DEUTSCHE DEMOKRATISCHE REPUBLIK
AMT FÜR ERFINDUNGS- UND PATENTWESEN

PATENTSCHRIFT 146 859

Wirtschaftspatent
Erteilt gemäß § 5 Absatz 1 des Änderungsgesetzes zum Patentgesetz

In der vom Anmelder eingereichten Fassung veröffentlicht

				Int. Cl.³	
(11)	146 859	(44)	04.03.81	3(51)	G 02 B 1/08
(21)	WP G 02 B / 217 271	(22)	30.11.79		

(71) siehe (72)

(72) Drechsel, Ludwig, Dr. Dipl.-Phys.; Lorkowski, Hans-Joachim, Prof. Dr. Dipl.-Chem., DD

(73) siehe (72)

(74) VEB Carl Zeiss Jena, Forschungszentrum, Büro für Schutzrechte, 6900 Jena, Carl-Zeiss-Straße 1

(54) Achromatische Phasenplatte aus organischem Kunststoff und Verfahren zu ihrer Herstellung

(57) Ziel der Erfindung ist es, achromatische Phasenplatten mit verbesserten Eigenschaften, erhöhter Funktionssicherheit und mit vereinfachtem Aufbau herzustellen. Auch das Herstellungsverfahren soll vereinfacht und der technische Aufwand zur Herstellung soll vermindert werden. Die Aufgabe der Erfindung besteht darin, achromatische Phasenplatten herzustellen, die nur aus einem homogenen doppelbrechenden Medium aufgebaut sind. Die Temperaturabhängigkeit des optischen Gangunterschiedes soll unter 1 nm/K gesenkt werden und die Beständigkeit bei Temperaturen von mindestens +55 °C soll gesichert sein. Die erfindungsgemäße achromatische Phasenplatte wird aus einem homogenen Copolymeren aus Methacrylsäurealkylestern, Diallylestern der isomeren Phthalsäuren und/oder Diethylenglykol-bis-allylcarbonat und Styren oder α-Methylstyren gebildet. Achromatische Phasenplatten finden in polarisationsoptischen Systemen in der Meßtechnik und Mikroskopie zur Erzeugung von Licht mit definiertem Polarisationszustand unabhängig von der vorliegenden Wellenlängenzusammensetzung Anwendung.

14 Seiten

Anwendungsgebiet der Erfindung

Die Erfindung bezieht sich auf eine achromatische Phasenplatte aus einem doppelbrechenden organischen Kunststoff und auf ein Verfahren zur Herstellung solcher achromatischer Phasenplatten.
Achromatische Phasenplatten finden Anwendung in polarisationsoptischen Systemen in der Meßtechnik und in der Mikroskopie zur Erzeugung von Licht mit definiertem Polarisationszustand unabhängig von der vorliegenden Wellenlängen-Zusammensetzung.

Charakteristik der bekannten technischen Lösungen

Phasenplatten bestehen üblicherweise aus optisch anisotropen Medien, in denen einfallendes Licht durch die Doppelbrechnung in zwei Teilwellen aufgespalten wird, die senkrecht zu einander polarisiert sind. Diese Teilwellen weisen nach ihrem Austritt aus solchen Platten einen optischen Gangunterschied auf, der durch geeignete Wahl der Plattendicke auf bestimmte Bruchteile oder Vielfache der Wellenlänge des einfallenden Lichtes eingestellt werden kann. Am häufigsten werden $\lambda/4$-, $\lambda/2$ oder λ-Phasenplatten angewandt.
Solche einfachen Phasenplatten erzeugen jedoch auf Grund ihrer Dispersionseigenschaften einen solchen definierten Gangunterschied von beispielsweise $\lambda/4$ nur für eine bestimmte Wellenlänge und sind deshalb nur für monochromatisches Licht einsetzbar.

