



(19)
Bundesrepublik Deutschland
Deutsches Patent- und Markenamt

(10) **DE 602 20 040 T2** 2008.01.24

(12) **Übersetzung der europäischen Patentschrift**

(97) **EP 1 379 900 B1**

(21) Deutsches Aktenzeichen: **602 20 040.7**

(86) PCT-Aktenzeichen: **PCT/US02/07508**

(96) Europäisches Aktenzeichen: **02 715 101.8**

(87) PCT-Veröffentlichungs-Nr.: **WO 2002/084343**

(86) PCT-Anmeldetag: **14.03.2002**

(87) Veröffentlichungstag
der PCT-Anmeldung: **24.10.2002**

(97) Erstveröffentlichung durch das EPA: **14.01.2004**

(97) Veröffentlichungstag
der Patenterteilung beim EPA: **09.05.2007**

(47) Veröffentlichungstag im Patentblatt: **24.01.2008**

(51) Int Cl.⁸: **G02B 5/30** (2006.01)

B32B 27/36 (2006.01)

G02B 5/32 (2006.01)

(30) Unionspriorität:

835954 16.04.2001 US

(73) Patentinhaber:

3M Innovative Properties Co., St. Paul, Minn., US

(74) Vertreter:

derzeit kein Vertreter bestellt

(84) Benannte Vertragsstaaten:

**AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT,
LI, LU, MC, NL, PT, SE, TR**

(72) Erfinder:

**JONZA, James M., Saint Paul, MN 55133-3427, US;
LORIMOR, Lynn E., Saint Paul, MN 55133-3427,
US; VENKATARAMANI, Shivshankar, Saint Paul,
MN 55133-3427, US**

(54) Bezeichnung: **ANORDNUNG MIT EINEM MEHRSCICHTIGEN REFLEKTIVEN POLARISATOR -POLYMERFILM
MIT EINEM HOLOGRAMM, EINEM GEDRUCKTEN BILD UND EINEM VERIFIZIERENDEN POLARISATORFILM**

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**ALLGEMEINER STAND DER TECHNIK**

[0001] Mehrschichtige optische Stapel sind dafür wohl bekannt, eine weite Vielfalt von optischen Eigenschaften bereitzustellen. Derartige mehrschichtige Stapel können als reflektive Polarisatoren wirken, die Licht aller Polarisierungen reflektieren. Sie können auch als wellenlängenselektive Reflektoren wie etwa „kalte Spiegel“, die sichtbares Licht reflektieren, aber Infrarot hindurchlassen, oder „heiße Spiegel“, die sichtbares Licht hindurchlassen und Infrarot reflektieren, arbeiten. Beispiele für eine weite Vielfalt von mehrschichtigen Stapeln, die aufgebaut werden können, sind in der US-Patentschrift Nr. 5,882,774 enthalten.

[0002] Ein Problem bei mehrschichtigen Stapeln, wie sie in der Technik bekannt sind, ist, dass die Stapel selbst möglicherweise nicht alle der gewünschten physikalischen, chemischen oder optischen Eigenschaften aufweisen können. Daher wäre irgendein Weg, um diese gewünschten Eigenschaften auf eine andere Weise zu liefern, nützlich.

KURZDARSTELLUNG DER ERFINDUNG

[0003] Die vorliegende Erfindung stellt ein wie in den Ansprüchen definiertes System bereit, das in Kombination einen mehrschichtigen Polarisatorfilm, ein gedrucktes Bild, und einen verifizierenden Polarisatorfilm aufweist.

KURZE BESCHREIBUNG DER ZEICHNUNGEN

[0004] [Fig. 1A](#), [Fig. 1B](#), und [Fig. 2](#) zeigen einen mehrschichtigen optischen Film;

[0005] [Fig. 3](#) bis [Fig. 8](#) zeigen Durchlässigkeitspektren für die mehrschichtigen optischen Filme der Beispiele 1 bis 6;

[0006] [Fig. 9](#) zeigt einen mehrschichtigen Film, der eine zusätzliche Schicht aufweist, die an eine seiner Hauptflächen geklebt ist;

[0007] [Fig. 10](#) zeigt einen mehrschichtigen Film, der zusätzliche Schichten aufweist, die an beide seiner Hauptflächen geklebt sind;

[0008] [Fig. 11](#) zeigt einen mehrschichtigen Film, der eine zusätzliche Schicht aufweist, die an eine seiner Hauptflächen geklebt ist, und zwei zusätzliche Schichten aufweist, die an seine andere Hauptfläche geklebt sind;

[0009] [Fig. 12](#) bis [Fig. 18](#) zeigen verschiedene Ausführungsformen, die einen mehrschichtigen Film und ein Hologramm aufweisen;

[0010] [Fig. 19](#) und [Fig. 20](#) veranschaulichen Ausführungsformen, der Erfindung, die ein Hologramm aufweisen, das mit einem verifizierenden Polarisator verwendet wird.

BESCHREIBUNG DER BEVORZUGTEN AUSFÜHRUNGSFORM**Mehrschichtiger optischer Film**

[0011] Die Vorteile, die Merkmale und die Herstellung von mehrschichtigen optischen Filmen sind am vollständigsten in der oben erwähnten US-Patentschrift Nr. 5,882,774 beschrieben. Der mehrschichtige optische Film ist, zum Beispiel, als höchst wirksame Spiegel und/oder Polarisatoren nützlich. Nachstehend wird eine verhältnismäßig kurze Beschreibung der Eigenschaften und Merkmale des mehrschichtigen optischen Films geboten, der eine Beschreibung von erläuternden Ausführungsformen von Rückbeleuchtungssystemen, die den mehrschichtigen optischen Film verwenden, folgt.

[0012] Mehrschichtige optische Filme, wie sie in Verbindung mit der vorliegenden Erfindung verwendet werden, zeigen eine verhältnismäßig geringe Absorption von einfallendem Licht wie auch eine hohe Reflektivität für außeraxiale wie auch normale Lichtstrahlen. Diese Eigenschaften gelten im Allgemeinen, ob die Filme nun für eine reine Reflexion oder für eine reflektive Polarisierung von Licht verwendet werden. Die einzigartigen Eigenschaften und Vorteile des mehrschichtigen optischen Films stellen eine Gelegenheit bereit, höchst wirksame Rückbeleuchtungssysteme zu gestalten, die verglichen mit bekannten Rückbeleuchtungssystemen geringe Absorptionsverluste zeigen.

[0013] Ein wie in [Fig. 1A](#) und [Fig. 1B](#) veranschaulichter beispielhafter mehrschichtiger optischer Film weist einen mehrschichtigen Stapel **10** auf, der abwechselnde Schichten aus mindestens zwei Materialien **12** und **14** aufweist. Mindestens eines der Materialien weist die Eigenschaft der spannungsinduzierten Doppelbrechung auf, so dass der Brechungsindex (n) des Materials durch den Dehnungsvorgang beeinflusst wird. [Fig. 1A](#) zeigt einen beispielhaften mehrschichtigen Stapel vor dem Dehnungsvorgang, in dem beide Materialien den gleichen Brechungsindex aufweisen. Ein Lichtstrahl **13** erfährt eine verhältnismäßig geringe Veränderung des Brechungsindex und verläuft durch den Stapel. In [Fig. 1B](#) wurde der gleiche Stapel gedehnt, wodurch der Brechungsindex des Materials **12** erhöht wurde. Der Unterschied im Brechungsindex an jeder Grenze zwischen Schichten wird verursacht, dass ein Teil des Strahls **15** reflektiert wird. Durch die Dehnung des mehrschichtigen Stapels über einen Bereich der einachsigen bis zweiachsigen Ausrichtung wird ein Film mit einem Bereich von Reflektivitäten für einfallendes

Licht, das in unterschiedlich ausgerichteten Ebenen polarisiert ist, geschaffen. Der mehrschichtige Stapel kann daher als reflektive Polarisatoren oder Spiegel nutzbar gemacht werden.

[0014] Mehrschichtige optische Filme, die nach der vorliegenden Beschreibung aufgebaut sind, zeigen einen Brewsterschen Winkel (der Winkel, bei dem das Reflexionsvermögen für Licht, das auf eine beliebige der Schichtengrenzflächen auftrifft, auf Null geht), der für die Polymerschichtengrenzflächen sehr groß oder nicht vorhanden ist. Im Gegensatz dazu zeigen andere bekannte mehrschichtige Polymerfilme an Schichtengrenzflächen verhältnismäßig kleine Brewstersche Winkel, was zu einer Durchlässigkeit für Licht und/oder unerwünschtem Schillern führt. Die mehrschichtigen optischen Filme nach der vorliegenden Beschreibung gestatten jedoch den Aufbau von Spiegeln und Polarisatoren, deren Reflektivität für p-polarisiertes Licht mit dem Einfallswinkel langsam abnimmt, die vom Einfallswinkel unabhängig ist, oder die mit dem Einfallswinkel von der Normalen weg zunimmt. Als Ergebnis können mehrschichtige Stapel, die sowohl für s- als auch für p-polarisiertes Licht über eine weite Bandbreite und über einen weiten Winkelbereich eine hohe Reflektivität aufweisen, erzielt werden.

[0015] [Fig. 2](#) zeigt zwei Schichten eines mehrschichtigen Stapels und gibt die dreidimensionalen Brechungsindizes für jede Schicht an. Die Brechungsindizes für jede Schicht sind n_{1x} , n_{1y} und n_{1z} für die Schicht **102** und n_{2x} , n_{2y} und n_{2z} für die Schicht **104**. Die Beziehungen zwischen den Brechungsindizes in jeder Filmschicht zueinander und zu jenen der anderen Schichten im Filmstapel bestimmen das Verhalten des Reflexionsvermögens des mehrschichtigen Stapels bei jedem beliebigen Einfallswinkel von jeder beliebigen azimuthalen Richtung. Die Grundsätze und die Gestaltungsüberlegungen, die in der US-Patentschrift Nr. 5,882,774 beschrieben sind, können angewendet werden, um mehrschichtige Stapel zu schaffen, die die gewünschten optischen Wirkungen für eine weite Vielfalt von Umständen und Anwendungen aufweisen. Die Brechungsindizes der Schichten im mehrschichtigen Stapel können beeinflusst und zugeschnitten werden, um die gewünschten optischen Eigenschaften zu erzeugen.

[0016] Unter erneuter Bezugnahme auf [Fig. 1B](#) kann der mehrschichtige Stapel **10** dutzende, hunderte oder tausende Schichten aufweisen, und jede Schicht kann aus jedem beliebigen einer Anzahl von unterschiedlichen Materialien hergestellt sein. Die Merkmale, die die Wahl der Materialien für einen besonderen Stapel bestimmen, hängen von der gewünschten optischen Leistung des Stapels ab. Der Stapel kann so viele Materialien enthalten, wie Schichten im Stapel vorhanden sind. Zur einfacheren Herstellung enthalten bevorzugte optische Dünnschicht-

stapel nur einige unterschiedliche Materialien.

[0017] Die Grenzen zwischen den Materialien, oder chemisch identischen Materialien mit unterschiedlichen physikalischen Eigenschaften, können abrupt oder graduell sein. Außer für einige einfache Fälle mit analytischen Lösungen wird die Analyse der letzteren Art von geschichteten Medien mit fortlaufend unterschiedlichem Brechungsindex gewöhnlich als eine viel größere Anzahl von dünneren gleichförmigen Schichten, die abrupte Grenzen aufweisen, aber nur über eine geringe Veränderung in den Eigenschaften zwischen benachbarten Schichten verfügen, behandelt.

[0018] Der bevorzugte mehrschichtige Stapel weist Filmschichtpaare mit niedrigem/hohem Brechungsindex auf, wobei jedes Schichtpaar mit niedrigem/hohem Brechungsindex eine kombinierte optische Dicke von $1/2$ der Mittenwellenlänge des Bands aufweist, zu dessen Reflexion es gestaltet ist. Stapel derartiger Filme werden allgemein als Viertelwellenstapel bezeichnet. Für mehrschichtige optische Filme, die mit den sichtbaren und den beinahe infraroten Wellenlängen befasst sind, führt eine Viertelwellenstapelgestaltung dazu, dass jede der Schichten im mehrschichtigen Stapel eine durchschnittliche Dicke von nicht mehr als 0,5 Mikron aufweist.

[0019] In den Anwendungen, bei denen reflektive Filme (z.B. Spiegel) gewünscht sind, hängt die gewünschte durchschnittliche Durchlässigkeit für Licht mit jeder Polarisation und jeder Einfallsebene im Allgemeinen von der beabsichtigten Verwendung des reflektiven Films ab. Eine Weise, um einen mehrschichtigen Spiegelfilm herzustellen, ist, einen mehrschichtigen Stapel zweiachsig zu dehnen. Für einen reflektiven Film mit hoher Wirksamkeit ist die durchschnittliche Durchlässigkeit entlang jeder Dehnungsrichtung bei normalem Einfall über das sichtbare Spektrum (380 bis 750 nm) wünschenswerterweise geringer als 10 Prozent (Reflexionsvermögen größer als 90 Prozent), vorzugsweise geringer als 5 Prozent (Reflexionsvermögen größer als 95 Prozent), insbesondere geringer als 2 Prozent (Reflexionsvermögen größer als 98 Prozent), und sogar noch günstiger geringer als 1 Prozent (Reflexionsvermögen größer als 99 Prozent). Die durchschnittliche Durchlässigkeit bei 60 Grad von der Normalen von 380 bis 750 nm ist wünschenswerterweise geringer als 20 Prozent (Reflexionsvermögen größer als 80 Prozent), vorzugsweise geringer als 10 Prozent (Reflexionsvermögen größer als 90 Prozent), insbesondere geringer als 5 Prozent (Reflexionsvermögen größer als 95 Prozent), noch günstiger geringer als 2 Prozent (Reflexionsvermögen größer als 98 Prozent), und sogar noch günstiger geringer als 1 Prozent (Reflexionsvermögen größer als 99 Prozent).

[0020] Zusätzlich können für bestimmte Anwendun-

gen asymmetrisch reflektive Filme erwünscht sein. In diesem Fall kann die durchschnittliche Durchlässigkeit über eine Bandbreite, zum Beispiel, des sichtbaren Spektrums (380 bis 750 nm), oder über das sichtbare Spektrum und in das nahe Infrarot (z.B. 380 bis 850 nm) entlang einer Dehnungsrichtung wünschenswerterweise geringer als, zum Beispiel, 50 Prozent sein, während die durchschnittliche Durchlässigkeit entlang der anderen Dehnungsrichtung wünschenswerterweise geringer als, zum Beispiel, 20 Prozent sein kann.

[0021] Mehrschichtige optische Filme können auch dazu gestaltet werden, als reflektive Polarisatoren tätig zu sein. Eine Weise, um einen mehrschichtigen reflektiven Polarisator herzustellen, ist, einen mehrschichtigen Stapel einachsigt zu dehnen. Die sich ergebenden reflektiven Polarisatoren weisen für Licht mit seiner Polarisationsebene parallel zu einer Achse (in der Dehnungsrichtung) für einen weiten Bereich von Einfallswinkeln eine hohe Reflektivität auf, und weisen gleichzeitig für Licht mit seiner Polarisationsebene parallel zur anderen Achse (der Nichtdehnungsrichtung) für einen weiten Bereich von Einfallswinkeln eine geringe Reflektivität und ein hohes Durchlassvermögen auf. Durch das Steuern der drei Brechungsindizes für jeden Film, n_x , n_y und n_z , kann das gewünschte Polarisatorverhalten erhalten werden.

[0022] Für viele Anwendungen weist der ideale reflektierende Polarisator bei allen Einfallswinkeln ein hohes Reflexionsvermögen entlang einer Achse (der sogenannten Löschachse) und null Reflexionsvermögen entlang der anderen (der sogenannten Durchlässigkeitsachse) auf. Für die Durchlässigkeitsachse eines Polarisators ist im Allgemeinen erwünscht, die Durchlässigkeit für Licht, das in der Richtung der Durchlässigkeitsachse polarisiert ist, über die Bandbreite von Interesse und auch über den Bereich der Winkel von Interesse zu maximieren.

