischen Mehrschichtfolien verwendet werden, sind halbkristalline Materialien. Wenn die Kristalle in den halbkristallinen doppelbrechenden Materialien relativ klein sind, kann ein effektiver Brechungsindex für das halbkristalline Aggregat gemessen werden. Dies ist häufig bei Polymeren, z. B. bei Polyestern (z. B. PEN und PET) der Fall, die aus einem relativ amorphen Zustand zu einem Zustand der Halbkristallinität gestreckt werden. In solchen Fällen kann die Dichte des doppelbrechenden Materials (auf der Grundlage der Brechungsindizes) aus der Gesamtpolarisierbarkeit geschätzt und verwendet werden, um den Grad der Kristallinität in den doppelbrechenden Materialien unter Verwendung einer Standardkorrelation zwischen Kristallinität und Dichte zu bestimmen.

[0169] In beiden Fällen sind in den vorstehenden Beschreibungen verschiedene Methoden zur Kennzeich-

nung erfindungsgemäßer unvollständig gestreckter Folien vorgeschlagen. Im ersten Fall wird die dehnungsinduzierte Kristallinität der doppelbrechenden Materialien gemessen und verwendet, um unvollständig gestreckte optische Mehrschichtfolien zu definieren. Im zweiten Fall können die Brechungsindizes der doppelbrechenden Materialien verwendet werden, um die Gesamtpolarisierbarkeit der doppelbrechenden Materialien zu bestimmen, die auch verwendet werden kann, um unvollständig gestreckte optische Mehrschichtfolien zu definieren. Auf noch eine weitere Weise kann die dehnungsinduzierte Kristallinität zumindest teilweise bestimmt werden, und zwar auf der Grundlage der Brechungsindizes, die verwendet werden, um die Gesamtpolarisierbarkeit zu bestimmen.

[0170] Beispielweise wurde festgestellt, daß die Gesamtpolarisierbarkeit der amorphen gegossenen Bahnen aus PET und PEN etwa 0,989 bzw. 1,083 beträgt, und die Dichten der amorphen Materialien werden unter Verwendung einer Standarddichtegradientensäule mit etwa 1,336 bzw. 1,329 g/cm³ gemessen. Die resultierende Volumenpolarisierbarkeit kann mit etwa 0,740 bzw. 0,815 cm³/g für PET und PEN berechnet werden. Die Dichten der gestreckten Folien aus PET und PEN können nun berechnet werden, indem die Gesamtpolarisierbarkeit durch die entsprechende Volumenpolarisierbarkeit geteilt wird. Außerdem kann die Kristallinität geschätzt werden, wenn die Dichte der reinen kristallinen Phase gegeben ist, die bei der typischen kristallinen Phase des PEN auf 1,407 g/cm³ und bei kristallinem PET auf 1,455 g/cm³ geschätzt wird.

[0171] Die Kristallinität kann durch eine lineare Interpolation der tatsächlichen Dichte zwischen der amorphen Dichte (Null-Kristallinität) und der reinen kristallinen Dichte geschätzt werden. Solche kristallinen Schätzungen können von anderen Messungen abweichen, da sie die Verdichtung der nichtkristallinen Phase infolge der Orientierung und der Verdünnung der kristallinen Phase aufgrund von Mängeln und Defekten vernachlässigen. Weitere Verfahren zur Bestimmung der Kristallinität sind u. a. Differentialscanning-Kalorimetrie und Röntgenstreuung. Die Meßergebnisse, die durch diese Verfahren erreicht werden, können mit den Dichte- oder Gesamtpolarisierbarkeitsverfahren korreliert werden, die hier beschrieben sind, und zwar durch die Verwendung geeigneter gestreckter Folienstandards. Es kann normalerweise angenommen werden, daß Copolymere Volumenpolarisierbarkeit haben, die Gewichtsmittelwerte ihrer Komponenten sind, so daß ähnliche Berechnungen mit Copolymeren durchgeführt werden können, wenn der Typ der Kristalle bekannt ist. Normalerweise handelt es sich um den Kristall, der dem vorherrschenden Kristallisationsmonomer oder eine Untereinheit entspricht. Die Gesamtpolarisierbarkeit kann verwendet werden, um den unvollständig gestreckten Zustand vieler Systeme zu kennzeichnen. Das Ausbleiben einer definitiven Gesamtpolarisierbarkeitsmessung begrenzt jedoch in keiner Weise den Nutzen der Erfindung. In bestimmten Fällen kann die Dehnbarkeit einer nichtdoppelbrechenden Schicht begrenzend sein. Beispielsweise kann eine nichtdoppelbrechende, halbkristalline zweite Materialschicht noch während der Folienverarbeitung gestreckt werden. Ein unvollständiges Strecken, um diese Schicht anzupassen, wäre erwünscht. Wenn das Material eine sehr geringe oder keine ihm eigene Doppelbrechung hat, wie es bei wenigen Polymeren der Fall ist, z. B. bei Polymethylmethacrylat, dann kann eine geringe oder keine Orientierungsinformation abgeleitet werden. Dennoch kann die Dehnbarkeit eines solchen nichtdoppelbrechenden, nichtkristallinen zweiten Materials auch begrenzend sein. Bei nichtkristallinen Materialien kann die Orientierung relaxiert werden, und somit kann die Dehnbarkeit durch Vorwärmung vor dem Strecken wiederhergestellt werden. Durch die Optimierung der Bedingungen für eine solche Vorwärmung muß die wiederhergestellte Dehnbarkeit des amorphen Materials mit einer verloren gegangene Dehnbarkeit durch das doppelbrechende, halbkristalline erste Material ausgeglichen werden. In den Beispielen, die nachstehend folgen, wird angenommen, daß die doppelbrechenden, sich durch Dehnung verfestigenden Schichten (z. B. PEN- oder 90/10-coPEN-Schichten) die begrenzenden Schichten für die Dehnbarkeit sind, während man davon ausgeht, daß die zweiten Materialschichten (z. B. PMMA, PETG oder 70/0/30-coPEN) nahezu isotrop sind für die Bedingungen, die verwendet werden, um optische Stapel herzustellen. Wenn die Kristalle relativ groß sind, dann können Schattierungen und Streuung bei einem halbkristallinen Material Indexmessungen überdecken.

Prozeßbedingungen für die Nachformung von optischen Mehrschichtfolien

[0172] Da die nachgeformten optischen Mehrschichtfolien, die in Verbindung mit der Erfindung verwendet werden, auf doppelbrechenden Materialien beruhen, die dehnungsinduzierte Brechungsindexdifferenzen aufweisen, um die gewünschten optischen Eigenschaften zu erreichen, können Schwankungen der Verformung der optischen Mehrschichtfolie während der Nachformung besonders problematisch sein.

[0173] Wie bereits beschrieben, sind die Brechungsindexdifferenzen (Δx , Δy) in der optischen Mehrschichtfolie nach Herstellung zum großen Teil das Ergebnis des Streckens der optischen Mehrschichtfolie während der Herstellung, das bewirkt, daß sich die Brechungsindizes der doppelbrechenden Materialien ändern. Diese Änderungen bewirken Brechungsindexdifferenzen, die groß genug sind, um die gewünschten reflektierenden

Eigenschaften bereitzustellen. Da die Dehnung in der optischen Mehrschichtfolie während der Herstellung zum großen Teil gleichmäßig ist, sind die dehnungsinduzierten Brechungsindexdifferenzen auch zum großen Teil über die Folie gleichmäßig, und die resultierenden reflektierenden Eigenschaften sind ebenfalls zum großen Teil gleichmäßig.

[0174] In den Nachformprozessen werden die doppelbrechenden Schichten in der optischen Mehrschichtfolie einer zusätzlichen Dehnung unterworfen. Ein Unterschied gegenüber der Herstellung der optischen Mehrschichtfolie besteht jedoch darin, daß die Dehnung, die während der Nachformung induziert wird, nicht gleichmäßig über die Folie erfolgt. Die Schwankungen der Dicke des optischen Stapels in der nachgeformten optischen Mehrschichtfolie sind, wie oben beschrieben, teilweise ein Anzeichen für Schwankungen der Dehnung über die nachgeformte optische Mehrschichtfolie.

[0175] Wenn die doppelbrechenden Materialien in der optischen Mehrschichtfolie infolgedessen zu weiteren dehnungsinduzierten Brechungsindexänderungen in der Lage sind, können die Brechungsindexdifferenzen in der optischen Mehrschichtfolie infolge der Nachformung geändert werden. Wenn ferner die Dehnung, die während der Nachformung induziert wird, nicht gleichmäßig ist, können die Brechungsindexänderungen in der nachgeformten optischen Mehrschichtfolie auch nicht gleichmäßig sein und können zu ungleichmäßigen optischen Eigenschaften in der nachgeformten optischen Mehrschichtfolie führen.

[0176] Zusätzlich zu den ungleichmäßigen dehnungsinduzierten Nachformungsänderungen besteht eine weitere Schwierigkeit im Zusammenhang mit der Nachformung von optischen Mehrschichtfolien mit dehnungsinduzierten Brechungsindexdifferenzen in Verbindung mit doppelbrechenden Materialien darin, daß viele Nachformprozesse Wärme verwenden, um die Bearbeitungseigenschaften der optischen Mehrschichtfolie während der Verformung zu verbessern. Die dehnungsinduzierten Änderungen der Brechungsindizes der doppelbrechenden Materialien in der optischen Mehrschichtfolie sind normalerweise das Ergebnis einer dehnungsinduzierten Kristallisation der doppelbrechenden Materialien. Die dehnungsinduzierte Kristallisation und die entsprechenden Brechungsindizes können jedoch geändert werden, wenn die doppelbrechenden Materialien während der Nachformung der Wärme ausgesetzt werden.

[0177] Beispielweise kann eine Erwärmung zu einer erhöhten Kristallisation infolge der Wärme während der Nachformung oder zu einer verminderten Kristallisation infolge des Schmelzens oder der Relaxation während der Nachformung führen. In beiden Fällen können Änderungen des Kristallisationsgrades der doppelbrechenden Materialien zu einer Änderung der Brechungsindexdifferenzen in der Folie führen. Die potentiellen Kristallisationsänderungen in den doppelbrechenden Materialien können durch simultane Nachformungsverformungen und Erwärmung des Films, die in Kombination größere Änderungen der Rekristallisation bzw. des Brechungsindexes der doppelbrechenden Materialien bewirken können als beide Wirkungen allein, weiter verschlechtert werden.

[0178] Die Erfindung beseitigt jedoch diese Schwierigkeiten, um Gegenstände mit einer nachgeformten optischen Mehrschichtfolie und Verfahren zur Herstellung dieser Gegenstände bereitzustellen. Diese Ergebnisse werden erreicht, obwohl alle optischen Mehrschichtfolien, die in Verbindung mit der Erfindung beschrieben werden, doppelbrechende Materialien aufweisen und sich auf dehnungsinduzierte Brechungsindexdifferenzen stützen, um die gewünschten optischen Eigenschaften zu erreichen.

[0179] Obwohl die Nachformung unter Verwendung der "unvollständig gestreckten" optischen Mehrschichtfolien, die hier beschrieben sind, sehr vorteilhaft durchgeführt werden kann, kann es auch möglich sein, gewünschte Nachformergebnisse unter Verwendung von optischen Mehrschichtfolien mit einem doppelbrechenden Material und anderen Materialien zu erreichen, die die Definitionen der unvollständig gestreckten optischen Mehrschichtfolien nicht erfüllen, z. B. solche, die nach der US-Patentanmeldung 08/472 241 aufgebaut sind.

[0180] Bei den erfindungsgemäßen Nachformverfahren kann es erwünscht sein, die optischen Mehrschichtfolien auf Formungstemperaturen zu erwärmen, die nahe, aber unter den höchsten Kristallschmelztemperaturen der doppelbrechenden Materialien liegen. Eine solche Erwärmung kann die Dehnbarkeit der optischen Mehrschichtfolien während der Nachformbearbeitung verbessern. Bei Erwärmung der optischen Mehrschichtfolien auf solche Werte kann die Neigung der optischen Mehrschichtfolie, bei einem gegebenen Streckverhältnis während der Nachformung zu brechen oder zu zerreißen, verringert werden. Außerdem können die Kräfte, die erforderlich sind, um die Folie nachzuformen, infolge der erhöhten Formungstemperatur reduziert werden.

[0181] Unvollständig gestreckte optische Mehrschichtfolien können auch eine erhöhte Dehnbarkeit unter die-

sen Prozeßbedingungen haben. Da die Verarbeitung unter diesen Bedingungen im Schmelzregime erfolgt, ist eine genaue Temperatursteuerung erwünscht, um ein gleichmäßiges Strecken sicherzustellen und eine Beschädigung der nachgeformten optischen Mehrschichtfolie in dem Gegenstand zu reduzieren oder zu verhindern. Eine solche Beschädigung könnte in Form des vollständigen Schmelzens auftreten, mit einem damit einhergehenden Verlust der Doppelbrechung und/oder der Lochbildung in der optischen Mehrschichtfolie.

[0182] Die Reduzierung der Belastung, die bei einer gegebenen Verformungsgröße während der Nachformung erforderlich ist, kann die Bruchneigung der Materialien in der Folie reduzieren, so daß die Dehnbarkeit verbessert wird. Die Erwärmung der optischen Mehrschichtfolie auf eine Formungstemperatur nahe der höchsten Kristallschmelztemperatur des doppelbrechenden Materials in der Folie kann auch durch Schmelzen von Kristallen mit weniger idealer Struktur die Dehnbarkeit verbessern, so daß sich die morphologische Mikrostruktur in den doppelbrechenden Materialschichten lockert.

[0183] Beispielsweise ist ein Material, das in bestimmten erfindungsgemäßen bevorzugten optischen Mehrschichtfolien verwendet wird, Polyethylenaphthalat (PEN), das bei Verwendung einer standardmäßigen Differentialscanning-Kalorimetrie (DSC) einen maximalen Schmelzpunkt von etwa 270°C (520°F) hat. Der Beginn des Schmelzens wird jedoch oft bei etwa 255°C (490°F) oder darunter beobachtet. Dieser Beginn des Schmelzens kann auf das Schmelzen weniger gut entwickelter Kristalle im PEN zurückzuführen sein, wenn die maximale Schmelztemperatur an einem Punkt ist, an dem alle oder nahezu alle Kristalle in dem Material geschmolzen sind. Die Erwärmung der doppelbrechenden Materialien in der optischen Mehrschichtfolie kann auch die Mobilität in der Mikrostruktur erhöhen, so daß ein Kristallschlupf- oder andere Verformungsmechanismen die Dehnbarkeit der optischen Mehrschichtfolie verbessern könnte.

[0184] Der Grad, in dem die Erwärmung der Dehnbarkeit der erfindungsgemäßen optischen Mehrschichtfolie verbessern kann, schwankt zumindest teilweise je nach den Materialien, die in den Folien verwendet werden. Bestimmte Materialien können im Vergleich zu anderen zu großen Erhöhungen der Dehnbarkeit führen, wenn sie erwärmt werden. Ferner kann die Kombination von Materialien in jeder der erfindungsgemäßen optischen Mehrschichtfolien auch Verbesserungen der Dehnbarkeit der Folie als Ganzes beeinflussen.

[0185] Um beispielsweise die Dehnbarkeit der optischen Mehrschichtfolien zu verbessern, kann bevorzugt werden, die optischen Mehrschichtfolien auf eine Formungstemperatur im Bereich von etwa 30°C (etwa 55°F) unter der maximalen Kristallschmelztemperatur der doppelbrechenden Materialien bis etwa zur maximalen Kristallschmelztemperatur des doppelbrechenden Materials während der Nachformung zu erwärmen. Es kann mehr bevorzugt werden, die Folie auf eine Formungstemperatur im Bereich von etwa 15°C (etwa 30°F) unter der maximalen Kristallschmelztemperatur des doppelbrechenden Materials bis etwa zu der maximalen Kristallschmelztemperatur des doppelbrechenden Materials während der Nachformung zu erwärmen. Diese Formungstemperaturen können die Dehnbarkeit erhöhen und die Bruchwahrscheinlichkeit von optischen Mehrschichtfolien während der Nachformbearbeitung reduzieren.

[0186] Eine Möglichkeit zur Verbesserung der Gleichmäßigkeit der optischen Mehrschichtfolie während der Nachformung besteht darin, Materialien in die optische Mehrschichtfolie einzubringen, die während der Verformung einer Dehnungsverfestigung unterzogen werden. Die Dehnungsverfestigung ist eine Eigenschaft von Materialien, bei denen die Spannung, die erforderlich ist, um einen bestimmten Grad an Dehnung zu erreichen, erhöht wird, während das Material gedehnt (d. h. gestreckt) wird. Im wesentlichen können sich durch Dehnung verfestigende Materialien eine Selbstregulierung des Verdünnungsprozesses infolge der Nachformung durchführen.