-3. MAI 1980

Für Arbeiten in einem breiteren Spektralbereich ist es notwendig, einen konstanten Gangunterschied unabhängig von der Wellenlänge zu realisieren. So gehört es zum Stand der Technik, eine Quarzplatte mit einer Platte aus Magnesiumfluorid in gekreuzter Stellung der optischen Achsen unter Einhaltung bestimmter Dickenverhältnisse beider Platten zu kombinieren. Die beiden Platten sind dabei parallel zur optischen Achse geschnitten (DE-OS 1772901). Die damit erreichte Achromasie dieser Phasenplattenanordnung beruht auf einer optimalen Kompensation der Wellenlängenabhängigkeit der Gangunterschiede der Einzelplatten.
Der Mangel dieser achromatischen Phasenplatte besteht jedoch darin, daß sie aus einer Anordnung von verschiedenen doppelbrechenden Kristallmedien aufgebaut ist und die Dicken der Einzelplatten besonders bei Gangunterschieden unter $\lambda/2$ so geringe Werte annehmen müssen, daß sie in Anbetracht der damit verbundenen engen Dickentoleranzen und der gleichzeitig erforderlichen hohen Parallelität der Flächen nur mit sehr hohem technologischen Aufwand herstellbar sind. Außerdem sind die Kosten für die Herstellung der Ausgangskristalle in der erforderlichen Größe sehr hoch.

Ferner ist es bekannt, achromatische Phasenplatten aus verschiedenen doppelbrechenden organischen Polymermedien herzustellen, indem gestreckte Folien aus Cellulosenitrat und Celluloseacetat in der Weise kombiniert werden, daß die Richtungen der größten Brechzahlen gekreuzt sind (US-Pat. 2.441.049).
Auch hierbei ist es von Nachteil, daß zur Realisierung der Achromasie des optischen Gangunterschiedes ein Verbund aus zwei unterschiedlichen Medien notwendig ist, dessen Realisierung eine aufwendige Technologie erfordert.
Zu dem wirkt sich nachteilig aus, daß derartige achromatische Phasenplatten bei Temperaturen von 55°C keine ausreichende Beständigkeit gegen Feuchtigkeit und Wärme besitzen.

Den bekannten technischen Lösungen gemeinsam ist darüber hinaus der Mangel, daß die Funktionstüchtigkeit der bisherigen achromatischen Phasenplatten wesentlich von der genauen Orientierung der optischen Achsen der verschiedenen doppelbrechenden Medien zueinander abhängt, wozu ebenfalls ein hoher Aufwand an Meßtechnik und Technologie notwendig ist.

Ziel der Erfindung

Das Ziel der Erfindung besteht darin, die Mängel der bekannten achromatischen Phasenplatten zu beseitigen, deren Funktionseigenschaften zu verbessern, die Funktionssicherheit zu erhöhen und gleichzeitig deren Aufbau zu vereinfachen. Außerdem soll das Verfahren zur Herstellung achromatischer Phasenplatten vereinfacht und der technische Aufwand zur Realisierung der Achromasie vermindert werden.

Darlegung des Wesens der Erfindung

Aufgabe der Erfindung ist es, achromatische Phasenplatten zu realisieren, die nur aus einem doppelbrechenden Medium aufgebaut sind. Darüber hinaus soll neben der Achromasie gleichzeitig eine Temperaturabhängigkeit des optischen Gangunterschiedes im VIS-Spektralbereich unter 1 nm/K erreicht werden. Weiterhin soll die Beständigkeit der achromatischen Phasenplatten bei Temperaturen von mindestens +55°C gesichert sein.
Zur Aufgabe der Erfindung gehört auch ein Verfahren zur Herstellung derartiger achromatischer Phasenplatten, wobei auch großflächige Formen realisierbar sein sollen.
Erfindungsgemäß wird die Aufgabe durch eine achromatische Phasenplatte aus doppelbrechendem organischen Kunststoff gelöst, die dadurch gekennzeichnet ist, daß sie homogen aus einem Copolymeren von 50 bis 80 Masse-% Methacrylsäurealkylestern mit Alkylgruppen einer Kettenlänge von 1 bis 3 C-Atomen, 10 bis 35 Masse-% Diallylestern der isomeren Phthalsäuren und/oder Diethylenglykol-bis-allylcarbonat