[0023] Die durchschnittliche Durchlässigkeit beim normalen Einfall für einen Polarisator in der Durchlässigkeitsachse über das sichtbare Spektrum (380 bis 750 nm für eine Bandbreite von 300 nm) beträgt wünschenswerterweise mindestens 50 Prozent, vorzugsweise mindestens 70 Prozent, insbesondere mindestens 80 Prozent, und sogar noch günstiger mindestens 90 Prozent). Die durchschnittliche Durchlässigkeit bei 60 Grad von der Normalen (gemessen entlang der Durchlässigkeitsachse für p-polarisiertes Licht) für einen Polarisator von 380 bis 750 nm beträgt wünschenswerterweise mindestens 50 Prozent, vorzugsweise mindestens 70 Prozent, insbesondere mindestens 80 Prozent, und sogar noch günstiger mindestens 90 Prozent.

[0024] Die durchschnittliche Durchlässigkeit für einen mehrschichtigen reflektiven Polarisator bei nor-

malem Einfall für Licht, das in der Richtung der Löschachse polarisiert ist, über das sichtbare Spektrum (380 bis 750 nm für eine Bandbreite von 300 nm) beträgt wünschenswerterweise weniger als 50 Prozent, vorzugsweise weniger als 30 Prozent, insbesondere weniger als 15 Prozent, und sogar noch günstiger weniger als 5 Prozent. Die durchschnittliche Durchlässigkeit bei 60 Grad von der Normalen (gemessen entlang der Durchlässigkeitsachse für p-polarisiertes Licht) für einen Polarisator für Licht, das in der Richtung der Löschachse polarisiert ist, von 380 bis 750 nm beträgt wünschenswerterweise weniger als 50 Prozent, vorzugsweise weniger als 30 Prozent, insbesondere weniger als 15 Prozent, und sogar noch günstiger weniger als 5 Prozent.

[0025] Für bestimmte Anwendungen ist eine hohe Reflektivität für p-polarisiertes Licht mit seiner Polarisationsebene parallel zur Durchlässigkeitsachse bei Winkeln aus der Normalen bevorzugt. Die durchschnittliche Reflektivität für Licht, das entlang der Durchlässigkeitsachse polarisiert ist, sollte bei einem Winkel von mindestens 20 Grad von der Normalen mehr als 20 Prozent betragen.

[0026] Obwohl reflektive polarisierende Filme und asymmetrisch reflektive Filme hierin gesondert besprochen werden, sollte sich zusätzlich verstehen, dass zwei oder mehrere dieser Filme bereitgestellt sein könnten, um im Wesentlichen alles Licht, das auf sie auftrifft, zu reflektieren (sofern sie in Bezug zueinander richtig ausgerichtet sind, um dies zu tun). Dieser Aufbau ist typischerweise erwünscht, wenn der mehrschichtige optische Film als Reflektor in einem Rückbeleuchtungssystem verwendet wird.

[0027] Wenn es entlang der Durchlässigkeitsachse zu etwas Reflektivität kommt, kann die Leistungsfähigkeit des Polarisators bei Winkeln aus der Normalen verringert werden. Wenn die Reflektivität entlang der Durchlässigkeitsachse für verschiedene Wellenlängen unterschiedlich ist, kann in das durchgelassene Licht Farbe eingebracht werden. Eine Weise, um die Farbe zu messen, ist, den quadratischen Mittelwert (RMS) des Durchlassvermögens bei einem gewünschten Winkel oder gewünschten Winkeln über den Wellenlängenbereich von Interesse zu bestimmen. Die Prozent-RMS-Farbe kann nach der Gleichung

$$C_{RMS} = \frac{\int_{\lambda_1}^{\lambda_2} ((T - \bar{T})^2)^{1/2} d\lambda}{\bar{T}}$$

bestimmt werden, wobei λ_1 bis λ_2 der Wellenlängenbereich, oder die Bandbreite, von Interesse ist, T das Durchlassvermögen entlang der Durchlässigkeitsachse ist, und $\bar{T}$ das durchschnittliche Durchlassvermögen entlang der Durchlässigkeitsachse im Wellen-

längenbereich von Interesse ist. Für Anwendungen, bei denen ein schwacher Farbpolarisator erwünscht ist, sollte die Prozent-RMS-Farbe bei einem Winkel von mindestens 30 Grad von der Normalen, vorzugsweise mindestens 45 Grad von der Normalen, und sogar noch günstiger mindestens 60 Grad von der Normalen weniger als 10 Prozent, vorzugsweise weniger als 8 Prozent, insbesondere weniger als 3,5 Prozent, und sogar noch günstiger weniger als 2 Prozent betragen.

[0028] Vorzugsweise kombiniert ein reflektiver Polarisator die gewünschte Prozent-RMS-Farbe entlang der Durchlässigkeitsachse für die besondere Anwendung mit dem gewünschten Ausmaß an Reflektivität entlang der Löschachse über die Bandbreite von Interesse. Für Polarisatoren, die eine Bandbreite im sichtbaren Bereich (400 bis 700 nm, oder eine Bandbreite von 300 nm) aufweisen, ist die durchschnittliche Durchlässigkeit entlang der Löschachse bei normalem Einfall wünschenswerterweise geringer als 40 Prozent, noch erwünschter geringer als 25 Prozent, vorzugsweise geringer als 15 Prozent, insbesondere geringer als 5 Prozent, und sogar noch günstiger geringer als 3 Prozent.

Materialwahl und Verarbeitung

[0029] Mit den Gestaltungsüberlegungen, die in der oben erwähnten US-Patentschrift Nr. 5,882,774 beschrieben sind, kann ein Durchschnittsfachmann leicht verstehen, dass eine weite Vielfalt von Materialien verwendet werden kann, um mehrschichtige reflektive Filme oder Polarisatoren zu bilden, wenn sie unter Bedingungen verarbeitet werden, die gewählt sind, um die gewünschten Brechungsindexbeziehungen zu ergeben. Die gewünschten Brechungsindexbeziehungen können auf eine Vielfalt von Weisen, einschließlich Dehnung während oder nach der Filmbildung (z.B. im Fall organischer Polymere), Extrusion (z.B. im Fall von flüssigkristallinen Materialien), oder Beschichtung, erzielt werden. Zusätzlich wird bevorzugt, dass die beiden Materialien ähnliche rheologische Eigenschaften (z.B. Schmelzviskositäten) aufweisen, so dass sie coextrudiert werden können.

[0030] Im Allgemeinen können durch Wählen eines kristallinen oder halbkristallinen oder flüssigkristallinen Materials, vorzugsweise eines Polymers, als das erste Material passende Kombinationen erzielt werden. Das zweite Material wiederum kann kristallin, halbkristallin oder amorph sein. Das zweite Material kann eine Doppelbrechung aufweisen, die jener des ersten Materials entgegengesetzt oder gleich ist. Oder das zweite Material kann keine Doppelbrechung aufweisen. Es sollte sich verstehen, dass in der Polymertechnik allgemein anerkannt ist, dass Polymere typischerweise nicht vollständig kristallin sind, und dass sich „kristalline“ oder „halbkristalline Polymere“ daher auf jene Polymere bezieht, die nicht

amorph sind, und jedes beliebige jener Materialien beinhaltet, die allgemein als kristallin, teilweise kristallin, halbkristallin, usw. bezeichnet werden. Das zweite Material kann eine Doppelbrechung aufweisen, die jener des ersten Materials entgegengesetzt oder gleich ist. Oder das zweite Material kann keine Doppelbrechung aufweisen.

[0031] Bestimmte Beispiele für geeignete Materialien beinhalten Polyethylenphthalat (PEN) und Isomere davon (z.B. 2,6-, 1,4-, 1,5-, 2,7-, und 2,3-PEN), Polyalkylenterephthalate (z.B. Polyethylen-terephthalat, Polybutylenterephthalat, und Poly-1,4-cyclohexandimethylenterephthalat), Polyimide (z.B. Polyacrylimide), Polyetherimide, ataktisches Polystyrol, Polycarbonate, Polymethacrylate (z.B. Polyisobutylmethacrylat, Polypropylmethacrylat, Polyethylmethacrylat, und Polymethylmethacrylat), Polyacrylate (z.B. Polybutylacrylat und Polymethylacrylat), syndiotaktisches Polystyrol (sPS), syndiotaktisches Poly-alpha-methylstyrol, syndiotaktisches Polydichlorstyrol, Copolymere und Mischungen von beliebigen dieser Polystyrole, Cellulosederivate (z.B.

[0032] Ethylcellulose, Celluloseacetat, Cellulosepropionat, Celluloseacetatbutyrat, und Cellulosenitrat), Polyalkylenpolymere (z.B. Polyethylen, Polypropylen, Polybutylen, Polyisobutylen, und Poly(4-methyl)penten), fluorierte Polymere (z.B. Perfluoralkoxiharze, Polytetrafluorethylen, fluorierte Ethylen-Propylen-Copolymere, Polyvinylidenfluorid, und Polychlortrifluorethylen), chlorierte Polymere (z.B. Polyvinylidenchlorid und Polyvinylchlorid), Polysulfone, Polyethersulfone, Polyacrylnitril, Polyamide, Silikonharze, Epoxidharze, Polyvinylacetat, Polyetheramide, Ionomerharze, Elastomere (z.B. Polybutadien, Polyisopren, und Neopren), und Polyurethane. Ebenfalls geeignet sind Copolymere, z.B. Copolymere von PEN (coPEN) (z.B. Copolymere von 2,6-, 1,4-, 1,5-, 2,7-, und/oder 2,3-Naphthalendicarbonsäure, oder Estern davon, mit (a) Terephthalsäure, oder Estern davon; (b) Isophthalsäure, oder Estern davon; (c) Phthalsäure, oder Estern davon; (d) Alkanglykolen; (e) Cycloalkanglykolen (z.B. Cyclohexandimethandiol); (f) Alkandicarbonsäuren; und/oder (g) Cycloalkandicarbonsäuren (z.B. Cyclohexandicarbonsäure)), Copolymere von Polyalkylenterephthalaten (z.B. Copolymere von Terephthalsäure, oder Estern davon, mit (a) Naphthalendicarbonsäure, oder Estern davon; (b) Isophthalsäure, oder Estern davon; (c) Phthalsäure, oder Estern davon; (d) Alkanglykolen; (e) Cycloalkanglykolen (z.B. Cyclohexandimethandiol); (f) Alkandicarbonsäuren; und/oder (g) Cycloalkandicarbonsäuren (z.B. Cyclohexandicarbonsäure)), und Styrolcopolymere (z.B. Styrol-Butadien-Copolymere und Styrol-Acrylnitril-Copolymere), 4,4'-Bibenzoesäure und Ethylenglykol. Zusätzlich kann jede einzelne Schicht Mischungen von zwei oder mehr der oben beschriebenen Polymere oder Copolymere (z.B. Mischungen von sPS und ataktischem Polysty-

rol) enthalten. Das beschriebene coPEN kann auch eine Mischung von Pellets sein, wobei mindestens ein Bestandteil ein Polymer auf Naphthalendicarbonsäurebasis ist, und andere Bestandteile andere Polyester oder Polycarbonate, wie etwa ein PET, ein PEN oder ein coPEN, sind.

[0033] Besonders bevorzugte Kombinationen von Schichten im Fall von Polarisatoren beinhalten PEN/coPEN, Polyethylenterephthalat (PET)/coPEN, PEN/SPS, PET/SPS, PEN/Estar, und PET/Estar, wobei sich „coPEN“ auf ein Copolymer oder eine Mischung auf Basis von Naphthalendicarbonsäure (wie oben beschrieben) bezieht und Estar Polycyclohexandimethylenterephthalat ist, das von Eastman Chemical Co. im Handel erhältlich ist.

[0034] Besonders bevorzugte Kombinationen von Schichten im Fall von reflektiven Filmen beinhalten PET/Ecdel, PEN/Ecdel, PEN/SPS, PEN/THV, PEN/co-PET, und PET/SPS, wobei sich „co-PET“ auf ein Copolymer oder eine Mischung auf Basis von Terephthalsäure (wie oben beschrieben) bezieht, Ecdel ein thermoplastischer Polyester ist, der von Eastman Chemical Co. im Handel erhältlich ist, und THV ein Fluorpolymer ist, das von der Minnesota Mining and Manufacturing Company, St. Paul, Minnesota, im Handel erhältlich ist.

[0035] Die Anzahl der Schichten im Film wird aus Gründen der Filmdicke, der Biegsamkeit, und der Wirtschaftlichkeit so gewählt, dass die gewünschten optischen Eigenschaften unter Verwendung der Mindestanzahl von Schichten erzielt werden. Im Fall sowohl von Polarisatoren als auch von reflektiven Filmen beträgt die Anzahl der Schichten vorzugsweise weniger als 10.000, insbesondere weniger als 5.000, und sogar noch günstiger weniger als 2.000.

[0036] Wie oben besprochen wird die Fähigkeit, unter den verschiedenen Brechungsindizes die gewünschten Beziehungen (und somit die optischen Eigenschaften des Films) zu erzielen, durch die Verarbeitungsbedingungen, die verwendet werden, um den mehrschichtigen Film anzufertigen, beeinflusst. Im Fall von organischen Polymeren, die durch Dehnung ausgerichtet werden können, werden die Filme im Allgemeinen durch Coextrudieren der einzelnen Polymere, um einen mehrschichtigen Film zu bilden, und dann Ausrichten des Films durch Dehnung bei einer ausgewählten Temperatur, optional gefolgt von einem Heißfixieren bei einer ausgewählten Temperatur, angefertigt. Alternativ können der Extrusions- und der Ausrichtungsschritt gleichzeitig durchgeführt werden. Im Fall von Polarisatoren wird der Film im Wesentlichen in einer Richtung gedehnt (einachsige Ausrichtung), während der Film im Fall von reflektiven Filmen im Wesentlichen in zwei Richtungen gedehnt wird (zweiachsige Ausrichtung).

[0037] Dem Film kann gestattet werden, sich hinsichtlich der Abmessungen in der Richtung quer zur Dehnung von der natürlichen Verringerung quer zur Dehnung (gleich der Quadratwurzel des Dehnungsverhältnisses) zu entspannen; er kann einfach beschränkt werden, um jegliche wesentliche Änderung in der Abmessung quer zur Dehnung zu beschränken; oder er kann in der Abmessung quer zur Dehnung aktiv gedehnt werden. Der Film kann in der Maschinenrichtung gedehnt werden, wie mit einem Längsausrichter, oder unter Verwendung eines Spannr Rahmens in der Breite gedehnt werden.

[0038] Die Temperatur vor der Dehnung, die Dehnungstemperatur, die Dehnungsgeschwindigkeit, das Dehnungsverhältnis, die Heißfixierungstemperatur, die Heißfixierungszeit, die Heißfixierungsentspannung, und die Entspannung quer zur Dehnung werden so gewählt, dass sie einen mehrschichtigen Film ergeben, der die gewünschte Brechungsindexbeziehung aufweist. Diese Variablen sind voneinander abhängig; somit könnte, zum Beispiel, eine verhältnismäßig geringe Dehnungsgeschwindigkeit verwendet werden, wenn sie z.B. mit einer verhältnismäßig niedrigen Dehnungstemperatur gekoppelt wäre. Für einen Durchschnittsfachmann wird offensichtlich sein, wie die passende Kombination dieser Variablen zu wählen ist, um den gewünschten mehrschichtigen Film zu erzielen. Im Allgemeinen ist jedoch ein Dehnungsverhältnis im Bereich von 1 : 2 bis 1 : 10 (insbesondere 1 : 3 bis 1 : 7) in der Dehnungsrichtung und von 1 : 0,2 bis 1 : 10 (insbesondere 1 : 0,2 bis 1 : 7) rechtwinkelig zur Dehnungsrichtung bevorzugt.

[0039] Geeignete mehrschichtige Filme können auch unter Verwendung von Techniken wie etwa Schleuderbeschichtung (z.B. wie in Boese et al., J. Polym. Sci.: Part B, 30: 1321 (1992) beschrieben) für doppelbrechende Polyimide und Vakuumaufdampfung (z.B. wie von Zang et al., Appl. Phys. Letters, 59: 823 (1991) beschrieben) für kristalline organische Verbindungen angefertigt werden; die letztere Technik ist für bestimmte Kombinationen von kristallinen organischen Verbindungen und anorganischen Materialien besonders nützlich.

[0040] In den folgenden Beispielen werden nun beispielhafte mehrschichtige reflektive Spiegelfilme und mehrschichtige reflektive Polarisatoren beschrieben werden.