[0187] Wenn, was die Formung betrifft, die optische Mehrschichtfolie während der Nachformung gestreckt wird, besteht die Tendenz, daß nichtabgeschreckte Teile der Folie, die noch keinen Kontakt mit einer Formwerkzeugfläche hatten, sich nach Beginn der Dehnungsverfestigung gleichmäßiger strecken lassen. Infolgedessen strecken sich diese Abschnitte der Folie, die bis zu dem Punkt gestreckt worden sind, an dem die Dehnungsverfestigung auftritt, zunehmend weniger, während sich diejenigen Abschnitte der Folie, die keine Dehnungsverfestigung erfahren haben, mit schnelleren Raten weiter strecken. Das Endergebnis besteht darin, daß die dünneren (d. h. dehnungsverfestigten) Abschnitte der Folie bis zu einem bestimmten Punkt dünn sind, woraufhin sich die dickeren Abschnitte der Folie weiter strecken und dünner werden, wobei die Streckung oder Verdünnung der Schichten in der optischen Mehrschichtfolie während der Nachformungsbearbeitung effektiv ausgeglichen werden. Dieser Verstärkungseffekt der Dehnungsverfestigung ist auch in den Nachformprozessen wirksam, in denen kein Formwerkzeug vorhanden ist, um das Abschrecken der Folie während der Nachformung durchzuführen. Ein Material, das Dehnungsverfestigungseigenschaften in einer optischen Mehrschichtfolie bietet, ist PEN. Im allgemeinen wird Dehnungsverfestigung normalerweise in vielen halbkristallinen

Polymere bei genügend hohen Dehnungsgraden beobachtet.

[0188] Dehnungsverfestigung kann dazu beitragen, die Gleichmäßigkeit des Streckprozesses zu regulieren, wobei Schwankungen des Verformungsgrades, die in der Folie während der Nachformung auftreten potentiell reduziert werden. Wenn die Bandbreite der optischen Mehrschichtfolie, wie sie hergestellt ist, spezifisch ausgelegt ist für das endgültige biaxiale Streckverhältnis des Nachformprozesses und nicht für das Streckverhältnis beim Reißen oder Brechen, wie oben beschrieben, dann kann die Dehnungsverfestigung die Ausführung einer optischen Mehrschichtfolie mit einem schmaleren, besser reflektierenden Band zur Verwendung im Nachformprozeß ermöglichen.

[0189] Der Effekt der Dehnungsverfestigung kann auch den Grad beeinflussen, in dem eine Vakuumformung als Nachformungsprozeß eine angemessene oder erwünschte Formnachbildung ermöglicht. Druck- oder stempelgestützte Formtechniken können für eine genaue Nachformbearbeitung von Materialien benötigt werden, bei denen Dehnungsverfestigung den Streckwiderstand der Folie während des Formprozesses potentiell erhöht. Der Effekt der Dehnungsverfestigung kann durch die Nachform-Streckbedingungen und den Grad des Streckens (Dehnungsverfestigung) beeinflusst werden, bevor die Nachformung ausgelöst wird.

[0190] Zusätzlich zu den obigen Ausführungen kann eine weitere Überlegung bei der Entwicklung eines geeigneten Nachformprozesses eine Analyse der Kristallisationsrate für die gegebenen Materialien als Funktion der Temperatur sein. Wenn wir nunmehr **Fig. 16**, ein idealisiertes Diagramm der Kristallisationsrate (vertikale Achse) als Funktion der Temperatur (horizontale Achse), betrachten, kann man erkennen, daß die Kristallisationsrate mit der Temperatur auf einen bestimmten Punkt steigt, der als maximale Kristallisationsratentemperatur T_{max} bezeichnet wird, woraufhin die Kristallisationsrate dazu neigt, wieder zu fallen, wenn sich die Temperatur zur maximalen Kristallisationsschmelztemperatur T_m des Materials bewegt. Die Differentialscanning-Kalorimetrie kann verwendet werden, um T_{max} zu schätzen. Bei PEN ist T_{max} bei Erwärmung auf 20°C/min unter Verwendung der Differentialscanning-Kalorimetrie auf etwa 220°C (etwa 430°F) geschätzt worden, und T_{max} ist unter Verwendung der Differentialscanning-Kalorimetrie bei Abkühlung mit 5°C/min auf etwa 208°C (etwa 406°F) geschätzt worden. Obwohl wir uns an keiner Theorie festhalten wollen, gehen wir davon aus, daß die Dehnbarkeit der optischen Mehrschichtfolien während der Nachformung in vielen Fällen verbessert werden kann, wenn die Formungstemperaturen, die verwendet werden, nicht die gleichen sind wie die maximale Kristallisationsratentemperatur des doppelbrechenden Materials oder der doppelbrechenden Materialien in der Folie. Dies kann besonders auf Folien, die noch nicht thermofixiert worden sind, und insbesondere auf unvollständig gestreckte Folien anwendbar sein. Wenn dennoch die Folie ausreichend unvollständig gestreckt wird, kann die Dehnbarkeit und somit die Nachverarbeitbarkeit nach Erwärmung bei diesen Temperaturen dennoch akzeptabel sein. Die nachfolgende Beschreibung beleuchtet die Effekte der Nachformung nahe T_{max} für bestimmte Fälle; z. B. für bestimmte unvollständig gestreckte, nichtthermofixierte Folien mit bestimmten Polyestern. Man beachte, daß sich optische Mehrschichtfolien mit anderen Materialien als Polyester, in ihre Beziehung zwischen der maximalen Kristallisationstemperatur und optimalen Formungstemperaturen anders verhalten.

[0191] Weitere Kristallisations- und morphologische Änderungen während der Vorerwärmung vor der Nachformung können die Dehnbarkeit und die Nachformbarkeit reduzieren. Unter einem Aspekt kann es bevorzugt werden, daß die Formungstemperatur der Folie während der Nachformung niedriger ist als die maximale Kristallisationsratentemperatur des doppelbrechenden Materials mit der niedrigsten maximalen Kristallisationsratentemperatur in der Folie, mehr bevorzugt mehr als 10°C unter der maximalen Kristallisationsratentemperatur des doppelbrechenden Materials mit der niedrigsten maximalen Kristallisationsratentemperatur in der Folie und noch mehr bevorzugt mehr als etwa 20°C unter der maximalen Kristallisationsratentemperatur des doppelbrechenden Materials mit der niedrigsten maximalen Kristallisationsratentemperatur in der Folie. Es kann auch bevorzugt werden, daß die Formungstemperatur größer ist als die maximale Kristallisationsratentemperatur des doppelbrechenden Materials mit der höchsten maximalen Kristallisationsratentemperatur in der Folie, mehr bevorzugt mehr als 10°C über der maximalen Kristallisationsratentemperatur des doppelbrechenden Materials mit der höchsten maximalen Kristallisationsratentemperatur in der Folie und noch mehr bevorzugt etwa 20°C über der maximalen Kristallisationsratentemperatur des doppelbrechenden Materials mit der höchsten maximalen Kristallisationsratentemperatur in der Folie.

[0192] Diese Formungstemperaturgrenzen können nach Bedarf kombiniert werden. Beispielsweise kann bevorzugt werden, daß die Formungstemperatur mehr als etwa 10°C unter der maximalen Kristallisationsratentemperatur des doppelbrechenden Materials mit der niedrigsten maximalen Kristallisationsratentemperatur in der Folie oder mehr als etwa 20°C über der maximalen Kristallisationsratentemperatur des doppelbrechenden Materials mit der höchsten maximalen Kristallisationsratentemperatur in der Folie ist. In einer weiteren Alternative kann es erwünscht sein, daß die Formungstemperatur mehr als etwa 20°C unter der maximalen Kristal-

lisationsratentemperatur des doppelbrechenden Materials mit der niedrigsten maximalen Kristallisationsratentemperatur in der Folie oder höher als die maximale Kristallisationsratentemperatur des doppelbrechenden Materials mit der höchsten maximalen Kristallisationsratentemperatur in der Folie ist. Weitere Kombinationen dieser verschiedenen Begrenzungen werden auch anhand weiterer Analysen deutlich.

[0193] Wenn nur ein doppelbrechendes Material in der optischen Mehrschichtfolie vorhanden ist, können die Formtemperaturbegrenzungen einfacher ausgedrückt werden. Es kann bevorzugt werden, daß die Formtemperatur der Folie anders ist als die maximale Kristallisationsratentemperatur des doppelbrechenden Materials in der Folie. Als Alternative kann bevorzugt werden, die Formtemperatur in Form von Bereichen zu definieren, d. h. es kann bevorzugt werden, daß die Formtemperatur der Folie mehr als 10°C unter der maximalen Kristallisationsratentemperatur des doppelbrechenden Materials ist, mehr bevorzugt mehr als 20°C unter der maximalen Kristallisationsratentemperatur des doppelbrechenden Materials in der Folie. Es kann auch bevorzugt werden, daß die Formtemperatur mehr als etwa 10°C über der maximalen Kristallisationsratentemperatur der doppelbrechenden Materialfolie ist, mehr bevorzugt etwa 20°C über der maximalen Kristallisationsratentemperatur des doppelbrechenden Materials in der Folie.

[0194] Nach dem nachformenden Strecken kann es erwünscht sein, den geformten Gegenstand vorsätzlich einer Thermofixierung zu unterziehen, um sein Reflektionsvermögen zu verbessern. Diese Thermofixierung folgt vorzugsweise dem letzten Nachformstreckschritt; beispielsweise ist eine weitere Kristallisation mit begleitenden Erhöhungen der Brechungsindexdifferenz ohne Berücksichtigung der weiteren Dehnbarkeit nach dem letzten Nachformstreckschritt nunmehr ratsam.

[0195] Obwohl die Verfahren zur Nachformung von optischen Mehrschichtfolien im allgemeinen oben beschrieben sind, kann die Nachformung der unvollständig gestreckten optischen Mehrschichtfolien verändert werden, wobei dennoch gewünschte Nachformergebnisse erreicht werden. Eine erhebliche Veränderung besteht darin, daß die Formtemperatur der unvollständig gestreckten optischen Mehrschichtfolien ziemlich unter den maximalen Kristallisationsratentemperaturen der doppelbrechenden Materialien in den Folien liegen kann. Die Thermofixierung nach dem letzten Nachformstreckschritt kann auch für Gegenstände erwünscht sein, die aus unvollständig gestreckten optischen Mehrschichtfolien hergestellt sind. Beispielsweise kann die Kristallinität (und infolgedessen auch der Reflektionsgrad) der Abschnitte der unvollständig gestreckten Folien, die nicht während der Nachformung gestreckt worden sind, durch Thermofixierung nach den letzten Nachformstreckschritten erhöht werden. Zusätzlich können diejenigen Abschnitte der unvollständig gestreckten Folie, die während der Nachformung gestreckt wurden, auch eine erhöhte Kristallinität und den begleitenden Reflektionsgrad erfahren.

[0196] Die unvollständig gestreckten optischen Mehrschichtfolien können mit allen oben beschriebenen Veränderungen in Bezug auf die optischen Mehrschichtfolien im allgemeinen versehen sein und entsprechend diesen nachgeformt sein. Das heißt, sie können als hochreflektierende Folien hergestellt werden, die ihr Reflektionsvermögen nach der Nachformung behalten usw. Ferner sollten die oben beschriebenen Modifikationen zur Erreichung von Verdünnungseffekte auch berücksichtigt werden, wenn unvollständig gestreckte optische Mehrschichtfolien hergestellt und verarbeitet werden.

Gewählte Nachformbereiche von optischen Mehrschichtfolien

[0197] Die zahnärztlichen Gegenstände mit einer nachgeformten optischen Mehrschichtfolie und die Verfahren zur Nachformung einer optischen Mehrschichtfolie, die bisher beschrieben worden sind, haben sich auf zahnärztliche Gegenstände und Verfahren konzentriert, bei denen die nachgeformte optische Mehrschichtfolie gleichmäßige optische Eigenschaften aufweist. Es kann jedoch auch erwünscht sein, erfindungsgemäße zahnärztliche Gegenstände und Verfahren bereitzustellen, bei denen die nachgeformte optische Mehrschichtfolie ungleichmäßige äußere Erscheinungsbilder aufweist. Beispielsweise kann erwünscht sein, eine nachgeformte optische Mehrschichtfolie bereitzustellen, bei der gewählte Bereiche der optischen Mehrschichtfolie für Licht gewünschter Wellenlängen reflektierend sind, während andere gewählte Bereiche der nachgeformten optischen Mehrschichtfolie Licht mit den gleichen oder anderen gewünschten Wellenlängen durchlassen.

[0198] Es kann auch erwünscht sein, einen Gegenstand mit einer nachgeformten optischen Mehrschichtfolie bereitzustellen, bei der gewählte Bereiche in der nachgeformten optischen Mehrschichtfolie für sichtbare Wellenlängen durchlässig sind, während der Rest der nachgeformten optischen Mehrschichtfolie für sichtbare Wellenlängen reflektierend ist. Um dieses Ergebnis unter Verwendung einer optischen Mehrschichtfolie zu erreichen, die, wie sie hergestellt ist, für sichtbares Licht reflektierend ist, könnte die optische Mehrschichtfolie in gewählten Bereichen während des Nachformprozesses gestreckt oder verdünnt werden, so daß alle abge-

stimmten Bandbreiten der Schichten im optischen Mehrschichtfolienstapel in den gewählten durchlässigen Bereichen nach der Nachformung kleiner als 400 nm sind. Das Ergebnis eines solchen Prozesses wäre ein Gegenstand mit einer nachgeformten optischen Mehrschichtfolie, die in denjenigen Bereichen hochreflektierend ist, in denen die reflektierende Bandbreite im sichtbaren Spektrum bleibt, während der Gegenstand in denjenigen Bereichen Transmission ermöglichen würde, in denen die nachgeformte optische Mehrschichtfolie verdünnt worden ist, um Transmission im sichtbaren Spektrum zu ermöglichen.

[0199] Als Alternative zu dem bereits beschriebenen Prozeß könnten die optischen Mehrschichtfolien in Verfahren bereitgestellt und nachgeformt werden, die zu gewählten Transmissions- und Reflexionsbereichen in der nachgeformten optischen Mehrschichtfolie im gleichen Gegenstand führen, in denen jedoch unverdünnte Schichten transparent bleiben, während die gewählten Bereiche, die während der Nachformung verdünnt werden, reflektierend werden. Beispielsweise könnte die optische Mehrschichtfolie, wie sie hergestellt ist, so abgestimmt werden, daß sie für die Wellenlängen von etwa 900 bis etwa 2025 nm, d. h. über dem sichtbaren Spektrum, reflektierend ist. Folien, die geeignet sind, Oberwellen höherer Ordnung zu reduzieren, die wahrnehmbare Farben im sichtbaren Bereich des Spektrums ergeben, können bevorzugt werden. Bestimmte geeignete Folien sind in den US-Patenten Re. 34 605 und 5 360 659 und in der US-Patentanmeldung 09/006 118 beschrieben.

[0200] Wenn eine solche optische Mehrschichtfolie nachgeformt würde, würden die gewählten Bereiche der optischen Mehrschichtfolie, die reflektierend sein sollen, während der Nachformung absichtlich um einen entsprechenden Faktor, z. B. 2,25, verdünnt, um die optische Mehrschichtfolie in diesen gewählten Bereichen erneut so abzustimmen, daß sichtbare Wellenlängen, d. h. die Wellenlängen zwischen etwa 400 und etwa 900 nm, im wesentlichen reflektiert werden. Die verbleibenden Abschnitte oder Bereiche der optischen Mehrschichtfolie und des Gegenstands, die nicht ausreichend verdünnt sind, um Licht im sichtbaren Spektrum zu reflektieren, würden für sichtbares Licht durchlässig bleiben.

