

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第4221522号
(P4221522)

(45) 発行日 平成21年2月12日 (2009. 2. 12)

(24) 登録日 平成20年11月28日 (2008. 11. 28)

(51) Int. Cl.

F I

G O 2 B 5/30 (2006. 01)

G O 2 B 5/30

C O 8 L 67/02 (2006. 01)

C O 8 L 67/02

B 2 9 C 55/02 (2006. 01)

B 2 9 C 55/02

C O 8 J 5/00 (2006. 01)

C O 8 J 5/00 C E T

C O 8 J 5/18 (2006. 01)

C O 8 J 5/18 C F D

請求項の数 2 (全 42 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願平9-530975
 (86) (22) 出願日 平成9年2月18日 (1997. 2. 18)
 (65) 公表番号 特表2000-506991 (P2000-506991A)
 (43) 公表日 平成12年6月6日 (2000. 6. 6)
 (86) 国際出願番号 PCT/US1997/002293
 (87) 国際公開番号 W01997/032223
 (87) 国際公開日 平成9年9月4日 (1997. 9. 4)
 審査請求日 平成16年2月18日 (2004. 2. 18)
 (31) 優先権主張番号 08/610, 110
 (32) 優先日 平成8年2月29日 (1996. 2. 29)
 (33) 優先権主張国 米国 (US)

(73) 特許権者
 スリーエム カンパニー
 アメリカ合衆国, ミネソタ 55144-
 1000, セントポール, スリーエム セ
 ンター
 (74) 代理人
 弁理士 石田 敬
 (74) 代理人
 弁理士 吉田 維夫
 (74) 代理人
 弁理士 戸田 利雄
 (74) 代理人
 弁理士 西山 雅也
 (74) 代理人
 弁理士 樋口 外治

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 共一連続相を有する光学薄膜

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

熱可塑性樹脂を含む連続気泡ポリマーの、複屈折性の第1の相と、
 前記第1の相の気泡中に存在する、熱可塑性樹脂を含む非複屈折性の第2の相と
 を含む偏光子において、前記第1の相と第2の相との屈折率の差の絶対値が、第1の軸に
 沿って n_1 であり、前記第1の軸に直交した第2の軸に沿って n_2 であり、かつ、 n_1 と
 n_2 との差の絶対値が少なくとも0.1であり、そして
 前記第1の相が相互に連結した気泡の網目構造物を含む、
 偏光子。

【請求項 2】

熱可塑性樹脂を含む連続気泡ポリマーの、複屈折性の第1の相と、
 前記第1の相の気泡中に存在する、熱可塑性樹脂を含む非複屈折性の第2の相と
 を含む偏光子において、前記第1の相と第2の相との屈折率の差の絶対値が、第1の軸に
 沿って n_1 であり、前記第1の軸に直交した第2の軸に沿って n_2 であり、かつ、 n_1 と
 n_2 との差の絶対値が少なくとも0.05であり、そして
 前記第1の相が相互に連結した気泡の網目構造物を含み、かつ、前記第2の相が前記網目
 構造物内に配置される、
 偏光子。

【発明の詳細な説明】

技術分野

10

20

本発明は、反射率や透過率のような光学特性を制御するのに好適な構造を有する光学材料に関する。別の態様においては、それは反射光または透過光の特定の偏光を制御することに関する。

背景技術

連続したマトリックス中に包含物を分散させて作製する光学薄膜は、従来技術に周知である。

これらの包含物の特性を操作して、薄膜に広範囲の反射特性および透過特性を提供することができる。

これらの特性は、薄膜中の包含物の波長に対する大きさ、包含物の形状および配列、包含物の容量充てん率および、薄膜の直交3軸に沿って求めた連続マトリックスの屈折率の不整合度を含む。

10

従来の吸収（二色性）偏光子は、それらの包含物相として、ポリマーマトリックス中で整列させられる光吸収ヨウ素の棒状無機鎖を有する。このような薄膜は、棒状ヨウ素鎖に平行に整列させられたその電界ベクトルによって偏光された光を吸収し、棒状鎖に垂直に偏光された光を透過する傾向がある。

というのも、ヨウ素鎖は可視光の波長に比べて小さい2つ以上の寸法を有し、また光の立方波長当たりの鎖の数が大きいため、このような薄膜の光学特性は、主として鏡面性であり、薄膜を介する拡散透過、薄膜表面からの拡散反射はきわめてわずかである。

大部分の他の市販の偏光子のように、これらの偏光薄膜は、偏光-選択吸収性である。

異なった特性を有する無機包含物を充填された薄膜は、他の光学透過および反射特性を提供することができる。

20

例えば、可視波長に比べて大きい2つ以上の寸法を持った被覆雲母フレークをポリマー薄膜中に、およびペイント中に組み入れ、金属光沢を付与する。

これらのフレークを薄膜面に存在するようにして使用し、これによって反射の見えが方向に大きく左右されるようにすることができる。

このような効果を利用して、一定の視角に対して強く反射し、別の視角に対して透過する安全スクリーンを製造することができる。

入射光に対して呈色（選択正反射）が配列に依存する大きいフレークを、薄膜中に取り入れて、不当に手が加えられた場合はっきりわかるようにすることができる。この用途において、薄膜中のすべてのフレーク同士が同様に整列されることが必要である。

30

しかし、無機の包含物を充填されたポリマーから作製された光学薄膜は、いろいろな欠陥がある。

一般に、無機粒子とポリマーマトリックスとの間の接着は好ましくない。

従って、マトリックスと包含物との間の結合が損なわれると共に硬質の無機包含物が破断される場合もあるので、応力または歪みがマトリックスに加えられるときに薄膜の光学的性質は低下する。

さらに、無機包含物の配列には、製造を複雑にする工程ステップおよび問題点がある。

米国特許第4,688,900号（ドアンら）に開示されるような他の薄膜は、光変調液晶の小滴を分散させた光透過性の透明な連続ポリマーマトリックスからなる。上記の物質を伸張すると、液晶の小滴が球形から長軸が延伸方向に平行な楕円形状に歪むことが報告されている。

40

米国特許第5,301,041号（コヌマら）に同様の内容が開示されているが、加圧によって液晶の小滴に歪みが生ずる。

A. アファニン著、『Optical Properties of Stretched Polymer Dispersed Liquid Crystal Films』、Angle-Dependent Polarized Light Scattering、Liquid Crystals、Vol. 19、No. 4、469 - 480（1995年）には、液晶の小滴をポリマーマトリックス中に配置した延伸薄膜の光学特性について論じられている。

上記の報告によれば、小滴を長軸が延伸方向に平行に楕円形状に伸長されることにより、小滴を配向複屈折（小滴の次元軸の間の屈折率に差がある）を有するものにし、その結果、特定の薄膜軸に沿って分散相と連続相との間の相対的な屈折率の不整合を生じ、他の薄

50

膜軸に沿って屈折率が相対的に整合する。

この液晶小滴は、薄膜内の可視波長と比較して小さくなく、このようにこの薄膜の光学特性は、それらの反射および透過特性の本質的な拡散成分を有する。アファニン[®]は、偏光拡散体として、バックライト付きネマチックLCDにこれらの物質を使用することを勧めている。

しかし、液晶を分散相として使用する光学薄膜は、マトリックス相と分散相との間の屈折率の不整合の度合が本質的に限定されている。

さらに、このような薄膜の液晶成分の複屈折は一般に、温度敏感性である。

米国特許第5,268,225号(アイサエフ)は、複合材料がサーモトロピック液晶ポリマーブレンドから作製された複合積層品について開示する。

同ブレンドは、互いに非混和性の2種の液晶ポリマーからなる。ブレンドを、分散包含物相と連続相とからなる薄膜に流延することができる。

薄膜を延伸すると、分散相は、軸を延伸方向に整列した繊維の系列を形成する。

上記の薄膜は機械的性質を改良することが述べられているが、薄膜の光学特性については言及されていない。

しかし、それらの液晶の性質のために、この種の薄膜は上記の他の液晶物質の欠陥を有する。

電界または磁界を印加することによって望ましい光学特性を示すさらに他の薄膜が、作製されている。

例えば、米国特許第5,008,807号(ウォーターズら)は、液晶物質で満たすと共に2つの電極間に配置された繊維層からなる液晶装置について記載している。

電極間に電圧を印加することにより、電界が生じて液晶材料の複屈折率特性を変化させ、繊維と液晶との屈折率の間にいろいろな度合の不整合が生じる。

しかし、電界または磁界が必要とする条件は、多くの用途、特に既存の場が干渉を生じる可能性がある用途においては、望ましくない。

他の光学薄膜は、第1のポリマーの包含物の分散系を第2のポリマーに取り入れ、次に得られた複合材料を一方向または二方向に伸張することによって作製された。

米国特許第4,871,784号(オトナリら)は、この技術についての具体例を示している。同ポリマーは、分散相と周囲のマトリックスポリマーとの間の接着が弱くなるように選択され、その結果、薄膜が延伸される時に各々の包含物の周りに楕円形のボイドが形成される。このボイドの大きさは、可視波長のオーダーである。

これらの「微細なボイドの生じた」薄膜中のボイドとポリマーとの間の屈折率の不整合は、一般に非常に大きく(約0.5)、本質的な拡散反射を生じる。

しかし、微細なボイドの生じた物質の光学特性は、界面の幾何学的形状が変化するために制御することが難しく、偏光-感受性の光学特性に有用な、屈折率が比較的整合する薄膜軸を生むことができない。

さらに、このような物質のボイドは、加熱および加圧によって容易に気泡が破壊できる。分散相が連続マトリックス内に規則的なパターンで確定的に配列される光学薄膜もまた、作製されている。

米国特許第5,217,794号(シュレンク)はこのについて具体的に説明している。そこにおいて、2軸で求めた波長よりも大きく、別のポリマー物質の連続マトリックス中に配置されたポリマー包含物から作製されているラメラポリマー薄膜が開示されている。

積層体の1つ以上の軸に沿って求めた分散相と連続相との屈折率の差が著しく大きく、他の軸に沿っては相対的によく整合する。分散相が規則的に配列されるために、この種の薄膜は、それらが本質的に反射性である場合、強い真珠光沢(すなわち、干渉による角度依存着色)を示す。

結果として、このような薄膜は、光学的拡散が望ましい光学用途での使用に限られる。

このように、連続相と分散相とからなる光学材料において、物質の3次元軸に沿って求めた2つの相の間の屈折率の不整合をよい具合に、かつ恒久的に操作して、所望の拡散反射率および拡散透過率、正反射率および正透過率を得ると共に、光学材料が応力、歪み、温

10

20

30

40

50

度差、電界および磁界に対して安定しており、光学材料がわずかに真珠光沢を有する光学材料については、従来技術において依然として需要がある。

これらおよび他の要望に、本文に開示したように、本発明は応えようとするものである。

【図面の簡単な説明】

図 1 は、内部に、分散相が本質的に円形断面を有する伸長された質量系列として配列される本発明に従って作製された光学体を示す略図である。

図 2 は、内部に、分散相が本質的に楕円断面を有する伸長された質量系列として配列される本発明に従って作製された光学体を示す略図である。

図 3 a-e は、本発明に従って作製される光学体内の分散相のいろいろな形状を示す略図である。

図 4 a は、延伸方向に垂直な偏光に対して、本発明に従って延伸された薄膜の散乱角の関数の二方向散乱分布のグラフである。

図 4 b は、延伸方向に平行な偏光に対して、本発明に従って延伸された薄膜の散乱角の関数の二方向散乱分布のグラフである。

図 5 は、本発明に従って作製される多層薄膜の略図である。

図 6 a と 6 b は、本発明に従って作製された光学薄膜の電子顕微鏡写真である。

発明の開示

態様の一つにおいて、本発明は、連続ポリマー複屈折相および前記の連続相内に配置される実質的な非複屈折分散相とを含む拡散反射薄膜または他の光学体に関する。前記の連続相と分散相との屈折率は、3つの相互に直交した軸のうちの第1の軸に沿って実質的に不整合であり（すなわち、互いの差が約0.05を超える）、3つの相互に直交した軸のうちの第2の軸に沿って実質的に整合である（すなわち、互いの差が約0.05未満である）。若干の実施例においては、連続相と分散相との屈折率は、ミラーまたは偏光子を生むために、3つの相互に直交した軸のうちの第3の軸に沿ってまたはこれに平行に、実質的に整合または不整合である。不整合軸に沿って、またはこれに平行に偏光された入射光は、散乱し、著しい拡散反射を生じる。整合軸に沿って偏光された入射光の散乱の程度が減少し、有意に分光透過される。これらの特性を利用して、有意に透過されない偏光が拡散反射される低損失（有意に非吸収性）反射偏光子を含むいろいろな用途の光学薄膜を作製することができる。