Beispiel 1

(PEN:THV 500, 449, Spiegel)

[0041] Ein coextrudierter Film, der 449 Schichten enthielt, wurde hergestellt, indem die Gießbahn in einer Tätigkeit extrudiert wurde und der Film später in einer Labor-Filmdehnungsvorrichtung ausgerichtet wurde. Ein Polyethylenaphthalat (PEN) mit einer

Grenzviskositätszahl von 0,53 dl/g (in einer Lösung aus 60 Gewichtsprozent Phenol/40 Gewichtsprozent Dichlorbenzen gemessen) wurde durch einen Extruder mit einer Geschwindigkeit von 56 Pfund (25 kg) pro Stunde geliefert, und THV 500 (ein von der Minnesota Mining and Manufacturing Company erhältliches Fluoropolymer) wurde durch einen anderen Extruder mit einer Geschwindigkeit von 11 Pfund (5 kg) pro Stunde geliefert. Das PEN befand sich an den Hautschichten, und 50 Prozent des PEN war in den beiden Hautschichten vorhanden. Das Feedblockverfahren wurde verwendet, um 57 Schichten zu erzeugen, die durch drei Vervielfacher geführt wurden, wodurch ein Extrudat aus 449 Schichten hergestellt wurde. Die Gießbahn war 20 Tausendstel Inch (0,51 mm) dick und 30,4 cm breit. Die Bahn wurde später unter Verwendung einer Labor-Dehnungsvorrichtung, die einen Pantograf verwendet, um einen quadratischen Abschnitt des Films zu ergreifen und ihn mit einer gleichmäßigen Geschwindigkeit gleichzeitig in beide Richtungen zu dehnen, zweiachsig ausgerichtet. Ein Quadrat von 7,46 cm der Bahn wurde bei etwa 100°C in die Dehnvorrichtung geladen und in 60 Sekunden auf 140°C erhitzt. Die Dehnung begann dann bei 10 Prozent/Sekunde (auf Basis der ursprünglichen Abmessungen), bis die Probe auf etwa 3,5 × 3,5 gedehnt war. Sofort nach der Dehnung wurde die Probe durch Aufblasen von Luft mit Raumtemperatur gekühlt.

[0042] [Fig. 3](#) zeigt die Durchlässigkeit dieses mehrschichtigen Films. Kurve (a) zeigt das Ansprechen bei normalem Einfall für Licht, das in der Durchlässigkeitsrichtung polarisiert ist, während Kurve (b) das Ansprechen bei 60 Grad für p-polarisiertes Licht, das in der Durchlässigkeitsrichtung polarisiert ist, zeigt.

Beispiel 2

(PEN:PMMA, 601, Spiegel)

[0043] Ein coextrudierter Film, der 601 Schichten enthielt, wurde über einen Coextrusionsvorgang an einer sequenziellen Flachfilmfertigungsstraße hergestellt. Polyethylenaphthalat (PEN) mit einer Grenzviskositätszahl von 0,57 dl/g (in einer Lösung aus 60 Gewichtsprozent Phenol/40 Gewichtsprozent Dichlorbenzen gemessen) wurde durch einen Extruder A mit einer Geschwindigkeit von 114 Pfund (52 kg) pro Stunde geliefert, wobei 64 Pfund (29 kg) pro Stunde an den Feedblock gingen und der Rest an nachstehend beschriebene Hautschichten ging. PMMA (CP-82 von ICI of Americas) wurde durch einen Extruder B mit einer Geschwindigkeit von 61 Pfund (28 kg) pro Stunde geliefert, wobei alles davon an den Feedblock ging. PEN befand sich an den Hautschichten des Feedblocks. Das Feedblockverfahren wurde verwendet, um 151 Schichten zu erzeugen, wobei ein Feedblock wie die in der US-Patentschrift Nr. 3,801,429 beschriebenen verwendet wurden.

Nach dem Feedblock wurden unter Verwendung eines Extruders C, der etwa 30 Pfund (14 kg) pro Stunde der gleichen Art von PEN, wie sie durch den Extruder A geliefert wurde, dosierte, zwei symmetrische Hautschichten coextrudiert. Dieses Extrudat verlief durch zwei Vervielfacher, wodurch ein Extrudat von etwa 601 Schichten hergestellt wurde. Die US-Patentschrift Nr. 3,565,985 beschreibt ähnliche Coextrusionsvervielfacher. Das Extrudat verlief durch eine andere Vorrichtung, die aus PEN vom Extruder A Hautschichten mit einer gesamten Geschwindigkeit von 50 Pfund (23 kg) pro Stunde coextrudierte. Die Bahn wurde bei einer Bahntemperatur von etwa 138°C zu einem Zugverhältnis von etwa 3,2 längsausgerichtet. Der Film wurde anschließend in etwa 38 Sekunden auf etwa 154°C vorerhitzt und mit einer Geschwindigkeit von etwa 11 Prozent pro Sekunde in der Querrichtung zu einem Zugverhältnis von etwa 4,5 gezogen. Der Film wurde dann bei 227°C heißfixiert, wobei keine Entspannung gestattet wurde. Die Dicke des fertiggestellten Films betrug etwa 3 Tausendstel Inch (0,08 mm).

[0044] Wie in Kurve (a) von [Fig. 4](#) ersichtlich beträgt die Bandbreite bei normalem Einfall etwa 350 nm mit einer durchschnittlichen Löschung innerhalb des Bands von mehr als 99 Prozent. Das Ausmaß der optischen Absorption ist aufgrund ihres niedrigen Werts schwer zu messen, beträgt aber weniger als 1 Prozent. Bei einem Einfallswinkel von 50 Prozent von der Normalen zeigte sowohl s- (Kurve (b)) als auch p-polarisiertes Licht (Kurve (c)) ähnliche Löschungen, und die Bänder wurden wie erwartet zu kürzeren Wellenlängen verschoben. Die rote Bandkante für s-polarisiertes Licht wird aufgrund der erwarteten größeren Bandbreite für s-polarisiertes Licht und aufgrund des niedrigeren Brechungsindex, der durch das p-polarisierte Licht in den PEN-Schichten erfahren wird, nicht so sehr zum Blauen verschoben, wie für p-polarisiertes Licht.

Beispiel 3

(PEN:PCTG, 449, Polarisator)

[0045] Ein coextrudierter Film, der 481 Schichten enthielt, wurde hergestellt, indem die Gießbahn in einer Tätigkeit extrudiert wurde und der Film später in einer Labor-Filmdehnungsvorrichtung ausgerichtet wurde. Es wurde das Feedblockverfahren mit einem 61-Schichten-Feedblock und drei (2×) Vervielfachern verwendet. Zwischen dem letzten Vervielfacher und dem Mundstück wurden dicke Hautschichten hinzugefügt. Polyethylenaphthalat (PEN) mit einer Grenzviskositätszahl von 0,47 dl/g (in einer Lösung aus 60 Gewichtsprozent Phenol/40 Gewichtsprozent Dichlorbenzen gemessen) wurde durch einen Extruder mit einer Geschwindigkeit von 25,0 Pfund (11,3 kg) pro Stunde zum Feedblock geliefert. Glykolmodifiziertes Polyethylendimethylcyclohexanterephthalat

(PCTG 5445 von Eastman) wurde durch einen anderen Extruder mit einer Geschwindigkeit von 25,0 Pfund (11,3 kg) pro Stunde geliefert. Ein anderer Strom von PEN vom obigen Extruder wurde nach den Vervielfachern mit einer Geschwindigkeit von 25,0 Pfund (11,3 kg) pro Stunde als Hautschichten hinzugefügt. Die Gießbahn war 0,18 mm dick und 30,5 cm breit. Die Bahn wurde später unter Verwendung einer Labor-Dehnungsvorrichtung, die einen Pantograf verwendet, um einen Abschnitt des Films zu ergreifen und ihn mit einer gleichmäßigen Geschwindigkeit in eine Richtung zu dehnen, während ihm in der anderen Richtung eine freie Entspannung gestattet wird, einachsigt ausgerichtet. Die geladene Probe der Bahn war etwa 5,40 cm breit (in der nicht beschränkten Richtung) und zwischen den Greifern des Pantografs 7,45 cm lang. Die Bahn wurde bei etwa 100°C in die Dehnungsvorrichtung geladen und für 45 Sekunden auf 135°C erhitzt. Die Dehnung wurde dann mit 20 Prozent/Sekunde (auf Basis der ursprünglichen Abmessungen) begonnen, bis die Probe auf etwa 6 : 1 (auf Basis von Messungen zwischen den Greifern) gedehnt war. Sofort nach der Dehnung wurde die Probe durch Aufblasen von Luft mit Raumtemperatur gekühlt. Es wurde festgestellt, dass sich die Probe in der Mitte um einen Faktor von 2,0 entspannte.

[0046] [Fig. 5](#) zeigt die Durchlässigkeit dieses mehrschichtigen Films, wobei Kurve a die Durchlässigkeit für Licht, das in der Nichtdehnungsrichtung polarisiert ist, bei normalem Einfall zeigt, Kurve b die Durchlässigkeit für p-polarisiertes Licht, das in der nicht gedehnten Richtung polarisiert ist, bei einem Einfall von 60 Grad zeigt, und Kurve c die Durchlässigkeit für Licht, das in der Dehnungsrichtung polarisiert ist, bei normalem Einfall zeigt. Die durchschnittliche Durchlässigkeit für die Kurve a von 400 bis 700 nm beträgt 89,7 Prozent, die durchschnittliche Durchlässigkeit für die Kurve b von 400 bis 700 nm beträgt 96,9 Prozent, und die durchschnittliche Durchlässigkeit für die Kurve c von 400 bis 700 nm beträgt 4,0 Prozent. Die Prozent-RMS-Farbe für die Kurve a beträgt 1,05 Prozent, und die Prozent-RMS-Farbe für die Kurve b beträgt 1,44 Prozent.

Beispiel 4

(PEN:coPEN, 601, Polarisator)

[0047] Ein coextrudierter Film, der 601 Schichten enthielt, wurde über einen Coextrusionsvorgang an einer sequenziellen Flachfilmfertigungsstraße hergestellt. Ein Polyethylenaphthalat (PEN) mit einer Grenzviskositätszahl von 0,54 dl/g (in einer Lösung aus 60 Gewichtsprozent Phenol/40 Gewichtsprozent Dichlorbenzen gemessen) wurde durch einen Extruder mit einer Geschwindigkeit von 75 Pfund (34 kg) pro Stunde geliefert, und das coPEN wurde durch einen anderen Extruder mit 65 Pfund (29 kg) pro Stun-

de geliefert. Das coPEN war ein Copolymer von 70 Molprozent 2,6-Naphthalendicarboxylatmethylester, 15 Prozent Dimethylisophthalat und 15 Prozent Dimethylterephthalat mit Ethylenglykol. Das Feedblockverfahren wurde verwendet, um 151 Schichten zu erzeugen. Der Feedblock war dazu gestaltet, einen Stapel von Filmen zu erzeugen, der ein Dickengefälle von der Oberseite zur Unterseite mit einem Dickenverhältnis von 1,22 von den dünnsten Schichten zu den dicksten Schichten aufwies. Die PEN-Hautschichten wurden an der Außenseite des optischen Stapels mit einer Gesamtdicke von 8 Prozent der coextrudierten Schichten coextrudiert. Der optische Stapel wurde durch zwei aufeinanderfolgende Vervielfacher vervielfacht. Die Nennvervielfachungsverhältnisse der Vervielfacher betrugen 1,2 bzw. 1,27. Der Film wurde anschließend in etwa 40 Sekunden auf 154°C vorerhitzt und mit einer Geschwindigkeit von 6 Prozent pro Sekunde in der Querrichtung auf ein Zugverhältnis von etwa 5,0 gezogen. Die Dicke des fertiggestellten Films betrug etwa 2 Tausendstel Inch (0,05 mm).

[0048] [Fig. 6](#) zeigt die Durchlässigkeit für diesen mehrschichtigen Film. Kurve a zeigt die Durchlässigkeit für Licht, das in der Nichtdehnungsrichtung polarisiert ist, bei normalem Einfall, Kurve b zeigt die Durchlässigkeit für p-polarisiertes Licht bei einem Einfall von 60 Grad, und Kurve c zeigt die Durchlässigkeit für Licht, das in der Dehnungsrichtung polarisiert ist, bei normalem Einfall. Man beachte die sehr hohe Durchlässigkeit für p-polarisiertes Licht in der Nichtdehnungsrichtung sowohl bei normalem als auch bei einem Einfall von 60 Grad (80 bis 100 Prozent). Man beachte auch das sehr hohe Reflexionsvermögen für Licht, das in der Dehnungsrichtung polarisiert ist, im sichtbaren Bereich (400 bis 700 nm), das durch Kurve c gezeigt ist. Das Reflexionsvermögen beträgt zwischen 500 und 650 nm nahezu 100 Prozent.

Beispiel 5

(PEN:SPS, 481, Polarisator)

[0049] Aus einem Polyethylenaphthalen (PEN) mit einer Grenzviskositätszahl von 0,56 dl/g (in einer Lösung aus 60 Gewichtsprozent Phenol/40 Gewichtsprozent Dichlorbenzen gemessen), das von Eastman Chemicals gekauft wurde, und einem syndiotaktischen Polystyrol(sPS)-Homopolymer (gewichtsdurchschnittliches Molekulargewicht = 200.000 Daltons, von der Dow Corporation bezogen) wurde ein mehrschichtiger Film mit 481 Schichten hergestellt. Das PEN befand sich an den Außenschichten und wurde mit einer Geschwindigkeit von 26 Pfund (12 kg) pro Stunde extrudiert und das sPS wurde mit 23 Pfund (10 kg) pro Stunde extrudiert. Der verwendete Feedblock erzeugte 61 Schichten, wobei jede der 61 Schichten von ungefähr gleicher Dicke war. Nach

dem Feedblock wurde drei (2×) Vervielfacher verwendet. Nach dem letzten Vervielfacher wurden Hautschichten von gleicher Dicke, die das gleiche PEN, wie es zum Feedblock geführt wurde, enthielten, mit einer gesamten Geschwindigkeit von 22 Pfund (10 kg) pro Stunde hinzugefügt. Die Bahn wurde durch ein 30,5 cm breites Mundstück zu einer Dicke von etwa 0,276 mm extrudiert. Die Extrusionstemperatur betrug 290°C.

[0050] Diese Bahn wurde bei Umgebungsbedingungen für neun Tage gelagert und dann an einem Spannrahmen einachsrig ausgerichtet. Der Film wurde in etwa 25 Sekunden auf etwa 160°C vorehitzt und mit einer Geschwindigkeit von etwa 28 Prozent pro Sekunde in der Querrichtung zu einem Zugverhältnis von etwa 6 : 1 gezogen. In der gedehnten Richtung wurde keine Entspannung gestattet. Die Dicke des fertiggestellten Films betrug etwa 0,046 mm.

[0051] [Fig. 7](#) zeigt die optische Leistung dieses reflektiven Polarisators aus PEN:SPS, der 481 Schichten enthielt. Kurve a zeigt die Durchlässigkeit für Licht, das in der Nichtdehnungsrichtung polarisiert ist, bei normalem Einfall, Kurve b zeigt die Durchlässigkeit für p-polarisiertes Licht bei einem Einfall von 60 Grad, und Kurve c zeigt die Durchlässigkeit für Licht, das in der Dehnungsrichtung polarisiert ist, bei normalem Einfall. Man beachte die sehr hohe Durchlässigkeit für p-polarisiertes Licht sowohl bei normalem als auch bei einem Einfall mit 60 Grad. Die durchschnittliche Durchlässigkeit für Kurve a über 400 bis 700 nm beträgt 86,2 Prozent, die durchschnittliche Durchlässigkeit für Kurve b über 400 bis 700 nm beträgt 79,7 Prozent. Man beachte auch das sehr hohe Reflexionsvermögen für Licht, das in der Dehnungsrichtung polarisiert ist, im sichtbaren Bereich (400 bis 700 nm), das durch Kurve c gezeigt ist. Der Film weist für Kurve c zwischen 400 und 700 nm eine durchschnittliche Durchlässigkeit von 1,6 Prozent auf. Die Prozent-RMS-Farbe für Kurve a beträgt 3,2 Prozent, während die Prozent-RMS-Farbe für Kurve b 18,2 Prozent beträgt.