[0201] Viele Veränderungen an diesen Konzepten sind denkbar. Beispielsweise könnten die optischen Mehrschichtfolien in solchen Verfahren nachgeformt werden, daß die gewählten Bereiche scharf abgegrenzt sind, was zu kurzen Übergangszonen zwischen reflektierenden/transparenten Bereichen führt, oder sie könnten absichtlich mit langen Übergangszonen ausgeführt sein, bei denen die nachgeformte optische Mehrschichtfolie Irisierung aufweisen würde, wenn verschiedene Wellenlängen des Lichts reflektiert oder durchgelassen würden. Bei einer anderen Variante könnten verschiedene gewählte Bereiche verdünnt werden, um verschiedene gewählte Wellenlängen zu reflektieren. Auf diese Weise könnten die gewählten Bereiche beispielsweise verschiedene Farben aufweisen. Das Endergebnis der Anwendung der Prinzipien der optischen Mehrschichtfolien und Verfahren zur Nachformung optischer Mehrschichtfolien gemäß der Erfindung besteht darin, daß gewünschte Kombinationen optischer Effekte erreicht werden können, indem Folien mit den gewünschten optischen und Nachformeigenschaften gewählt werden und die Folien so verarbeitet werden, daß nachgeformte Gegenstände mit gewünschten optischen Eigenschaften entstehen.

[0202] Ein Beispiel eines Gegenstands mit einer nachgeformten optischen Mehrschichtfolie, die in gewählten Bereichen verformt ist, ist in **Fig. 17** dargestellt. Der Gegenstand **90** kann beispielsweise die optische Fläche eines Zahnspiegels sein, bei dem ein erster Bereich **92** des Gegenstands **90** für gewählte Wellenlängen des Lichts durchlässig ist, während ein zweiter Bereich **94** des Gegenstands **90** für verschiedene gewählte Wellenlängen des Lichts reflektierend ist. Die optische Mehrschichtfolie kann wie die oben beschriebenen, nachgeformt werden, so daß die optische Mehrschichtfolie im zweiten Bereich **94**, der den ersten Bereich **92** umgibt, während der Nachformung verdünnt wird, so daß die optische Mehrschichtfolie im zweiten Bereich **94** zumindest für einen Abschnitt des sichtbaren Spektrums transparent ist, während der erste Bereich **92** im wesentlichen unverändert ist.

[0203] In einer weiteren Ausführungsform kann der zweite Bereich **94** als reflektierend für das sichtbare Spektrum erhalten bleiben, während der erste Bereich **92** verformt oder verdünnt wird, um einen anderen optischen Effekt als der zweite Bereich **94** zu erreichen. Beispielsweise kann der gewählte Bereich **92** geprägt oder anders nachgeformt werden, um die Folie in einem ersten Bereich **92** ausreichend zu verdünnen, damit sie zumindest bis zu einem Abschnitt des sichtbaren Spektrums durchlässig wird. Andere Varianten des Aufbaus und der Herstellung von Gegenständen mit einer nachgeformten optischen Mehrschichtfolie, bei der gewählte Bereiche nachgeformt werden, sind auch auf der Grundlage der oben beschriebenen Beispiele denkbar.

Nachformung optischer Mehrschichtfolien mit Substraten

[0204] **Fig. 18** stellt ein weiteres Merkmal von optischen Mehrschichtfolien und Gegenständen mit nachge-

formten optischen Mehrschichtfolie gemäß der Erfindung dar. In bestimmten Fällen können die nachgeformten optischen Mehrschichtfolien allein nicht genug Substanz oder Festigkeit haben, um die gewünschten mechanischen Eigenschaften zu realisieren. Beispielsweise können die optischen Mehrschichtfolien nicht genug strukturelle Festigkeit und/oder Steifigkeit haben, um eine gewünschte Form zu halten. **Fig. 18** stellt eine Lösung für dieses Problem dar, indem die optische Mehrschichtfolie **102** auf ein Substrat **104** aufflaminiert oder anders aufgebracht ist, um ein Verbundmaterial **100** mit gewünschten mechanischen Eigenschaften bereitzustellen. In bestimmten Fällen kann das Substrat **104** einstückig mit der optischen Mehrschichtfolie **102** hergestellt werden, und in anderen Fällen kann die optische Mehrschichtfolie **102** unabhängig hergestellt und später auf dem Substrat **104** befestigt werden, um ein Verbundmaterial **100** zu bilden. Wenn das Substrat **104** mit der optischen Mehrschichtfolie **102** einstückig hergestellt wird, kann es eine dickere Schicht aus einem der Materialien sein, die in der optischen Mehrschichtfolie **102** bereitgestellt werden, oder es kann aus einem anderen Material bestehen, das mit der optischen Mehrschichtfolie **102** koextrudiert, gegossen oder anders geformt sein kann. In einer anderen Alternative kann das Substrat **104** als Beschichtung auf der optischen Mehrschichtfolie vorgesehen sein.

[0205] Obwohl nur auf einer Seite der optischen Mehrschichtfolie **102** ein Substrat **104** gezeigt ist, ist ferner verständlich, daß das Substrat **104** auf beiden Seiten der optischen Mehrschichtfolie **102** vorgesehen sein könnte. Obwohl das Substrat **104** als Einzelschicht dargestellt ist, ist auch verständlich, daß es ein Verbundwerkstoff aus verschiedenen Schichten des gleichen oder verschiedener Materialien auf der Grundlage der gewünschten Kennwerte des Substrats **104** sein könnte.

[0206] In bestimmten Fällen können die Materialien, die für das Substrat **104** gewählt werden, wenig, wenn überhaupt, Auswirkung auf die optischen Eigenschaften der optischen Mehrschichtfolie **102** haben, stellen jedoch eine nachformbare Schicht dar, die im übrigen mit der optischen Mehrschichtfolie **102** kompatibel ist. Unter einem Aspekt kann das Substrat **104** dem nachgeformten Gegenstand die gewünschte strukturelle Steifigkeit/Festigkeit verleihen, so daß es nicht mehr notwendig ist, die nachgeformte optische Mehrschichtfolie auf eine andere Struktur aufzulaminieren. Beispiele geeigneter Materialien für das Substrat **104** sind u. a. Polycarbonate, Polyvinylchloride, PETG, Acryle, Methacryle, Nylone, Polyolefin, Polypropylen usw., ohne darauf beschränkt zu sein.

[0207] Eine weitere mechanische Eigenschaft, die vom Substrat **104** bereitgestellt werden kann, ist die Dehnungsverfestigung während der Verformung, wie oben in bezug auf die optische Mehrschichtfolie beschrieben. Die Dehnungsverfestigungseigenschaft kann genutzt werden, um die Spannungen zu begrenzen, die auf die aufgebrachte optische Mehrschichtfolie **102** ausgeübt werden, wobei die Spannungen über die optische Mehrschichtfolie **102** so verteilt werden, daß die Nachformbarkeit des Verbundstoffs **100** gegenüber der Nachformbarkeit der optischen Mehrschichtfolie **102** allein verbessert wird.

[0208] Die für das Substrat **104** gewählten Materialien können anstelle oder zusätzlich zu den gewünschten mechanischen Eigenschaften gewünschte optische Eigenschaften aufweisen. Beispielsweise kann das Substrat **104** für gewählte Wellenlängen des Lichts, z. B. für Infrarotstrahlung, als Spiegel fungieren, das Substrat **104** kann Farbstoffe aufweisen oder Farben anderweitig in den Verbundstoff **100** einbringen, das Substrat **104** kann diffundierende Eigenschaften im Transmissionsgrad und/oder im Reflektionsgrad aufweisen (um beispielsweise die Iridierung zu reduzieren).

[0209] Obwohl sich das Substrat **104** in vielen Fällen mit der optischen Mehrschichtfolie **102** deckt, ist auch denkbar, daß das Substrat nur auf gewählten Bereichen der optischen Mehrschichtfolie befestigt werden kann, wie in **Fig. 19** gezeigt, wo das Substrat **114** in gewählten Bereichen auf der optischen Mehrschichtfolie **112** vorgesehen ist. Es versteht sich auch, daß das Substrat **114** in Form eines Gitters, eines Maschennetzes oder anderer unterbrochener Formen auf der optischen Mehrschichtfolie **112** vorgesehen sein kann, um die Nachformbarkeit zu verbessern. Es kann beispielsweise vorteilhaft sein, das Substrat **114** mit Unterbrechungen bereitzustellen, so daß es zur Bildung der gewählten Bereiche der nachgeformten optischen Mehrschichtfolie beiträgt, wie oben mit Bezug auf **Fig. 17** beschrieben. In einer solchen Anwendung kann das Substrat das Strecken der optischen Mehrschichtfolie **112** während der Nachformung verhindern oder reduzieren, so daß es schwierig oder unmöglich ist, dies allein durch die Verwendung von Nachformungstechniken zu erreichen.

[0210] Unabhängig davon, ob die optischen Mehrschichtfolien, die in Verbindung mit der Erfindung verwendet werden, in Substrate einbegriffen sind, unvollständig gestreckt oder vollständig gestreckt sind usw., wird die Wahl der Materialien in den Folien nachstehend beschrieben.

[0211] Eine Vielzahl verschiedener Polymermaterialien, die zur erfindungsgemäßen Verwendung geeignet sind, ist bisher zur Verwendung bei der Herstellung von koextrudierten optischen Mehrschichtfolien beschrieben worden. Beispielsweise sind die Polymermaterialien, die in den US-Patenten 4 937 134, 5 103 337, 5 122 905, 5 448 404, 5 540 978 und 5 568 316 von Schrenk et al. und in 5 122 905, 5 122 906 und 5 126 880 von Wheatley und Schrenk aufgeführt und beschrieben sind, zur Herstellung von erfindungsgemäßen optischen Mehrschichtfolien geeignet. Von speziellem Interesse sind doppelbrechende Polymere, z. B. solche, die beschrieben sind in 5 468 949 und 5 612 820 von Schrenk et al., in der US-Anmeldung 08/402 041 von Jonza et al. und der US-Anmeldung mit dem Titel "Modified Copolyesters and Improved Multilayer Reflective Film", angemeldet am 13. Januar 1998 unter der US-Eingangsnummer 09/006 601. Im Hinblick auf die bevorzugten Materialien, aus denen die Folien herzustellen sind, gibt es verschiedene Bedingungen, die eingehalten werden sollten, um die erfindungsgemäßen optischen Mehrschichtfolien herzustellen. Als erstes sollten diese Folien aus mindestens zwei unterscheidbaren Polymeren bestehen. Die Anzahl ist nicht begrenzt, und drei oder mehr Polymere können in bestimmten Folien vorteilhaft verwendet werden. Zweitens hat mindestens eines der beiden erforderlichen Polymere, die nachstehend als das erste Polymer bezeichnet werden, vorzugsweise einen optischen Spannungskoeffizienten mit einem hohen absoluten Wert. Das heißt, es sollte vorzugsweise in der Lage sein, eine hohe Doppelbrechung zu entwickeln, wenn es gestreckt wird. Je nach Anwendung kann die Doppelbrechung zwischen zwei orthogonalen Richtungen in der Ebene der Folie, zwischen einer oder mehreren in einer Ebene liegenden Richtungen und der Richtung senkrecht zur Folienebene oder bei einer Kombination daraus entstehen. In dem speziellen Fall, wo die isotropen Indizes weit auseinander liegen, kann die Bevorzugung für große Doppelbrechung im ersten Polymer zurückgenommen werden, obwohl mindestens eine bestimmte Doppelbrechung gewünscht ist. Solche speziellen Fälle können bei der Wahl der Polymere für Spiegelfolien und für Polarisatorfolien entstehen, die unter Verwendung eines biaxialen Prozesses ausgebildet werden, der die Folie in zwei orthogonalen in einer Ebene liegenden Richtungen streckt. Drittens sollte das erste Polymer in der Lage sein, nach dem Strecken die Doppelbrechung beizubehalten, so daß der fertigen Folie die gewünschten optischen Eigenschaften verliehen werden. Viertens sollte das andere erforderliche Polymer, das als das "zweite Polymer" bezeichnet wird, so gewählt werden, daß sich sein Brechungsindex in der fertigen Folie in mindestens einer Richtung deutlich vom Brechungsindex des ersten Polymers in der gleichen Richtung unterscheidet. Da Polymermaterialien normalerweise streuend sind, d. h. die Brechungsindizes sich mit der Wellenlänge ändern, müssen diese Bedingungen bei einer bestimmten gewünschten Spektralbandbreite berücksichtigt werden.

[0212] Weitere Aspekte der Polymerwahl hängen von den spezifischen Anwendungen ab. Für Polarisationsfolien ist es häufig vorteilhaft, wenn sich die Differenz des Brechungsindex des ersten und des zweiten Polymers in einer Folienebenenrichtung deutlich in der fertigen Folie unterscheiden, während die Differenz des orthogonalen Folienebenenindex minimiert wird. Wenn das erste Polymer einen hohen Brechungsindex hat, wenn es isotrop ist, und positiv doppelbrechend ist (d. h. sein Brechungsindex sich in der Streckrichtung erhöht), wird das zweite Polymer normalerweise so gewählt, daß es nach der Verarbeitung einen passenden Brechungsindex in der in der planaren Richtung orthogonal zur Streckrichtung und ein Brechungsindex in der Streckrichtung hat, der möglichst niedrig ist. Wenn dagegen das erste Polymer einen kleinen Brechungsindex hat, wenn es isotrop ist, und negativ doppelbrechend ist, wird das zweite Polymer normalerweise so gewählt, daß es nach der Verarbeitung einen passenden Brechungsindex in der planaren Richtung orthogonal zur Streckrichtung und ein Brechungsindex in der Streckrichtung hat, der möglichst hoch ist.

[0213] Als Alternative ist es möglich, ein erstes Polymer zu wählen, das positiv doppelbrechend ist und einen mittleren oder niedrigen Brechungsindex hat, wenn es isotrop ist, oder eines zu wählen, das negativ doppelbrechend ist und einen mittleren oder hohen Brechungsindex hat, wenn es isotrop ist. In diesen Fällen kann das zweite Polymer normalerweise so gewählt werden, daß sein Brechungsindex nach der Verarbeitung zu Brechungsindex des ersten Polymers entweder in der Streckrichtung oder in der planaren Richtung orthogonal zum Strecken paßt. Ferner wird das zweite Polymer normalerweise so gewählt, daß die Differenz des Brechungsindex in der verbleibenden planaren Richtung maximiert wird, und zwar unabhängig davon ob dies am besten durch einen sehr niedrigen oder sehr hohen Brechungsindex in dieser Richtung erreicht wird.

[0214] Ein Mittel zur Erreichung dieser Kombination aus planarer Indexübereinstimmung in einer Richtung und Nichtübereinstimmung in der orthogonalen Richtung besteht darin, ein erstes Polymer zu wählen, das eine erhebliche Doppelbrechung entwickelt, wenn es gestreckt wird, und ein zweites Polymer, das wenig oder keine Doppelbrechung entwickelt, wenn es gestreckt wird, und die resultierende Folie in nur einer planaren Richtung zu strecken. Als Alternative kann das zweite Polymer aus denjenigen gewählt werden, die Doppelbrechung im umgekehrten Sinne zum ersten Polymer entwickeln (negativ-positiv oder positiv-negativ). Ein weiteres alterna-

tives Verfahren besteht darin, ein erstes und ein zweites Polymer, die in der Lage sind, Doppelbrechung zu entwickeln, wenn sie gestreckt werden, zu wählen, aber in zwei orthogonalen planaren Richtungen zu Strecken, wobei Prozeßbedingungen gewählt werden, z. B. Temperaturen, Streckraten, Nachstreckrelaxation und dgl., die zu einer Entwicklung ungleicher Orientierungsgrade in den beiden Streckrichtungen für das erste Polymer und/oder für das zweite Polymer führen, so daß ein Ebenenindex annähernd mit dem des ersten Polymers übereinstimmt und der orthogonale Ebenenindex mit dem des ersten Polymers in erheblichem Maße nicht übereinstimmt. Beispielweise können solche Bedingungen gewählt werden, daß das erste Polymer einen biaxial orientierten Charakter in der fertigen Folie hat, während das zweite Polymer einen vorwiegend uniaxial orientierten Charakter in der fertigen Folie hat.

[0215] Die vorstehenden Ausführungen haben Beispielcharakter, und man wird verstehen, daß Kombinationen aus diesen oder anderen Techniken verwendet werden können, um das Ziel der Indexnichtübereinstimmung der Polarisationsfolien in einer planaren Richtung und der relativen Indexübereinstimmung in einer orthogonalen planaren Richtung zu erreichen.