und 4 bis 20 Masse-% Styren oder α-Methylstyren besteht.
Ein weiteres Merkmal der Erfindung besteht in einem Verfahren zur Herstellung derartiger achromatischer Phasenplatten, bei dem jeweils bezogen auf die Gesamtmenge des Ansatzes, eine Mischung von 50 bis 80 Masse-% Methacrylsäurealkylester von einer Kettenlänge von 1 bis 3 C-Atomen im Alkylrest und 10 bis 35 Masse-% Diallylester der isomeren Phthalsäuren oder Diethylenglykol-bis-allylcarbonat und 4 bis 20 Masse-% Styren oder α-Methylstyren in Gegenwart von 0,05 bis 0,2 Masse-% radikalbildender organischer Peroxidverbindungen in einer ersten Stufe 30 Minuten lang bei 80 bis 85°C unter Inertgasatmosphäre vorpolymerisiert wird.
In einer zweiten Stufe wird das Vorpolymerisat in küvettenartige Formen gefüllt, in denen unter Luftabschluß im Verlaufe von 12 Stunden bei 40°C und 24 Stunden bei 50°C und anschließend unter stufenweiser Steigerung der Temperatur auf 105°C innerhalb von weiteren 27 Stunden die Copolymerisation zuende geführt wird.
In einem dritten Verfahrensschritt wird das entstandene plattenförmige, feste Copolymerisat nach der Entformung bei 130°C bis 160°C um das 1,1- bis 2-fache seiner Länge verstreckt.
Eine vorteilhafte Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens besteht darin, daß anstelle der einzelnen Methacrylsäurealkylester Mischungen von mindestens zwei dieser Ester eingesetzt werden.
Eine weitere vorteilhafte Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens besteht darin, daß anstelle der einzelnen isomeren Phthalsäurediallylester Mischungen von mindestens zwei der isomeren Phthalsäurediallylester in den Copolymerisationsansatz eingebracht werden.

Zu den Merkmalen des erfindungsgemäßen Verfahrens gehört es auch, daß Mischungen aus den isomeren Phthalsäurediallylestern und aus Diethylenglykol-bis-allylcarbonat im Copolymerisationsansatz verwendet werden.

Von besonderem Vorteil ist es, daß die erfindungsgemäßen achromatischen Phasenplatten im Gegensatz zu den bekannten technischen Lösungen keine Verbundanordnungen aus verschiedenen doppelbrechenden Medien sind, sondern sie bestehen aus einem einzigen homogenen, organischen Polymermedium. Die Achromasie der bisher bekannten Phasenplatten wurde durch eine Kompensation der verschieden gerichteten Doppelbrechungs- und Dispersionseigenschaften zwischen unterschiedlichen optischen Medien erreicht. Demgegenüber wird die mit der vorliegenden Erfindung erreichte Achromasie und die gleichzeitige hohe Temperaturunabhängigkeit des optischen Gangunterschiedes von $\leq$ 0,5 nm/K mit einem neuen Wirkprinzip erklärt, das in einer intramolekularen Kompensation der unterschiedlich gerichteten Doppelbrechungs- und Dispersionsinkremente der Bestandteile der erfindungsgemäßen Copolymerisate besteht.

Die zur Copolymerisation vorteilhafterweise eingesetzen Methacrylsäureester sind Methacrylsäuremethylester, Methacrylsäureethylester, Methacrylsäurepropylester, während als isomere Phthalsäurediallylester Terephthalsäurediallylester, Isophthalsäurediallylester und o-Phthalsäurediallylester in Frage kommen.

Als radikalbildende Polymerisationsinitiatoren werden vorzugsweise organische Peroxide, wie z.B. Benzoylperoxid, Lauroylperoxid, tert.-Butylperoxid eingesetzt.

Als weiterer Vorteil ist die Tatsache anzusehen, daß die einachsige Verstreckbarkeit der erhaltenen Copolymerisate trotz des Gehaltes an potentiell Duroplaste bildenden Diallylverbindungen bis zu 35 Masse-% voll erhalten bleibt und daher eine Beschränkung der zur Copolymerisation einzusetzenden Stoffe auf ausschließlich Thermoplaste bildende Monomeren nicht notwendig ist.

Ausführungsbeispiele

An Hand der folgenden Ausführungen wird die vorliegende Erfindung näher erläutert.