Beispiel 6

(PEN:coPEN, 603, Polarisator)

[0052] Ein reflektierender Polarisator, der 603 Schichten aufwies, wurde über einen Coextrusionsvorgang an einer sequenziellen Flachfilmfertigungsstraße hergestellt. Ein Polyethylenaphthalat (PEN) mit einer Grenzviskositätszahl von 0,47 dl/g (in einer Lösung aus 60 Gewichtsprozent Phenol/40 Gewichtsprozent Dichlorbenzen gemessen) wurde durch einen Extruder mit einer Geschwindigkeit von 83 Pfund (38 kg) pro Stunde geliefert, und das coPEN wurde durch einen anderen Extruder mit 75 Pfund (34 kg) pro Stunde geliefert. Das coPEN war ein Copolymer von 70 Molprozent 2,6-Naphthalendi-

carboxylatmethylester, 15 Prozent Dimethylterephthalat und 15 Prozent Dimethylisophthalat mit Ethylenglykol. Das Feedblockverfahren wurde verwendet, um 151 Schichten zu erzeugen. Der Feedblock war dazu gestaltet, einen Stapel von Filmen zu erzeugen, der ein Dickengefälle von der Oberseite zur Unterseite mit einem Dickenverhältnis von 1,22 von den dünnsten Schichten zu den dicksten Schichten aufwies. Dieser optische Stapel wurde durch zwei aufeinanderfolgende Vervielfacher vervielfacht. Das Nennvervielfachungsverhältnis der Vervielfacher betrug 1,2 bzw. 1,4. Zwischen dem letzten Vervielfacher und dem Mundstück wurden Hautschichten hinzugefügt, die aus dem gleichen coPEN wie oben beschrieben bestanden, das durch einen dritten Extruder mit einer gesamten Geschwindigkeit von 106 Pfund (48 kg) pro Stunde geliefert wurde. Der Film wurde anschließend in etwa 30 Sekunden auf 150°C vorehitzt und mit einer anfänglichen Geschwindigkeit von etwa 20 Prozent pro Sekunde in der Querrichtung zu einem Zugverhältnis von ungefähr 6 gezogen. Die Dicke des fertiggestellten Films betrug ungefähr 0,089 mm.

[0053] [Fig. 8](#) zeigt die optische Leistung des Polarisators von Beispiel 6. Kurve a zeigt die Durchlässigkeit für Licht, das in der Nichtdehnungsrichtung polarisiert ist, bei normalem Einfall, Kurve b zeigt die Durchlässigkeit für p-polarisiertes Licht in der Nichtdehnungsrichtung bei einem Einfallswinkel von 50 Grad, und Kurve c zeigt die Durchlässigkeit für Licht, das in der Dehnungsrichtung polarisiert ist, bei normalem Einfall. Man beachte die sehr hohe Durchlässigkeit für Licht, das in der Nichtdehnungsrichtung polarisiert ist. Die durchschnittliche Durchlässigkeit für Kurve a über 400 bis 700 nm beträgt 87 Prozent. Man beachte auch das sehr hohe Reflexionsvermögen für Licht, das in der Dehnungsrichtung polarisiert ist, im sichtbaren Bereich (400 bis 700 nm), das durch Kurve b gezeigt ist. Der Film weist für Kurve b zwischen 400 und 700 nm eine durchschnittliche Durchlässigkeit von 2,5 Prozent auf. Zusätzlich ist die Prozent-RMS-Farbe dieses Polarisators sehr gering. Die Prozent-RMS-Farbe für Kurve b beträgt 5 Prozent.

[0054] Obwohl die wie oben beschriebenen mehrschichtigen optischen Stapel bedeutende und erwünschte optische Eigenschaften bereitstellen können, sind andere Eigenschaften, die mechanisch, optisch oder chemisch sein können, im optischen Stapel selbst schwer bereitzustellen, ohne die Leistung des optischen Stapels zu verschlechtern. Derartige Eigenschaften können bereitgestellt werden, indem eine oder mehrere Schichten in den optischen Stapel aufgenommen werden, die diese Eigenschaften bereitstellen, während sie nicht zur primären optischen Funktion des optischen Stapels selbst beitragen. Da diese Schichten typischerweise an den Hauptflächen des optischen Stapels bereitgestellt werden, sind sie

häufig als „Hautschichten“ bekannt.

[0055] Eine Hautschicht kann während der Herstellung des mehrschichtigen Stapels leicht auf eine oder beide Hauptflächen davon coextrudiert werden um den mehrschichtigen Stapel vor der hohen Scherung entlang des Feedblocks und der Mundstückwände zu schützen, und häufig kann eine Außenschicht mit den gewünschten chemischen oder physikalischen Eigenschaften erhalten werden, indem ein Zusatz, wie etwa, zum Beispiel, ein UV-Stabilisator, in die Polymerschmelze, die die Hautschicht aufbaut, gemischt wird und die Hautschicht mit veränderten Eigenschaften während der Herstellung auf eine oder beide Seiten des mehrschichtigen Stapels coextrudiert wird. Alternativ können während der Herstellung des mehrschichtigen Films zusätzliche Schichten auf die Außenseite der Hautschichten coextrudiert werden; können sie in einer gesonderten Beschichtungstätigkeit auf den mehrschichtigen Film aufgebracht werden; oder können sie als ein gesonderter Film, eine Folie oder ein starres oder halbstarres verstärkendes Substrat wie etwa Polyester (PET), Acryl (PMMA), Polycarbonat, Metall oder Glas auf den mehrschichtigen Film laminiert werden. Klebstoffe, die zum Laminieren des mehrschichtigen Polymerfilms an eine andere Fläche nützlich sind, beinhalten sowohl optisch durchsichtige als auch diffuse Klebstoffe und beinhalten sowohl Haftklebstoffe als auch Nichthaftklebstoffe. Haftklebstoffe sind normalerweise bei Raumtemperatur klebrig und können durch die Ausübung von, höchstens, leichtem Fingerdruck an eine Fläche geklebt werden, während Nichthaftklebstoffe Lösemittel-, hitze- oder strahlungsaktivierte Systeme enthalten. Beispiele für Klebstoffe, die bei der vorliegenden Erfindung nützlich sind, beinhalten jene, die auf allgemeinen Zusammensetzungen von Polyacrylat; Polyvinylether; dienhaltigem Kautschuk wie etwa Naturkautschuk, Polyisopren, und Polyisobutylene; Polychloropren; Butylkautschuk; Butadien-Acrylnitril-Polymer, thermoplastischem Elastomer; Block-Copolymeren wie etwa Styrol-Isopren und Styrol-Isopren-Styrol-Block-Copolymeren, Ethylen-Propylen-Dien-Polymeren, und Styrol-Butadien-Polymer; Polyalpha-olefin; amorphem Polyolefin; Silikon; ethylenhaltigem Copolymer wie etwa Ethylenvinylacetat, Ethylacrylat, und Ethylmethacrylat; Polyurethan; Polyamid; Epoxid; Polyvinylpyrrolidon- und Vinylpyrrolidon-Copolymeren; Polyestern; und Gemischen der obigen beruhen. Zusätzlich können die Klebstoffe Zusätze wie etwa Klebrigmacher, Plastifiziermittel, Füllmittel, Antioxidantien, Stabilisatoren, Pigmente, diffundierende Teilchen, Vulkanisiermittel; Biozide, und Lösemittel enthalten. Bevorzugte Klebstoffe, die bei der vorliegenden Erfindung nützlich sind, beinhalten VITEL 3300, einen Schmelzklebstoff, der von Shell Chemical Co. (Akron, OH) erhältlich ist, oder einen Acrylhaftklebstoff wie etwa einen 90/10-IOA/AA-Acrylhaftklebstoff von der Minnesota Mining and Manufacturing Company, St. Paul, Min-

nesota. Wenn ein Laminierklebstoff verwendet wird, um den mehrschichtigen Film an eine andere Fläche zu kleben, werden die Klebstoffzusammensetzung und die -dicke vorzugsweise so gewählt, dass sie die optischen Eigenschaften des mehrschichtigen Stapels nicht beeinträchtigen. Wenn zum Beispiel zusätzliche Schichten an einen mehrschichtigen Polymerpolarisator oder -spiegel laminiert werden, in dem ein hoher Grad an Durchlässigkeit erwünscht ist, sollte der Laminierklebstoff in dem Wellenlängenbereich, in dem der Polarisator oder Spiegel zur Transparenz gestaltet ist, optisch durchsichtig sein.

[0056] [Fig. 10](#) und [Fig. 11](#) veranschaulichen mehrschichtige Stapel, die jeweils eine bzw. zwei zusätzliche Schichten aufweisen. [Fig. 10](#) und [Fig. 11](#) werden nachstehend verwendet werden, um eine Vielfalt von zusätzlichen Schichten, die aufgebracht werden könnten, zu beschreiben.

[0057] Ein Bereich, in dem eine Hautschicht, die unterschiedliche mechanische Eigenschaften aufweist, erwünscht ist, betrifft insbesondere einachsige ausgegerichtete mehrschichtige optische Stapel, wie etwa reflektive Polarisatoren. Derartige Stapel neigen häufig dazu, eine geringe Reißfestigkeit in der Hauptzugrichtung zu zeigen. Dies kann zu verringerten Erträgen während des Herstellungsvorgangs oder zu einem anschließenden Bruch des Films während der Handhabung führen. Um dem zu widerstehen, können reißfeste Schichten an die äußeren Hauptflächen des optischen Stapels geklebt werden. Diese robusten Schichten können aus jedem beliebigen passenden Material sein und könnten sogar das gleiche wie eines der Materialien, die im optischen Stapel verwendet werden, sein. Faktoren, die bei der Wahl eines Materials für eine reißfeste Schicht zu berücksichtigen sind, beinhalten die Prozent-Reißdehnung, den Youngschen Modul, die Reißfestigkeit, die Haftung an Innenschichten, das Prozent-Durchlassvermögen und die Absorbanz in einer elektromagnetischen Bandbreite von Interesse, die optische Klarheit oder Trübung, die Brechungsindizes als eine Funktion der Frequenz, die Textur und die Rauheit, die Schmelzwärmebeständigkeit, die Molekulargewichtsverteilung, die Schmelzrheologie und die Coextrudierbarkeit, die Mischbarkeit und die Geschwindigkeit der Interdiffusion zwischen Materialien in den robusten und in den optischen Schichten, das viskoelastische Ansprechen, das Entspannungs- und das Kristallisierungsverhalten unter Zugbedingungen, die Wärmestabilität bei Verwendungstemperaturen, die Witterungsbeständigkeit, die Fähigkeit, an Beschichtungen zu haften, und die Durchlässigkeit gegenüber verschiedenen Gasen und Lösemitteln. Wie vorher erwähnt ist natürlich wichtig, dass das gewählte Material keine optischen Eigenschaften aufweist, die für jene des optischen Stapels schädlich sind. Sie können während des Herstellungsvorgangs aufgebracht werden oder später auf den optischen Stapel aufge-

bracht oder daran laminiert werden. Das Kleben dieser Schichten während des Herstellungsvorgangs an den optischen Stapel, wie etwa durch einen Coextrusionsvorgang, stellt den Vorteil bereit, dass der optische Stapel während des Herstellungsvorgangs geschützt wird.

[0058] Unter Verwendung von [Fig. 10](#), um diesen Gesichtspunkt zu erläutern, ist ein mehrschichtiger optischer Stapel, der reißfeste Schichten aufweist, **400**, gezeigt. Der Film **400** weist einen optischen Stapel **410** auf. Der optische Stapel **410** weist abwechselnde Schichten **412** und **414** aus zwei Polymeren, die unterschiedliche optische Eigenschaften aufweisen, auf. An den Hauptflächen des optischen Stapels **410** sind reißfeste Schichten **416** und **418** angebracht. Obwohl die Schichten **416** und **418** in [Fig. 10](#) als dicker als die Schichten **412** und **414** gezeigt sind, sollte bemerkt werden, dass [Fig. 10](#) für eine allgemein bevorzugte Ausführungsform nicht maßstabsgetreu ist. Im Allgemeinen ist erwünscht, dass jede der Schichten **416** und **418** eine Dicke aufweist, die größer als 5 Prozent der Dicke des optischen Stapels ist. Es wird bevorzugt, dass jede der Schichten **416** und **418** eine Dicke im Bereich von 5 Prozent bis 60 Prozent der Dicke des optischen Stapels aufweist, um Reißfestigkeit bereitzustellen, ohne die Menge des verwendeten Materials unnötig zu erhöhen. Wenn der optische Stapel **600** Schichten aufweist, würde die Dicke einer jeden der reißfesten Schichten **416** und **418** in einer derartigen bevorzugten Ausführungsform daher gleich der Dicke von 30 bis 360 der Schichten des Stapels sein. In einer noch bevorzugteren Ausführungsform würde jede der reißfesten Schichten **416** und **418** eine Dicke im Bereich von 30 Prozent bis 50 Prozent von jener des optischen Stapels aufweisen.

[0059] In einer besonders wünschenswerten Ausführungsform können die reißfesten Außenschichten aus einem der gleichen Materialien bestehen, die in den abwechselnden Schichten **412** und **414** verwendet werden. Insbesondere wurde festgestellt, dass bei einem reflektiven Polarisator, der abwechselnde Schichten aus PEN und coPEN aufweist, reißfeste Außenschichten aus coPEN während des Herstellungsvorgangs coextrudiert werden können.

Beispiel 7

[0060] Ein mehrschichtiger Verbund aus abwechselnden PEN- und coPEN-Schichten zur Bildung eines reflektiven Polarisators wurde mit dicken Hautschichten aus coPEN coextrudiert, um einen reißfesten reflektiven Polarisator zu bilden. Ein coextrudierter Film, der 603 Schichten enthielt, wurde an einem sequenziellen Flachfilmextruder hergestellt. Ein Polyethylennaphthalat (PEN) mit einer Grenzviskositätszahl von 0,47 dl/g (in einer Lösung aus 60 Gewichtsprozent Phenol/40 Gewichtsprozent Dichlorbenzen

gemessen) wurde durch einen Extruder mit einer Geschwindigkeit von 86 Pfund (39 kg) pro Stunde geliefert, und das coPEN wurde durch einen anderen Extruder mit 78 Pfund (35 kg) pro Stunde geliefert. Das coPEN war ein Copolymer von 70 Molprozent 2,6-Naphthalendicarboxylatmethylester und 30 Prozent Dimethylterephthalat mit Ethylenglykol. Der Feedblock extrudierte 151 Schichten. Der Feedblock war dazu gestaltet, einen Stapel von Filmen zu erzeugen, der ein Dickengefälle von der Oberseite zur Unterseite mit einem Dickenverhältnis von 1,22 von den dünnsten Schichten zu den dicksten Schichten aufwies. Dieser optische Stapel wurde durch zwei aufeinanderfolgende Vervielfacher vervielfacht. Das Nennvervielfachungsverhältnis der Vervielfacher betrug 1,2 bzw. 1,27. Zwischen den letzten Vervielfachern und dem Mundstück wurden Schichten hinzugefügt, die wie oben beschrieben aus coPEN bestanden. Diese Schichten wurden durch einen dritten Extruder mit einer gesamten Geschwindigkeit von 187 Pfund (85 kg) pro Stunde geladen und geliefert. Der Film mit den zusätzlichen coPEN-Außenschichten wurde in etwa 40 Sekunden auf 160°C vorerhitzt und mit einer anfänglichen Geschwindigkeit von 20 Prozent pro Sekunde in der Querrichtung zu einem Zugverhältnis von ungefähr 6 gezogen. Der fertiggestellte Film wies eine Dicke von ungefähr 100 µm auf, die einen inneren mehrschichtigen optischen Stapel mit einer Dicke von etwa 50 µm und zwei äußere Außenschichten (eine an jeder Seite des Films) mit einer Dicke von jeweils etwa 25 µm beinhaltete. Die Reißfestigkeit verbesserte sich gegenüber dem Fall ohne Häute, was die Erzeugung von aufgewickelten Rollen eines robusten reflektiven Polarisators gestattete. Im Besonderen wurde die Reißfestigkeit an Filmen, die nach diesem Beispiel hergestellt wurden, und an einem Film, der unter ähnlichen Bedingungen, aber ohne coPEN-Hautschichten hergestellt wurde, gemäß ASTM D-1938 unter Verwendung eines Hosen-Reißversuchs entlang der Hauptzugrichtung gemessen. Die durchschnittlichen Filmdicken betrugen 100 µm bzw. 48 µm. Die durchschnittlichen Reißkraftwerte betrugen 60,2 und 2,9 Gramm Kraft mit Standardabweichungen von 4,44 bzw. 0,57 Gramm Kraft. Eine Analyse der coPEN-Hautschichten zeigte eine geringe Ausrichtung mit Brechungsindizes von 1,63, 1,62, und 1,61 bei 633 nm. Die gute Haftung zwischen den Schichten wurde durch die Schwierigkeit, den Aufbau sauber zu trennen, gezeigt. Zum weiteren Vergleich wurde ein optischer Stapel von 48 µm, der Außenschichten aus PEN von 3,8 µm aufwies, geprüft und festgestellt, dass er eine durchschnittliche Reißkraft von 2,8 Gramm mit einer Standardabweichung von 1,07 aufwies.