[0216] Verschiedene Überlegungen beziehen sich auf eine reflektierende oder Spiegelfolie. Vorausgesetzt, daß die Folie keine bestimmten Polarisationsseigenschaften haben soll, gelten die Brechungsindexkriterien gleichermaßen für jede Richtung in der Folienebene, so daß es typisch ist, daß die Indizes für jede gegebene Schicht in orthogonalen, in der gleichen Ebene liegenden Richtungen gleich oder nahezu gleich sind. Es ist jedoch vorteilhaft, daß sich die Folienebenenindizes des ersten Polymers möglichst stark von den Folienebenenindizes des zweiten Polymers unterscheiden. Wenn das erste Polymer einen hohen Brechungsindex hat, wenn es isotrop ist, ist es aus diesem Grund vorteilhaft, daß es auch positiv doppelbrechend ist. Wenn das erste Polymer einen niedrigen Brechungsindex hat, wenn es isotrop ist, ist es gleichermaßen vorteilhaft, daß es auch negativ doppelbrechend ist. Das zweite Polymer entwickelt vorteilhafterweise wenig oder keine Doppelbrechung, wenn es gestreckt wird, oder entwickelt Doppelbrechung im entgegengesetzten Sinne (positiv-negativ oder negativ-positiv), so daß sich die Folienebenenbrechungsindizes möglichst stark von denen des ersten Polymers in der fertigen Folie unterscheiden. Diese Kriterien können annähernd mit denen kombiniert werden, die oben für Polarisationsfolien aufgeführt sind, wenn eine Spiegelfolie auch einen bestimmten Grad an Polarisationsseigenschaften haben soll.

[0217] Farbfolien können als Spezialfälle von Spiegel- oder Polarisationsfolien angesehen werden. Es gelten also die gleichen Kriterien, wie oben ausgeführt. Die wahrgenommene Farbe ist ein Ergebnis der Reflektion oder Polarisation in einer oder mehreren spezifischen Bandbreiten des Spektrums. Die Bandbreiten, in denen eine erfindungsgemäße Mehrschichtfolie effektiv ist, werden in erster Linie durch die Verteilung der Schichtdicken bestimmt, die in dem/den optischen Stapel(n) verwendet wird, aber es müssen auch die Wellenlängenabhängigkeit oder Streuung der Brechungsindizes des ersten und des zweiten Polymers berücksichtigt werden. Es versteht sich, daß die gleichen Regeln, die für das sichtbare Spektrum gelten, im allgemeinen auch für Infrarot- und Ultraviolettwellenlängen sowie für andere elektromagnetische Strahlung, für die die Folien ausgelegt sind, gelten.

[0218] Das Absorptionsvermögen ist eine weitere Überlegung. Bei den meisten Anwendungen ist es vorteilhaft, wenn weder das erste Polymer noch das zweite Polymer in der in Betracht kommenden Bandbreite für die betreffende Folie Extinktionsbänder hat. Alles einfallende Licht in der Bandbreite wird entweder reflektiert oder durchgelassen. Bei bestimmten Anwendungen kann es jedoch nützlich sein, wenn eines, nämlich das erste oder das zweite Polymer oder beide spezifische Wellenlängen entweder total oder teilweise zu absorbieren.

[0219] Obwohl viele Polymere als das erste Polymer gewählt werden können, sind nur bestimmte der Polyester zu einer besonders großen Doppelbrechung fähig. Von diesen wird Polyethylen-2,6-naphthalat (PEN) häufig als erstes Polymer für erfindungsgemäße Folien gewählt. Es hat einen sehr hohen positiven optischen Spannungskoeffizienten, behält Doppelbrechung effektiv nach der Streckung bei und hat eine geringe oder keine Extinktion im sichtbaren Bereich. Es hat im isotropen Zustand auch einen hohen Brechungsindex. Sein Brechungsindex für polarisiertes einfallendes Licht von 550 nm Wellenlänge erhöht sich, wenn die Polarisations Ebene parallel zur Streckrichtung von etwa 1,64 bis immerhin etwa 1,9 reicht. Seine Doppelbrechung kann durch Erhöhung seiner molekularen Orientierung erhöht werden, die wiederum durch Streckung zu größeren Streckverhältnissen erhöht werden kann, wobei andere Streckbedingungen festgehalten werden.

[0220] Andere halbkristalline Naphthalendicarboxyl-Polyester sind auch als erste Polymere geeignet. Polybutylen-2,6-naphthalat (PBN) ist ein Beispiel. Diese Polymere können Homopolymere oder Copolymere sein, vorausgesetzt daß die Verwendung von Comonomeren den optischen Spannungskoeffizienten oder die Beibe-

haltung der Doppelbrechung nach dem Strecken nicht wesentlich beeinträchtigt. Der Begriff "PEN" wird hier so verstanden, daß er PEN-Copolymere umfasst, die diese Beschränkungen erfüllen. In der Praxis erlegen diese Beschränkungen dem Comonomeranteil eine obere Grenze auf, deren exakter Wert sich mit der Wahl des verwendeten Comonomers bzw. der Comonomere ändert. Ein bestimmter Kompromiß bei diesen Eigenschaften kann jedoch akzeptiert werden, wenn die Comonomeranteile zu einer Verbesserung anderer Eigenschaften führen. Solche Eigenschaften sind u. a. verbesserte Verbundhaftung, niedrigerer Schmelzpunkt (was zu einer niedrigeren Extrusionstemperatur führt), bessere rheologische Anpassung an andere Polymere in der Folie und vorteilhafte Verschiebung im Prozeßfenster zum Strecken infolge der Änderung der Glasübergangstemperatur.

[0221] Geeignete Comonomere zur Verwendung bei PEN, PBN oder dgl. können Diol- oder Dicarbonsäure- oder Ester-Comonomere sein. Dicarbonsäure-Comonomere sind u. a. Terephthalatsäure, Isophthalsäure, Phthalsäure, alle isomeren Naphthalendicarbonsäuren (2,6-, 1,2-, 1,3-, 1,4-, 1,5-, 1,6-, 1,7-, 1,8-, 2,3-, 2,4-, 2,5-, 2,7- und 2,8-), Bibenzolsäuren, z. B. 4,4'-Biphenyldicarbonsäure und ihre Isomere, Trans-4,4'-stilbendicarbonsäure und ihre Isomere, 4,4'-Diphenyletherdicarbonsäure und ihre Isomere, 4,4'-Diphenylsulfondicarbonsäure und ihre Isomere, 4,4'-Bezophenondicarbonsäure und ihre Isomere, halogenierte aromatische Dicarbonsäuren, z. B. 2-Chlorterephthalsäure und 2,5-Dichlorterephthalsäure, andere substituierte aromatische Dicarbonsäuren, z. B. tertiäre Butylisophthalsäure und natriumsulfonierte Isophthalsäure, Cycloalkandicarbonsäuren, z. B. 1,4-Cyclohexandicarbonsäure und ihre Isomere und 2,6-Decahydronaphthalendicarbonsäure und ihre Isomere, bi- oder multizyklische Dicarbonsäuren (z. B. die verschiedenen isomeren Norbornan- und Norbornendicarbonsäuren, Adamantandicarbonsäuren und Bicyclo-Octandicarbonsäuren), Alkandicarbonsäuren (z. B. Sebacinsäure, Adipinsäure, Oxalsäure, Malonsäure, Succinsäure, Glutarsäure, Azelainsäure und Dodecandicarbonsäure) und jede der isomeren Dicarbonsäuren der aromatischen Ringkohlenwasserstoffe (z. B. Inden, Anthracen, Phenanthren, Benzonaphthen, Fluoren und dgl.). Als Alternative können Alkylester dieser Monomere, z. B. Dimethylterephthalat, verwendet werden.

[0222] Geeignete Diolcomonomere sind u. a. lineare oder verzweigte Alkandiole oder Glycole (z. B. Ethylenglycol, Propandiol, z. B. Trimethylglycol, Butandiol, z. B. Tetramethylenglycol, Pentandiol, z. B. Neopentylglycol, Hexandiol, 2,2,4-Trimethyl-1,3-pentandiol und höhere Diole), Etherglycole (z. B. Diethylenglycol, Triethylenglycol und Polyethylenglycol), Kettenesterdiole, z. B. 3-Hydroxy-2,2-dimethylpropyl-3-hydroxy-2,2-dimethylpropanoat, Cycloalkanglycole, z. B. 1,4-Cyclohexandimethanol und seine Isomere und 1,4-Cyclohexandiol und seine Isomere, bi- oder multizyklische Diole (z. B. die verschiedenen isomeren Tricyclodecandimethanole, Norbornandimethanole, Norbornendimethanole und Bicyclo-Octandimethanole), aromatische Glycole (z. B. 1,4-Benzendimethanol und seine Isomere, 1,4-Benzendiol und seine Isomere, Bisphenole, z. B. Bisphenol A, 2,2'-Dihydroxybiphenyl und seine Isomere, 4,4'-Dihydroxymethylbiphenyl und seine Isomere und 1,3-bis(2-Hydroxyethoxy-)Benzen und seine Isomere) und niedere Alkylether oder Diether dieser Diole, z. B. Dimethyl- oder Diethyldiole.

[0223] Tri- oder polyfunktionelle Comonomere, die dazu dienen, den Polyestermolekülen eine verzweigte Struktur zu verleihen, können auch verwendet werden. Sie können entweder Carbonsäure-, Ester-, Hydroxy- oder Ether-Comonomere sein. Beispiele sind u. a. Trimellithsäure und ihre Ester, Trimethylolpropan und Pentaerythritol.

[0224] Auch geeignet als Comonomere sind Monomere gemischter Funktionalität, einschließlich Hydroxycarbonsäuren, z. B. Parahydroxybenzoesäure und 6-Hydroxy-2-naphthalencarbonsäure und ihre Isomere und tri- und polyfunktionelle Comonomere gemischter Funktionalität, z. B. 5-Hydroxyisophthalsäure und dgl.

[0225] Polyethylenterephthalat (PET) ist ein weiteres Material, das einen erheblichen positiven optischen Spannungskoeffizienten aufweist, Doppelbrechung nach der Streckung effektiv erhält und wenig oder keine Extinktion im sichtbaren Bereich aufweist. Dieses und seine Copolymere mit hohem PET-Anteil, die die oben aufgeführten Comonomere verwenden, können in bestimmten erfindungsgemäßen Anwendungen auch als erste Polymere verwendet werden. Der Begriff "PET", wie er hier verwendet wird, ist hier so zu verstehen, daß er PET und seine Copolymere mit hohem PET-Anteil umfasst, die ähnlich funktionieren wie PET allein.

[0226] Wenn ein Naphthalendicarboxylpolyester, z. B. PEN oder PBN, als erstes Polymer gewählt wird, dann sind mehrere Methoden möglich, die verwendet werden können, um ein zweites Polymer zu wählen. Eine bevorzugte Methode für bestimmte Anwendungen besteht darin, ein Naphthalendicarboxylcopolyester (coPEN) zu wählen, das so formuliert ist, daß es eine geringe oder keine Doppelbrechung entwickelt, wenn es gestreckt ist. Dies kann erreicht werden durch Wählen solcher Comonomere und deren Konzentrationen im Copolymer, daß die Kristallisierbarkeit des coPEN beseitigt oder stark reduziert wird. Eine typische Formulierung verwen-

det als die Dicarbonsäure- oder Esterkomponenten Dimethylnaphthalat von etwa 20 Mol-% bis etwa 80 Mol-% und Dimethylterephthalat oder Dimethylisophthalat von etwa 20 Mol-% bis etwa 80 Mol-% und verwendet Ethylenglycol als Diolkomponente. Natürlich können die entsprechenden Dicarbonsäuren anstelle der Ester verwendet werden. Die Anzahl der Comonomere, die in der Formulierung eines coPEN-Zweitpolymers verwendet werden, ist nicht begrenzt. Geeignete Copolymere für ein coPEN-Zweitpolymer sind u. a. alle Comonomere, die oben als geeignete PEN-Comonomere aufgeführt sind, einschließlich der Säure-, Ester-, Hydroxy-, Ether-, tri- oder polyfunktionellen Comonomere und Comonomere mit gemischte Funktionalität.

[0227] Häufig ist es zweckmäßig, den isotropen Brechungsindex eines coPEN-Zweitpolymers vorherzusagen. Ein Volumenmittelwert der Brechungsindizes der Monomere, die zu verwenden sind, ist als geeignete Richtschnur befunden worden. Ähnliche Techniken, die dem Fachmann bekannt sind, können verwendet werden, um Glasübergangstemperaturen für coPEN-Zweitpolymere aus den Glasübergängen der Homopolymere der zu verwendenden Monopolymere zu schätzen.

[0228] Zusätzlich sind Polycarbonate mit einer Glasübergangstemperatur, die mit der des PEN kompatibel ist, und mit einem Brechungsindex, der dem isotropen Brechungsindex des PEN entspricht, auch als zweite Polymere geeignet. Polyester, Copolyester, Polycarbonate und Copolycarbonate können auch zusammen einem Extruder zugeführt werden und zu neuen geeigneten copolymeren Zweitpolymeren umgeestert werden.

[0229] Es ist nicht erforderlich, daß das zweite Polymer ein Copolyester oder Copolycarbonat ist. Vinylpolymere und Copolymere, die aus Monomeren hergestellt sind, z. B. Vinylnaphthalene, Styrolene, Ethylene, Maleinanhydride, Acrylate, Acetate und Methacrylate können verwendet werden. Andere Kondensationspolymere als Polyester und Polycarbonate können auch verwendet werden. Beispiele sind u. a. Polysulfone, Polyamide, Polyurethane, Polyamidsäuren und Polyimide. Naphthalengruppen und Halogene, z. B. Chlor, Brom und Iod, sind zur Erhöhung des Brechungsindex des zweiten Polymers auf einen gewünschten Grad geeignet. Acrylatgruppen und Fluor sind besonders bei der Verringerung des Brechungsindex geeignet, wenn dies gewünscht wird.

[0230] Aus der vorstehenden Beschreibung geht hervor, daß die Wahl eines zweiten Polymers nicht nur von der beabsichtigten Anwendung der in Betracht kommenden optischen Mehrschichtfolie abhängt, sondern auch von der Wahl des ersten Polymers und von den Verarbeitungsbedingungen, die beim Strecken angewendet werden. Geeignete zweite Polymermaterialien sind u. a. Polyethylnaphthalat (PEN) und dessen Isomere (z. B. 2,6-, 1,4-, 1,5-, 2,7- und 2,3-PEN), Polyalkylterephthalate (z. B. Polyethylterephthalat, Polybutylterephthalat und Poly-1,4-cyclohexandimethylterephthalat), weitere Polyester, Polycarbonate, Polyarylate, Polyamide (z. B. Nylon 6, Nylon 11, Nylon 12, Nylon 4/6, Nylon 6/6, Nylon 6/9, Nylon 6/10, Nylon 6/12 und Nylon 6/T), Polyamide (einschließlich thermoplastische Polyimide und Polyacrylimide), Polyamidimide, Polyetheramide, Polyetherimide, Polyarylether (z. B. Polyphenylenether und die ringsubstituierte Polyphenylenoxide), Polyaryletherketone, z. B. Polyetheretherketon ("PEEK"), aliphatische Polyketone (z. B. Copolymere und Terpolymere des Ethylen und/oder Propylen mit Kohlendioxid), Polyphenylensulfide, Polysulfone (einschließlich Polyethersulfone und Polyarylsulfone), ataktisches Polystyrol, syndiotaktisches Polystyrol ("sPS") und dessen Derivate (z. B. syndiotaktisches Poly-alpha-methylstyrol und syndiotaktisches Polydichlorstyrol), Gemische aus irgendwelchen dieser Polystyrolene (miteinander oder mit Polymeren, z. B. Polyphenylenoxiden), Copolymere irgendwelcher dieser Polystyrolene (z. B. Styrolbutadien-Copolymere, Styrolacrylonitril-Copolymere und Acrylonitrilbutadienstyrol-Terpolymere), Polyacrylate (z. B. Polymethylacrylat, Polyethylacrylat und Polybutylacrylat), Polymethacrylate (z. B. Polymethylmethacrylat, Polyethylmethacrylat, Polypropylmethacrylat und Polyisobutylmethacrylat), Cellulosederivate (z. B. Ethylcellulose, Celluloseacetat, Cellulosepropionat, Celluloseacetatbutyrat und Cellulosenitrat), Polyalkylenpolymere (z. B. Polyethylen, Polypropylen, Polybutylen, Polyisobutylen und Poly(4-methyl)penten), fluorierte Polymere und Copolymere (z. B. Polytetrafluorethylen, Polytrifluorethylen, Polyvinylidenfluorid, Polyvinylfluorid, fluorierte Ethylenpropylen-Copolymere, Perfluor-Alkoxy-Harze, Polychlortrifluorethylen, Polyethylene-co-Trifluorethylen, Polyethylen-co-Chlortrifluorethylen), chlorierte Polymere (z. B. Polyvinylidenchlorid und Polyvinylchlorid), Polyacrylonitril, Polyvinylacetat, Polyether (z. B. Polyoxymethylen und Polyethylenoxid), Ionomerharze, Elastomere (z. B. Polybutadien, Polyisopren und Neopren), Siliconharze, Epoxydharze und Polyurethane.