関連の態様において、本発明は、連続ポリマー複屈折相と分散相とを含む光学薄膜または他の光学体であって、光学体の表面に垂直な軸に沿って連続相と分散相との屈折率が実質的に整合している（連続相と分散相との間の屈折率の差が約0.05未満である）光学薄膜または他の光学体に関する。

別の態様において、本発明は、分散した第2の相がその内部で複屈折するが、少なくとも2つの直交した方向の整合および不整合の度合いが、主に第1の相の複屈折率によって決まるポリマー連続複屈折相としての第1の相を含む複合光学体に関する。

さらに別の態様において、本発明は、その複屈折率を寸法の延伸または電界の印加によるような力の場を適用することによって変えることができ、その結果、得られた樹脂材料が、少なくとも2つの直交した方向に対して、屈折率の差が約0.05より大きい第1の樹脂を提供するステップと、第1の樹脂中に分散した、第2の樹脂を提供するステップと、前記2種の樹脂の屈折率が、2つの方向のうちの一方において約0.05未満の範囲で整合し、2つの方向のうちの他方において、第1および第2の樹脂の間の屈折率の差が約0.05を超えるように前記力の場を両方の樹脂の複合材に適用するステップと、を含む拡散反射偏光子を得るための方法に関する。

関連の実施例において、第2の樹脂は、力の場を加えてから第1の樹脂の複屈折率が変化した後に第1の樹脂内に分散される。

さらに別の態様において、本発明は高い吸光比で反射偏光子として作用する光学体に関する。この態様において、整合方向における屈折率の差は可能な限り小さく選択され、不整合方向における差は最大にされる。異なった偏光の光学透過と反射との相対的な重要性は、異なった用途で変化することがあるが、体積分率、厚さおよび分散相の粒度と形状は、

10

20

30

40

50

吸光度比を最大にするように選択することができる。

別の態様において、本発明は、連続相と、前記連続相の屈折率との差が第1の軸に沿って約0.05大きく、前記第1の軸に直交した第2の軸に沿って約0.05より小さい屈折率を有する分散相と、二色性染料とを含む光学体に関する。光学体は、少なくとも1つの軸に沿って延伸されるのが好ましい。二色性染料は、散乱のほかに、延伸軸に平行に偏光された光を吸収することによって、光学体の吸光係数を改良する。

本発明の更に別の態様において、少なくとも1つの軸に沿って共-連続的である少なくとも第1および第2の相を有する光学体が提供される。第1の相は、第2の相の屈折率との差が第1の軸に沿って約0.05より大きく、前記第1の軸に直交した第2の軸に沿って約0.05より小さい屈折率を有する。他の実施例においては、3つ以上の共-連続相を用いて、相互に垂直な軸に沿って同一または同様の整合および不整合を得ることができる。

10

本発明の種々の態様において、入射光の少なくとも2つの直交した偏光の反射および透過特性を、連続相および分散相の光学屈折率、分散相粒子の大きさおよび形状、分散相の体積分率、入射光の一部分が通過する光学体の厚さ、該当する電磁放射線の波長または波長帯を含む種々のパラメータを選択または操作して調べた。

特定の軸に沿う屈折率の整合または不整合の大きさは、その軸に沿って偏光された光の散乱度に直接に影響を及ぼす。一般に、散乱能は屈折率の不整合の2乗として変化する。このように、特定の軸に沿う屈折率の不整合がより大きくなると、それだけその軸に沿って偏光された光の散乱が大きくなる。逆に、特定の軸に沿う不整合が小さい場合、その軸に沿って偏光された光は散乱の程度がより小さくなり、それによってその光学体の容積を介して正透過される。

20

分散相の大きさもまた、散乱に著しい効果を及ぼすことができる。分散相粒子が小さすぎ（すなわち、該当する媒体中の光の波長の約 $1/30$ 未満）、かつ、立方波長当たりの粒子が多い場合、光学体はいずれの所与の軸に沿っても2つの相の屈折率間の効率的な屈折率の媒体として作用する。このような場合、光は極めて少ししか散乱しない。粒子が大きすぎる場合、光は他の方向への拡散がほとんどなく、粒子表面から正反射される。粒子が少なくとも2つの直交した方向において非常に大きい場合、望ましくない真珠光沢の効果も生じることがある。粒子が大きくなると、光学体の厚さがより大きくなると共に望ましい機械的特性が得られないという点で、実用上の限界も生じる。

30

分散相の粒子の形状もまた、光の散乱に効果を及ぼすことができる。屈折率の整合および不整合方向の電界による粒子の偏光解消因子は、一定方向への散乱の量を減少または増すことができる。この効果により、屈折率の不整合による散乱量を増減できるが、一般に本発明の特性の望ましい範囲内で散乱にわずかに影響を及ぼす。

粒子の形状もまた、粒子から散乱する光の拡散度に影響を与えることができる。この形状による効果は一般に小さいが、光の入射方向に垂直な平面における粒子の幾何学断面のアスペクト比が増すにつれ、および、粒子が相対的により大きくなるにつれて増す。一般に、本発明の作業において、正反射よりむしろ拡散反射が好ましい場合、分散相粒子は、1つまたは2つの相互に直交した次元において光のいろいろな波長より大きさが小さくなければならない。

40

寸法に関する配列もまた、分散相の散乱挙動に効果を及ぼすことがわかっている。特に、本発明に従って作製された光学体において、配列された散乱体は、ランダムに配列された散乱体のように、正透過または正反射の方向を中心にして対称的に光を散乱しないことが観察されている。特に、棒状になるように延伸によって伸長された包含物は光を第一に、延伸方向の中心に位置すると共に正透過方向に沿って縁部を有する円錐に沿って（またはその近くに）散乱させる。例えば、延伸方向に垂直な方向に伸長したこのような棒状体上に光照射するために、散乱光は、正反射方向を基準にして角度が増すにつれて強度を減じながら延伸方向に垂直な平面に光の帯域としてあらわれる。包含物の幾何学的形状を調整することによって、散乱光の分布を、透過半球および反射半球において若干制御できる。分散相の体積分率はまた、本発明の光学体中の光の散乱に影響を与える。一定限度内で、

50

分散相の体積分率を増加させることは、偏光の整合および不整合方向の両方について光線が光学体に入った後に生じる散乱の量を増す傾向がある。所定の用途のために反射および透過特性を制御するうえで、この因子は重要である。しかし、分散相の体積分率が非常に大きい場合、光の散乱が減少する。理論にとらわれずにみれば、これは光の波長の観点から、分散相粒子同士がより緊密になり、その結果、その粒子がより少量の有効な大きい粒子として相互に作用する傾向があるという事実のためであるように思われる。

光学体の厚さもまた、本発明において反射および透過特性に影響を与えるように操作することができる重要な制御パラメータである。光学体の厚さが増すと、拡散反射も増し、正透過および拡散透過率は減少する。

本発明はしばしば、スペクトルの可視領域に関連して本文に記載されるが、本発明の種々の実施例を用いて、光学体の成分の大きさを適切に調整することによって電磁放射線の異なった波長（したがって周波数）において操作することができる。このように、波長が大きくなると、光学体構成要素の長さは、波長単位で測定された寸法が、ほぼ一定のままになるように増加させられる。波長を変える別の主要な効果は、該当するほとんどの物質について、屈折率と吸収率が変化するということである。しかし、屈折率の整合と不整合の原理は、該当する各々の波長においても適用される。

発明を実施するための最良の形態

序論

本文に用いられる用語「正反射」および「正反射率」は、正反射角を中心とする頂角16度の鋭錐体になる光線の反射率を指す。用語「拡散反射」または「拡散反射率」は、上に規定した正反射錐体の外側にある光線の反射を指す。用語「全反射率」または「全反射」は、表面からのすべての光の反射率の総計を指す。このように、全反射は、正反射および拡散反射の合計である。

同様に、用語「正透過」および「正透過率」は、正反射方向を中心とする頂角16度の鋭錐体になる光線の透過に関して本文において用いられる。用語「拡散透過」および「拡散透過率」は、上に規定した正反射錐体の外側にあるすべての光線の透過に関して本文において用いられる。用語「全透過」または「全透過率」は、光学体を通過するすべての光の透過の総計を指す。このように、全透過は、正透過および拡散透過の合計である。

本文に用いられる用語「吸光比」は、1つの偏光において透過される全ての光と、直交した偏光において透過される光との比を意味するものとして規定される。

図1-2は、本発明の第1の実施例を示す。本発明に従って、複屈折率マトリックスまたは連続相12と不連続相または分散相14とからなる拡散反射光学薄膜10または他の光学体を作製する。連続相の複屈折率は一般に、少なくとも約0.05、好ましくは少なくとも約0.1、いっそう好ましくは少なくとも約0.15、最も好ましくは少なくとも約0.2である。

連続相および分散相の屈折率は、3つの相互に直交した軸のうちの第1の軸に沿って実質的に整合（すなわち、約0.05未満の差）であり、3つの相互に直交した軸のうちの第2の軸に沿って実質的に不整合（すなわち、約0.05を超える差）である。好ましくは、連続相および分散相の屈折率の差は整合方向において約0.03未満、いっそう好ましくは約0.02未満、最も好ましくは約0.01未満である。連続相および分散相の屈折率の差は不整合方向において少なくとも約0.07、より好ましくは少なくとも約0.1、最も好ましくは少なくとも約0.2である。

特定の軸に沿っての屈折率の不整合は、その軸に沿って偏光された入射光が実質的に散乱させられ、著しい反射を生じるという効果がある。それと対照して、屈折率が整合される軸に沿って偏光された入射光は、散乱をずっと少なくして、スペクトル透過または反射される。この効果を利用して、反射偏光子およびミラーを含むいろいろな光学装置を作製することができる。

本発明は、実用的かつ単純な光学体と、反射偏光子を作製するための方法を提供するものであり、また、本文に記載された原理に従って一連の光学特性を得るための手段を提供する。同様に、非常に効率的な低損失偏光子が、高い吸光比で得られる。他の利点としては

10

20

30

40

50

、連続相および分散相のための広範囲の実用的な材料であり、高度に制御でき、一貫性がある予測可能な高品質性能の光学体を提供する。

屈折率の整合 / 不整合の効果

好ましい実施例において、連続相と分散相のうちの少なくとも1つの材料は、延伸時に屈折率が変化する種類である。従って、薄膜が1つ以上の方向に延伸されるとき、屈折率の整合または不整合が1つ以上の軸に沿って生じる。延伸パラメータおよび他の処理条件を注意深く操作することによって、マトリックスの正または負の複屈折率を用いて、所定の軸に沿って一方または両方の偏光の拡散反射または拡散透過を誘導することができる。透過と拡散反射との間の相対的な比率は、分散相包含物の濃度、薄膜の厚さ、連続相と分散相の間の屈折率における差の2乗、分散相包含物の大きさと幾何学的形状、および入射線の波長または波長帯域に依存している。

10

特定の軸に沿う屈折率の整合または不整合の大きさは、その軸に沿って偏光された光の散乱度に直接に影響を与える。一般に、散乱能は屈折率の不整合の2乗として変化する。このように、特定の軸に沿う屈折率の不整合が大きくなればなるほど、その軸に沿って偏光された光の散乱が大きくなる。逆に、特定の軸に沿う不整合が小さいとき、その軸に沿って偏光された光の散乱の程度は小さくなり、光学体容積を介して正透過される。

図4a-bは、本発明の従って作製された延伸薄膜におけるこの効果を示す。そこにおいて、入射光が通常632.8 nmの代表的な双方向性散乱分布関数(BSDF)測定値を示す。BSDFはJ. ストーパー著、「Optical Scattering Measurement and Analysis」(1990年)に記載されている。BSDFは、延伸軸に垂直および平行している偏光の散乱角の関数として示される。散乱角ゼロは、非散乱(スペクトル透過する)光に対応する。図4aのような屈折率の整合方向に(すなわち、延伸方向に垂直に)偏光された光については、かなり大きい拡散透過光成分(散乱角が8~80度)とわずかな拡散反射光成分(散乱角が100度を超える)とを有するに著しい正透過ピークがある。図4bのような屈折率の不整合方向に(すなわち、延伸方向に平行に)偏光された光については、ごくわずかな正透過光と大幅に減少した拡散透過光成分、およびかなり大きい拡散反射成分がある。これらのグラフによって示される散乱面は、これらの伸長包含物のために散乱光の大部分が存在する延伸方向に垂直な平面であることに、注目するべきである。この平面の外側の散乱光寄与率は、大幅に減少する。