[0061] Das Aussehen und/oder die Leistung eines Films kann durch Aufnehmen einer Hautschicht, die einen Farbstoff oder ein Pigment aufweist, der bzw. das in einem oder mehreren ausgewählten Bereichen des Spektrums absorbiert, verändert werden.

Dies kann Teile oder das gesamte sichtbare Spektrum wie auch Ultraviolett und Infrarot beinhalten. Natürlich wird die Schicht opak sein, wenn das gesamte sichtbare Spektrum absorbiert wird. Sie können gewählt werden, um die scheinbare Farbe des Lichts, das durch den Film hindurch gelassen oder reflektiert wird, zu ändern, und können Farbstoffe und Pigmente mit fluoreszierenden Eigenschaften beinhalten. Fluoreszierende Materialien werden häufig gewählt, um elektromagnetische Energie im ultravioletten Bereich des Spektrums zu absorbieren und im sichtbaren Bereich wiederauszustrahlen. Sie können auch verwendet werden, um die Eigenschaften des Films zu ergänzen, insbesondere wenn der Film einige Frequenzen hindurch lässt, während er andere reflektiert. Daher veranschaulicht [Fig. 9](#) einen derartigen Film mit einer Schicht **316**, die eine Schicht darstellt, welche ein elektromagnetisch absorbierendes Material enthält.

[0062] Die Verwendung eines UV-Absorptions- oder -Schutzmaterials ist besonders erwünscht, da es verwendet werden kann, um die inneren Schichten zu schützen, die instabil sein können, wenn sie UV-Strahlung ausgesetzt sind. Wünschenswerte Schutzmaterialien beinhalten Lichtstabilisatoren aus sterisch gehindertem Amin (HALS), die in die Schicht **316** oder eine oder beide Schichten **416** und **418** von [Fig. 10](#) aufgenommen werden könnten und in der US-Patentschrift Nr. 5,605,761 ausführlicher beschrieben sind.

[0063] Haftklebstoffe bilden eine andere wünschenswerte Klasse von Materialien, die als Schicht **316** von [Fig. 9](#) oder eine der Schichten **416** oder **418** von [Fig. 10](#) auf einen mehrschichtigen Stapel aufgebracht werden können. Im Allgemeinen können Haftklebstoffe aufgebracht werden, wenn der optische Stapel zur späteren Laminierung auf ein anderes Material wie etwa ein Glas- oder ein Metallsubstrat bestimmt ist.

[0064] Ein anderes Material, das in eine Hautschicht wie die Schicht **316** oder eine der Schichten **416** oder **418** aufgenommen werden könnte, wäre ein Gleitmittel. Ein Gleitmittel wird den Film während des Herstellungsvorgangs leichter handhabbar machen. Typischerweise würde ein Gleitmittel eher mit einem Spiegelfilm als mit einem Film, der dazu bestimmt ist, einen Teil des auf ihn treffenden Lichts hindurch zu lassen, verwendet werden. Die Seite, die das Gleitmittel enthält, würde typischerweise die Seite sein, die zur Laminierung auf ein tragendes Substrat bestimmt ist, um zu verhindern, dass das Gleitmittel die Trübung, die mit der Reflektion verbunden ist, erhöht.

[0065] Eine andere Art von zusätzlicher Schicht, die verwendet werden könnte, ist eine Schutzschicht. Eine derartige Schicht könnte abriebbeständig oder gegenüber der Witterung und/oder einer chemischen

Einwirkung beständig sein. Derartige Beschichtungen wären in Situationen, in denen der mehrschichtige Film einer strengen oder korrosiven Umgebung ausgesetzt werden soll, besonders nützlich. Beispiele für abriebbeständige oder harte Beschichtungen beinhalten Acrylhartbeschichtungen wie etwa Acryloid A-11 und Paraloid K-120N, die von Rohm & Haas erhältlich sind; Urethanacrylate, wie sie in der US-Patentschrift Nr. 4,249,011 beschrieben sind, sowie jene, die von Sartomer Corp. erhältlich sind; und Urethanhartbeschichtungen wie etwa jene, die durch Reagieren eines aliphatischen Polyisocyanats wie etwa Desmodur N-3300, erhältlich von Miles, Inc., mit einem Polyester wie etwa Tone Polyol 0305, erhältlich von Union Carbide, erhalten werden. Derartige Schichten könnten auch einen Schutz vor einem Durchgang von Gasen wie etwa Sauerstoff oder Kohlendioxid oder Wasserdampf durch den Film bereitstellen. Erneut könnte es sich wie in [Fig. 9](#) gezeigt um eine einzelne Schicht oder wie in [Fig. 10](#) gezeigt um Schichten an beiden Seiten handeln.

[0066] [Fig. 11](#) zeigt einen alternativen mehrschichtigen Film **500**, der abwechselnde Schichten **512** und **514** mit Schutzschichten **516**, **518**, und **520** aufweist. Daher könnten mehrere zusätzliche Schichten neben einer einzelnen Hauptfläche des mehrschichtigen optischen Stapels bereitgestellt werden. Ein Beispiel einer Verwendung für einen Aufbau der in [Fig. 11](#) gezeigten Art würde eines sein, bei dem die Schutzschichten **516** und **518** wie oben beschrieben reißfeste Aufbauten wären und die Schicht **520** abriebbeständig wäre.

[0067] Andere Schichten, die hinzugefügt werden könnten, beinhalten holographische Bilder, holographische Diffuseren oder andere streuende Schichten. Derartige Schichten könnten sich in einem harten Polymer oder in einem Klebstoff befinden. Vorgeformte holographische Materialien, wie etwa eine holographische Prägefolie oder ein holographischer Laminatfilm, könnten an der Außenfläche von mehrschichtigen Filmen angebracht werden. Das holographische Material könnte entweder einen Aluminiumreflektor für einen metallisierten opaken Effekt oder einen Reflektor mit hohem Brechungsindex für einen im Wesentlichen durchsichtigen Effekt enthalten. Eine holographische Prägefolie könnte unter Verwendung von Hitze und Druck auf die Fläche des mehrschichtigen Films aufgebracht werden. Gegenwärtig sind eine typische durchsichtige Hologrammprägefolie unter der Bezeichnung VC55-101G und eine typische opake holographische Prägefolie unter der Bezeichnung BD68-100F von Crown Roll Leaf, Paterson, New Jersey, erhältlich. Alternativ könnte ein holographischer Film unter Verwendung eines Schmelzklebstoffs oder eines Haftklebstoffs am mehrschichtigen Film angebracht werden. Ein typischer durchsichtiger holographischer Film ist gegenwärtig unter der Bezeichnung XLT-101W von Crown

Roll Leaf erhältlich. Ein typischer Haftübertragungs-klebstoff auf einer Lage ist gegenwärtig unter der Bezeichnung 9458 von der Minnesota Mining and Manufacturing Company, St. Paul, Minnesota (3M) erhältlich. Das holographische Bild kann entweder auf der Fläche des mehrschichtigen Films oder durch den mehrschichtigen Film hindurch gesehen werden.

[0068] Für Fachleute kann der Ausdruck „holographische Bilder“ holographische Strukturen, Beugungsgitter, elektronenstrahlerzeugte Strukturen, stereolithographisch erzeugte Strukturen, laserinterferometrisch erzeugte Strukturen, holographische optische Elemente, und Photopolymervolumenhologramme beinhalten.

[0069] Derartige holographische Bilder können in mehrschichtige optische Filme aufgenommen werden, indem die holographische Struktur direkt in die Außenschicht des Films geprägt wird, oder indem zuerst ein prägbares Harz auf den Film aufgetragen wird und dann in dieses geprägt wird. Zusätzlich kann die Sichtbarkeit und die Haltbarkeit der holographisch strukturierten Fläche durch Auftragen eines Materials mit hohem Brechungsindex auf die Struktur verbessert werden. Ferner kann über der mit einem hohen Brechungsindex beschichteten Struktur eine optionale Schutzschicht oder ein Klebstoff hinzugefügt werden, um den Film an einem Gegenstand anzubringen oder die holographische Struktur vor Fingerabdrücken oder einem Zerkratzen zu schützen. Ein alternatives Mittel zur Aufnahme holographischer Bilder ist, ein geeignetes Photopolymer auf einen mehrschichtigen optischen Film aufzutragen und dann ein Volumenhologramm in der Photopolymerbeschichtung aufzuzeichnen.

[0070] Die inhärente Reflektivität von Polarisatorfilmen der vorliegenden Erfindung oder von anderen Spiegel- und farbverschiebenden Spiegelfilmen beseitigt die Notwendigkeit für eine zusätzliche reflektive Schicht, die typischerweise holographischen Strukturen hinzugefügt wird. Demgemäß stellt die Bereitstellung eines kostenwirksamen Verfahrens, um holographische Strukturen direkt in die mehrschichtigen optischen Filme zu prägen und zusätzliche Schichten direkt auf den Film aufzutragen, um die holographischen Bilder zu verbessern, einen anderen Gesichtspunkt der vorliegenden Erfindung dar. [Fig. 12](#) bis [Fig. 20](#) veranschaulichen, und Beispiel 8 bis 17 beschreiben, verschiedene Ausführungsformen dieses Gesichtspunkts. In jeder der [Fig. 12](#) bis [Fig. 18](#) ist nur eine geringe Anzahl von Schichten als im optischen Stapel vorhanden veranschaulicht (die abwechselnden Schichten eines ersten Polymers und eines zweiten Polymers), doch erfolgt dies nur zur Bequemlichkeit. Wie hierin beschrieben können mehrere Schichten verwendet werden.

[0071] [Fig. 12](#) veranschaulicht einen mehrschichti-

gen optischen Film **600**, der abwechselnde Polymer-schichten **602** und **604** und Polymerhautschichten **606** und **608** aufweist.

[0072] Eine holographische Struktur **610**, die ein holographisches Bild bereitstellt, ist in einer Hautschicht bereitgestellt. In der Ausführungsform, die in [Fig. 13](#) veranschaulicht ist, ist die holographische Struktur **610** mit einer Schicht **612** mit hohem Brechungsindex versehen, die durch jedes beliebige passende Verfahren einschließlich Vakuumaufdampfung aufgebracht werden kann. In der Ausführungsform, die in [Fig. 14](#) veranschaulicht ist, ist über der Schicht **612** mit hohem Brechungsindex eine optionale Schutzschicht **614** aufgebracht, die hilft, die holographische Struktur vor Beschädigungen, Schmutzstoffen und anderen Umweltfaktoren, die die Qualität des holographischen Bilds verschlechtern können, zu schützen.

[0073] [Fig. 15](#) veranschaulicht eine Ausführungsform eines mehrschichtigen optischen Films, der eine Harzschicht **616** aufweist, die auf den Film aufgebracht ist (vorzugsweise durch Beschichtung, aber möglicherweise durch Laminierung oder andere Verfahren), wobei das holographische Bild **610** in die Harzschicht geprägt ist. [Fig. 16](#) veranschaulicht eine Ausführungsform, wobei eine Harzschicht **618** auf den mehrschichtigen Film gegossen und dann gehärtet ist (ein „Gieß- und Härtungsvorgang“), wobei eine holographische Struktur **610** in der gegossenen und gehärteten Schicht bereitgestellt ist.

[0074] In [Fig. 17](#) ist eine holographische Schicht **620** durch eine Harzschicht **622** bereitgestellt, die eine holographische Struktur, eine Reflektorschicht **624** mit hohem Brechungsindex, und eine Klebstoffschicht **626** zur Aufbringung der holographischen Schicht **620** auf den Rest des mehrschichtigen Films aufweist. Die Klebstoffschicht **626** kann ein Haftklebstoff, ein Schmelzklebstoff oder ein anderer geeigneter Klebstoff sein.

[0075] [Fig. 18](#) veranschaulicht ein holographisches polarisierendes Etikett **630** der vorliegenden Erfindung, das zum Beispiel einen mehrschichtigen Film von der in [Fig. 12](#) gezeigten Art aufweist, an den ein Etikettenmaterial **632**, welches einen Etikettengrundfilm **634**, ein gedrucktes Bild **636** (zum Beispiel alphanumerisch oder graphisch), und eine Klebstoffschicht **638** zum Binden des Etiketts an ein Substrat aufweist, zum Beispiel durch Klebstoff **631** gebunden ist. Ein Etikett oder ein Laminat dieser Art kann an Gegenstände von Wert wie etwa, zum Beispiel, Software, Schachteln oder Kartons, Dokumente von Wert, Reisepässe, Gebrauchsgüter wie etwa Elektronik und Computer, und andere derartige Gegenstände gebunden werden. [Fig. 19](#) und [Fig. 20](#) veranschaulichen die Verwendung des holographischen polarisierenden Etiketts von der in [Fig. 18](#) veranschaulichten

Art. Wenn das Etikett von einem Betrachter durch einen verifizierenden Polarisator **640** betrachtet wird, der in einer Ausrichtung gehalten wird, sind sowohl das holographische Bild, das durch die holographische Struktur bereitgestellt wird, als auch das gedruckte Bild 636 sichtbar. Wenn der verifizierende Polarisator **640** in Bezug auf das Etikett gedreht wird (der verifizierende Polarisator mit dem Etikett „gekreuzt“ wird), verschwindet das gedruckte Bild, doch bleibt das holographische Bild sichtbar. Dies gestattet einem Benutzer, die Authentizität des polarisierenden Etiketts zu verifizieren, und demgemäß die Authentizität des Gegenstands, an dem es angebracht ist, zu verifizieren. Dies wird nachstehend unter Bezugnahme auf Beispiel 9 näher beschrieben.

Beispiel 8

[0076] Ein Polarisatorfilm, der aus abwechselnden Schichten von coPEN/PEN-Polymeren hergestellt war, wies eine halbsilbrige reflektive Spiegelercheinung auf (erhältlich von der Minnesota Mining and Manufacturing Company, St. Paul, Minnesota (3M), unter der Bezeichnung „Dual Brightness Enhancement Film, ###98-0440-0037-4). Die äußere coPEN-Schicht des Films wurde durch das folgende Verfahren mit einer holographischen Struktur geprägt, um einen mehrschichtigen Film von der in [Fig. 12](#) gezeigten Art bereitzustellen. Eine Nickel-Prägeplatte wurde an einer Hologrammvorlage elektrogeformt, wodurch eine holographische Struktur mit dem Bild eines Firmenzeichens erzeugt wurde, wie dies typischerweise in der holographischen Prägeindustrie erfolgt. Die Platte wurde an einem Zylinder an einer Prägemaschine, wie etwa Maschinen, die gegenwärtig von James River Holographics, Richmond, Virginia, erhältlich sind, angebracht. Der Zylinder mit der Prägeplatte wurde auf 93°C erhitzt. Eine Rolle des Polarisatorfilms wurde zwischen den Prägezylinder und einen Stützzylinder aus Metall, der auf 49°C erhitzt war, eingefädelt. Auf die Zylinder wurde Druck ausgeübt, um den Polarisatorfilm mit der Prägeplatte in Kontakt zu bringen, und eine holographische Struktur wurde in die Fläche des Polarisatorfilms geprägt. Dadurch wurde eine Rolle des Polarisatorfilms auf eine wirtschaftliche Weise fortlaufend geprägt.

[0077] Die holographische Struktur in der Form eines Firmenzeichens, die in die Vorderfläche des Polarisatorfilms geprägt worden war, war aufgrund der reflektiven Spiegelercheinung des Films unübersehbar, wenn sie von der Vorderseite des Films betrachtet wurde. Wenn der Film umgedreht wurde, waren die holographischen Zeichen nicht sehr sichtbar, wenn sie durch die Hinterseite des Films betrachtet wurden, da der polarisierende Film die Hälfte des Lichts, das auf die Vorderseite des Films auftraf, reflektierte.

Beispiel 9

[0078] Der holographisch geprägte Polarisatorfilm von Beispiel 8 wurde auf ein bedrucktes weißes Etikett aufgebracht, indem die Rückseite des Films unter Verwendung eines Klebstoffs auf das Etikett aufgebracht wurde, so dass die holographische Struktur wie in [Fig. 18](#) allgemein gezeigt frei lag. Der Druck auf dem Etikett war durch den halbsilbrigen polarisierenden Film sichtbar.