[0231] Ebenfalls geeignet sind Copolymere, z. B. Copolymere des PEN, die oben beschrieben sind, sowie jede andere nichtnaphthalengruppenhaltige Copolyester, die nach der oben angegebenen Liste geeigneter Polyester-Comonomere für PEN formuliert werden können. In bestimmten Anwendungen, besonders wenn PET als das erste Polymer dient, sind Copolyester auf der Grundlage von PET oder Comonomere aus diesen oben aufgeführten Listen (coPETs) besonders geeignet. Außerdem kann entweder das erste oder das zweite Polymer aus mischbaren oder nichtmischbaren Gemische aus zwei oder mehr der oben erwähnten Polymere oder

Copolymere bestehen (z. B. Gemische aus sPS und ataktischem Polystyrol oder aus PEN und sPS). Die beschriebenen coPENs und coPETs können direkt synthetisiert werden oder können als Gemisch aus Pellets formuliert sein, wobei mindestens eine Komponente ein Polymer ist, das auf Naphthalendicarbonsäure oder Terephthalatsäure beruht, und andere Komponenten Polycarbonate oder andere Polyester sind, z. B. ein PET, ein PEN oder ein coPET oder ein coPEN.

[0232] Eine weitere bevorzugte Familie von Materialien für das zweite Polymer für bestimmte Anwendungen sind syndiotaktische vinylaromatische Polymere, z. B. syndiotaktisches Polystyrol. Syndiotaktische vinylaromatische Polymere, die erfindungsgemäß geeignet sind, sind u. a. Poly(styrol), Poly(alkylstyrol)e, Poly(arylstyrol)e, Poly(styrolhalid)e, Poly(alkoxystyrol)e, Poly(vinylesterbenzoat), Poly(vinylnaphthalen), Poly(vinylstyrol) und Poly(acenaphthalen) sowie hydrierte Polymere und Gemische oder Copolymere, die diese strukturellen Einheiten aufweisen. Beispiele für Poly(alkylstyrol)e sind u. a. Isomere der folgenden: Poly(methylstyrol), Poly(ethylstyrol), Poly(propylstyrol) und Poly(butylstyrol). Beispiele für Poly(arylstyrol)e sind u. a. Isomere des Poly(phenylstyrol). Was die Poly(styrolhalid)e betrifft, gibt es als Beispiele die Isomere der folgenden: Poly(chlorstyrol), Poly(bromstyrol) und Poly(fluorstyrol). Beispiele für Poly(alkoxystyrol)e sind u. a. Isomere der folgenden: Poly(methoxystyrol) und Poly(ethoxystyrol). Unter diesen Beispielen gibt es besonders bevorzugte Styrolgruppenpolymere, nämlich: Polystyrol, Poly(p-methylstyrol), Poly(m-methylstyrol), Poly(p-tertiärbutylstyrol), Poly(p-chlorstyrol), Poly(m-chlorstyrol), Poly(p-fluorstyrol) und Copolymere des Styrols und des p-Methylstyrols.

[0233] Ferner können Comonomere verwendet werden, um syndiotaktische vinylaromatische Copolymere herzustellen. Zusätzlich zu den Monomeren für die Homopolymere, die oben bei der Definition der syndiotaktischen vinylaromatischen Polymergruppen aufgeführt sind, sind geeignete Copolymere folgende: Olefinmonomere (z. B. Ethylen, Propylen, Butene, Pentene, Hexene, Oktene oder Dezene), Dienmonomere (z. B. Butadien und Isopren) und polare Vinylmonomere (z. B. zyklische Dienmonomere, Methylmethacrylat, Maleinsäureanhydrid und Acrylnitril).

[0234] Die syndiotaktischen vinylaromatischen Copolymere gemäß der vorliegenden Erfindung können Blockcopolymere, Zufallscopolymere oder alternierende Copolymere sein.

[0235] Die syndiotaktischen vinylaromatischen Polymere und Copolymere gemäß der vorliegenden Erfindung haben im allgemeinen eine Syndiotaktizität von mehr als 75% oder darüber, wie durch Kohlenstoff-13-Kernspinresonanz bestimmt wird. Vorzugsweise ist der Grad der Syndiotaktizität höher als 85% racemische zweiwertige Atomgruppen oder mehr als 30% oder besonders bevorzugt mehr als 50% racemische fünfwertige Atomgruppen.

[0236] Obwohl keine besonderen Einschränkungen in bezug auf das Molekulargewicht dieser syndiotaktischen vinylaromatischen Polymere und Copolymere bestehen, ist außerdem vorzugsweise das gewichtsmittelte Molekulargewicht größer als 10000 und kleiner als 1000000 und besonders bevorzugt größer als 50000 und kleiner als 800000.

[0237] Die syndiotaktischen vinylaromatischen Polymere und Copolymere können auch in Form von Polymergemischen beispielweise mit vinylaromatischen Polymeren mit ataktischen Strukturen, vinylaromatischen Polymeren mit isotaktischen Strukturen und allen anderen Polymeren verwendet werden, die mit vinylaromatischen Polymeren mischbar sind. Beispielweise weisen Polyphenylester eine gute Mischbarkeit mit vielen der oben beschriebenen vinylaromatischen Polymeren auf.

[0238] Wenn eine polarisierende Folie unter Verwendung eines Prozesses mit vorwiegend uniaxialer Streckung hergestellt wird, sind besonders bevorzugte Kombinationen aus Polymeren für optische Schichten folgende: PEN/coPEN, PET/coPET, PEN/sPS, PET/sPS, PEN/Eastar™ und PET/Eastar™, wobei "coPEN" ein Copolymer oder ein Gemisch auf Naphthalendicarbonsäuregrundlage bezeichnet (wie oben beschrieben), und Eastar™ ein Polyester oder Copolyester ist (von dem man annimmt, daß es Cyclohexandimethyldioleinheiten und Terephthalateinheiten aufweist), das von Eastman Chemical Co. vertrieben wird. Wenn eine polarisierende Folie durch Manipulation der Prozeßbedingungen eines biaxialen Streckprozesses herzustellen ist, sind besonders bevorzugte Kombinationen aus Polymeren für optische Schichten folgende: PEN/coPEN, PEN/PET, PEN/PBT, PEN/PETG und PEN/PETcoPBT, wobei "PBT" ein Polybutylterephthalat bezeichnet, "PETG" ein Copolymer des PET bezeichnet, das ein zweites Glycol (normalerweise Cyclohexandimethanol) verwendet, und "PETcoPBT" ein Copolyester der Terephthaltsäure oder eines Esters derselben mit einem Gemisch aus Ethylenglycol und 1,4-Butandiol bezeichnet.

[0239] Besonders bevorzugte Kombinationen aus Polymeren für optische Schichten im Falle von Spiegeln oder Farbfolien sind u. a. PEN/PMMA, PET/PMMA, PEN/Ecdel™, PET/Ecdel™, PEN/sPS, PET/sPS, PEN/co-PET, PEN/PETG und PEN/THV™, wobei "PMMA" ein Polymethylmethacrylat bezeichnet, Ecdel™ ein thermoplastisches Polyester oder Copolyester ist (von dem man annimmt, daß es Cyclohexandicarboxylateinheiten, Polytetramethylenetherglycoleinheiten und Cyclohexandimethanoleinheiten aufweist), das von Eastman Chemical Co. vertrieben wird, "coPET" ein Copolymer oder ein Gemisch bezeichnet, das auf Terephthalsäure beruht (wie oben beschrieben), "PETG" ein Copolymer des PET bezeichnet, das ein zweites Glycol (normalerweise Cyclohexandimethanol) verwendet, und THV™ ein Fluorpolymer ist, das von 3M Co. vertrieben wird.

[0240] Für Spiegelfolien wird eine Übereinstimmung der Brechungsindizes des ersten Polymers und des zweiten Polymers in der Richtung senkrecht zur Folienebene mitunter bevorzugt, da diese für einen konstanten Reflektionsgrad in bezug auf den Winkel des einfallenden Lichts sorgt (d. h. es gibt keinen Brewster-Winkel). Beispielweise könnten bei einer spezifischen Wellenlänge die planaren Brechungsindizes für biaxial orientiertes PEN 1,76 betragen, während der zur Folienebene senkrechte Brechungsindex auf 1,49 fallen könnte. Wenn PMMA als zweites Polymer im Mehrschichtaufbau verwendet wird, könnte sein Brechungsindex bei der gleichen Wellenlänge in allen drei Richtungen 1,495 sein. Ein weiteres Beispiel ist das PET/Ecdel™-System, bei dem die analogen Indizes 1,66 und 1,51 für PET sein könnten, während der isotrope Index von Ecdel™ 1,52 sein könnte.

[0241] Es wird mitunter bevorzugt, daß die erfindungsgemäßen optischen Mehrschichtfolien aus mehr als zwei unterscheidbaren Polymeren bestehen. Ein drittes oder nachfolgendes Polymer könnte erfolgreich als adhäsionsbeschleunigende Schicht zwischen dem ersten und dem zweiten Polymer in einem optischen Stapel verwendet werden, und zwar als zusätzliche Komponente in einem Stapel für optische Zwecke, als Schutzgrenzschicht zwischen optischen Stapeln, als Außenschicht, als Funktionsbeschichtung oder zu irgendeinem anderen Zweck. Daher ist die Zusammensetzung eines dritten oder nachfolgenden Polymers, falls vorhanden, nicht beschränkt. Bestimmte bevorzugte Mehrkomponentenausführungen sind in der US-Patentanmeldung 09/006 118 beschrieben (angemeldet am 13. Januar 1998).

[0242] Die Wahlkriterien für die Materialien der optischen Stapelschichten können auch bei der Wahl entsprechender Materialien für dicke interne oder externe Außenschutzschichten geeignet sein. Die Kriterien für das zweite Polymer können erwünschter sein als die für das erste Polymer. In bestimmten Fällen können jedoch die mechanischen Eigenschaften des doppelbrechenden ersten Materials erwünscht sein, z. B. eine hohe Glasübergangstemperatur, um das Festkleben auf Rollen zu reduzieren, niedrige Wärmedehnungskoeffizienten, geringe mechanische Steifigkeit usw. Bei Folien, die zur Nachformung bestimmt sind, kann es erwünscht sein, Materialien mit geringerer Strecksteifigkeit zu verwenden, um die Formbarkeit bei einer gegebenen ausgeübten Belastung, z. B. Vakuumdruck, zu verbessern oder die Dehnbarkeit anderweitig zu verbessern.

Beispiele

[0243] Vorteile der Erfindung sind anhand der folgenden Beispiele dargestellt. Die bestimmten Materialien und deren Mengen, die in diesen Beispielen angegeben sind, sowie weitere Bedingungen und Einzelheiten finden jedoch in der Fachwelt Anwendung und sind nicht so zu verstehen, daß sie die Erfindung unangemessen einschränken.

Beispiel 1

[0244] Beispiel 1 stellt die Verwendung der optischen Mehrschichtfolie zur Verwendung als Lichtleiter für zahnärztliche photochemisch härtende Lichte dar. Die optische Folie wurde zu einer Röhre mit gleichem Durchmesser wie das Leuchtende des zahnärztlichen Härtungslichts der Visilux 2™ (3M, St. Paul) gerollt. Die Röhre wurde mit Kleber fest angeordnet und in bündigen Kontakt mit der externen Fläche des Leuchtendes der Visilux 2™ gebracht. Die Lichtleistung wurde unter Verwendung des Cure Rite, eines Lichtmeßgeräts für sichtbares Licht (Efos Inc., Modell 8000), mit 120 s gemessen. Wenn die Visilux 2™ um eine gemessene Strecke von der Fläche weg bewegt wird, fiel die Lichtleistung deutlich, wie in den Beispielen C1.2 und C1.3 zu sehen ist. Wie im Beispiel C1.3 gezeigt, war die Lichtintensität bei einem annähernden Abstand von 4 Zoll sehr gering. Dagegen war, wie in Beispiel 1.4 gezeigt, die Lichtintensität bei 1 Zoll viel höher mit der optischen Mehrschichtfolien-Lichtröhre. Selbst bei einer Entfernung von 4 Zoll war die Lichtintensität des Beispiels 1.5, wie mit dem Meßgerät gemessen, ausreichend.

Tabelle 1

Beispiel	Mehrschicht-Lichtröhre	Abstand (Zoll)	Lichtleistung (mW/cm ²)
C1.1	nein	0	472,0
C1.2	nein	1	116,5
C1.3	nein	4	12,5
1.4	ja	1	328,0
1.5	ja	4	203,0

Beispiel 2

[0245] Beispiel 2 zeigt, daß die optische Mehrschichtfolie eine einmalige Fähigkeit hat, nämlich sich aufgrund des Vorhandenseins eines UV-absorbierenden Polymers, z. B. PEN, wie ein UV-Filter zu verhalten. Die UV-Leistung wurde gemessen, indem die Spitze der zahnärztlichen photochemisch härtenden Visilux 2TM-Lampe für 10 s auf die Anzeigefläche eines UV-Integrationsradiometers Dynachem (Sterling Va.) gehalten wurde. Wie in Tabelle 2 gezeigt, war die UV-Lichtleistung des härtenden Lichts, das die Anforderungen für zahnärztliche Härtungslichte erfüllte, ohne das UV-Filter dennoch erheblich höher. Die Effizienz des Filters konnte durch eine dickere Folie oder durch Optimierung von UV-absorbierenden Komponenten in der optischen Mehrschichtfolie erhöht werden. Der auf der Folie beruhende optische UV-Mehrschichtfolienfilter konnte verwendet werden, um das Gesamtgewicht der photochemisch härtenden Lampe zu reduzieren.

Tabelle 2

Beispiel	optisches Filter	Dynachem UV-Leistung (Joules/cm ²)
C2.1	nein	676,0
2.2.	eine Folienschicht	485,0

Beispiel 3

[0246] Beispiel 3 ist ein dreifach verzweigter Lichtleiter, der aus einer hochreflektierenden PEN/PMMA-Mehrschichtspiegelfolie vakuumgeformt wurde, die hergestellt wurde, wie in Beispiel 2 der US-Patentanmeldung 08/494 366 beschrieben. Eine koextrudierte Folie, die 601 Schichten enthielt, wurde auf einer sequentiellen Flachfolienproduktionslinie in einem Koextrusionsprozeß hergestellt. Polyethylenaphthalat (PEN) mit einer Grenzviskosität von 0,57 dl/g (60 Gew.-% Phenol/40 Gew.-% Dichlorbenzen) wurde von einem Extruder A mit einer Geschwindigkeit von 114 Pfund pro Stunde abgegeben, wobei 64 Pfund pro Stunde zum Verteilerblock gingen und der Rest zu den Außenschichten, die nachstehend beschrieben werden. PMMA (CP-82 von ICI of Americas) wurde von einem Extruder B mit einer Geschwindigkeit von 61 Pfund pro Stunde abgegeben, wobei alles zum Verteilerblock ging. PEN war auf den Außenschichten des Verteilerblocks. Das Verteilerblockverfahren wurde verwendet, um 151 Schichten unter Verwendung des Verteilerblocks zu erzeugen, z. B. solche, die im US-Patent 3 801 429 beschrieben sind, nach dem Verteilerblock wurden zwei symmetrische Außenschichten unter Verwendung des Extruders C koextrudiert, mit einer Dosierung von etwa 30 Pfund pro Stunde des gleichen Typs von PEN, der vom Extruder A abgegeben wurden. Dieses Extrudat lief durch zwei Vervielfacher, die ein Extrudat von etwa 601 Schichten erzeugten. Das US-Patent 3 565 985 beschreibt ähnliche Koextrusionsvervielfacher. Das Extrudat lief durch eine weitere Vorrichtung, die Außenschichten mit einer Gesamtgeschwindigkeit von 50 Pfund pro Stunde PEN aus dem Extruder A extrudierte. Die Bahn war längenorientiert bis zu einem Streckverhältnis von etwa 3,2 mit einer Bahntemperatur von etwa 280°F. Die Folie wurde anschließend auf etwa 310°F in etwa 38 s vorgewärmt und in Querrichtung bis zu einem Streckverhältnis von etwa 4,5 mit einer Rate von etwa 11%/s gestreckt. Die Folie wurde dann bei 440°F thermofixiert, wobei keine Relaxation erlaubt war. Die fertige Foliendicke war etwa 3 mil dick. Die Bandbreite bei senkrechtem Einfall war

etwa 350 nm, wobei eine mittlere In-Band-Extinktion größer als 99% war. Der Grad der Lichtabsorption war wegen seines niedrigen Wertes schwer zu messen, war ABER kleiner als 1%.