20

包含物(すなわち、分散相)の屈折率が連続した母媒体の屈折率と整合する場合、電界によってこの軸に平行に偏光された入射光は、包含物の大きさ、形状、および濃度に係わりなく散乱せずに通過する。もし屈折率が或る軸に沿って整合しない場合、包含物はこの軸に沿って偏光された光を散乱させる。大きさが $\lambda/30$ (λ は媒体内の光の波長である)を超える所定の断面積の散乱体については、散乱の力は、主に屈折率の不整合によって求められる。不整合包含物の大きさ、形状および配列は、どれぐらい光がその包含物から種々の方向に散乱するかを求めるのに役立つ。多重散乱理論によれば、散乱層の濃度と厚さとが十分であれば、入射光は反射または吸収されるが、散乱体の大きさと形状の詳細にかかわらず、透過されない。

30

上記の物質を偏光子として用いる場合、それは、伸張して平面内の延伸の横方向にいくらか寸法を緩和しておくなどして、連続相と分散相との間の屈折率の差が、上記の材料の表面に平行な平面内の第1の軸に沿って大きく、他の2つの直交した軸に沿って小さくなるように処理されるのが好ましい。これは、異なる偏りの電磁放射線の光学異方性を大きくする。

40

本発明の範囲内の偏光子のなかには、楕円形偏光子もある。一般に、楕円形偏光子は、伸張方向および伸張の横方向の両方に対して分散相と連続相との間の屈折率における差がある。前方散乱と後方散乱との比率は、分散相と連続相との間の屈折率における差、分散相の濃度、分散相の大きさと形状、および薄膜の全体的な厚さに依存している。一般に、楕円拡散体は、分散相と連続相の粒子間の屈折率の差が比較的小さい。複屈折率ポリマーを主成分とする拡散体を用いることによって、高度な楕円偏光感度(すなわち、拡散反射能が偏光に依存する)が得られる。1つの軸上でポリマーの屈折率が整合する極値において

50

、楕円偏光子は拡散反射偏光子である。

屈折率の整合 / 不整合を得る方法

本発明に従って偏光子に用いるために選択される材料、およびこれらの材料の配向度は、完成した偏光子内の相が、その相に対応する屈折率が実質的に等しい少なくとも1つの軸を有するように選択されるのが好ましい。常にとはいえないが一般に延伸の方向に対して横方向である前記の軸に対応する屈折率が整合することにより、その偏光面に光の反射が実質的に生じない。

分散相はまた、伸張した後の延伸方向に対応する屈折率の減少を示すことがある。母媒体の複屈折率が正である場合、分散相の歪みによる負の複屈折率は、延伸方向に垂直なその偏光面での光の反射をごくわずかにしたまま、延伸軸に対応する隣接する相の屈折率の差を増すという利点を有する。延伸方向に直交した方向の隣接する相の屈折率間の差は、延伸後、約0.05未満であり、好ましくは、約0.02未満であるべきである。

分散相はまた、歪みによる正の複屈折率を示すことができる。しかし、これは、連続相の延伸方向に垂直な軸の屈折率と整合するように熱処理によって変えることができる。熱処理の温度は、連続相の複屈折率を緩和するほど高くなるべきではない。

分散相の大きさ

分散相の大きさもまた、散乱に著しい効果を及ぼしうる。分散相粒子が非常に小さい（すなわち、該当する媒体内の光の波長の約 $1/30$ 未満）場合、および立方波長当たりの粒子が多い場合、光学体は、いずれかの所定の軸に沿って2つの相の屈折率間の効率的な屈折率を有する媒体として作用する。この場合、極めて少ししか光は散乱されない。粒子が非常に大きい場合、他の方向に極めて少ししか拡散せず、光は粒子の表面から正反射される。粒子が少なくとも2つの直交した方向において非常に大きい場合、望ましくない真珠光沢の効果も生じる。光学体の厚さが大きくなって望ましい機械的特性が損なわれるという点で、粒子が大きくなるとときに実用的な限界が生じる可能性もある。

配列後の分散相の粒子の寸法は、光学材料の所望の使用によって変化することができる。このように、例えば、粒子の寸法は、可視光、紫外線、赤外線、および極超短波放射を反射または透過するために異なった寸法が必要とされる特定用途で重要な電磁放射線の波長によって変化することができる。しかし、一般に、粒子の長さは、その媒体に重要な電磁放射線の波長の約 $1/30$ を超えるべきである。

好ましくは、光学体が低損失反射偏光子として用いられる用途において、粒子の長さは、該当する波長範囲の電磁放射線の波長の約2倍を超える長さであり、好ましくはその波長の4倍を超える。粒子の平均直径は、該当する波長範囲の電磁放射線の波長と等しいか、またはより小さく、好ましくは所望の波長の0.5未満である。分散相の寸法は、多くの用途において二次的な問題であるのに対し、それらは、比較的に拡散反射がほとんどない薄膜用途においていっそう重要になる。

分散相の幾何学的形状

屈折率が不整合であることは、本発明の薄膜における散乱を促すために依拠する主な因子である（すなわち、本発明に従って作製された拡散鏡または偏光子が、少なくとも1つの軸に沿って分散相および分散相の屈折率における本質的な不整合を有する）のに対し、分散相の粒子の幾何学的形状は散乱に二次的な効果をもちうる。このように、屈折率の整合および不整合方向の電界による粒子の偏光解消因子は、一定方向への散乱の量を減少または増すことができる。例えば、分散相が延伸軸に垂直な平面に沿った断面が楕円形であるとき、分散相の断面の楕円形状は、後方散乱光と前方散乱光の両方の不整拡散に寄与する。この効果により、屈折率の不整合による散乱量を増減できるが、一般に本発明の特性の望ましい範囲内で散乱にわずかに影響を及ぼす。

粒子の形状もまた、粒子から散乱する光の拡散度に影響を与えることができる。この形状による効果は一般に小さいが、光の入射方向に垂直な平面における粒子の幾何学断面のアスペクト比が増すにつれ、および、粒子が相対的に大きくなるにつれて増す。一般に、本発明の作業において、正反射よりむしろ拡散反射が好ましい場合、分散相粒子は、1つまたは2つの相互に直交した次元において光のいろいろな波長より小さくなければならない

10

20

30

40

50

。好ましくは、低損失反射偏光子については、望ましい実施例は、延伸の結果として、延伸方向に垂直な偏光に対してその偏光の散乱力と分散とを増すことによって延伸方向に平行な偏光の反射を強めることができる高いアスペクト比を有する棒状構造の系列として連続相内に配置される分散相からなる。しかし、図3a-eに示すように、分散相は多くの異なった幾何学的形状を提供することができる。このように、分散相は、図3a-cのように円板形または伸長円板形であるか、図3d-eのように棒形、または球形であってもよい。分散相の断面がほぼ楕円形（円を含む）、多角形、不定形、またはこれらの形状の1つ以上の組合せである他の実施例が考えられている。分散相の粒子の断面の形状と大きさもまた、粒子毎に、または薄膜の領域毎に（すなわち、表面からコアに至るまで）異なってもよい。

10

若干の実施例においては、分散相はコアおよびシェル構造を有することができるが、コアおよびシェルは同じまたは異なった物質から作製され、コアは中空である。このように、例えば、分散相は同じまたは任意の長さで均一、あるいは不均一な断面の中空繊維からなってもよい。繊維の内部空間は空であるか、または固体、液体、またはガスでありうる好適な媒体によって占められることができ、有機または無機であってもよい。媒体の屈折率は、所望の光学効果（すなわち、所定の軸に沿った反射または偏光）を得るように分散相と連続相との屈折率を考慮して選択することができる。

分散相の幾何学的形状は、光学材料の好適な延伸または処理によって、特定の幾何学的形状の粒子を使用することによって、またはこの2つの組合せによって得られる。例えば、このように、実質的に棒状構造を有する分散相は、単一の軸に沿ってほぼ球形の分散相粒子からなる薄膜を延伸することによって製作することができる。棒状構造は、第1の方向に垂直な第2の方向に薄膜を延伸することによって楕円断面を与えることができる。さらに別の例として、その内部で棒状体の横断面が矩形である実質的棒状構造を有する分散相は、単一の方向に、一連の本質的に矩形のフレークからなる分散相を有する薄膜を延伸することによって製作することができる。

20

伸張することによっても物質内の屈折率の差を生じることができるので、これは所望の幾何学的形状を得るための便利な方法の一つである。上記のように、本発明に従った薄膜の延伸は、2つ以上の方向であってもよく、連続的または同時であってもよい。

別の例において、連続相と分散相との成分は、分散相が非延伸薄膜の1つの軸において棒状であるように、押し出すことができる。アスペクト比が高い棒状体は、押出薄膜内の棒状体の主軸の方向に延伸することによって生成することができる。プレート状構造を、押出薄膜内の棒状体の主軸に直交した方向に延伸することによって生成することができる。図2の構造は、連続マトリックス中の本質的に球形粒子のブレンドの不斉二軸延伸によって作ることができる。または、上記の構造は、マトリックス材に複数の繊維状組織を取り入れ、単一軸に沿って同構造を整列し、その軸に横方向に混合物を延伸することによって得ることができる。この構造を得るためのさらに別の方法は、ポリマーブレンドを薄膜に押し出すときに繊維分散相を生じるように同ブレンドの成分の相対粘度、剪断、または表面張力を制御することによる。一般に、押出し方向に剪断するとき最も良い結果が得られることがわかっている。

30

分散相の寸法に関する配列

寸法に関する配列もまた、分散相の散乱挙動に影響を及ぼすことがわかる。特に、整列された散乱体はランダムに配列された散乱体のように正透過または正反射方向を中心にして対称的に光を散乱しないことが、本発明の従って作製された光学体において確認されている。特に、棒状体になるように延伸によって伸長された包含物は、第1に、延伸方向の中心に位置する円錐の表面に沿って（またはその近くに）および正透過方向に沿って光を散乱する。これにより、正反射および正透過方向を中心にして散乱光の異方分布を生じる。例えば、延伸方向に垂直な方向に伸長したこのような棒状体上に光照射するために、散乱光は、正反射方向を基準にして角度が増すにつれて強度を減じながら延伸方向に垂直な平面に光の帯域としてあらわれる。包含物の幾何学的形状を調整することによって、散乱光

40

50

の分布を、透過半球および反射半球において若干制御できる。

分散相の寸法

光学体が低損失反射偏光子として用いられる用途において、分散相の構造はアスペクト比が大きいことが好ましく、すなわち、その構造はその一つの寸法が他のどの寸法よりも実質上大きいアスペクト比は好ましくは、少なくとも2であり、いっそう好ましくは少なくとも5である。最も大きい寸法（すなわち、長さ）は、好ましくは該当する波長範囲の電磁放射線の波長の少なくとも2倍であり、いっそう好ましくは所望の波長の少なくとも4倍である。他方、分散相の構造のより小さい寸法（すなわち、横断面）は、該当する波長以下であるのが好ましく、該当する波長の0.5倍未満であるのがいっそう好ましい。

分散相の体積分率

分散相の体積分率もまた、本発明の光学体の光の散乱に影響を与える。一定限度内で、分散相の体積分率を増加させることは、偏光の整合および不整合方向の両方について光線が光学体に入った後に生じる散乱の量を増す傾向がある。所定の用途のために反射および透過特性を制御するうえで、この因子は重要である。

分散相の所望の体積分率は、連続相および分散相のための物質の特定の選択を含む多くの因子によって決まる。しかし、分散相の体積分率は一般に、連続相に対して約1容積%、いっそう好ましくは約5~15%の範囲内、最も好ましくは約15~約30%の範囲内である。