[0079] Zur Verifizierung der Authentizität des holographischen Bilds wurde ein anderes Stück des Polarisatorfilms (ohne ein Hologramm), das als verifizierender Polarisator bezeichnet wird, zwischen der betrachtenden Person und dem polarisierenden Etikett mit dem holographischen Bild angeordnet. Wenn der verifizierende Polarisator gedreht wurde, bis er den Polarisator mit den holographischen Bildern kreuzte, war der darunterliegende Druck auf dem Etikett aufgrund der hohen Reflektivität der beiden gekreuzten Polarisatorfilme im Wesentlichen nicht wahrnehmbar, und waren die holographischen Bilder sichtbar, wie in [Fig. 20](#) gezeigt ist. Wenn der verifizierende Polarisator um 90 Grad gedreht wurde, so dass er parallel zum Polarisator mit den holographischen Bildern lag, wurde der darunterliegende Druck auf dem Etikett erneut sichtbar und waren die holographischen Bilder nur schwach sichtbar, wie in [Fig. 19](#) gezeigt ist. Daher konnte die Authentizität des holographischen Bilds durch die Verwendung des verifizierenden Polarisators verifiziert werden. Alternativ könnte ein Betrachter des holographischen polarisierenden Etiketts mit einer Lichtquelle, die fähig ist, Licht mit mindestens zwei rechtwinkligen Polarisationszuständen auszusenden, die gleiche Verifizierungswirkung erzeugen.

Beispiel 10

[0080] Ein farbverschiebender Polarisatorfilm, der eine obere Bandkante von 590 Nanometer aufwies und aus 601 abwechselnden Schichten von coPEN/PEN-Polymeren hergestellt war, wies eine Farbverschiebung von Orange zu Gelb auf, wenn er mit einem zunehmenden Betrachtungswinkel betrachtet wurde. Die coPEN-Fläche des Films wurde unter Verwendung des in Beispiel 8 beschriebenen Vorgangs holographisch geprägt. Der Film wurde wie in Beispiel 9 beschrieben auf ein bedrucktes weißes Etikett aufgebracht, und das Aussehen veränderte sich bei normalem Einfall von Weiß zu Dunkelorange, wenn der verifizierende Polarisator gedreht wurde, um den Polarisator mit den holographischen Bildern zu kreuzen. Die einzigartige, feststellbare Farbänderung unter dem verifizierenden Polarisator trug zur Sicherheit des Etiketts bei.

Beispiel 11

[0081] Die Strukturfläche des holographischen Polarisatorfilms aus Beispiel 8 war unter einigen Handhabungsbedingungen für Kratzer anfällig. Zusätzlich konnte Öl von den Fingerabdrücken die holographische Struktur ausfüllen, wodurch die Sichtbarkeit des holographischen Bilds verringert wurde. Fingeröl und typische Polymere weisen einen Brechungsindex auf, der jenem des Oberflächen-coPEN-Polymers ähnlich ist (ungefähr 1,6), so dass sie dem Brechungsindex des Films eng entsprechen und dazu neigen, das holographische Bild zu unterdrücken. Um diese Wirkung zu vermeiden, wurde ein Material mit einem anderen Brechungsindex verwendet, um die Struktur zu schützen, wie in [Fig. 13](#) allgemein gezeigt ist. Ein Dünnschicht aus Zinksulfid mit hohem Brechungsindex, mit einem Brechungsindex von 2,34, wurde unter Verwendung der Vakuumverdampfung in einer fortlaufenden Weise von Rolle zu Rolle auf die holographische Struktur des Polarisatormaterials in Beispiel 8 dampfbeschichtet.

[0082] Die Sichtbarkeit des holographischen Bilds war mit Beispiel 8 vergleichbar. Durch die Beschichtung mit hohem Brechungsindex, die die Oberfläche der Struktur schützte, verringerte Öl von Fingerabdrücken die Sichtbarkeit des holographischen Bilds nicht wesentlich. Andere Schichten mit hohem Brechungsindex von den Arten, die in der US-Patentschrift Nr. 4,856,857 (Takeuchi et al.) offenbart sind, könnten ebenfalls für eine derartige Anwendung verwendet werden.

Beispiel 12

[0083] Der holographische Polarisatorfilm von Beispiel 11 wurde über der Struktur, die die Beschichtung mit hohem Brechungsindex trug, mit einer zusätzlichen schützenden Polymerschicht beschichtet, um einen Aufbau von der allgemeinen Art bereitzustellen, die in [Fig. 14](#) veranschaulicht ist. Ein durchsichtiger UV-gehärteter Acryllack (gegenwärtig unter der Bezeichnung Flexographic UV Curable Varnish, UVF 02037 von Akzo Nobel Inks Corp., Langhorne, PA, erhältlich), der einen Brechungsindex von etwa 1,5 aufweist, wurde unter Verwendung einer Flexodruckmaschine aufgebracht und gehärtet.

[0084] Der Lack schützte die Struktur wirksam vor Kratzern. Die Sichtbarkeit des holographischen Bilds war etwas geringer als jene von Beispiel 11, da der Unterschied zwischen dem Brechungsindex des Zinksulfids (2,34) und jenem des Lacks (1,5) in diesem Beispiel 12 geringer als der Unterschied zwischen dem Brechungsindex des Zinksulfids (2,34) und jenem der Luft (1,0) in Beispiel 11 war. Doch die Sichtbarkeit des holographischen Bilds in diesem Beispiel 12 war annehmbar, wenn es wie in Beispiel 9 beschrieben mit einem verifizierenden Polarisator

betrachtet wurde.

Beispiel 13

[0085] Ein farbverschiebender Spiegelfilm (erhältlich von 3M unter der Bezeichnung CM590 Radiant Light Film, #70-4000-0049-6), der aus 224 abwechselnden Schichten von PET/coPMMA-Polymeren hergestellt war, wies eine Farbveränderung von Cyan zu Blau auf, als der Film mit einem zunehmenden Betrachtungswinkel betrachtet wurde, und wies eine reflektive Spiegelercheinung auf. Der Film wurde wie in der PCT-Veröffentlichung WO 99/36258 mit dem Titel „Color Shifting Film“ beschrieben hergestellt. Farbverschiebende Filme sind durch eine Veränderung der Farbe als Funktion des Betrachtungswinkels gekennzeichnet. Die äußere PET-Schicht war für die Hitze und den Druck der direkten holographischen Prägung nicht so empfänglich wie die äußere coPEN-Schicht des Polarisatorfilms in Beispiel 8. Demgemäß wurde zuerst ein durchsichtiges PMMA-Harz auf die vordere Fläche des farbverschiebenden Films lösemittelbeschichtet und getrocknet. Dann wurde der Film unter Verwendung des Vorgangs von Beispiel 8 holographisch mit einem schmückenden Beugungsgitter geprägt, um eine Struktur von der Art bereitzustellen, die in [Fig. 15](#) allgemein veranschaulicht ist.

[0086] Das Beugungsgitterhologramm war unübersehbar, wenn es von der vorderen Fläche des Films betrachtet wurde, und wurde durch die Reflektivität des Films verstärkt. Die Farbe des Films veränderte sich von Cyan zu Blau zu Magenta, wenn er mit zunehmenden Betrachtungswinkeln betrachtet wurde, was dem holographischen Bild eine einzigartige Wirkung verlieh. Diese Wirkung würde nützlich sein, um die holographischen Bilder als echt zu authentifizieren.

Beispiel 14

[0087] Ein sichtbarer Spiegelfilm (erhältlich von 3M unter der Bezeichnung VM2000 Radiant Mirror Film, #70-4000-0069-4) aus abwechselnden Schichten aus PEN und PMMA wurde mit einer 10 volumengewichtsprozentigen Lösung von PMMA (gegenwärtig unter der Bezeichnung Elvacite 2041 von DuPont, Wilmington, Delaware, erhältlich) in Toluol beschichtet. Die Naßdicke betrug 175 Mikron, und eine Trocknung über Nacht bei 95°C ergab einen 17 bis 20 Mikron dicken Film von PMMA auf dem Spiegelfilm. Eine Prägescheibe aus Nickel mit dem Bild einer amerikanischen 25-Cent-Münze wurde bei 115°C und 70 Tonnen Druck für 30 Sekunden verwendet. Das Bild war aufgrund der höheren Reflektivität des mehrschichtigen Polymerfilms (> 99%) im Vergleich zur 95%igen Reflektivität der Aluminiumdampfbeschichtung sehr hell.

Beispiel 15

[0088] Der farbverschiebende Spiegelfilm von Beispiel 13 wurde unter Verwendung des in Beispiel 11 beschriebenen Vorgangs mit Zinksulfid dampfbeschichtet, um die Struktur zu schützen. Die holographischen Bilder waren wie in Beispiel 13 immer noch unübersehbar. Der Film könnte dann wie in Beispiel 12 mit einem Acryllack beschichtet werden, um die Struktur vor Kratzern zu schützen. Andere Reflektoren mit hohem Brechungsindex wie etwa jene, die in der US-Patentschrift Nr. 4,856,857 (Takeuchi et al.) beschrieben sind, könnten ebenfalls für einen derartigen Aufbau verwendet werden.

Beispiel 16

[0089] Ein farbverschiebender Film, der aus 224 abwechselnden Schichten aus PEN/PMMA-Polymeren bestand, mit einer unteren Bandkante von 740 Nanometer würde eine Veränderung von Durchsichtig zu Cyan (generisch ein „durchsichtig-zu-gefärbter Film“) zeigen, wenn der Film mit zunehmenden Betrachtungswinkeln betrachtet würde, wie in der US-Patentschrift Nr. 6,045,894 (Jonza et al.) mit dem Titel „Clear to Colored Security Film“ beschrieben ist. Um einen anderen beispielhaften Film bereitzustellen, könnte wie in Beispiel 13 ein durchsichtiges PMMA-Harz auf die vordere Fläche des Films aufgebracht werden, oder könnte der Film mit PMMA als Außenschicht hergestellt werden. Dann könnte der Film unter Verwendung des Vorgangs von Beispiel 8 holographisch geprägt werden.

[0090] Es würde erwartet werden, dass die holographischen Bilder an der vorderen Fläche des Films sichtbar sind. Es würde erwartet werden, dass die Bilder sichtbar sind, wenn sie durch den Film betrachtet werden, wobei die Struktur zur hinteren Fläche des Films gerichtet ist. Es würde erwartet werden, dass die Authentizität der holographischen Bilder durch Erhöhen des Betrachtungswinkels des Films und Betrachten der Farbverschiebung von Durchsichtig zu Cyan verifiziert wird. An der strukturierten Seite könnte ein Zinksulfid oder eine andere Beschichtung mit einem hohen Brechungsindex von der Art, die in Beispiel 11 beschrieben ist, hinzugefügt werden. Dann könnte über der Struktur ein schützender Lack von der Art, die in Beispiel 12 beschrieben ist, oder ein Klebstoff hinzugefügt werden, damit der holographische farbverschiebende Film als ein Überlaminat verwendet werden könnte.

Beispiel 17

[0091] Um andere beispielhafte Aufbauten zu erzeugen könnte eine holographische Struktur den oben beschriebenen mehrschichtigen optischen Filmen hinzugefügt werden, indem die holographische Struktur auf eine Weise, die in der Holographietechnik

bekannt ist und zum Beispiel in der US-Patentschrift Nr. 5,948,199 (McGrew) beschrieben ist, direkt auf die Fläche des Films gegossen und gehärtet wird. Ein Aufbau dieser allgemeinen Art ist in [Fig. 16](#) veranschaulicht. Zusätzliche Schichten mit hohem Brechungsindex, Schutzschichten und Klebstoffschichten könnten wie oben unter Bezugnahme auf geprägte Hologramme beschrieben bereitgestellt werden.

[0092] Die hierin beschriebenen mehrschichtigen optischen Filme, und insbesondere jene mit holographischen Bildern, können für eine oder mehrere einer Vielfalt von Verwendungen, einschließlich als Etikett, als Polymergeld, als ein Bestandteil eines Dokuments von Wert (wie etwa eines Reisepasses, eines Titeldokuments, eines Authentizitätszertifikats, oder dergleichen), als ein Bestandteil einer Karte (wie etwa eines Ausweises, eines Führerscheins, einer Kreditkarte, oder dergleichen), oder als ein Bestandteil eines Gebrauchsguts (wie etwa eines Spielzeugs, der Verpackung für ein anderes Produkt, oder jedes beliebigen anderen Produkts, das für Verbraucher in einem Geschäft erhältlich ist), verwendet werden.

Patentansprüche

1. System, mit in Kombination:
 einem mehrschichtigen reflektiven Polarisatorfilm, der abwechselnde Schichten aus mindestens einem ersten Polymer und einem zweiten Polymer und einem holographischen Bild aufweist;
 einem gedruckten Bild, wobei der mehrschichtige reflektive Polarisatorfilm über dem gedruckten Bild liegt; und
 einem verifizierenden Polarisatorfilm, wodurch das holographische Bild auf dem mehrschichtigen reflektiven Polarisatorfilm von schwach sichtbar, wenn das gedruckte Bild wahrnehmbar ist, zu sichtbar, wenn das gedruckte Bild nicht wahrnehmbar ist, übergeht, während die beiden Polarisatorfilme ihre Ausrichtung verändern.

2. System nach Anspruch 1, wobei der mehrschichtige reflektive Polarisatorfilm mindestens eine zusätzliche Schicht auf dem holographischen Bild aufweist.

3. System nach Anspruch 1, wobei das holographische Bild in oder auf mindestens einer aus einer Außenschicht des mehrschichtigen reflektiven Polarisatorfilms bereitgestellt ist.

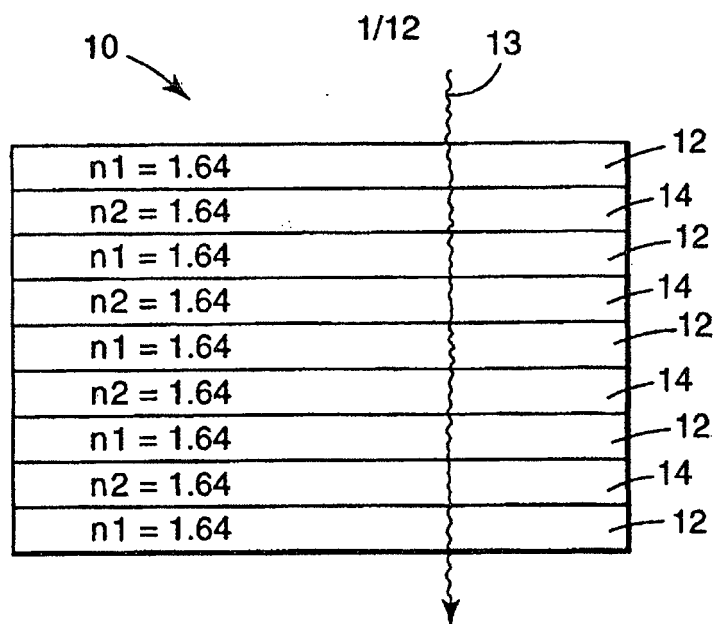
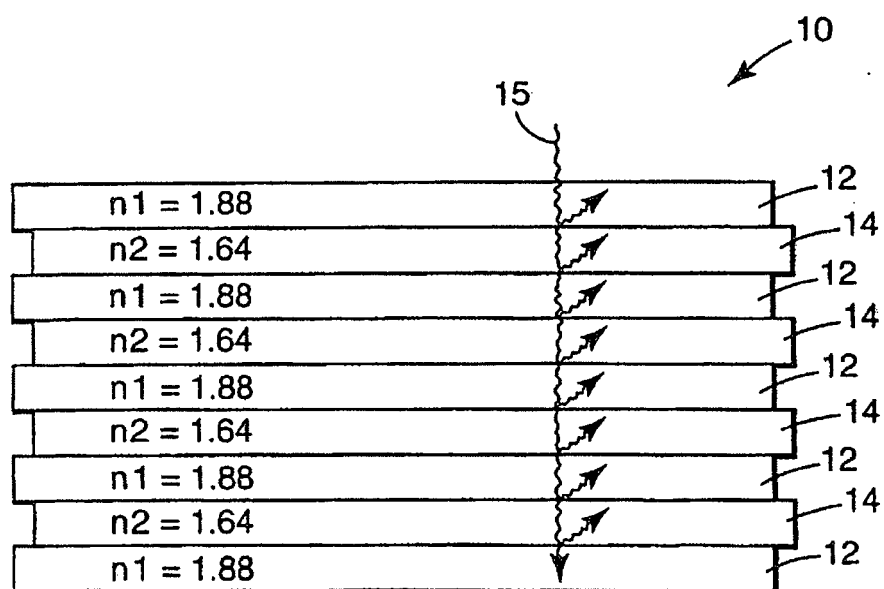
4. System nach Anspruch 1, wobei das holographische Bild in einer Hautschicht auf mindestens einer aus einer Außenschicht des mehrschichtigen reflektiven Polarisatorfilms bereitgestellt ist.