Beispiel 1

917,6 g (77,4 Masse-%) Methacrylsäuremethylester, 167,7 g (14,1 Masse-%) Terephthalsäurediallylester und 100,7 g (8,5 Masse-%) Styren werden unter Rühren miteinander vermischt. Anstelle des Methacrylsäuremethylesters können mit gleichem Erfolg 957,8 g einer Mischung aus Methacrylsäuremethylester und Methacrylsäurepropylester im Masse-Verhältnis von 80:20 eingesetztwerden.
Nach dem Zusatz von 920 mg (0,08 Masse-%) Dibenzoylperoxid oder 1520 mg (0,13 Masse-%) Dilauroylperoxid als radikalbildende Polymerisationsinitiatoren wird die Mischung bei 80 bis 85°C etwa 30 Minuten unter einer Inertgasatmosphäre aus Argon, Helium oder Stickstoff bis zu einer sirupartigen Konsistenz vorpolymerisiert.
Das noch gießfähige Vorpolymerisat wird in Küvetten aus mit Trennmittel beschichteten Glasplatten gegossen, die einen Hohlraum von 220x220x6 mm^3 umschließen. Nach dem Einfüllen des Vorpolymerisats wird die Öffnung der Küvette abgedeckt, um bei der weiteren Copolymerisation den Luftzutritt zu verhindern. In einem Umlufttrockenschrank erfolgt die Copolymerisation nach folgendem Temperaturprogramm:

40°C	12 Stunden	80°C	1 Std.
50°C	24 "	85°C	1 Std.
55°C	3 "	90°C	1 Std.
60°C	1 Std.	95°C	1 Std.
65°C	1 Std.	100°C	4 Std.
70°C	1 Std.	105°C	3 Std.
75°C	10 Std.		

Anschließend wird die Küvette samt auspolymerisiertem Inhalt auf 70°C abgekühlt und in ein Wasserbad von 35°C gelegt, wodurch die Entformung stattfindet und das Copolymerisat aus der Küvettenform entnommen werden kann. Danach wird das plattenförmige Copolymerisat mit einer Dicke von 4,5 bis 4,6 mm in einer Streckvorrichtung eingespannt, etwa 4 bis 5 Minuten auf 140 bis 150°C erhitzt und dann auf das 1,43-fache seiner ursprünglichen Länge gereckt. Die so hergestellten $\lambda/4$-Phasenplatten zeigen nach dem Abkühlen auf Raumtemperatur eine achromatische Dispersion. Die Ehringhaus-Zahl beträgt -3,55. Der Verlauf des optischen Gangunterschiedes von $\lambda/4$ in Abhängigkeit von der Wellenlänge λ geht aus der folgenden Tabelle 1 hervor:

λ	$\lambda/4$ gemessen	$\lambda/4$ berechnet
486 nm	112,5 nm	121,5 nm
551 nm	134,5 nm	137,7 nm
589 nm	146,1 nm	147,5 nm
656 nm	153,7 nm	164,0 nm

Die gemessene Temperaturabhängigkeit des Gangunterschiedes beträgt $\triangleq$ 0,5 nm/K.

Beispiel 2

Wie im Beispiel 1 beschrieben, wird eine Mischung aus 640 g (52,6 Masse-%) Methacrylsäuremethylester, 360 g (29,6 Masse-%) Terephthalsäurediallylester und 217,5 g (17,8 Masse-%) Styren unter Zugabe von 1350 mg (0,12 Masse-%) Dibenzoylperoxid copolymerisiert. Mit gleichem Erfolg kann anstelle von Styren 246,8 g α-Methylstyren und anstelle von Dibenzoylperoxid können 550 mg (0,05 Masse-%) tert. Butylperoxid eingesetzt werden.

Nach der im Beipiel 1 beschriebenen Entformung werden die in einer Dicke von 4,5 bis 4,6 erhaltenen Platten in einer Streckvorrichtung um das 1,32-fache in Längsrichtung bei einer Temperatur von 150 bis 160°C verstreckt.

Die so erhaltenen Platten zeigen eine Temperaturabhängigkeit des optischen Gangunterschiedes von $\leq$ 0,4 nm/K. Die Werte für die optischen Gangunterschiede $\lambda/4$ in Abhängigkeit von der Wellenlänge λ entsprechen den in Tabelle 1 wiedergegebenen Werten.

Beispiel 3

1105 g (80,5 Masse-%) Methacrylsäurepropylester, 167,7 g (12,2 Masse-%) Terephthalsäurediallylester und 100,7 g (7,3 Masse-%) Styren werden in Gegenwart von 920 mg (0,07 Masse-%) Dibenzoylperoxid oder 1520 mg (0,11 Masse-%) Dilauroylperoxid in der in Beispiel 1 beschriebenen Weise copolymerisiert. Anstelle des Methacrylsäurepropylesters können auch 1043 g einer Mischung aus Methacrylsäuremethylester und Methacrylsäurepropylester im Masseverhältnis von 20:80 eingesetzt werden. Die nach der Entformung erhaltenen Platten werden in einer Streckvorrichtung um das 1,53-fache in Längsrichtung bei einer Temperatur von 130°C bis 140°C verstreckt.
Die Temperaturabhängigkeit des optischen Gangunterschiedes beträgt $\leq$ 0,5 nm/K. Die Abhängigkeit des optischen Gangunterschiedes $\lambda/4$ von der Wellenlänge λ ist aus der folgenden Tabelle 2 zu ersehen.