共-連続相

粘性が大体等しい高重合体の二成分から成るブレンドの体積分率が、50%に近づくとき、分散相と連続相とが各々、空間において連続状態になるので、その区別が難しくなる。選択した物質に依存して、第1の相が第2の相内で分散され、およびその逆があるように見える領域もある。いろいろな共-連続モフォロジーの記述およびそれらを評価、分析、キャラクタリゼーションする方法については、スパーリングの著作およびその本文に引用された参考文献を参照のこと（L.H.スパーリング著、『Microphase Structure』、Encyclopedia of Polymer Science and Engineering、第2版、Vol. 9、760-788、およびL.H.スパーリング著、『Interpenetrating Polymer Networks: An Overview』、第1章 Interpenetrating Polymer Networks、D.クレンプナー、L.H.スパーリング、L.A.ユトラッキ編、Advances in Chemistry Series # 239、3-38、1994年）。

共-連続相を有する物質は、本発明に従って多くの異なった方法によって作製することができる。このように、例えば、ポリマーの第1の相の物質を、ポリマーの第2の相の物質と機械的にブレンドして共-連続系を得ることができる。ブレンドによって得られた共-連続モフォロジーの例の記載としては、D.ブアリーとおよびB.D.ファビス共著、『Co-Continuity and Phase Inversion in HDPE/PS Blends: The Role of Interfacial Modification』、1995 Annual Technical Conference of the Society of Plastics Engineers ANTEC、Vol. 53、No. 2、2001-2009（ポリスチレン/ポリエチレンブレンド）と、A.レクレアおよびB.D.ファビス共著、『The role of interfacial contact in immiscible binary polymer blends and its influence on mechanical properties』、Polymer、Vol. 37、No. 21、4723-4728、1996年（ポリカーボネート/ポリエチレンブレンド）とがある。

共-連続相はまた、まず、米国特許第4,281,084号においてポリスチレンとポリ（メチルメタクリレート）とのブレンドとして開示されているような超臨界圧流体抽出物からそれらを溶かし、次いで、N.メクヒレフ、B.D.ファビス、およびP.J.カーロウ共著、『Stability of Polystyrene Polyethylene Blends』、1995 Annual Technical Conference of the Society of Plastics Engineers ANTEC、Vol. 53、No. 2、1572-1579）に記載されているように、加熱および/または機械的剪断の後でそれらを相分離させることによって、本発明に従って形成することができる。

本発明に従って共-連続相を作り出すさらに別の方法には、相互貫入高分子網目（IPN）を生成することによる。より重要なIPNのなかには、同時IPN、連続IPN、勾配IPN、ラテックスIPN、熱可塑性IPNおよび半IPNが含まれる。これらとおよびの他の種類のIPN、それらの

10

20

30

40

50

物理的な特性（例えば、位相図）およびそれらの調製とキャラクタリゼーションのための方法についての記載は、例えば、L.H.スパーリングおよびV.ミシュラ共著、『Current Status of Interpenetrating Polymer Networks』、Polymers for Advanced Technologies, Vol. 7, No. 4, 197-208, 1996年4月、およびL.H.スパーリング著、『Interpenetrating Polymer Networks: An Overview』、Interpenetrating Polymer Networks, D.クレンプナー、L.H.スパーリング、L.A.ユトラッキ編、Chemistry Series # 239、3-38、1994年にある。これらの系を調製するための主要な方法のいくつかを、以下に要約した。

同時IPNは、架橋剤と活性剤とを加えた、2つ以上のポリマー網目構造物のそれぞれのモノマーまたはプレポリマーを混ぜ合わせることによって作製することができる。次に、それぞれのモノマーまたはプレポリマーを同時に、しかし干渉しない方法において反応させた。このように、例えば、反応の1つを連鎖重合速度論によって進行させ、他の反応はステップ重合速度論によって進行させることができる。

逐次IPNは、まず初期ポリマー網目構造物を形成することによって作製する。次に、1つ以上の別の網目構造物のモノマー、架橋剤および活性剤を初期ポリマー網目構造物中に膨潤させるが、それらをin situ反応させ、追加ポリマー網目構造物を生じさせる。

勾配IPNは、IPNの全組成物または架橋密度が、材料の場所ごとに変化するのが肉眼でわかるように合成される。例えば、この系は、組成物の勾配が薄膜の内部全体にあり、第1のポリマー網目構造物を主として薄膜の一つの表面上に形成し、第2のポリマー網目構造物を主として薄膜の別の表面上に形成することによって作製する。

ラテックスIPNは、ラテックスの形（例えば、コアおよび殻構造を有する）で作製される。若干の変形においては、2種以上のラテックスを混合し、薄膜に成形し、ポリマーを架橋することができる。

熱可塑性物質IPNは、化学的架橋結合の代わりに物理的架橋結合を含むポリマーブレンドとIPNとの混成物である。結果として、これらの物質は、熱可塑性エラストマーに似た仕方で高温において流動させることができるが、架橋されて標準的な使用温度においてIPNとして挙動する。

半IPNは、1種以上のポリマーが架橋されると共に1種以上のポリマーが線状または分岐している、2種以上のポリマー組成物である。

上記のように、共同連続性は、多成分系ならびに2成分系において得られる。例えば、3種以上の物質を配合して用いて、所望の光学的性質（例えば、透過率と反射率）および/または改良された物理的性質を得ることができる。すべての成分が非混和性であってもよく、または2種以上の成分が混和性であってもよい。共-連続性を示す多数の三成分系についての記載が、例えば、L.H.スパーリング著、『Interpenetrating Polymer Networks: An Overview』、第1章、Interpenetrating Polymer Networks, D.クレンプナー、L.H.スパーリング、L.A.ユトラッキ編、Advances in Chemistry Series # 239、3-38、1994年にある。

相構造の特有の大きさ、共-連続性が観察される体積分率の範囲、モフォロジーの安定性は全て、相溶化剤のような添加剤、グラフトまたはブロック共重合体、あるいは無水マレイン酸またはグリシジルメタクリレートのような反応性の成分によって影響を受けることがある。この効果についての記載は、例えば、ポリスチレンとポリ（エチレンテレフタレート）とのブレンドについて、H.Y.ザイおよびK.ミン共著、『Reactive Blends of Functionalized Polystyrene and Polyethylene Terephthalate』、1995 Annual Technical Conference of the Society of Plastics Engineers ANTEC, Vol. 53, No. 2, 1858-1865にある。しかし、特定の系については、位相図は日常実験によって作図され、本発明に従って共-連続系を作り出すために用いることができる。

本発明に従って作り出された共-連続系の微細構造は、調製の方法、相の混和性、添加剤の存在、および当業者に周知の他の要因に依存して、有意に変化することができる。このように、例えば、共-連続系内の相の1つ以上がフィブリル状であり、同繊維はランダムに配向されているか、または共通軸に沿って配向されている。他の共-連続系は、第1の

10

20

30

40

50

相の連続気泡マトリックスを含むことができ、第2相がそのマトリックスの気泡内に共-連続的に配置されている。これらの系内の相は、単一軸に沿って、二軸に沿って、または三軸に沿って共-連続することができる。

本発明に従って作製され、かつ、共-連続相（特にIPN）を有する光学体は、いろいろな場合において、個々のポリマーおよびそれらを配合する方法に左右されるにしても、単一連続相だけで作製された同様な光学体の特性よりも好都合な特性を有する。このように、例えば、本発明の共-連続系は、構造上異なったポリマーの化学的および物理的な結合を予め考慮し、これによって光学体の特性を一定の必要を満たすように改質できる便利な経路を提供する。さらに、共-連続系はしばしば処理がいっそう容易であり、耐侯性があり、引火性が低く、優れた耐衝撃性および引張強さ、可撓性の改良、および優れた耐薬品性のような特性をもちうる。IPNは一般に溶媒中で膨潤し（しかし溶解しない）、類似した非IPN系と比較してクリープおよび流動を抑えるので、特定の用途において特に有利である（例えば、D. クレンパーおよびL. パーコウスキ共著、『Interpenetrating Polymer Networks』、Encyclopedia of Polymer Science and Engineering、第2版、Vol. 9、489-492を参照のこと）。

従来技術に周知の共-連続系の原理を本文に明かにした内容によって適用して、固有の光学特性を有する共-連続モフォロジーを作り出すことができることは、当業者には理解されよう。このように、例えば、周知の共-連続モフォロジーの屈折率を本文に教示されるように操作して、本発明の従って新しい光学薄膜を製作することができる。同じく、本文に教示される原理を周知の光学系に適用して、共-連続モフォロジーを作り出すことができる。

光学体の厚さ

光学体の厚さもまた、本発明において反射および透過特性に影響を及ぼすように操作することができる重要なパラメーターである。光学体の厚が増すと、拡散反射もまた増し、かつ、正透過率および拡散透過率の両方が減少する。このように、光学体の厚さが一般に、完成製品の所望の機械的強度を得るように選択されるが、これによって反射および透過特性を直接に制御することもできる。

厚さはまた、光学体の反射および透過特性の最終の調整をするためにも利用できる。このように、例えば、薄膜の用途において、薄膜を押し出すために用いる装置は、押出薄膜の透過および反射値を測定すると共に、薄膜の厚さを変えて（すなわち、押出速度を調節するか、または流延ホイールスピードを変えることによって）予め決定された範囲内の反射および透過値を維持する下流の光学装置によって制御することができる。

連続相 / 分散相のための物質

多くの異なった物質を、光学体が利用される特定の用途に依存して、本発明の光学体において連続相または分散相として用いることができる。この物質には、シリカを主成分とするポリマーのような無機物質、液晶のような有機物質、およびモノマー、コーポリマー、グラフト化ポリマーを含むポリマー物質、およびそれらの混合物またはブレンドが含まれる。所定の用途のための物質を的確に選択することにより、特定の軸に沿って連続相と分散相との屈折率において得られる所望の整合および不整合、ならびに得られた製品の所望の物理特性が得られる。しかし、連続相の物質は一般に、所望のスペクトル領域において実質的に透明であるという特徴がある。

物質を選択する上でさらに別の問題点は、得られた製品が少なくとも2つの異なった相を含有しなくてはならないということである。これは、お互いに非混和性の2種以上の物質から光学材料を流延することによって達せられる。あるいは、互いに非混和性でない第1および第2の物質によって光学材料を作製することが望ましい場合、および、第1の物質の融解点が第2の物質よりも高い場合、ある場合には第1の物質の融解点よりも低い温度において第1の物質の適切な大きさの粒子を第2の物質の熔融マトリックス内に埋め込むことが可能である。次に、得られた混合物を、次に延伸するしないにかかわらず、薄膜に流延して光学装置を製作することができる。

本発明において連続相または分散相として使用する好適なポリマー物質は、イソフタル酸

、アゼライン酸、アジピン酸、セバシン酸、二安息香酸、テレフタル酸、2,7-ナフタレンジカルボン酸、2,6-ナフタレンジカルボン酸、シクロヘキサンジカルボン酸、およびビ安息香酸(bibenzoic acid)(4,4'-ビ安息香酸を含む)のようなカルボン酸を主成分とするモノマーから作製される物質や、あるいはそれに対応する前述の酸のエステル(すなわち、ジメチルテレフタレート)から作製される物質を含む、非晶質、半結晶質、または結晶性のポリマー物質であってもよい。これらについて、2,6-ポリエチレンナフタレート(PEN)がその歪みによる複屈折のために、および伸張した後にも恒久的に複屈折のままであることができるために、特に好ましい。PENの550nmの波長の偏光された入射光の屈折率が、偏光面が伸張軸に平行であるときに伸張後に約1.64から最高約1.9に増加するが、他方伸張軸に垂直に偏光させられた光の屈折率は減少する。PENの複屈折率(この場合、伸張方向に沿う屈折率と伸張方向に垂直な屈折率との間の差)は、可視スペクトルにおいて0.25~0.40を示す。複屈折率は分子配向を増すことによって大きくすることができる。PENは、薄膜の製造中に用いた処理条件に左右されるが、約155~約230℃まで実質的に熱安定している。

ポリブチレンナフタレートも、好適な物質であると共に別の結晶性ナフタレンジカルボンポリエステルである。結晶性ナフタレンジカルボンポリエステルは、平面内の異なった軸に対応する屈折率の差が少なくとも0.05であり、好ましくは0.20を超える。