[0247] Ein 17,8 cm (7 Zoll) mal 25,4 cm (10 Zoll) mal 2,5 cm (1 Zoll) großer Holzblock wurde verwendet, um ein Vakuumformwerkzeug herzustellen. Eine Serie von kleinen Löchern wurde in den niedrigsten Teil der Nuten gebohrt, die in dem Holz gefräst waren, wie allgemein in **Fig. 13C** dargestellt. Nach Entfernung der Trennfolie von einer Seite eines doppelseitigen Acrylschaumbandes wurde der Kleber auf den Umfang auf der nichtgefrästen Seite des Holzblocks aufgebracht, um eine Kammer unter dem Formwerkzeug zu bilden; die zweite Trennfolie wurde nicht von der anderen Seite des Klebebandes entfernt.

[0248] Das Formwerkzeug wurde dann auf dem Vakuumtisch einer Vakuumformvorrichtung planiert. Die Mehrschichtfolie wurde in einem Heizrahmen angeordnet, und die Folie wurde für 4 min unter einem elektrischen Heizelement auf 177°C (350°F) erwärmt. Die Folie wurde schnell auf das evakuierte Formwerkzeug abgesenkt, wobei die Polymerfolie in den mit Nuten versehenen Hohlraum gestreckt wurde. Die Folie behielt ihr hohes Reflektionsvermögen nach dem Vakuumformvorgang.

[0249] Während die geformte Folie noch im Formwerkzeug war, wurde das doppelseitige Klebeband auf die Abschnitte der Folie aufgebracht, die nicht in das Formwerkzeug gezogen wurden. Eine zweite Bahn der Spiegelfolie wurde dann auf die geformte Spiegelfolie aufgeklebt. Die Spitzen der vier Enden wurde abgeschnitten, um einen Einlaß mit drei Auslässen zu bilden, wie in **Fig. 13C** gezeigt. Das Ende eines faseroptischen Beleuchtungskörpers wurde in den Einlaß des Lichtleiters eingefügt, und wenn Licht in den Lichtleitereingang gerichtet wurde, trat das Licht aus jedem der Auslässe aus.

[0250] Eine Probe der Mehrschichtspiegelfolie (PEN/PMMA) wurde zu einer Röhre gerollt, die annähernd 4 Zoll lang und 1/4 Zoll im Durchmesser war. Die Röhre wurde in eine zahnärztliche Härtungslampe der 3M Visilux 2™ eingefügt. Die Härtungslampe wurde mit Energie versorgt, und das Licht wurde effektiv durch den Lichtleiter transportiert.

[0251] Ein Vergleich der drei reflektierenden Folien in bezug auf das Lichtreflektionsvermögen, ist in Tabelle 3 dargestellt. Eine Folie Silver-Lux™, eine Folie 90/50 Brightness Enhancement Film II™ (BEF) und eine Mehrschichtspiegelfolie wurden in Streifen von 4 Zoll × 18 Zoll geschnitten. Die Folie Silver-Lux™ und die Mehrschichtspiegelfolie wurden zu Röhren gerollt und in 16 Zoll lange Teile eines grauen PVC-Rohrs eingefügt (1/4 Zoll dicke Wand, 1 Zoll Innendurchmesser). Die Folie 90/50 Brightness Enhancement Film II™ wurde zu einer Röhre gerollt, mit den Nuten zur Außenseite der Röhre und mit der langen Achse der Röhre parallel laufend. Die Folie 90/50 Brightness Enhancement Film II™ wurde dann in einen Teil des grauen PVC-Rohres eingefügt. Jeder Lichtleiter wurde nach seiner Fähigkeit, Licht zu transportieren, bewertet. Eine stabilisierte Newport-Wolfram-Halogen Lampe 780 wurde in ein Ende des Lichtleiters eingefügt, und das andere Ende des Lichtleiters wurde in eine Labsphere Integrationskugel mit einem Durchmesser von 6 Zoll eingefügt. Das Licht wurde unter Verwendung eines Graseby/Optronic-Lichtmeßgeräts gemessen.

Tabelle 3

Folienlichtröhre	Messung Candela/m ²	relative Leistung
Silver-Lux	125	0,80
90/50 BEF II	119	0,76
Mehrschichtspiegel	135	0,87
Gesamtlicht	156	1,00

Patentansprüche

1. Zahnärztlicher Gegenstand mit mindestens einer optischen Fläche, die Licht gewünschter Wellenlängen reflektiert, wobei die optische Fläche einen nachgeformten optischen Stapel (**20, 20', 50, 120, 120', 220, 220'**) mit einer Dicke aufweist, die über die optische Fläche variiert, wobei der nachgeformte optische Stapel mehrere Schichten (**12, 14**) aufweist, wobei die Schichten mindestens ein doppelbrechendes Polymer und mindestens ein anderes Polymer aufweisen,

wobei der optische Stapel (**20, 20', 50, 120, 120', 220, 220'**) eine erste und zweite dehnungsinduzierte Brechungsindexdifferenz aufweist, wobei die erste und die zweite Brechungsindexdifferenz entlang einer ersten und zweiten Achse liegen, die senkrecht zueinander und in einer Ebene liegen, und wobei die erste Brechungsindexdifferenz größer oder gleich der zweiten Brechungsindexdifferenz ist, und wobei ferner die erste Brechungsindexdifferenz größer ist als eine Brechungsindexdifferenz zwischen den Schichten in einer dritten, außerhalb der Ebene liegenden Richtung für den optischen Stapel (**20, 20', 50, 120, 120', 220, 220'**).

2. Zahnärztlicher Gegenstand nach Anspruch 1, wobei im wesentlichen der gesamte optische Stapel (**20, 20', 50, 120, 120', 220, 220'**) mindestens etwa 85% des Lichts der gewünschten Wellenlängen reflektiert.

3. Zahnärztlicher Gegenstand nach Anspruch 1, wobei die Dicke des optischen Stapels (**20, 20', 50, 120, 120', 220, 220'**) um mindestens etwa 10% oder mehr variiert.

4. Zahnärztlicher Gegenstand nach Anspruch 1, wobei der Gegenstand ein zahnärztliches Werkzeug aufweist.

5. Zahnärztlicher Gegenstand nach Anspruch 4, ferner mit einer Antibeschlagbeschichtung auf der optischen Fläche.

6. Zahnärztlicher Gegenstand nach Anspruch 4, wobei die optische Fläche am zahnärztlichen Werkzeug entfernbar befestigt ist.

7. Zahnärztlicher Gegenstand nach Anspruch 4, wobei das zahnärztliche Werkzeug einen Zahnspiegel (**60**) mit einem Griff (**62**) und einem mit dem Griff (**62**) verbundenen Kopf (**64**) aufweist, wobei die optische Fläche (**66**) am Kopf (**64**) des Spiegels (**60**) angeordnet ist.

8. Zahnärztlicher Gegenstand nach Anspruch 7, wobei die optische Fläche (**66**) konvex ist.

9. Zahnärztlicher Gegenstand nach Anspruch 7, wobei die optische Fläche (**66**) am Kopf (**64**) entfernbar befestigt ist.

10. Zahnärztlicher Gegenstand nach Anspruch 9, wobei der Kopf (**64**) ferner mindestens ein Halteelement aufweist und wobei ferner die optische Fläche (**66**) an Ort und Stelle am Kopf von dem mindestens einen Halteelement gehalten wird.

11. Zahnärztlicher Gegenstand nach Anspruch 10, wobei das Halteelement eine Spanneinrichtung umfaßt.

12. Zahnärztlicher Gegenstand nach Anspruch 10), wobei das Halteelement ein Haftmittel umfaßt.

13. Zahnärztlicher Gegenstand nach Anspruch 4, wobei das zahnärztliche Werkzeug einen Lichtleiter (**70, 170, 270, 370**) zur Verwendung in Verbindung mit einem photochemisch härtenden zahnärztlichen Wiederherstellungsmaterial umfaßt, wobei der Lichtleiter einen röhrenförmigen Körper mit einem ersten und zweiten Ende aufweist, wobei das erste Ende zur Befestigung an einer Lichtquelle (**72, 172, 272, 372**) geeignet ist, wobei die optische Fläche auf der Innenseite des Körpers angeordnet ist.

14. Zahnärztlicher Gegenstand nach Anspruch 13, wobei der Körper sich vom ersten Ende zum zweiten Ende verjüngt.

15. Zahnärztlicher Gegenstand nach Anspruch 13, wobei die gewünschten Wellenlängen, die von der optischen Fläche reflektiert werden, im Bereich von etwa 420 nm bis etwa 500 nm sind.

16. Zahnärztlicher Gegenstand nach Anspruch 4, wobei das zahnärztliche Werkzeug ein Matrixband (**80a, 80b**) mit der optischen Fläche aufweist.

17. Zahnärztlicher Gegenstand nach Anspruch 16, wobei die gewünschten Wellenlängen, die von der optischen Fläche reflektiert werden, im Bereich von etwa 420 nm bis etwa 500 nm sind.

18. Zahnärztlicher Gegenstand nach Anspruch 16, wobei ein erster Abschnitt der optischen Fläche Licht der gewünschten Wellenlängen durchläßt und ein zweiter Abschnitt der optischen Fläche Licht der gewünsch-

ten Wellenlängen reflektiert.

19. Zahnärztlicher Gegenstand nach Anspruch 1, wobei der zahnärztliche Gegenstand aufweist: einen Lampenhohlraum (44) mit einer ersten optischen Fläche (46), wobei die erste optische Fläche Licht in einer ersten Gruppe von gewünschten Wellenlängen reflektiert, wobei der Lampenhohlraum ferner eine Öffnung aufweist; und eine Linse (42), die zumindest über einem Abschnitt der Öffnung im Lampenhohlraum angeordnet ist, wobei die Linse (42) eine zweite optische Fläche aufweist, wobei die zweite optische Fläche Licht in einer zweiten Gruppe von gewünschten Wellenlängen reflektiert; wobei die erste und/oder die zweite optische Fläche einen der nachgeformten optischen Stapel (50) nach Anspruch 1 aufweisen.

20. Zahnärztlicher Gegenstand nach Anspruch 19, wobei der optische Stapel mindestens etwa 90% des Lichts der gewünschten Wellenlängen reflektiert.

21. Zahnärztlicher Gegenstand nach Anspruch 19, wobei die erste optische Fläche den optischen Stapel aufweist und wobei ferner die erste Gruppe der gewünschten Wellenlängen, die von der ersten optischen Fläche reflektiert werden, Licht im Bereich von etwa 420 nm bis etwa 500 nm nicht einschließt.

22. Zahnärztlicher Gegenstand nach Anspruch 19, wobei die zweite Gruppe der gewünschten Wellenlängen Licht im Bereich von etwa 420 nm bis etwa 500 nm einschließt.

23. Zahnärztlicher Gegenstand nach Anspruch 19, wobei die erste optische Fläche einen ersten optischen Stapel aufweist und wobei ferner die erste Gruppe der gewünschten Wellenlängen, die von der ersten optischen Fläche reflektiert werden, Licht im Bereich von etwa 420 nm bis etwa 500 nm nicht einschließt und wobei ferner die zweite Gruppe der gewünschten Wellenlängen Licht im Bereich von etwa 420 nm bis etwa 500 nm einschließt.

24. Zahnärztlicher Gegenstand nach Anspruch 1, wobei die Dicke des nachgeformten optischen Stapels ungleichmäßig variiert.

25. Zahnärztlicher Gegenstand nach Anspruch 1, wobei die Dicke des optischen Stapels (20, 20', 50, 120, 120', 220, 220') um mindestens etwa 10% oder mehr variiert und wobei ferner im wesentlichen der gesamte optische Stapel (20, 20', 50, 120, 120', 220, 220') mindestens etwa 85% des Lichts der gewünschten Wellenlängen reflektiert.