5. System nach Anspruch 1, wobei das holographische Bild nicht in einer äußersten Schicht des optischen Stapels ist.

6. System nach Anspruch 1, wobei mindestens eines der Polymere eine spannungsinduzierte Doppelbrechung aufweist.

7. System nach Anspruch 6, wobei der mehrschichtige reflektive Polarisatorfilm Schichten aus einem halbkristallinen Polymer mit einer durchschnittlichen Dicke von nicht mehr als 0,5 Mikron und Schichten des zweiten Polymers mit einer durchschnittlichen Dicke von nicht mehr als 0,5 Mikron aufweist, wobei der mehrschichtige reflektive Polarisatorfilm in mindestens einer Richtung auf mindestens das Doppelte der ungedehnten Abmessung in dieser Richtung gedehnt wurde, wobei der mehrschichtige reflektive Polarisatorfilm eine erste und zweite Hauptfläche aufweist, wobei jede der Schichten Brechungsindizes n_x und n_y in einer Ebene der Schicht und n_z normal zur Ebene der Schicht aufweist.

Es folgen 12 Blatt Zeichnungen

*Fig. 1a**Fig. 1b*

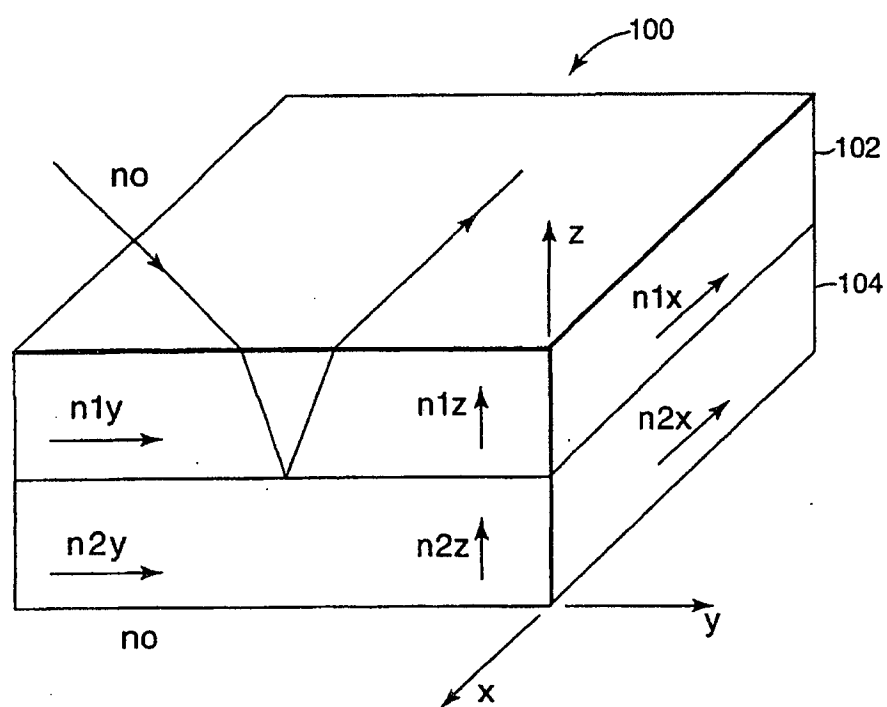


Fig. 2

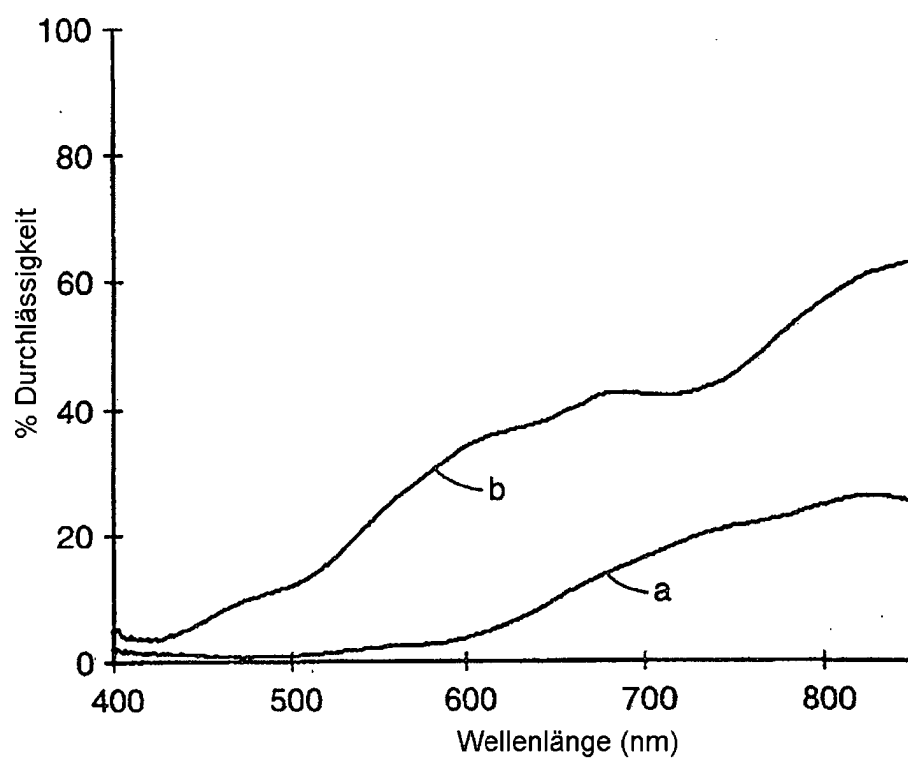


Fig. 3

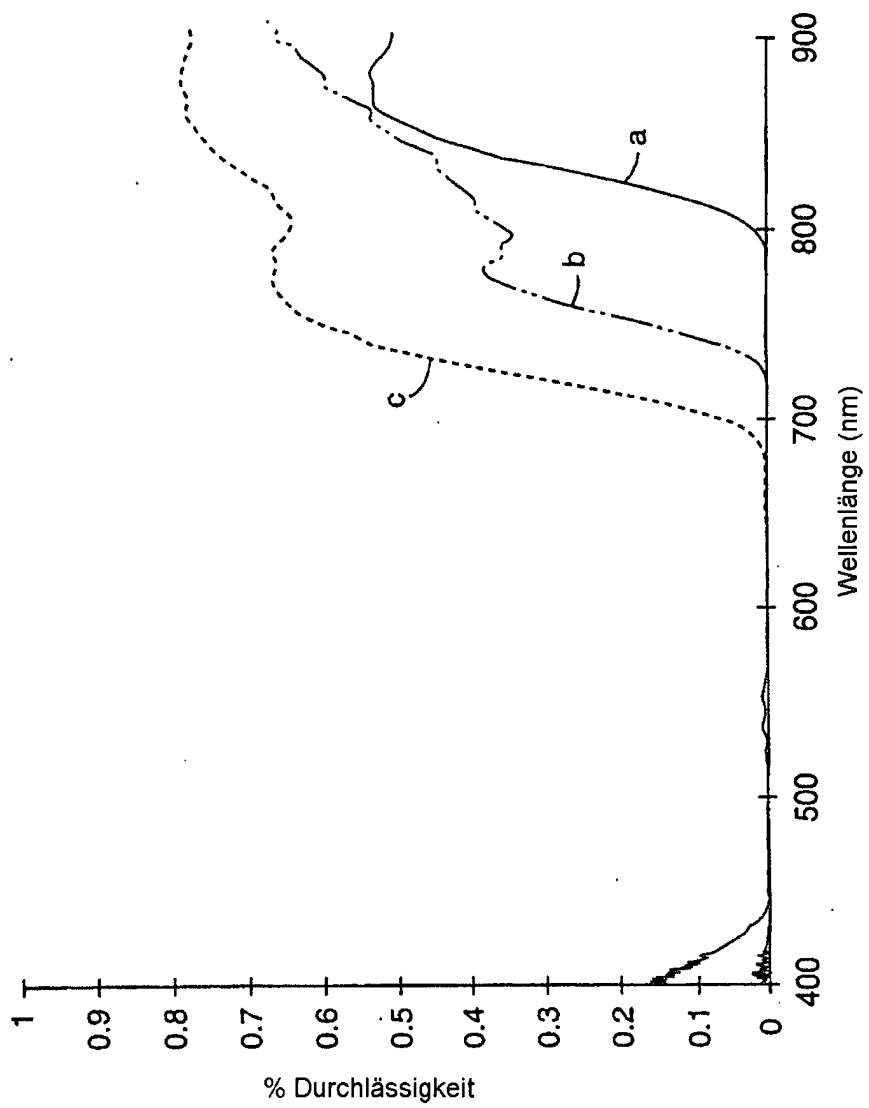


Fig. 4

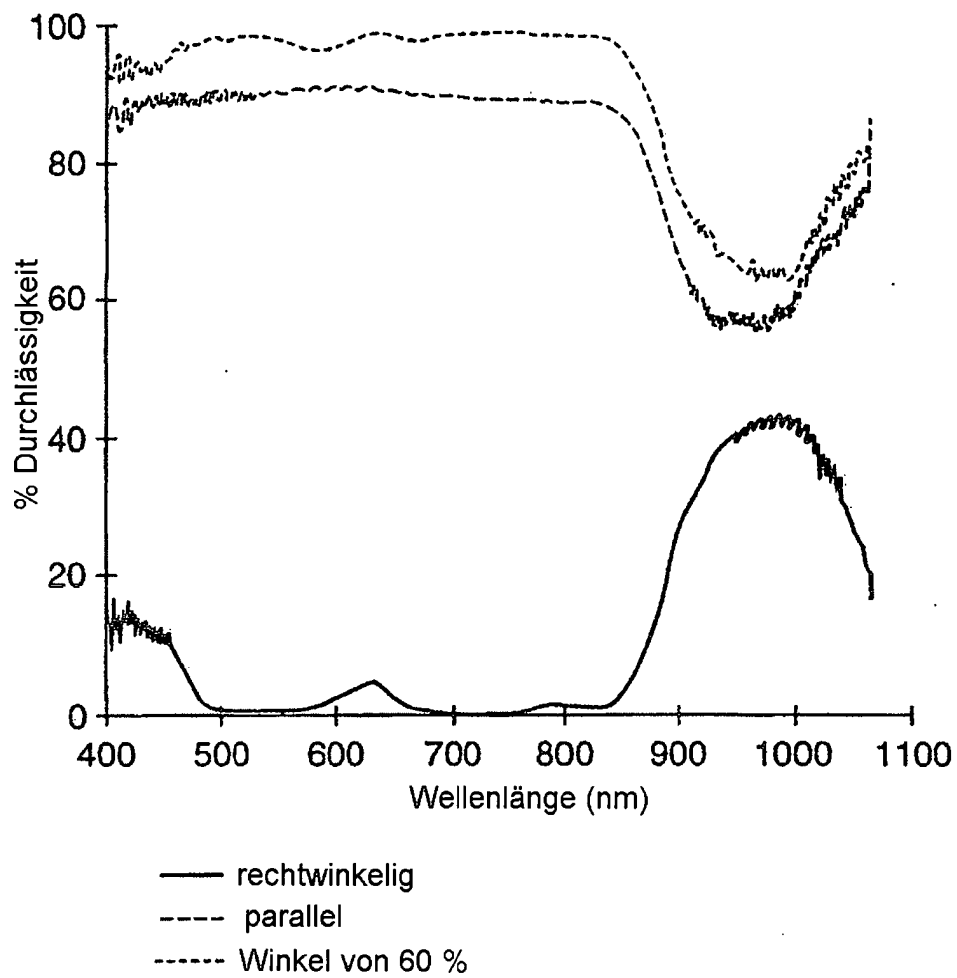


Fig. 5

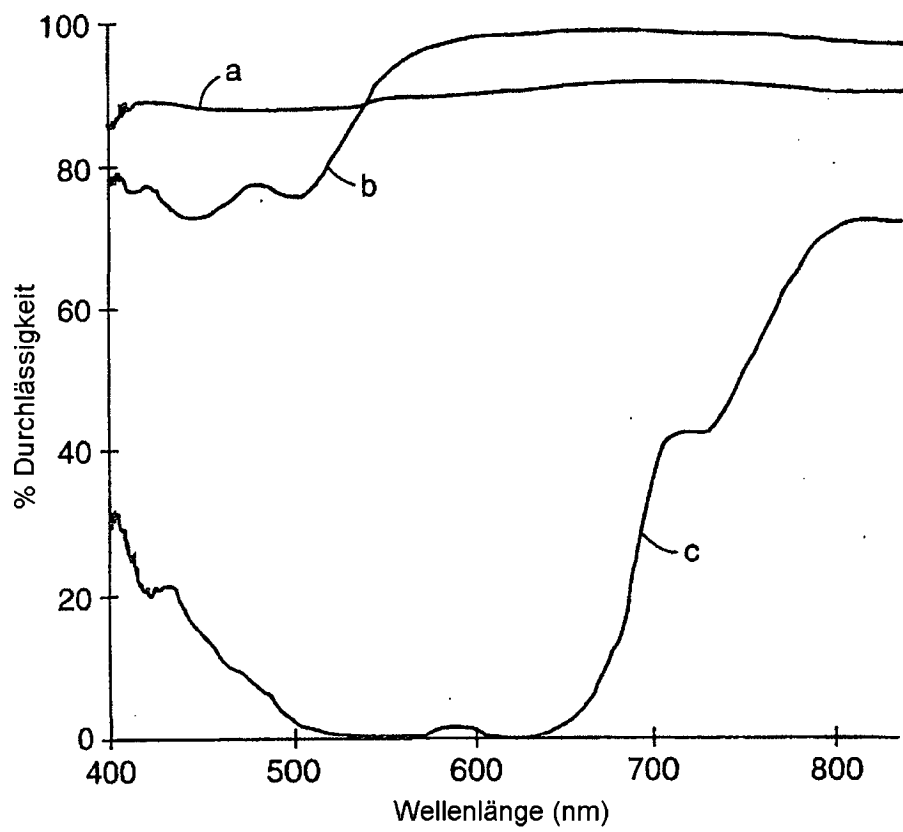


Fig. 6

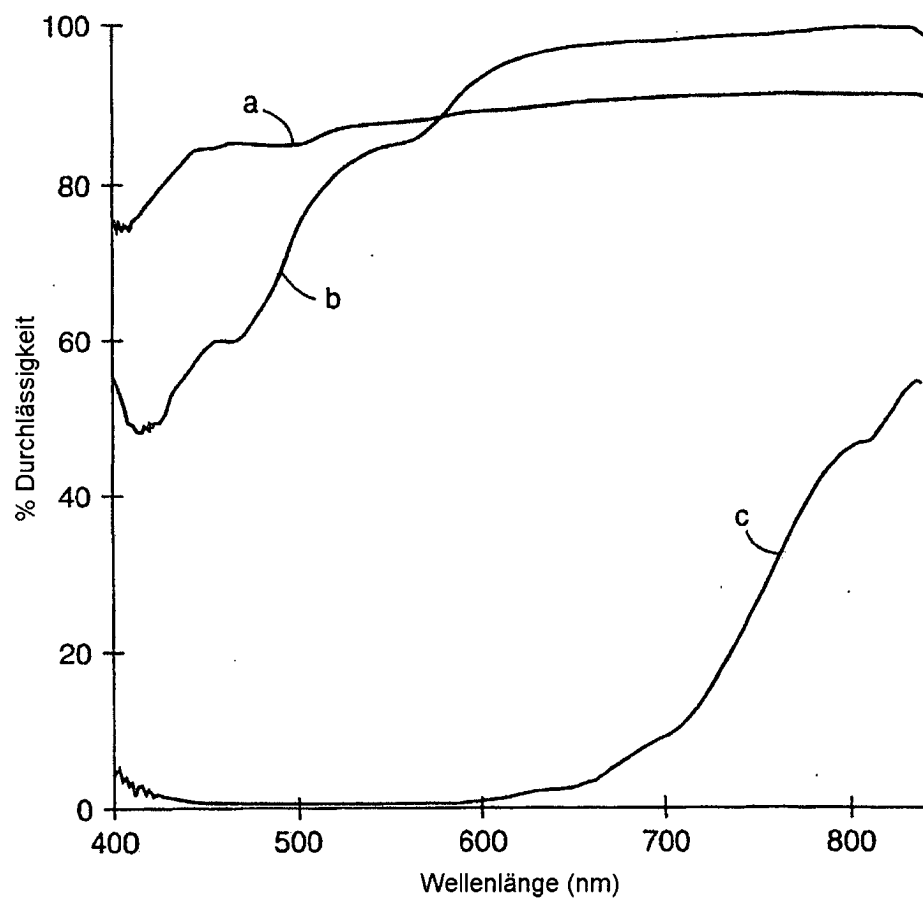


Fig. 7

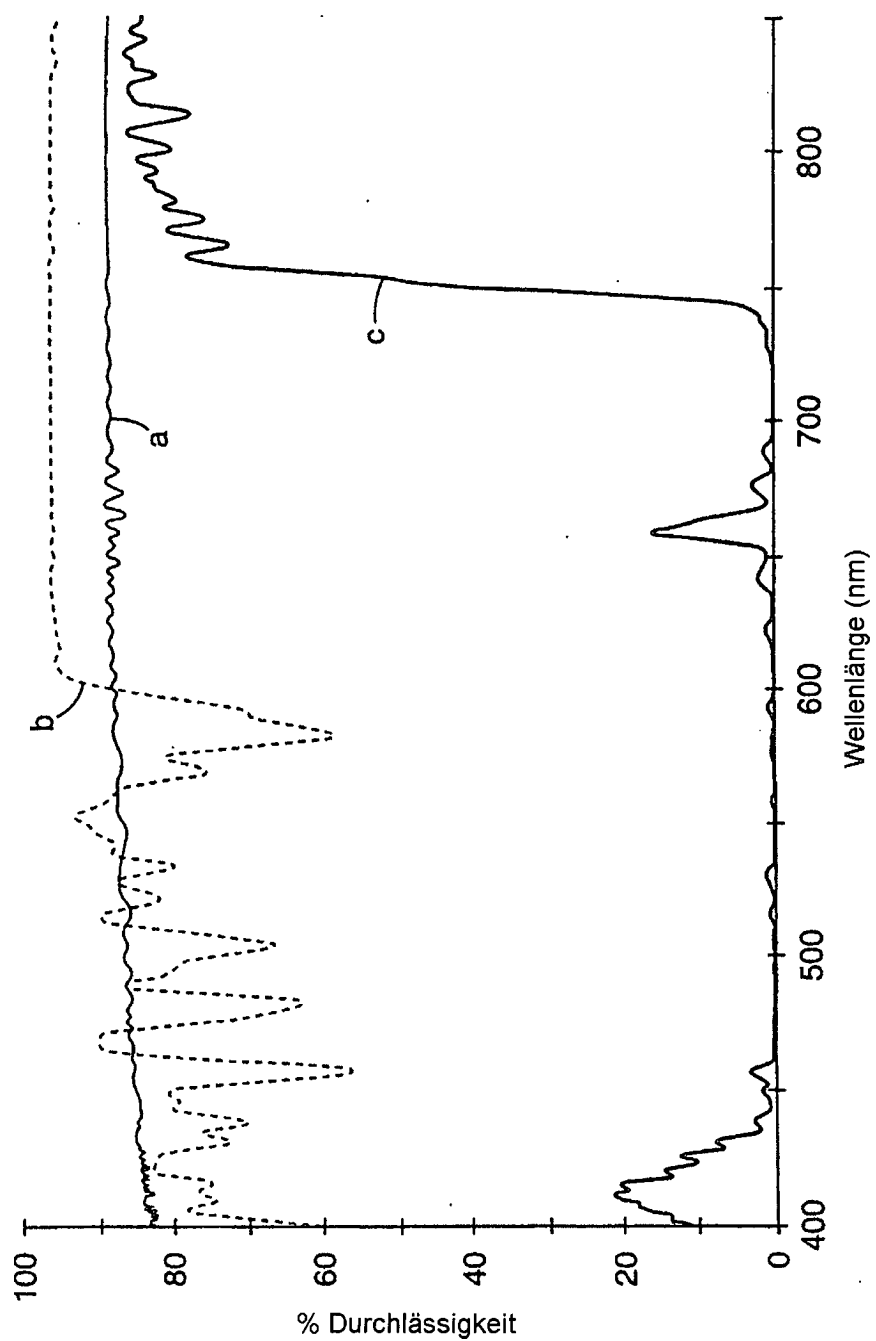


Fig. 8

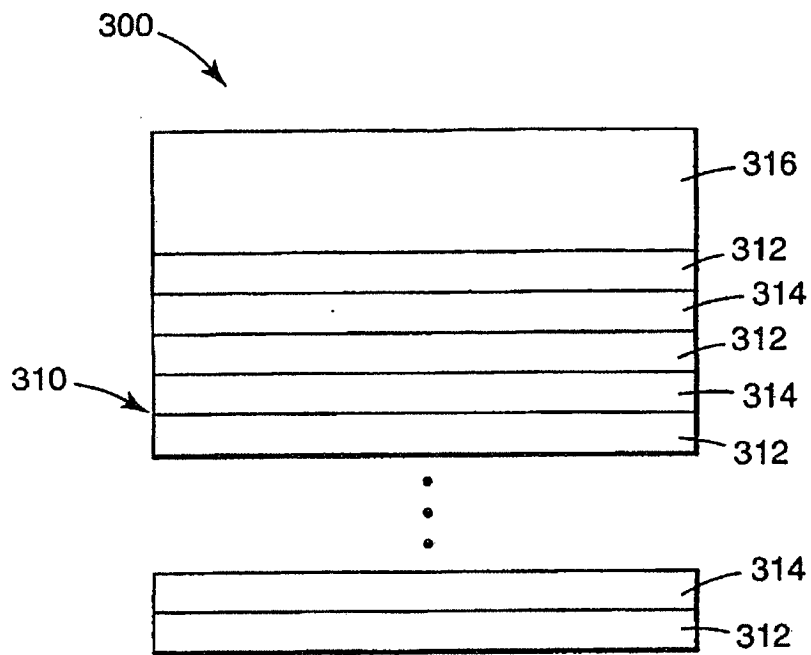


Fig. 9

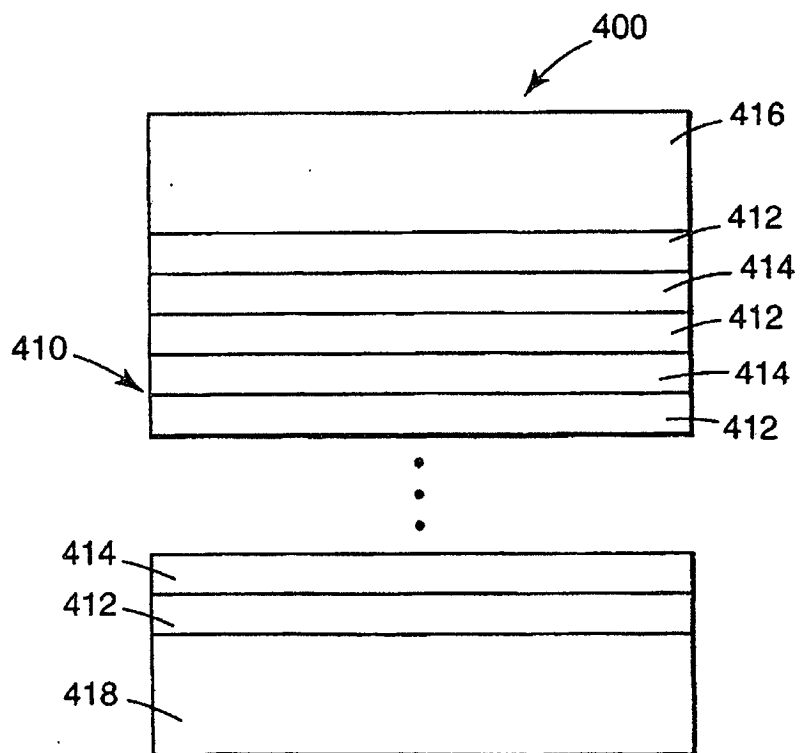


Fig. 10

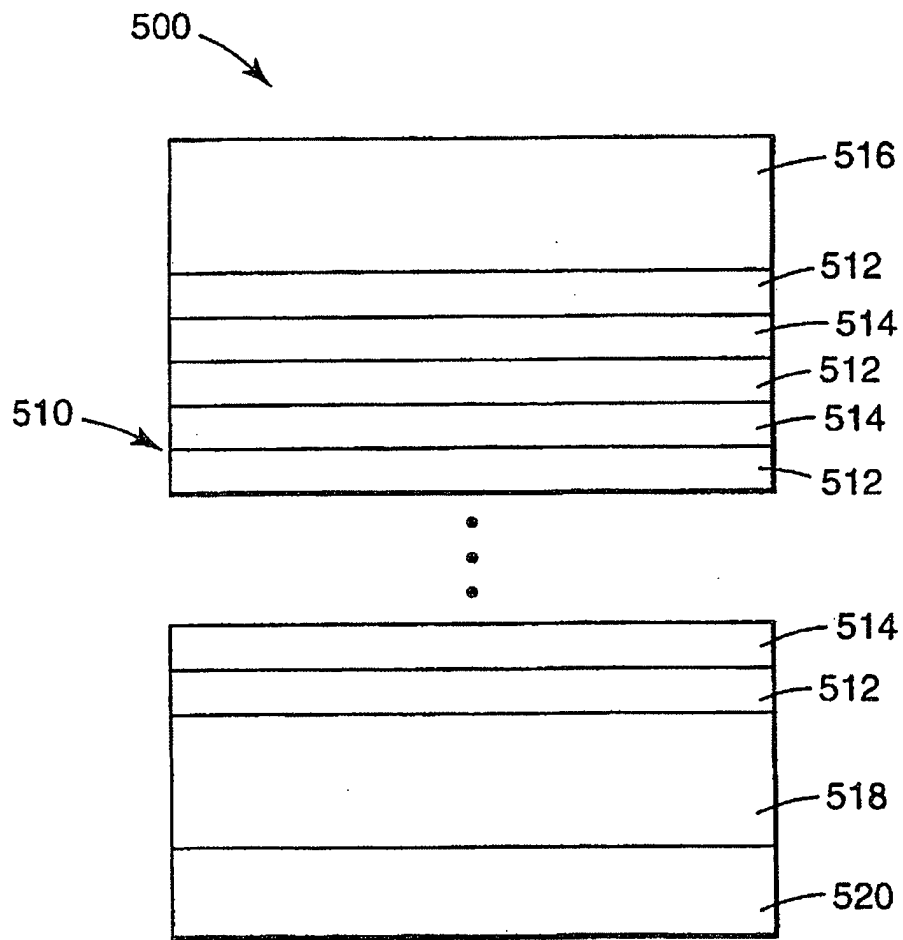


Fig. 11

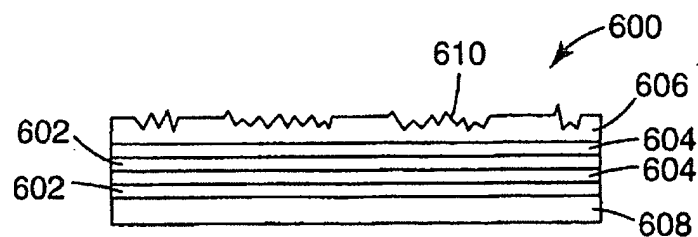


Fig. 12

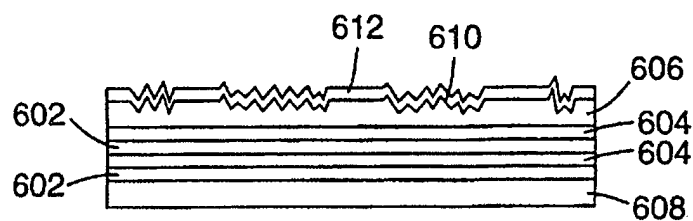


Fig. 13

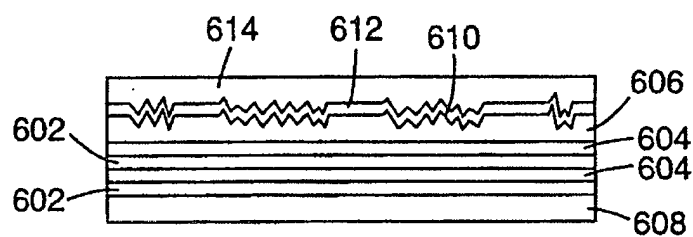


Fig. 14

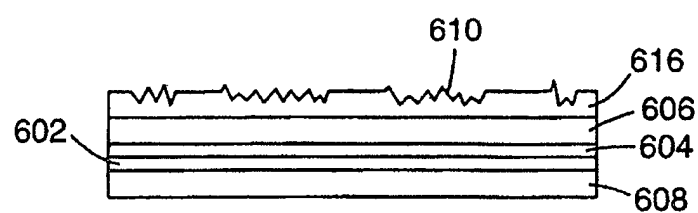


Fig. 15

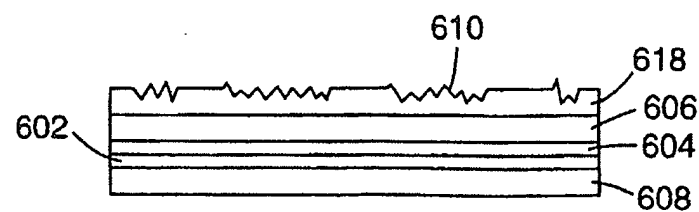


Fig. 16

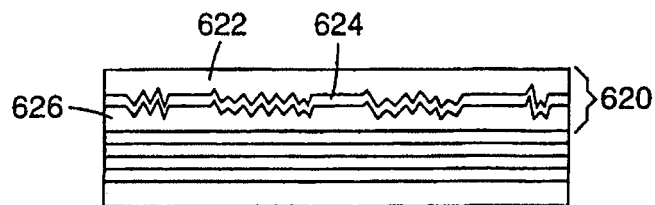


Fig. 17

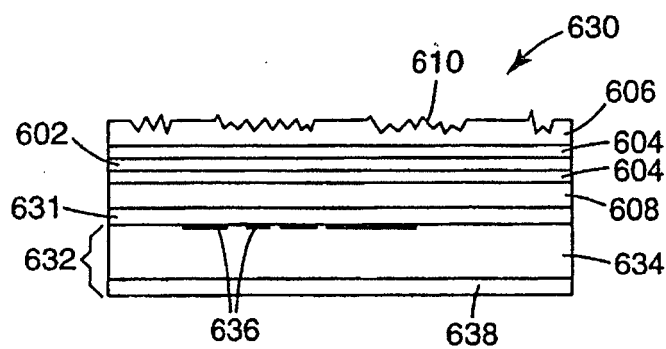


Fig. 18

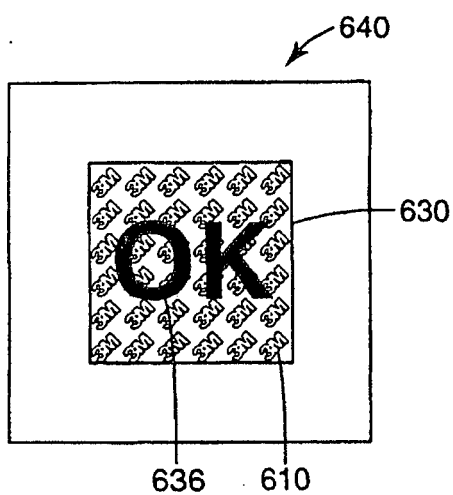


Fig. 19

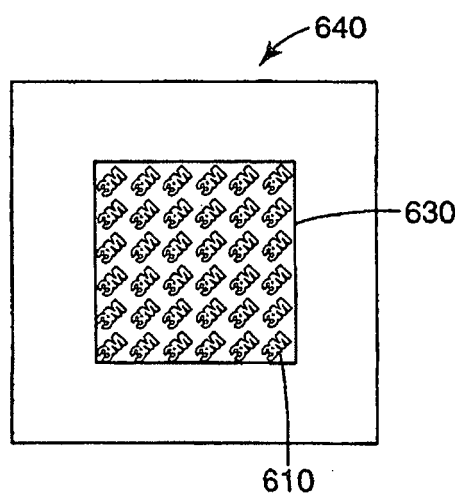


Fig. 20