PENを本発明の光学材料において1つの相として用いるとき、もう一方の相は好ましくはポリメタクリル酸メチル(PMMA)またはポリスチレン(sPS)のようなシンジオタクチックビニル芳香族ポリマーである。PENと併用する他の好ましいポリマーは、テレフタル酸、イソフタル酸、セバシン酸、アゼライン酸、シクロヘキサンジカルボン酸またはこれらの物質の関連のアルキルエステルである。ナフタレンジカルボン酸もまた、相間の付着力を改良するために少量を用いることができる。ジオール成分は、エチレングリコールまたは関連のジオールであってもよい。好ましくは、選択されたポリマーの屈折率は、約1.65未満であり、いっそう好ましくは、約1.55未満であるが、同様の結果は、屈折率差が同じであれば、屈折率がより高いポリマーを用いることによって得ることができる。本発明で有用なシンジオタクチックビニル芳香族ポリマーは、ポリ(スチレン)、ポリ(アルキルスチレン)、ポリ(スチレンハリド)、ポリ(アルキルスチレン)、ポリ(安息香酸ビニルエステル)、およびこれらの水素添加ポリマーおよび混合物、またはこれらの構造単位を含むコーポリマーを含む。ポリ(アルキルスチレン)の例は、ポリ(メチルスチレン)、ポリ(エチルスチレン)、ポリ(プロピルスチレン)、ポリ(ブチルスチレン)、ポリ(フェニルスチレン)、ポリ(ビニルナフタレン)、ポリ(ビニルスチレン)およびポリ(アセナフタレン)を含む。ポリ(スチレンハリド)については、具体例としてポリ(クロロスチレン)、ポリ(ブロモスチレン)およびポリ(フルオロスチレン)が含まれる。ポリ(アルコキシスチレン)の例には、ポリ(メトキシスチレン)およびポリ(エトキシスチレン)が含まれる。特に好ましいスチレン基ポリマーの例としては、ポリスチレン、ポリ(p-メチルスチレン)、ポリ(m-メチルスチレン)、ポリ(p-第3ブチルスチレン)、ポリ(p-クロロスチレン)、ポリ(m-クロロスチレン)、ポリ(p-フルオロスチレン)およびスチレンとp-メチルスチレンとのコーポリマーが含まれる。

さらに、シンジオタクチックビニル-芳香族基コーポリマーのコモノマーとして、上記のスチレン基ポリマーのモノマーの他、エチレン、プロピレン、ブテン、ヘキセン、またはオクテンのようなオレフィンモノマーと、ブタジエン、イソプレンのようなジエンモノマーと、環状ジエンモノマー、メチルメタクリレート、マレイン酸無水物、またはアクリロニトリルのような極性ビニルモノマーがありうる。

本発明のシンジオタクチックビニル芳香族ポリマーは、ブロック共重合体、ランダム共重合体、または交互共重合体であってもよい。

本発明において言及される高レベルのシンジオタクチック構造を有するビニル芳香族ポリマーは、カーボン13核磁気共鳴によって求めると75%を超えるシンジオタクチック度を有するポリスチレンを含む。好ましくは、シンジオタクチック度は85%を超えるラセミダイアドか、または30%を超えるラセミダイアド、または、いっそう好ましくは、5

10

20

30

40

50

0 %を超えるラセミペンタドである。

加えるに、このシンジオタクチックビニル芳香族基ポリマーの分子量に関して特に制限はないけれども、好ましくは、重量平均分子量は10,000以上1,000,000未満であり、いっそう好ましくは、50,000以上800,000未満である。

前記の他の樹脂については、例えば、アタクチック構造を有するビニル芳香族基ポリマー、アイソタクチック構造を有するビニル芳香族基ポリマー、および混和性であるすべてのポリマーを含むいろいろな種類を挙げることができる。例えば、ポリフェニレンエーテルは、先に説明したビニル芳香族基ポリマーとよく混和する。さらに、これらの混和性の樹脂成分の組成物は、好ましくは70～1重量%、またはいっそう好ましくは、50～2重量%である。混和性の樹脂成分の組成物が70重量%を超えると、耐熱性が低下することがあり、これは通常望ましくない。

10

特定の相のために選択されるポリマーは、コポリエステルまたはコポリカーボネートである必要はない。ビニルビニルナフタリン、スチレン、エチレン、無水マレイン酸、アクリレート、およびメタクリレートのようなモノマーから作製されたビニルポリマーおよびコポリマーもまた、使用できる。ポリエステルおよびポリカーボネートの他に、縮合重合体もまた利用できる。好適な縮合重合体は、ポリスルホン、ポリアミド、ポリウレタン、ポリアミック酸およびポリイミドを含む。ナフタレン基および塩素、臭素およびヨウ素のようなハロゲンは、PENが母体である場合、実質的に屈折率が整合する必要があるなら、選択されたポリマーの屈折率を所望の大きさ(1.59～1.69)に増やすのに有用である。アクリレート基およびフッ素は、屈折率を減少させるのに特に有用である。

20

少量のコモノマーを、延伸方向の屈折率の大きな差を実質的に損なわない限り、ナフタレンジカルボン酸ポリエステル中に置換することができる。屈折率の差を小さくする(従ってまた、反射率を小さくする)かわりに、連続相と分散相との間の付着力の改良、押し出し温度の低下、熔融粘度のすぐれた整合といった利点のいずれかを得ることもできる。

スペクトル領域

本発明はしばしば、スペクトルの可視領域に関して本文に記載されるが、本発明の種々の実施例を用いて、光学体の成分の大きさを適切に調整することによって電磁放射線について異なった波長(従って周波数)において操作することができる。このように、波長が増すにつれて、光学体成分の長さは、波長単位で測定されたこれらの成分の寸法がだいたい一定になるように大きくすることができる。

30

もちろん、波長を変える主要な効果の一つは、該当する多くの物質について、屈折率と吸収率が変化するということである。しかし、屈折率の整合と不整合の原理は該当する各々の波長になお適用され、スペクトルの特定の領域にわたって機能する光学装置のための物質を選択するのに利用できる。このように、例えば、寸法を適切に調整することにより、スペクトルの赤外線、近紫外および紫外領域における操作が可能になる。これらの場合、その屈折率はこれらの操作時の波長における値に関係し、分散相の散乱成分の体厚と大きさもまた、波長によってだいたいの大きさを調整するべきである。非常に高い周波数、超高周波、極超短波およびミリ波の周波数を含むさらに多くの電磁スペクトルも用いることができる。偏光および拡散の効果は波長に合わせて適切に大きさを調整することによって生じ、屈折率は(実部および虚部を含む)常誘電体関数の平方根によって得られる。これらのより長い波長帯域での有用な製品は、拡散反射偏光子および部分偏光子であり得る。

40

本発明の実施例において、光学体の光学特性は該当する波長帯域にわたって変化するものもある。これらの実施例において、屈折率が1つ以上の軸に沿って1つの波長領域から別の波長領域まで変化する連続相および/または分散相のための物質を利用することができる。連続相および分散相の物質の選択、および物質の一定の選択から得られる光学特性(すなわち、拡散および分散反射または正透過)は、該当する波長帯域によって決まる。

表皮層

分散相を実質的に含まない物質の層は、薄膜、すなわち、分散相と連続相との押し出しされたブレンドの1つまたは両方の主表面に、同一の延長を有するように配置することがで

50

きる。表皮層と呼ばれる層の組成物を選択して、例えば、押し出しされたブレンド内の分散相の集結度を保護し、最終薄膜に機械的または物理的な性質を与え、または光学機能性を与えることができる。選択された好適な物質は、連続相の物質または分散相の物質を含むことができる。押し出しされたブレンドに類似した熔融粘度の他の物質もまた、有用でありうる。

表皮層は、押し出しされたブレンドが押し出しプロセス内において、特にダイにおいて受ける可能性のある広範囲の剪断強度を抑える。高い剪断環境により、表面に望ましくないボイドが生じ、皺模様が表面にできる。薄膜厚さ全体の剪断値の範囲が広いことも、分散相がブレンド中で所望の粒度を形成するのを妨げることがある。

表皮層もまた、得られた複合材料に物理的強度を与え、または、処理時の諸問題、例えば、薄膜が延伸プロセス中に割れる傾向を抑えたりもできる。表皮層物質が非晶質のままであると、靱性がより大きい薄膜ができる傾向があるが、他方表皮層物質が半結晶質であると、引張り剛性がより高い薄膜ができる傾向がある。帯電防止剤、UV吸収体、染料、酸化防止剤および顔料のような他の機能成分を、それらが実質的に得られた製品の所望の光学特性を妨げないなら、表皮層に加えることができる。

表皮層を、押し出しプロセス中のある時点に、すなわち、押し出しされたブレンドと表皮層とが押出ダイを出る前に押し出しされたブレンドの1つまたは2つの側面に適用することができる。これは、3層の共有押出し成形ダイの使用が含まれる従来の共有押出し成形技術を用いて行なうことができる。押し出しされたブレンドから前もって成形した薄膜へ表皮層をはり合わせることも可能である。表皮層の厚さがブレンド/表皮層の全厚の約2%～約50%の範囲であってよい。

いろいろなポリマーが、表皮層に適している。主として非晶質のポリマーは、テレフタル酸、2,6-ナフタレンジカルボン酸、イソフタル酸フタル酸、またはそれらのアルキルエステル対応物、およびエチレングリコールのようなアルキレンジオールの中の1種以上を主成分とするコポリエステルを含む。半結晶質ポリマーの例は、2,6-ポリエチレンナフタレート、ポリエチレンテレフタレート、およびナイロン物質である。

反射防止層

本発明に従って作製された薄膜および他の光学装置はまた、1つ以上の反射防止層を含むことができる。偏光感受性であってもなくても、この層は透過を増したり、反射のまぶしい光を抑えるのに役立つ。反射防止層を、被膜またはスパッタエッチングのような適切な表面処理を介して本発明の薄膜と光装置とに加えてもよい。

本発明の実施例において、特定の偏光について透過を最大にし、および/または正反射を最小に抑えることが望ましいものもある。これらの実施例において、上記の光学体は、少なくとも1つの層が、連続相と分散相とを提供する相によく接触した反射防止系を含む2つ以上の層を含むことができる。このような反射防止系は、入射光の正反射を抑えると共に連続相と分散相とを含む光学体部分に入る入射光の量を増やすように作用する。このような機能は、従来技術に周知のいろいろな手段によって生むことができる。具体例としては、1/4波長反射防止層、2つ以上の層の反射防止積層、段階付けた屈折率の層と段階付けた濃度層がある。この反射防止機能はまた、望むならば、光学体の透過光側に用いて透過光を増やすことができる。

微細なボイドの発生

若干の実施例において、連続相および分散相の物質は、2つの相の間の界面が、薄膜が延伸されるときにボイドを生ずるほど十分に弱く選択することができる。ボイドの平均の寸法は、処理パラメーターおよび伸張率を注意深く操作することによって、または相溶化剤を選択的に用いることによって制御できる。ボイドは、液体、ガス、または固体を完成製品に埋め戻しすることができる。ボイドを連続相と分散相とのアスペクト比および屈折率と関連させて発生させ、得られた薄膜に望ましい光学特性を生むことができる。

3つ以上の相

本発明に従って作製された光学体はまた、3つ以上の相からなってもよい。このように、例えば、本発明に従って作製された光学材料は、連続相内の2つの異なった分散相か

10

20

30

40

50

らなっているもよい。第2の分散相は連続相全体にランダムに、または非ランダムに分散することができ、共通軸に沿ってランダムに配列、または整列することができる。

本発明に従って作製された光学体はまた、2つ以上の連続相からなっているもよい。このように、若干の実施例において、光学体は、第1の連続相と分散相のほかに、第1の連続相と少なくとも1次元において共-連続的である第2の相を含むことができる。1つの特定の実施例において、第2の連続相は、第1の連続相と同一の延長を有する多孔性の海綿状物質である（すなわち、水が湿潤海綿内の溝の網目を介して広がるように、第1の連続相が第2の連続相中に延在する溝または隙間の網目を介して広がる）。関連の実施例において、第2の連続相は、第1の連続相と少なくとも1次元において同一の延長を有する樹枝状組織の形である。