λ	$\lambda/4$ gemessen	$\lambda/4$ theoret.
486nm	110,0 nm	121,5 nm
551nm	135,1 nm	137,7 nm
589nm	147,0 nm	147,5 nm
656nm	165,1 nm	164,0 nm

Beispiel 4

Analog der in Beispiel 1 beschriebenen Verfahrensweise werden 640 g (52,6 Masse-%) Methacrylsäuremethylester, 360 g (29,6 Masse-%) Isophthalsäurediallylester und 217,5 g (17,8 Masse-%) Styren unter Zugabe von 1350 mg (0,12 Masse-%) Dibenzoylperoxid copolymerisiert.

Nach der im Beispiel 1 beschriebenen Entformung wird die erhaltene Platte in einer Streckvorrichtung um das 1,52-fache bei 140°C - 150°C gestreckt. Die Temperaturabhängigkeit des optischen Gangunterschiedes $\lambda/4$ liegt bei $\leq$ 0,5 nm/K. Der Verlauf des optischen Gangunterschiedes $\lambda/4$ von der Wellenlänge λ ist aus der folgenden Tabelle 3 zu ersehen:

λ	$\lambda/4$ gemessen	$\lambda/4$ theoret.
486 nm	115,7 nm	121,5 nm
551 nm	137,4 nm	137,7 nm
589 nm	146,3 nm	147,5 nm
656 nm	152,6 nm	164,0 nm

Beispiel 5

Wie in Beispiel 1 beschrieben, werden 640 g (52,6 Masse-%) Methacrylsäuremethylester, 360 g (29,6 Masse-%) einer Mischung aus Terephthalsäurediallylester und Isophthalsäurediallylester im Masse-Verhältnis von 85:15 und 217,5 g (17,8 Masse-%) Styren unter Zugabe von 1350 mg (0,12 Masse-%) Dibenzoylperoxid copolymerisiert.
Die nach der Entformung erhaltene Platte wird in einer Streckvorrichtung bei 150°C bis 160°C um das 1,47-fache in Längsrichtung verstreckt. Die so erhaltene achromatische Phasenplatte weist eine Temperaturabhängigkeit des $\lambda/4$-Gangunterschiedes von $\leq$ 0,4 nm/K auf. Der Verlauf des $\lambda/4$-Gangunterschiedes in Abhängigkeit von der Wellenlänge entspricht den Werten der Tabelle 1.

Beispiel 6

800 g (61,25 Masse-%) Methacrylsäuremethylester, 450 g (34,5 Masse-%) Diethylenglykol-bis-allylcarbonat und 55,5 g (4,25 Masse-%) Styren werden unter Zugabe von 850 mg (0,07 Masse-%) Dibenzoylperoxiddicarbonat in der in

Beispiel 1 beschriebenen Verfahrensweise copolymerisiert. Die nach der in Beispiel 1 beschriebenen Entformung erhaltene Platte wird bei 140°C bis 150°C um das 1,34-fache in Längsrichtung verstreckt, um eine achromatische $\lambda/4$-Phasenplatte zu erhalten. Die Temperaturabhängigkeit des $\lambda/4$-Gangunterschiedes beträgt $\triangleq$ 0,5 nm/K. Der Verlauf des $\lambda/4$-Gangunterschiedes in Abhängigkeit von der Wellenlänge λ ist aus der folgenden Tabelle 4 zu ersehen:

λ	$\lambda/4$ gemessen	$\lambda/4$ theoret.
486 nm	122,4 nm	121,5 nm
551 nm	138,7 nm	137,7 nm
589 nm	147,2 nm	147,5 nm
656 nm	157,1 nm	164,0 nm