26. Zahnärztlicher Gegenstand nach Anspruch 1, wobei die optische Fläche konkav ist.

Es folgen 14 Blatt Zeichnungen

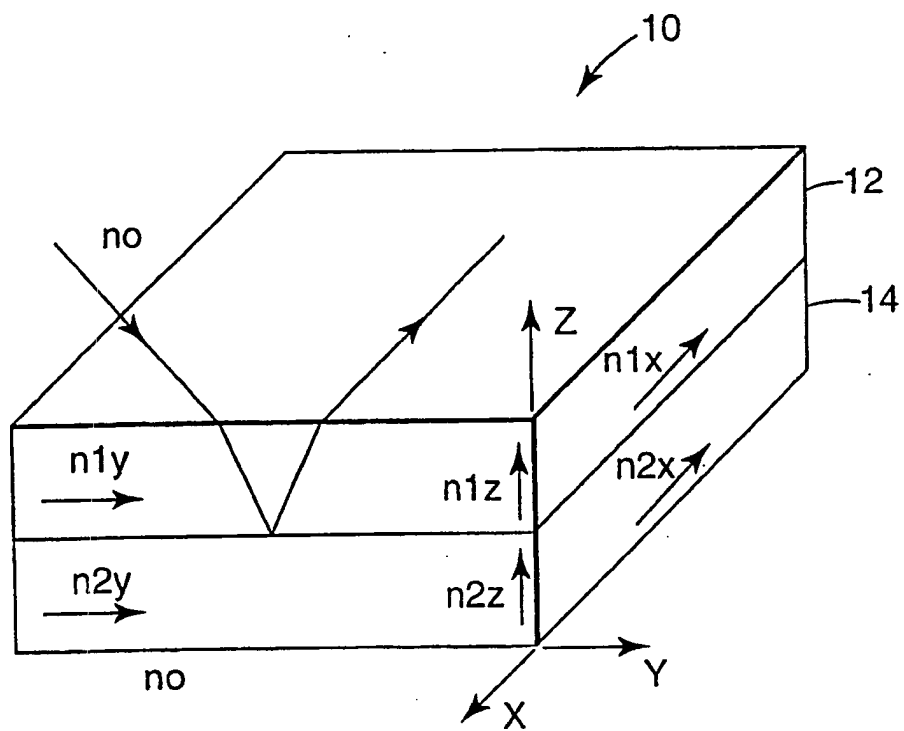


Fig. 1

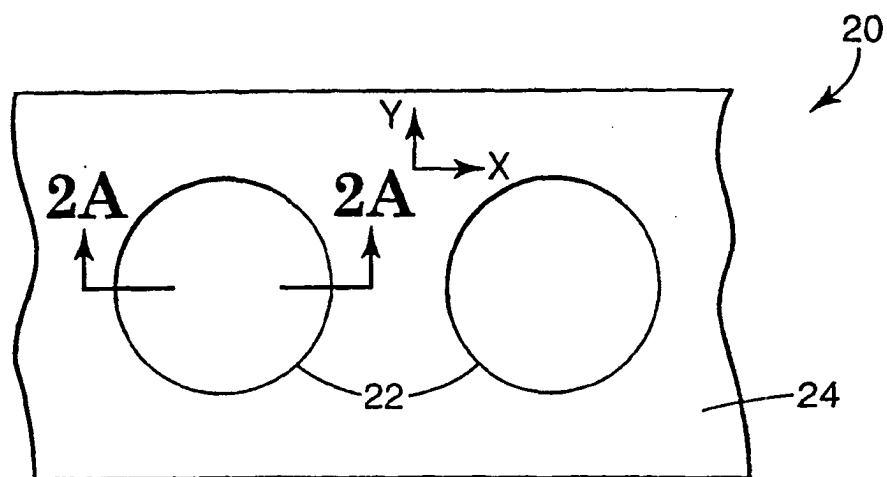


Fig. 2

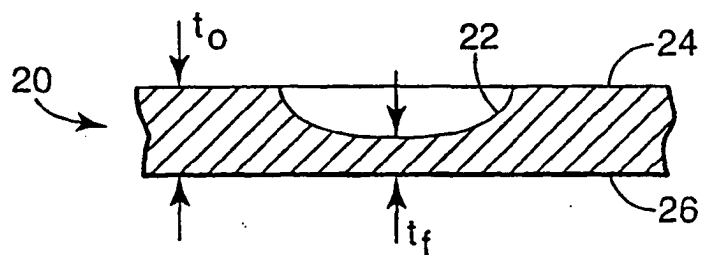


Fig. 2A

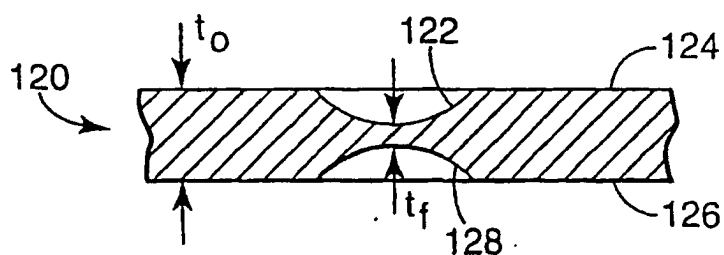


Fig. 2B

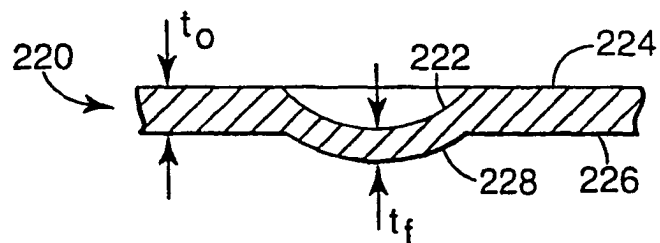


Fig. 2C

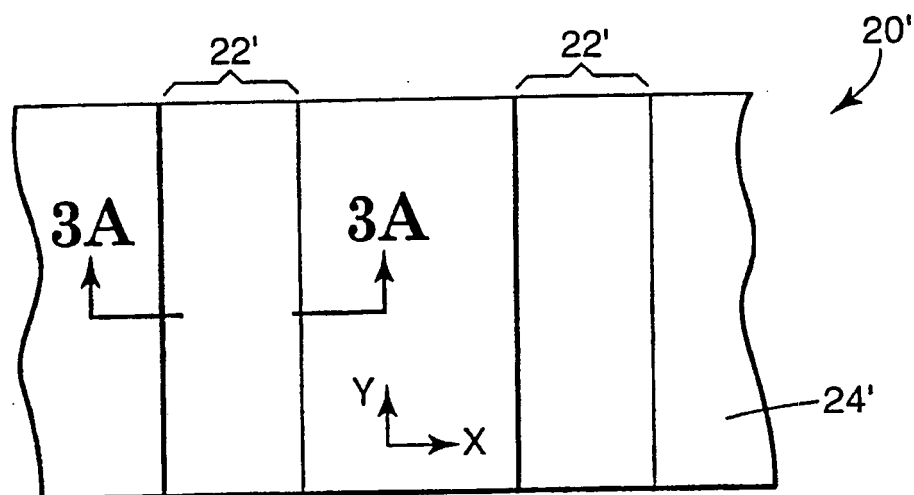


Fig. 3

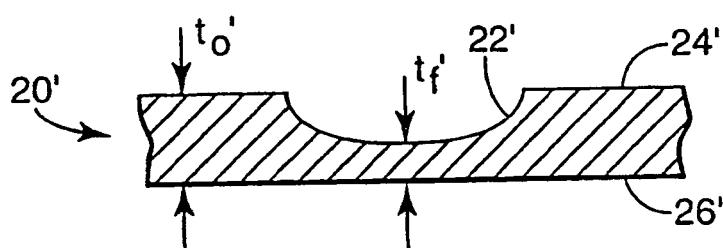


Fig. 3A

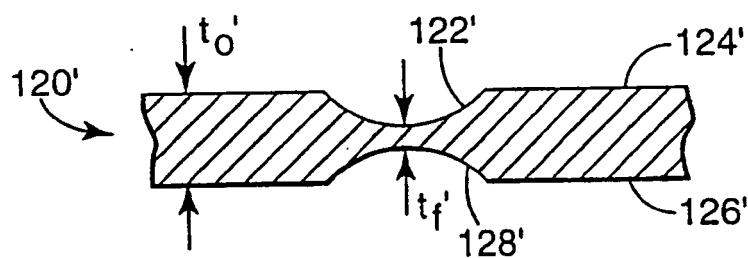


Fig. 3B

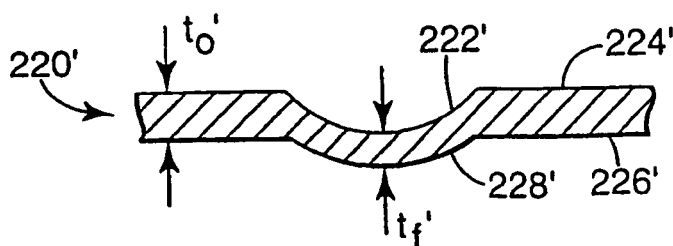


Fig. 3C

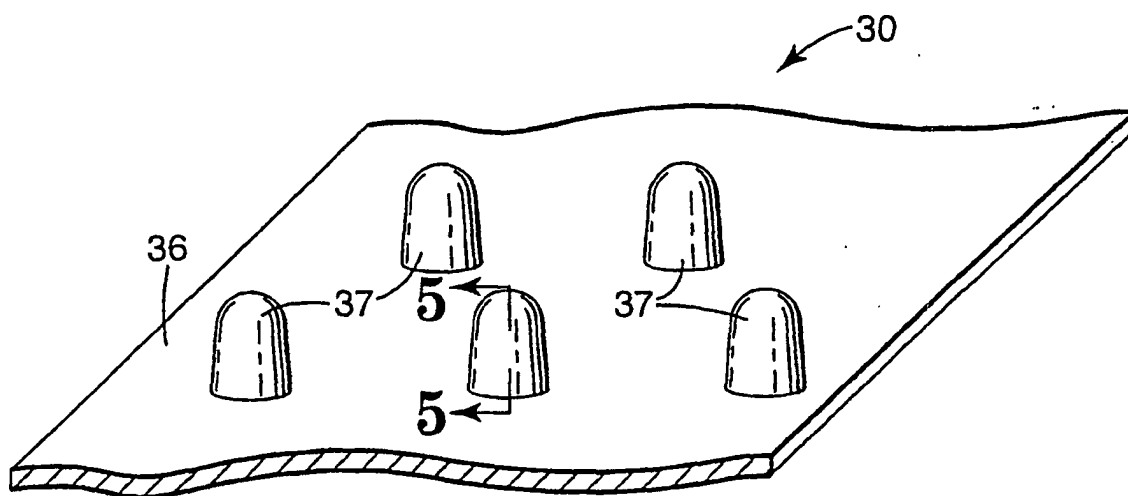


Fig. 4

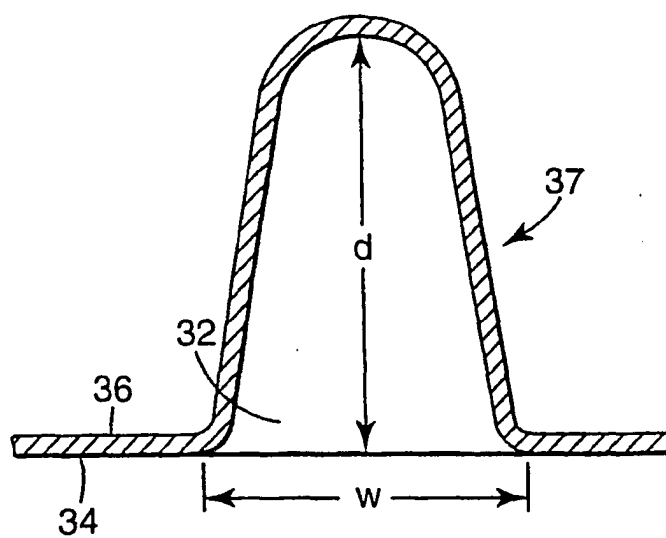


Fig. 5

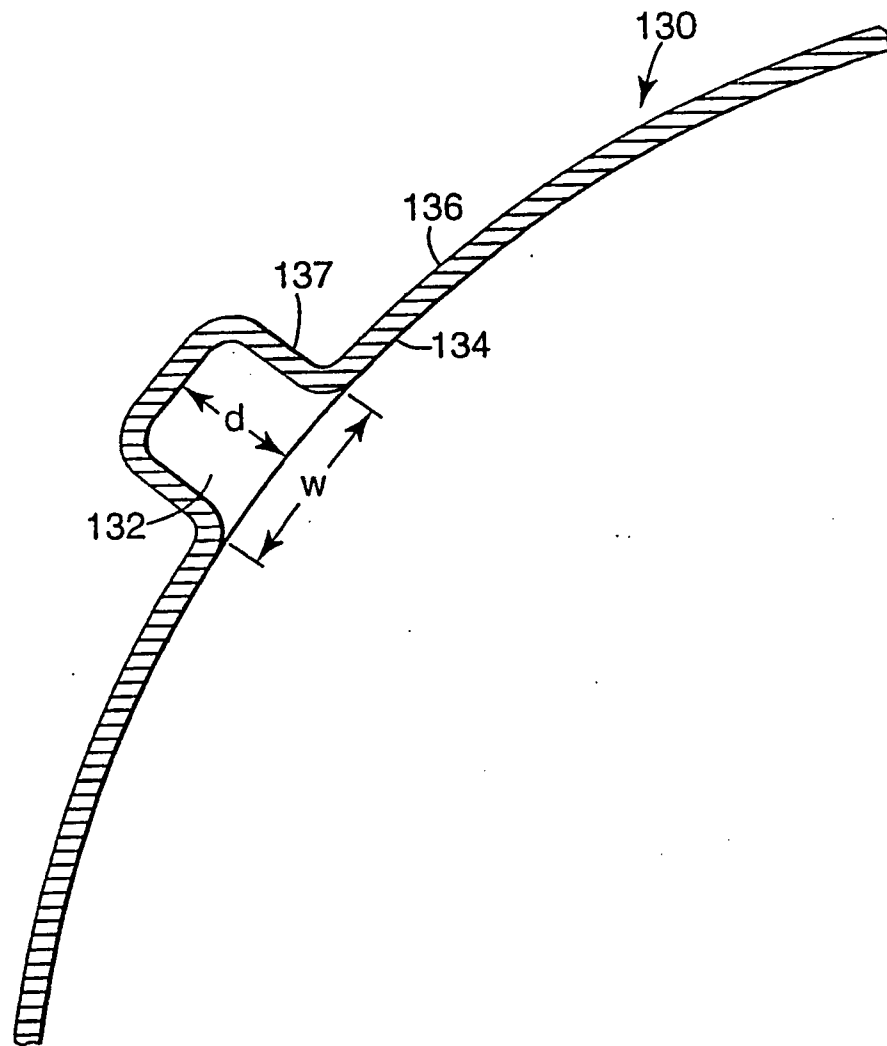


Fig. 6

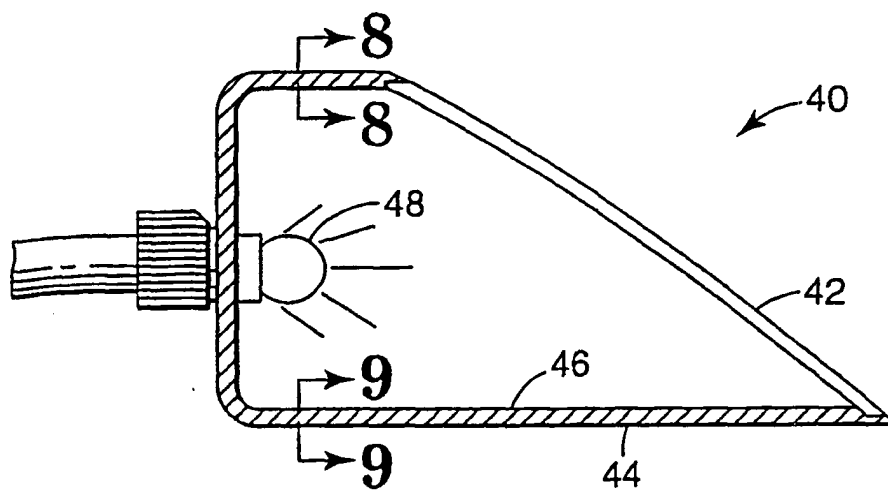


Fig. 7

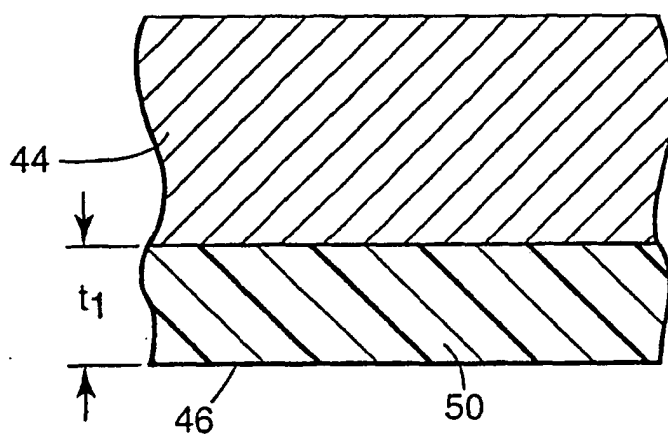


Fig. 8

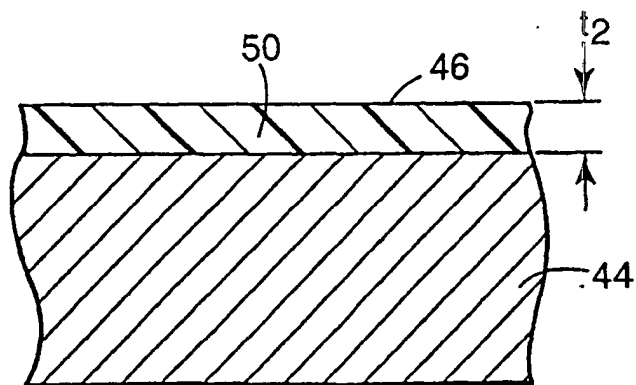