10

多層の組合せ

望むならば、本発明に従って作製された1枚以上の連続相/分散相の薄膜を、多層薄膜と併用、またはその一構成要素として用いることができる（すなわち、反射率を大きくするために）。好適な多層薄膜には、国際公開第95/17303号（オーダーカーから）に記載される種類のものが含まれる。このような構造において、個々のシートは積層されるか、さもなくば相互に付着させるか、またはまたは間隔をあけて配置することができる。シート内の相の光学厚さが実質的に等しい場合（すなわち、2枚のシートが所定の軸に沿って、多数の実質的に同数の散乱体を入射光に与える場合）、その複合材料は、幾分、効率が高くなって、個々のシートと実質的に同じ帯域幅および反射率のスペクトル範囲（すなわち、「帯域」）を反射する。シート内の相の光学厚さが実質的に等しくない場合、複合材料は個々の相より広い帯域幅にわたって反射する。偏光子シートとミラーシートとを結合する複合材料は、透過光を偏光させたまま全反射率を大きくするのに有用である。または、単一シートを不斉または二軸配向させて選択的な反射特性および偏光特性を有する薄膜を製作する。

20

図5は、本発明の実施例の1つを示す。そこでは、光学体は、層がPEN 2 2の層とco-PEN 2 4との層を交互に繰り返す多層薄膜20からなる。それぞれのPEN層は、PENのマトリックス内にシンジオタクチックポリスチレン（sPS）の分散相を含む。この種類の構造は、それが色が角度によって生じるのを抑えるという点で、望ましい。さらに、散乱体の積層または包含物が、光の漏れを平均化するので、層の厚さを制御することはそれほど重要ではなく、薄膜は処理パラメーターの変動について許容度がさらに大きくなる。

30

先に指摘した物質のいずれも、この実施例の層のいずれにも用いることができ、あるいは特定の層内の連続相または分散相として用いることができる。しかし、PENおよびco-PENは、これらの物質が層の付着力を十分に高めるので、隣接層の主要成分として特に望ましい。

同様に、層の配置において多くの変型が可能である。このように、例えば、上記の層に構造の一部分または全体を通して反復序列を形成させることができる。この例の1つは、層パターンの構造が...ABCABC...である（A、BおよびCは異なった物質あるいは同一またはさまざまな物質の異なったブレンドまたは混合物であり、A、BまたはCのうちの1つ以上が少なくとも1つの分散相と少なくとも1つの連続相とを含有する）。表皮層は好ましくは同一または化学的に類似した物質である。

40

添加剤

本発明の光学材料はまた、従来技術に周知の他の物質または添加剤を含むことができる。この物質には、顔料、染料、接着剤、コーティング、充填剤、相溶化剤、酸化防止剤（立体障害フェノール類を含む）、界面活性剤、抗微生物薬品、静電防止剤、難燃剤、起ほう材、潤滑剤、補強剤、光安定剤（紫外線安定剤または遮断薬を含む）、熱安定剤、強化剤、可塑剤、粘性改質剤および他のこのような物質が含まれる。さらに、本発明に従って作製された薄膜および他の光装置は、装置を摩滅、衝撃、または他の損害から守るのに役立ち、または装置の加工性または耐久性を高める1つ以上の外層を含むことができる。

本発明に使用するための好適な滑剤は、ステアリン酸カルシウム（calcium stearate）、ステアリン酸亜鉛（zinc stearate）、ステアリン酸銅（copper stearate）、ステアリン酸

50

コバルト (cobalt sterate)、ネオドデカン酸モリブデン (molybdenum neodocanoate) とルテニウム (III) アセチルアセトネートを含む。

本発明に有用な酸化防止剤は、4, 4'-チオビス-(6-t-ブチル-m-クレゾール)、2, 2'-メチレンビス-(4-メチル-6-t-ブチル-ブチルフェノール)、オクタデシル-3, 5-ジ-t-ブチル-4-ヒドロキシヒドロシナマート、ビス-(2, 4-ジ-t-ブチルフェニル)ペンタエリトリートルジホスファイト、IrganoxTM 1093 (1979) ((3, 5-ビス(1, 1-ジメチルエチル)-4-ヒドロキシフェニル)メチル)-ジオクタデシルエステルホスホン酸)、IrganoxTM 1098 (N, N'-1, 6-ヘキサンジイルビス(3, 5-ビス(1, 1-ジメチル)-4-ヒドロキシ-ベンゼンプロパンアミド)、NaugaardTM 445 (アリールアミン)、IrganoxTM 57 (アルキル化ジフェニルアミン)、IrganoxTM L115 (ビスフェノールを含有している硫黄)、IrganoxTM LO6 (アルキル化フェニル-デルタ-ナフチルアミン)、Ethanox 398 の (フルオロホスホニト)、および 2, 2'-エチリデンビス(4,6-ジ-t-ブチルフェニル)フルオロホスホニトを含む。

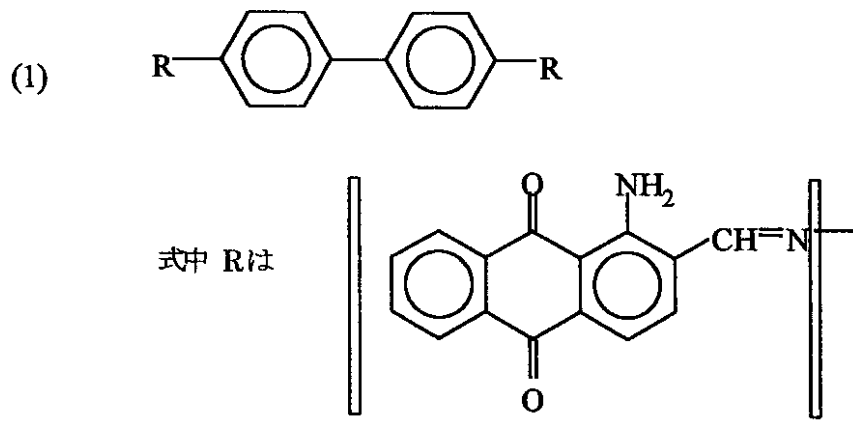
特に好ましい酸化防止剤の群は、ブチル化水酸化トルエン (BHT)、ビタミン E (ジ-アルファ-トコフェロール)、IrganoxTM 1425 WL (カルシウムビス-(O-エチル(3, 5-ジ-t-ブチル-4-ヒドロキシベンジル))ホスホナート)、IrganoxTM 1010 (テトラキス(メチレン(3, 5, -ジ-t-ブチル-4-ヒドロキシヒドロシナマート))メタン)、IrganoxTM 1076 (オクタデシル3,5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシヒドロシアナマート)、EthanoxTM 702 (障害ビスフェノール)、Ethanox 330 (高分子量の障害フェノール)、および EthanoxTM 703 (障害フェノールアミン)である。

二色性染料は、本発明の光学材料内に分子配列されるときに特定の偏光を吸収することができることから、上記の材料にとっては若干の用途において特に有用な添加剤である。主としてただ1つだけの偏光を散乱する薄膜または他の物質に用いるとき、二色性染料によって、上記の物質は他の偏光よりも1つの偏光をよく吸収する。本発明において使用するのに好適な二色性染料は、コンゴー赤 (ナトリウムジフェニル-ビス--ナフチルアミンスルホナート)、メチレンブルー、スチルベン染料 (色素指数 (CI) = 620) および 1, 1'-ジエチル-2, 2'-シアニンクロライド (CI = 374 (オレンジ) または CI = 518 (ブルー)) を含む。これらの染料の特性およびそれらを作製する方法は、E.H. ランド著、『Colloid Chemistry』(1946年)に記載されている。これらの染料の二色性は、ポリビニルアルコール中で著しく、セルロース中でより小さい。PEN中のコンゴー赤の二色性が、わずかに観察されている。他の好適な染料は、下記の物質を含む：

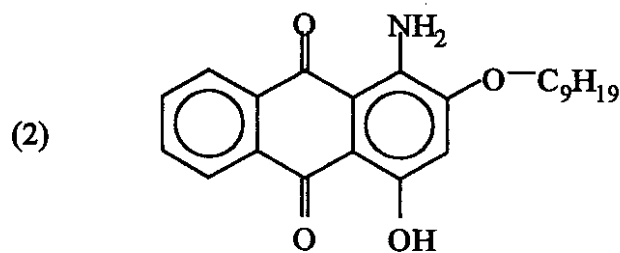
10

20

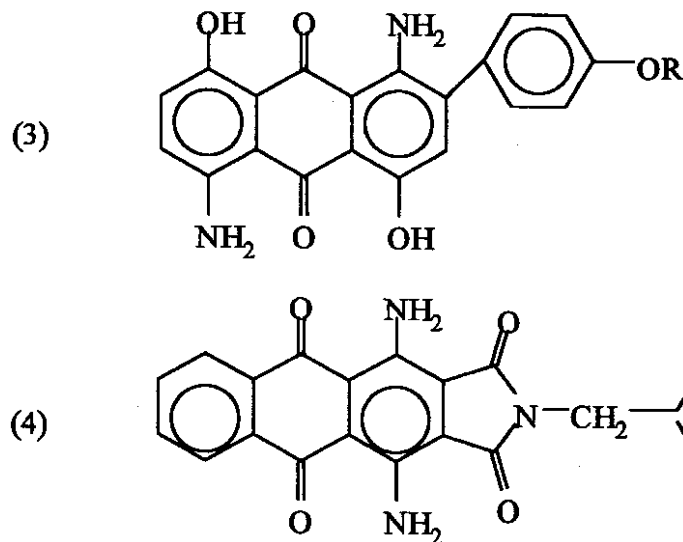
30



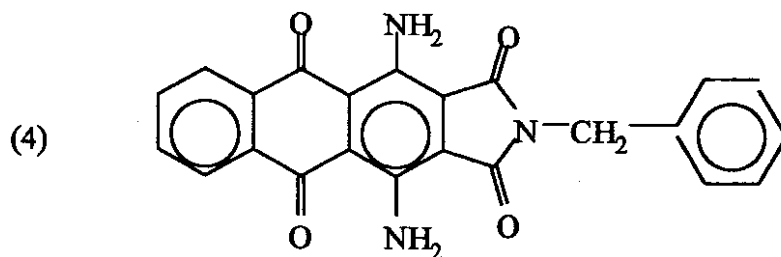
10



20



30



これらの染料の特性およびそれらを作製する方法は、『Kirk Othmer Encyclopedia of Chemical Technology』、Vol. 8、652-661（第4版、1993年）、および同書に引用された文献に論じられている。

二色性染料を本発明の光学体に用いるとき、これを連続相または分散相のいずれかに取り入れることができる。しかし、二色性染料を分散相に取り入れることが好ましい。

40

特定のポリマー系と配合した二色性染料は、いろいろな度合で光を偏光させることができる。ポリビニルアルコールおよび特定の二色性染料を用いて、その偏光させる能力によって薄膜を作製することができる。ポリエチレンテレフタレートまたはナイロン-6などのポリアミドのような他のポリマーは、二色性染料が配合されるとき同じ程度に強い偏光能力を示さない。ポリビニルアルコールと二色性染料とを組合せると、例えば、ポリマー系を形成する他の薄膜において同じ染料を用いた場合よりも、二色性比が高いと言われている。二色性比が高くなると、より高い偏光能力を示す。

二色性染料を本発明に従って作製された光学体内に分子配列することは、染料を光学体に取り入れた後、光学体を伸張することによって行なうのが好ましい。しかし、他の方法を

50

用いて分子配列を行なってもよい。このように、1つの方法において、二色性染料は、光学体が延伸される前または後のいずれかに、薄膜または他の光学体の表面において切り分け、エッチング、または他の方法で形成される一連の伸長ノッチ内に昇華または溶液からの晶出によって結晶させられる。次に、処理された表面を、1つ以上の表面層によって製膜することができ、ポリマーマトリックスに取り入れるか、または多層構造において用いてもよく、または別の光学体の成分として利用できる。ノッチは、望ましい光学特性を得るように、予め決めたパターンまたは図に従って、および予め決めた量だけ隔置して、作製する。

関連の実施例において、二色性染料を、中空繊維またはコンジットを光学体内に配置する前または後のいずれかに、1つ以上の中空繊維または他のコンジット内に配置することができる。中空繊維またはコンジットを、光学体の周囲物質と同一または異なっている物質から作製してもよい。

10

さらに別の実施例において、二色性染料は、昇華によって層の表面に結晶化させたように、多層構造に取り入れる前に、多層構造の層界面に沿って配置される。さらに別の実施例において、二色性染料を用いて、本発明の従って作製された微細なボイドの生じた薄膜中のボイドを少なくとも部分的に埋め戻すことができる。