Beispiel 7

Analog Beispiel 6 werden 800 g (61,1 Masse%) Methacrylsäuremethylester, 455 g (34,7 Masse-%) einer Mischung aus 50 Masse-Teilen Diethylenglykol-bis-allylcarbonat und 50 Masse-Teilen Terephthalsäurediallylester und 55,5 g (4,2 Masse-%) Styren unter Zugabe von 850 mg (0,07 Masse-%) Dibenzoylperoxid in der in Beispiel 1 beschriebenen Verfahrensweise copolymerisiert und entformt. Die erhaltene Platte wird bei 140°C bis 150°C um das 1,38-fache in Längsrichtung verstreckt. Die so entstandene achromatische $\lambda/4$-Phasenplatte hat eine Temperaturabhängigkeit des $\lambda/4$-Gangunterschiedes von $\triangleq$ 0,45 nm/K. Der Verlauf des $\lambda/4$-Gangunterschiedes in Abhängigkeit voh der Wellenlänge λ ist aus der folgenden Tabelle 5 zu entnehmen:

λ	$\lambda/4$ gemessen	$\lambda/4$ theoret.
486 nm	119,3 nm	121,5 nm
551 nm	136,9 nm	137,7 nm
589 nm	145,8 nm	147,5 nm
656 nm	152,4 nm	164,0 nm

In Abhängigkeit vom Verstreckungsgrad bzw. von der nach der Verstreckung eingestellten Schichtdicke können auf der Grundlage der Ausführungsbeispiele wahlweise auch achromatische Phasenplatten mit Gangunterschieden hergestellt werden, die größer oder kleiner als $\lambda/4$ sind. So ist es z.B. nach Beispiel 1 möglich, durch eine Verstreckung um das 1,86-fache eine $\lambda/2$-Phasenplatte herzustellen. Nach Beispiel 2 erhält man analog durch Verstrecken um das 1,16-fache eine $\lambda/8$-Phasenplatte.

Erfindungsanspruch

1. Achromatische Phasenplatte aus doppelbrechendem, organischem Kunststoff, gekennzeichnet dadurch, daß sie homogen aus einem Copolymeren von 50 bis 80 Masse-% Methacrylsäurealkylestern mit Alkylgruppen einer Kettenlänge von 1 bis 3 C-Atomen, 10 bis 35 Masse-% Diallylestern der isomeren Phthalsäuren und/oder Diethylenglykol-bis-allylcarbonat und 4 bis 20 Masse-% Styren oder α-Methylstyren besteht.

2. Verfahren zur Herstellung von achromatischen Phasenplatten aus organischem Kunststoff nach Punkt 1, gekennzeichnet dadurch, daß jeweils bezogen auf die Gesamtmenge der Copolymerisationsmischung, 50 bis 80 Masse-% Methacrylsäurealkylester von einer Kettenlänge von 1 bis 3 C-Atomen im Alkylrest und 10 bis 35 Masse-% Diallylester der isomeren Phthalsäuren oder Diethylenglykol-bis-allylcarbonat und 4 bis 20 Masse-% Styren oder α-Methylstyren in Gegenwart von 0,05 bis 0,2 Masse-% radikalbildender organischer Peroxidverbindungen in einer ersten Stufe 30 Minuten lang bei 80 bis 85°C unter Inertgasatmosphäre vorpolymerisiert werden und die erhaltenen Vorpolymerisate nach dem Einfüllen in Formen in einer zweiten Stufe unter Luftabschluß im Verlaufe von 12 Stunden bei 40°C und 24 Stunden bei 50°C und anschließend unter stufenweiser Steigerung der Temperatur auf 105°C innerhalb von 27 Stunden vollständig copolymerisiert werden und in einer dritten Verfahrensstufe die nach der Entformung erhaltenen plattenförmigen Copolymerisate bei Temperaturen von 130°C bis 160°C um das 1,1- bis 2-fache ihrer Länge verstreckt werden.

3. Verfahren nach Punkt 2, gekennzeichnet dadurch, daß Mischungen von mindestens zwei der Methacrylsäurealkylester eingesetzt werden.

4. Verfahren nach Punkt 2 und 3, gekennzeichnet dadurch, daß Mischungen von mindestens zwei der Diallylester der isomeren Phthalsäuren eingesetzt werden.

5. Verfahren nach Punkt 2, 3 und 4, gekennzeichnet dadurch, daß Mischungen aus den Diallylestern der isomeren Phthalsäuren und aus Diethylenglykol-bis-allylcarbonat eingesetzt werden.