Fig. 9

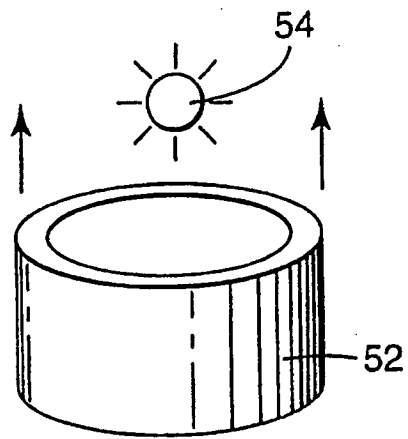


Fig. 10

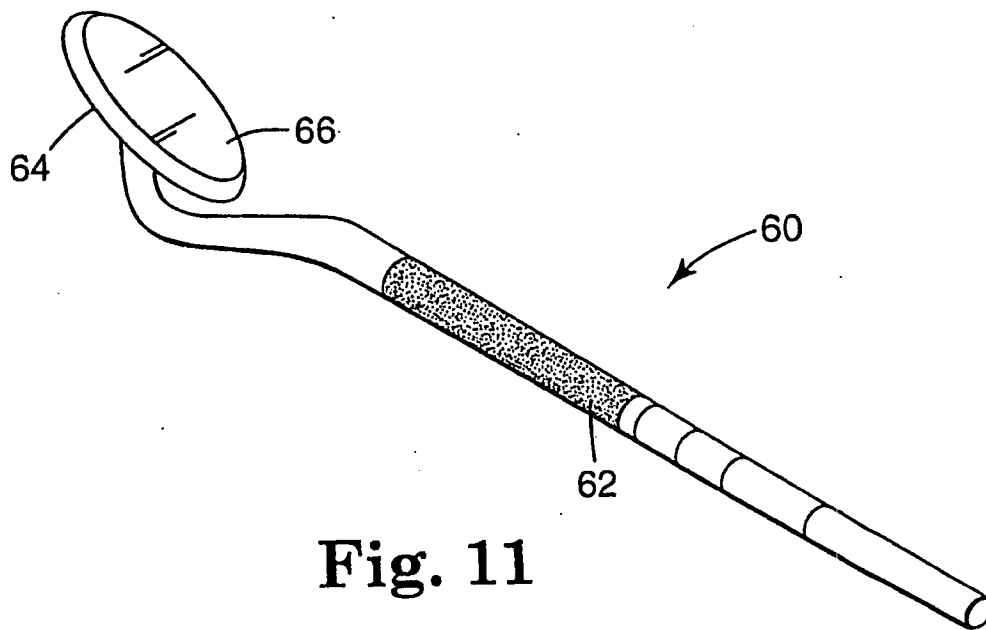


Fig. 11

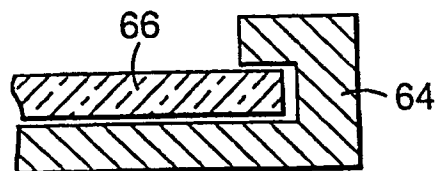


Fig. 11A

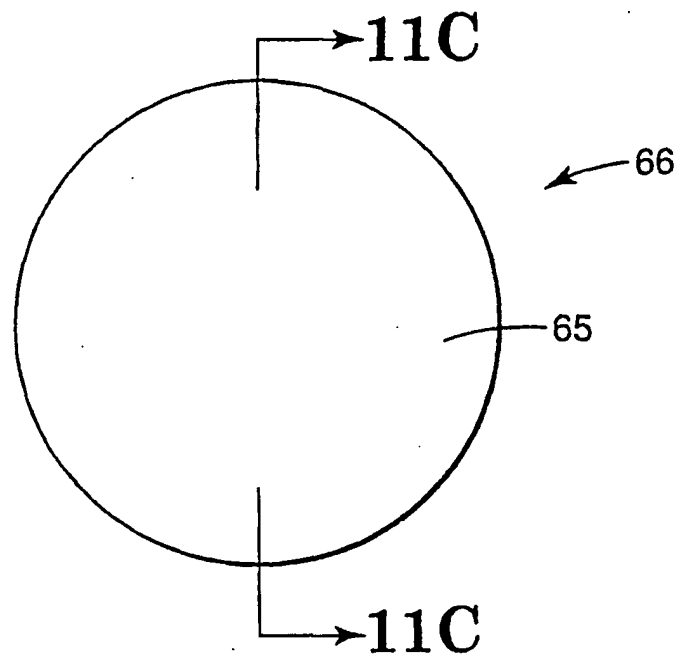


Fig. 11B

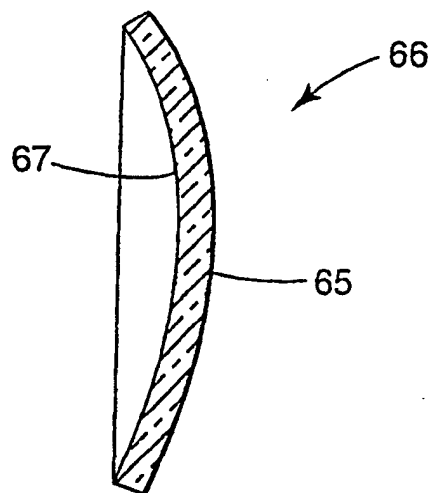


Fig. 11C

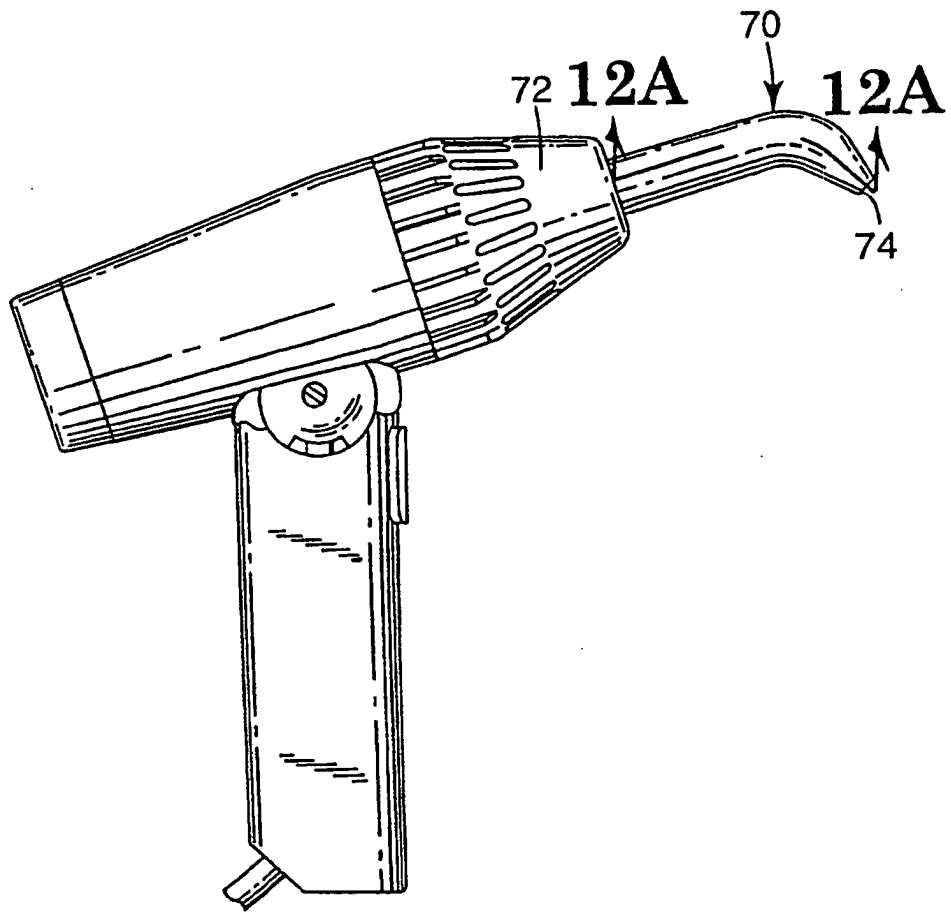


Fig. 12

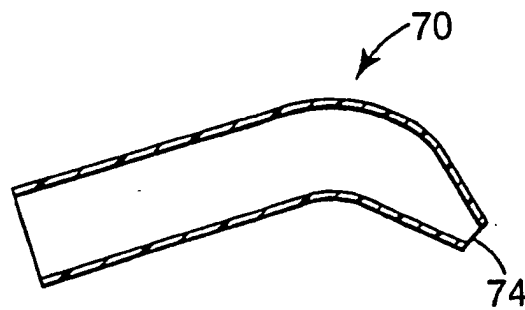


Fig. 12A

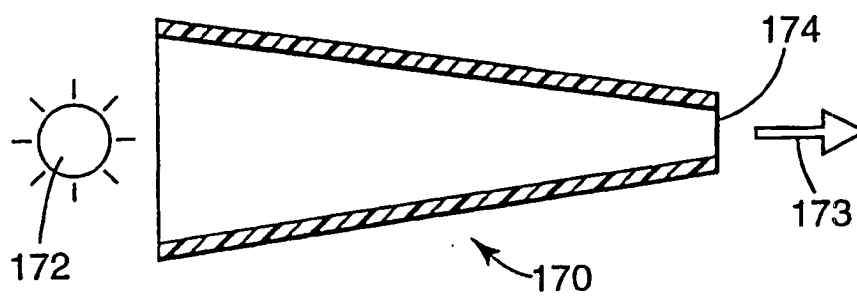


Fig. 13A



Fig. 13B

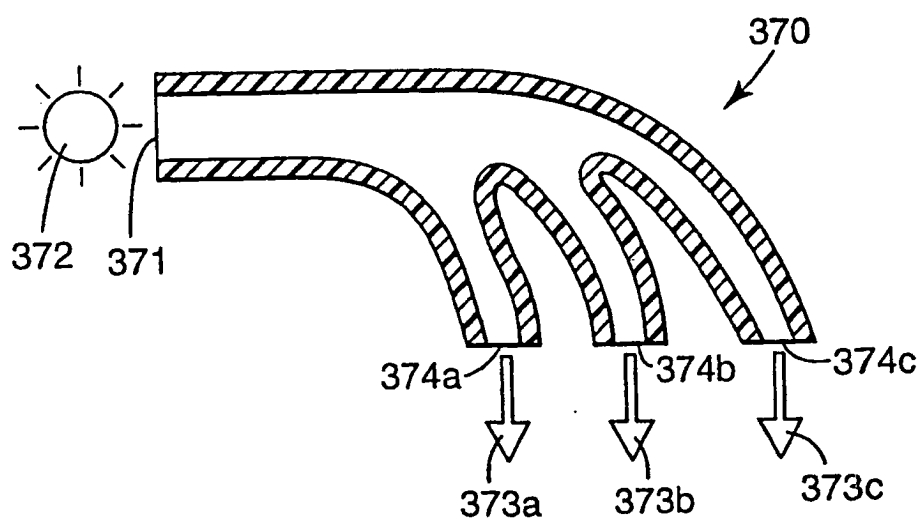


Fig. 13C

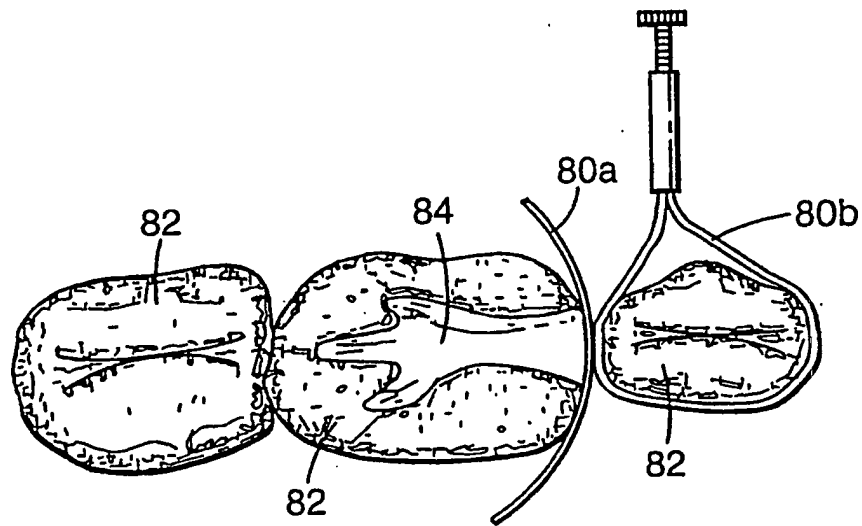


Fig. 14

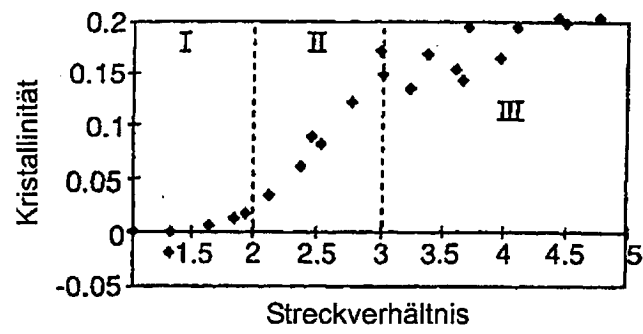


Fig. 15

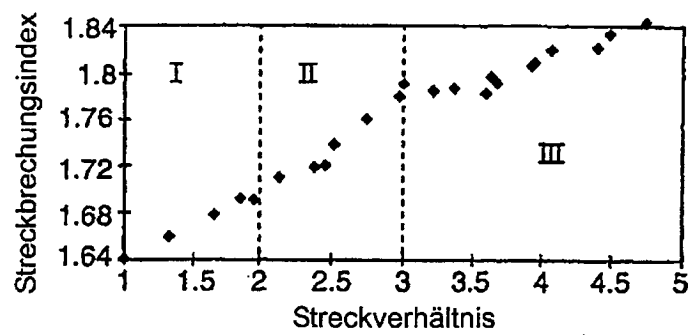


Fig. 15A

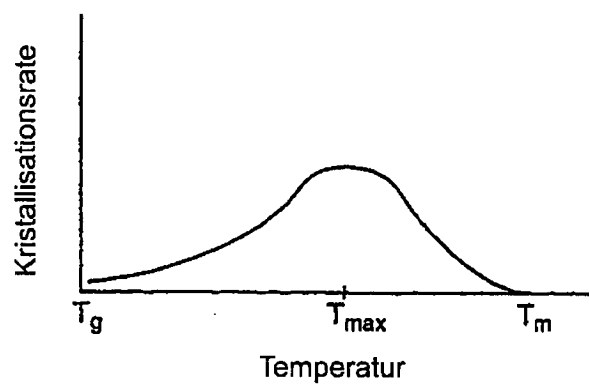


Fig. 16

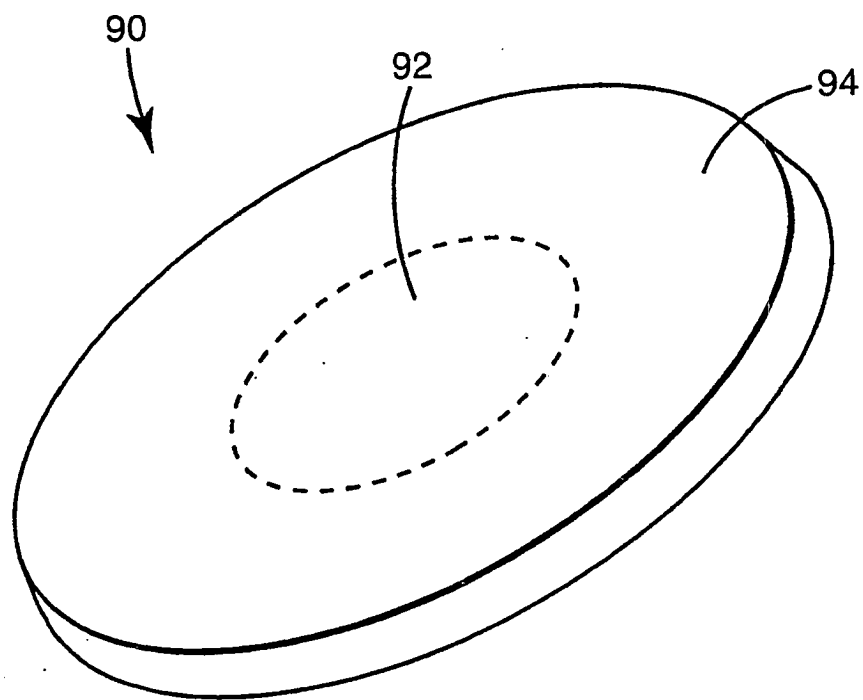


Fig. 17

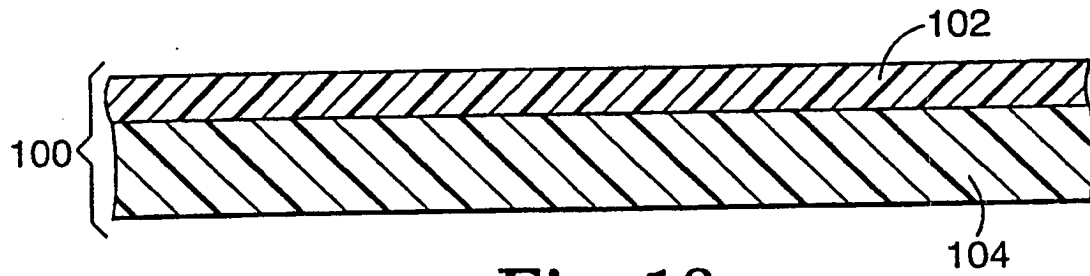


Fig. 18

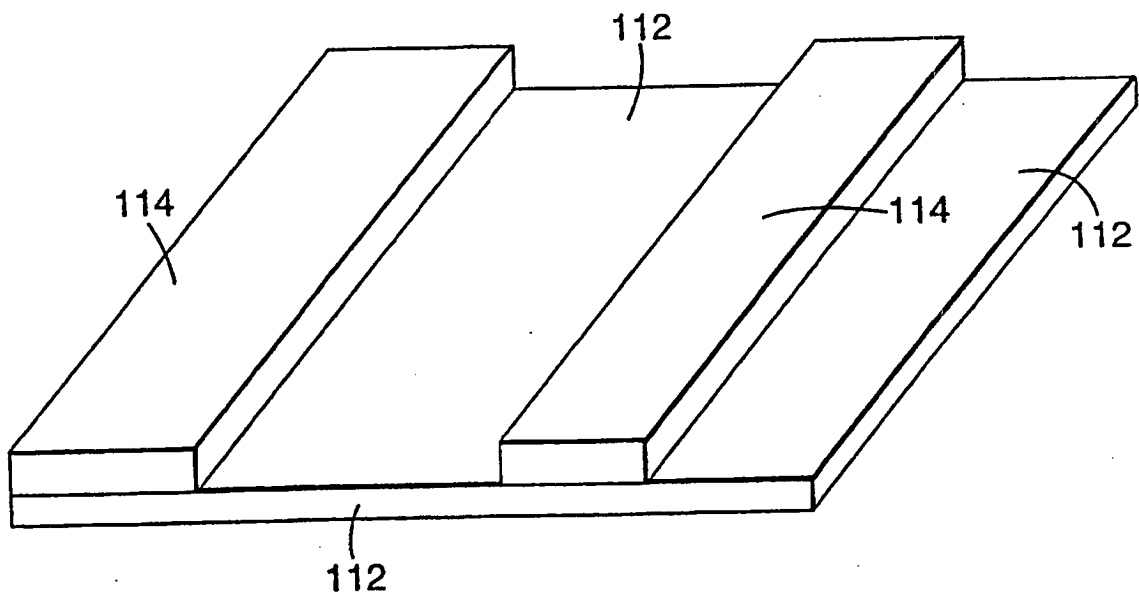


Fig. 19