本発明の用途

本発明の光学体は、拡散偏光子として特に有用である。しかし、反射偏光子または拡散鏡として作用する光学体はまた、本発明に従って作製することができる。これらの用途において、光学材料の構造は上記の拡散体の用途における構造と同様である。しかし、これらの反射体は一般に、少なくとも1つの軸に沿った屈折率における差が非常に大きくなる。この屈折率の差は一般に、少なくとも約0.1であり、いっそう好ましくは約0.15であり、最も好ましくは約0.2である。

20

反射偏光子は、1つの軸に沿って屈折率に差があり、別の軸に沿って実質的に整合した屈折率を有する。他方、反射薄膜は、薄膜の面内の少なくとも2つの直交した軸に沿った屈折率が異なる。しかし、これらの実施例の反射特性は、もっぱら屈折率の不整合によって決まる必要がない。このように、例えば、薄膜の厚さを調整して、所望の反射率を得ることができる。ある場合には、薄膜の厚さを調整することにより、薄膜は透過拡散体から拡散反射面にまで及ぶ。

本発明の反射偏光子は、多くの異なった用途があり、特に液晶ディスプレイパネルに有用である。加えるに、偏光子は良い紫外フィルターであると共に可視スペクトルの端まで効率的に紫外光を吸収するPENまたは類似の物質から作製することができる。反射偏光子はまた、赤外線薄シート偏光子として用いることができる。

30

産業上の利用可能性

以下の例は、本発明に従った種々の光学材料の製造、これらの物質のスペクトルの特性について説明する。特に指示しない限り、組成の百分率は、重量%による。用いたポリエチレンナフタレート樹脂は、シカゴ、イリノイ州のアモココーポレーション製のエチレングリコールおよびジメチル-2,6-ナフタレンジカルボキシレートを用いてこれらの試料用に作製された。これらの試薬は、従来のポリエステル樹脂重合技術を用いて重合させ、いろいろな固有粘度(IV)にした。シンジオタクチックポリスチレン(sPS)は、米国特許第4,680,353号(イシハラら)に開示された方法に従って作製することができる。その例には、以下に論じる種々のポリマー対、連続相と分散相との種々の割合、および他の添加剤または工程の変更が含まれる。

40

ポリエステル薄膜を作製するために用いた従来の延伸装置または実験室用回分延伸機を用いて、試料を伸張または延伸した。用いた回分延伸機は、押し出された流延ウェブから切り分けられ、方形に配列された24個のグリッパ(それぞれの側面に6個)によって保持された小片の流延物質(7.5cm×7.5cm)を用いるように設計された。試料の延伸温度を熱送風機で制御し、薄膜試料を制御した速度において一方向または両方向にグリッパ間の距離を増す機械装置によって延伸した。両方向に伸張される試料は、連続的または同時に延伸することができる。拘束方式(C)で延伸される試料については、すべてのグリッパが

50

ウェブを保持し、グリッパは一次元にのみ移動する。それに対し、非拘束方式（U）において、伸張方向に垂直な固定次元において薄膜を保持するグリッパは未使用であり、薄膜はその次元において緩和または局部絞りさせておく。

偏光拡散透過および反射を、Perkin Elmer Labsphere s9 0 0 - 1 - 0 0 0 1 5 0 ミリメートル積分球付属品とグラン-トンプソン立方体偏光子とを備えたPerkin Elmer Lambda 1 9 紫外ノ可視光ノ近赤外分光光度計を用いて測定した。平行および交差した透過および反射値を、薄膜の伸張方向に、それぞれ、平行または垂直な偏光のe-ベクトルで測定した。すべての走査は、毎分480ナノメートルの走査速度および2ナノメートルのスリット幅で連続して行なった。反射は「V-反射」方式で行われた。透過および反射率値は400~700ナノメートルのすべての波長の平均である。

10

分散相の性質を調べるために、縦方向に垂直な平面において横断した完成した薄膜の透過電子顕微鏡写真を撮った。3層構造の外側の層を延伸された薄膜から取り除き、ただブレンド層だけを埋め込みのために残しておく。試料を、室温において硬化される3M Scotchcast™ 5 Electrical Resinに埋め込んだ。埋め込まれた試料を、室温においてReichert Ultracut™ ミクロトーム上に、ダイヤモンドナイフを用いて毎秒0.2ミリメートルの切断速度において、約90nm厚の薄切片にミクロトーム処理した。上記の薄切片を蒸留した脱イオン水に浮かべ、炭素ノホルムパール（formvor）基材で強化した200メッシュ銅グリッドについて透過型電子顕微鏡評価するために採取した。顕微鏡写真を、JEOL 200CX透過電子顕微鏡を用いて撮った。

走査型電子顕微鏡による評価を、分散相の性質を求めるために薄膜を延伸する前に流延ウェブ上で行なった。ウェブ片を破断し、液体窒素に浸漬したまま、縦方向に垂直な平面を露出させた。次に、試料をトリミングし、アルミニウムスタブ上に取り付けた後、金パラジウムでスパッタ製膜した。顕微鏡写真を、日立S530走査電子顕微鏡を用いて撮った。

20

実施例 1

実施例 1 において、光学薄膜を本発明に従って、従来の押し出しおよび流延技術を用いて、連続相または大きい相としての75%のポリエチレンナフタレート（PEN）と、分散相または小さい相としての25%のポリメタクリル酸メチル（PMMA）とのブレンドを約380ミクロン厚の流延薄膜またはシートに押し出すことによって、作製した。PENの固有粘度（IV）は、0.52であった（60%のフェノール、40%のジクロロベンゼンを測定）。PMMAはデラウェア州、ウィルミントンのICIアメリカ・インク製の製品名CP82であった。用いた押し出し機は、チューブ1本が60μmのTegraフィルターを備えた3.15cm（1.24インチ）Brabenderであった。ダイは30.4cm（12インチ）のEDI Ultraflex™ 40であった。

30

薄膜を押し出してから約24時間後に、流延薄膜をポリエステル薄膜幅出し装置上に幅または横方向（TD）に延伸した。伸張については、約160（320°F）の伸張温度において押し出し幅が約140cm（55インチ）で毎分約9.1m（30フィート/分）において実施した。伸張した試料の全反射率は、Glan-Thompson立方体偏光子で偏光された試料光束によってLambda 19分光光度計に乗せた積分球付加装置で測定した。試料は、75%の平行反射率（すなわち、反射率を、偏光のe-ベクトルに平行した薄膜の伸張方向によって測定した）、および52%の交差反射率（すなわち、反射率を伸張方向に垂直な偏光のe-ベクトルによって測定した）を有した。

40

実施例 2

実施例 2 において、光学薄膜を実施例 1 と同様の方法で作製して評価した。ただし、75%のPENと、25%のシンジオタクチックポリスチレン（sPS）と、0.2%のポリスチレングリシジルメタクリレート相溶化剤と、それぞれ0.25%のIrganox™ 1010およびUltranox™ 626とのブレンドを用いた。ポリスチレングリシジルメタクリレートの合成については、Polymer Processes、『Chemical Technology of Plastics, Resins, Rubbers, Adhesives and Fibers』、Vol. 10、第3章、69-109（1956年）（カルヴィン・E・シルドネット編）に記載がある。

50

？PENは60%のフェノール、40%のジクロロベンゼンで測定すると固有粘度が0.52であった。sPSは、ダウ・ケミカル・カンパニー製であり、重量平均分子量が約200,000であり、以下sPS-200-0として示名する。伸張された薄膜試料の平行反射率を求めると、73.3%であり、交差反射率は35%であった。

実施例 3

実施例 3において、光学薄膜は、相溶化剤の量を0.6%に上げたことを除き、実施例 2と同様の方法で評価した。得られた平行反射率は81%であり、交差反射率は35.6%であった。

実施例 4

実施例 4において、3層の光学薄膜を、従来の3層共有押出し成形技術を利用して本発明に従って作製した。薄膜は、コア層と、コア層の各側の表皮層とを有した。コア層は、75%のPENと25%のsPS 200-4（示名sPS-200-4は、4モル%のパラ-メチルスチレン含有シンジオタクチックポリスチレンのコポリマーを指す）とのブレンドからなり、各表皮層は、60%のフェノール、40%のジクロロベンゼンで測定した固有粘度が0.56である100%のPENからなった。

得られた3層の流延薄膜は、コア層厚さが約415ミクロンであり、各表皮層は、約635ミクロンの全厚に対して約110ミクロンであった。実験室用回分伸張機を用いて、得られた3層の流延薄膜を約129の温度において縦方向（MD）において6対1に伸張した。伸張方向に平行な薄膜試料の端を研究室用伸張機によって掴めないのので、試料は横方向（TD）が拘束されず、伸張手続の結果としてTDにおいて約50%局部絞りされた。

光学性能を、実施例 1と同様の方法で評価した。平行反射率を求めると、80.1%であり、交差反射率は15%であった。これらの結果は、薄膜が低吸収性のエネルギー節約系として機能することを示している。

実施例 5 ~ 29

実施例 5 ~ 29において、一連の光学薄膜を、実施例 4と同様の方法で作製した。ただし、コア層のsPSの率と、用いたPEN樹脂のIVとを表1に示すように変えた。コア層および表皮層中のPEN樹脂のIVは、所定の試料について同じであった。流延シートの全厚は、約625ミクロンであり、このコア層の合計の約の3分の2で、厚さがほぼ等しい表皮層との釣合をとっている。コア層内のPENとsPSとの種々のブレンドを、表1で示すように作った。薄膜は、表1に示すように種々の温度において縦方向（MD）または横方向（TD）のいずれかに約6対1の延伸比まで伸張した。試料は、伸張する間に試料が局部絞りされるのを防ぐために伸張方向に垂直な方向に拘束した（C）。表1で「U」と表示した試料は拘束されず、拘束されない次元を局部絞りさせておいた。透過率、反射および吸収を含む伸張した試料の特定の光学的性質を、伸張方向に平行および交差または垂直な軸に沿って測定した。結果は表1まとめた。

実施例 24 ~ 27に示すように、ヒートセットは、伸張方向に垂直な伸張した試料の2つの端縁を、適切に大きさを定めた剛性フレームに締め付け、締め付けた試料を1分間表示温度において炉内に置くことによって、手作業で拘束して行なった。伸張の方向に平行な2つの試料側面は拘束されず（U）、または締め付けずに局部絞りさせておいた。伸張した試料の4つの端縁を全て拘束または締め付けたことを除いて、実施例 24のヒートセットを同様に行なった。実施例 28はヒートセットされなかった。

表 1

実施例 番号	延伸温度 (°C)	延伸方向 (MD/TD)	延伸 束縛 (C/U)	PEN IV	分率 (sPS)	ヒート セット 温度	束縛 ヒート セット	透過 (垂直)	透過 (平行)	反射 (垂直)	反射 (平行)
5	135	TD	C	0.53	0.25			76.2	20.4	22.6	75.3
6	135	TD	C	0.47	0.75			80.2	58.4	19.4	40
7	142	TD	C	0.53	0.25			74.2	21.8	25.3	77.3
8	142	TD	C	0.47	0.75			76.0	41.0	23.8	55.6
9	129	TD	C	0.53	0.25			71.2	21.2	26.5	76.2
10	129	TD	C	0.47	0.75			76.8	48.9	22.4	49.6
11	129	MD	U	0.53	0.25			81.5	27.6	17.2	67
12	129	TD	U	0.53	0.25			66.8	22.1	25	71.9
13	129	MD	U	0.47	0.25			79.5	20.3	19.3	73.7
14	129	TD	U	0.47	0.25			66.3	26.2	32.5	69.4
15	129	TD	U	0.47	0.5			73.0	26.2	24.7	68.7
16	129	MD	U	0.47	0.5			75.4	20.6	23.2	76.1
17	129	MD	U	0.47	0.1			82.1	27.3	16.9	67
実施例 番号	延伸温度 (°C)	延伸方向 (MD/TD)	延伸 束縛 (C/U)	PEN IV	分率 (sPS)	ヒート セット 温度	束縛 ヒート セット	透過 (垂直)	透過 (平行)	反射 (垂直)	反射 (平行)
18	129	MD	U	0.56	0.25			80.1	15.0	18	80.3
19	129	TD	U	0.56	0.25			70.2	21.6	25.2	70.7

10

20

30

40

実施例 番号	延伸温度 (°C)	延伸方向 (MD/TD)	延伸 束縛 (C/U)	PEN IV	分率 (sPS)	ヒート セット 温度	束縛 ヒート セット	透過 (垂直)	透過 (平行)	反射 (垂直)	反射 (平行)
20	129	MD	C	0.47	0.25			75.8	28.7	23.4	70.1
21	129	MD	C	0.47	0.5			79.8	27.8	19.7	70.8
22	135	MD	C	0.47	0.1			80.5	36.7	19.2	62.6
23	135	MD	C	0.53	0.25			77.2	21.1	21.8	76.6
24	129	MD	U	0.56	0.25	150	U	83.7	17.3	17.3	74
25	129	MD	U	0.56	0.25	220	U	82.1	16	18	75.8
26	129	MD	U	0.56	0.25	135	U	84.7	17	18	75.3
27	129	MD	U	0.56	0.25	165	U	83	16	16.5	76.3
28	129	MD	U	0.56	0.25	CNTRL		83.7	17	17.5	76
29	129	MD	U	0.56	0.25	230	C				
29	129	MD	U	0.56	0.25	230	C				

上記の試料のすべては、薄膜試料体中で分散相の位置によって決まる分散相のさまざまな形状を含有するのがわかった。試料の表面に近いほうにある分散相包含物は、ほぼ球形に近いというよりむしろ伸長形状であることがわかった。試料表面の間の中央近くにある包含物は、ほぼ球形に近いといえる。これは表皮層を有する試料についても当てはまるが、その効果は表皮層では減少する。表皮層を付加することにより、伸張操作の間に割れが生じる傾向が抑えられ、薄膜の処理が改良される。

理論に囚われることなくみるならば、流延薄膜のコア層中の包含物（分散相）が伸長されるのは、それがダイを介して移動するときにブレンドに生じる剪断の結果であると思われる

10

20

30

40

50

る。この伸びの特性は、ダイのさまざまな物理的な寸法、押し出し温度、押し出し物の流動速度、並びにそれらの相対的な溶融粘度を変える連続相および分散相物質の化学的面によって変化することができる。特定の用途または使用においては、押し出しの間に分散相に若干の伸びを提供することに利点があるかもしれない。後に縦方向に伸張するそれらの用途については、押し出しの間に伸長された分散相が生じることは、得られた分散相がより高いアスペクト比になることを可能にする。

別の顕著な特徴としては、性能の著しい改良が、同じ試料を拘束せずに伸張するときを観察されるという事実がある。このように、実施例 9 においては、透過率は平行な方向および垂直な方向でそれぞれ、79.5%、20.3%であった。それと対照して、実施例 16 の透過率は平行な方向および垂直な方向でそれぞれ、75.8%、28.7%だけであ

10

った。試料を拘束せずに伸張するとき、拘束して伸張するのに対して厚さが増すが、透過率と吸光度の両方が良くなるので、屈折率の整合は恐らく改善されている。屈折率を制御する別の方法としては、物質の化学的性質を改質することがある。例えば、テレフタル酸から誘導された共重合単位の 30 重量%と、2,6-ナフタル酸から誘導された共重合単位の 70 重量%とのコーポリマーの屈折率が、100%のPENポリマーより 0.02 単位低い。他のモノマーまたは比率から、やや異なった結果になるかもしれない。この種の変更によって、屈折率の差が大きいことが望ましい軸においてその減少を抑えたまま、1つの軸において屈折率をいっそうよく整合させることができる。換言すれば、1つの軸において屈折率値をよりよく整合させることによって得られる利点は、差が大きいことが望ましい直交した軸における減少を十二分に埋め合わせる。第二に、伸張がおきる

20

温度域を変えるために化学変化することが望ましいことがある。sPSといろいろな比率のパラメチルスチレンモノマーとのコーポリマーによって、最適な伸張-温度域を変えることができる。これらの技術を組合せることは、処理と得られた屈折率の整合および差のために最も効率的に全ての系を最適化するために必要であることがある。このように、最終性能の制御は、伸張条件に関して工程と化学的性質を最適化して、さらに物質の化学的性質を調整して少なくとも1つの軸における屈折率の差を最大にし、少なくとも1つの直交した軸においてその差を最小にすることによって改良できる。

これらの試料は、TD方向ではなくMDに延伸するといっそう良い光学性能を示した(実施例 14 ~ 15 と比較せよ)。理論にとらわれずにみるならば、異なった幾何学的形状の包含物がMDへの延伸よりもTDへの延伸によって生じると共に、これらの包含物はアスペクト比

30

が大きく、非理想的な終端効果を小さくすると考えられている。非理想的な終端効果とは、伸長粒子のそれぞれの端部の先端における複雑な幾何学的形状/屈折率の関係を指す。粒子の内部または非端部は、望ましいと考えられる均一な幾何学的形状と屈折率とを有すると思われる。このように、均一な伸長粒子のパーセンテージが大きくなると、光学性能も良くなる。

これらの物質の吸光比は、伸張方向に垂直な偏光の透過と伸張方向に平行な透過との比率である。表 1 に挙げた例については、吸光比は、約 2 ~ 約 5 の範囲であるが、吸光比を最適化しようとしなければ、最大 7 までの吸光比が本発明に従って作製された光学体に確認された。薄膜厚さ、包含物の体積分率、粒度、および屈折率の整合・不整合度を調整することによって、またはヨウ素あるいは他の染料を使用することによって、吸光比をもっと

40

大きく(例えば、100を超える)することができる。

実施例 30 ~ 100

実施例 30 ~ 100 で、本発明の試料は、表 2 に一覧した種々の物質を用いて作製した。PEN 42、PEN 47、PEN 53、PEN 56 および PEN 60 は、60%のフェノール、40%のジクロロベンゼンで測定された、0.42、0.47、0.53、0.56、および 0.60 の固有粘度(IV)をそれぞれ有するポリエチレンナフタレート(PE-N)を指す。用いた特定の sPS-200-4 は、ダウ・ケミカル・カンパニー製である。Ecdel™ 9967 および Eastar™ は、ニューヨーク州、ロチェスターのイーストマンケミカル・カンパニー製の COPOLYESTER である。Surllyn™ 1706 は、デラウェア州、ウィルミントンのイー・アイ・デュポン・ドウ・ヌムール・アンドカンパニー製のアイオノマー樹脂である。添加剤 1 または

50

2として掲げた物質は、ポリスチレングリシジルメタクリレートを含む。示名GMAPS2、GMAPS5およびGMAPS8は、全コーポリマ中のグリシジルメタクリレートが、それぞれ、2、5、および8重量%であるグリシジルメタクリレートを指す。ETPBは、架橋剤エチルトリフェニルホスホニウム臭化物を指す。PMMA V044は、アトハースノースアメリカインク製のポリメタクリル酸メチルを指す。

光学薄膜試料を、表2に示した下記の論じた相違を除けば、実施例4と同様の方法で作った。連続相とその合計比を、大きい相として記録する。分散相とその合計比は、小さい相として記録する。ブレンド厚さとして記録した値は、ミクロン単位のコア層の約の厚さを表す。表皮層の厚さは、コア層の厚さが変化するとき変わるが、一定の比率に保たれ、すなわち、表皮層はだいたい等しく、2つの表皮層の合計は全厚の約3分の1であった。分散相の大きさは、走査電子顕微鏡（SEM）または透過電子顕微鏡（TEM）によっていくつかの試料について求めた。実験室用回分延伸機を用いて後に伸張されるそれらの例は、「伸張したバッチ」と表示した欄の「X」によって示す。

表 2

実施例 番号	主要相	主要相 (%)	従属相	従属相 (%)	コア層 (ミクロン)	添加剤 1	添加剤 2	SEMs	TEM (ミクロン)	パッチ式 延伸
30	PEN.42	75	sPS-200-4	25	9.8
31	PEN.42	75	sPS-200-4	25	16.3	.	.	10	.	.
32	PEN.47	75	sPS-200-4	25	9.8	x
33	PEN.47	75	sPS-200-4	25	16.3	.	.	8	.	x
34	PEN.47	50	sPS-200-4	50	9.8
35	PEN.47	50	sPS-200-4	50	16.3	.	.	5	.	x
36	PEN.47	90	sPS-200-4	10	9.8
37	PEN.47	90	sPS-200-4	10	16.3	.	.	3	.	x
38	PEN.53	75	sPS-200-4	25	9.8
39	PEN.53	75	sPS-200-4	25	16.3	.	.	7	.	x
40	PEN.56	75	sPS-200-4	25	9.8
41	PEN.56	75	sPS-200-4	25	16.3	.	.	6	.	x
42	sPS-200- 4	75	PEN.42	25	9.8

10

20

30

40

実施例 番号	主要相	主要相 (%)	従属相	従属相 (%)	コア層 (ミクロン)	添加剤 1	添加剤 2	SEMs	TEM (ミクロン)	バッチ式 延伸
43	sPS-200- 4	75	PEN.42	25	16.3	-	-	-	-	-
44	sPS-200- 4	75	PEN.47	25	9.8	-	-	-	-	-
45	sPS-200- 4	75	PEN.47	25	16.3	-	-	-	-	x
46	sPS-200- 4	75	PEN.53	25	16.3	-	-	-	-	-
47	sPS-200- 4	75	PEN.53	25	9.8	-	-	-	-	-
48	sPS-200- 4	75	PEN.56	25	9.8	-	-	-	-	-
49	sPS-200- 4	75	PEN.56	25	16.3	-	-	-	-	-
50	PET.60	75	Ecdel™ 9967	25	16.3	-	-	-	-	-

10

20

30

40

実施例 番号	主要相	主要相 (%)	従属相	従属相 (%)	コア層 (ミクロン)	添加剤 1	添加剤 2	SEMs	TEM (ミクロン)	バッチ式 延伸
51	PET.60	75	Surlyn™ 1706	25	16.3	-	-	2	-	-
52	PEN.47	75	Ecdel™ 9967	25	16.3	-	-	2	-	x
53	PEN.47	100	-	-	16.3	-	-	-	-	-
54	PEN.47	75	sPS-200	25	16.3	-	-	-	-	-
55	PEN.47	75	sPS-200	25	9.8	-	-	10	-	-
56	PEN.47	75	sPS-320	25	9.8	-	-	12	-	-
57	PEN.47	75	sPS-320	25	16.3	-	-	-	-	-
58	PEN.47	95	sPS-320	5	9.8	-	-	-	-	-
59	PEN.47	95	sPS-320	5	16.3	-	-	-	-	-
60	PEN.56	100	-	-	16.3, 9.8	-	-	-	-	x
61	PEN.56	75	sPS-200	25	9.8	-	-	10	-	-
62	PEN.56	75	sPS-200	25	16.3	-	-	-	-	x
63	PEN.56	95	sPS-200	5	9.8	-	-	-	-	-
64	PEN.56	95	sPS-200	5	16.3	-	-	-	-	x
65	PEN.56	75	sPS-320	25	9.8	-	-	10	-	-

10

20

30

40

実施例 番号	主要相	主要相 (%)	従属相	従属相 (%)	コア層 (ミクロン)	添加剤 1	添加剤 2	SEMs	TEM (ミクロン)	パッチ式 延伸
66	PEN.56	75	sPS-320	25	16.3	-	-	-	-	-
67	PEN.47	95	sPS-200	5	16.3	2% GMAPS2	0.25% ETPB	1	0.3	x
68	PEN.47	95	sPS-200	5	9.8	2% GMAPS2	0.25% ETPB	-	-	-
69	PEN.56	75	sPS-200	25	9.8	6% GMAPS2	0.25% ETPB	-	-	-
70	PEN.56	75	sPS-200	25	16.3	6% GMAPS2	0.25% ETPB	0.5	2.5	x
71	PEN.56	75	sPS-200	25	9.8	2% GMAPS2	0.25% ETPB	-	0.8	-
72	PEN.56	75	sPS-200	25	16.3	2% GMAPS2	0.25% ETPB	1	-	-
73	PEN.56	95	sPS-200	5	9.8	2% GMAPS2	0.25% ETPB	-	-	-
74	PEN.56	95	sPS-200	5	16.3	2% GMAPS2	0.25% ETPB	-	-	-

10

20

30

40

実施例 番号	主要相	主要相 (%)	従属相	従属相 (%)	コア層 (ミクロン)	添加剤 1	添加剤 2	SEMs	TEM (ミクロン)	バッチ式 延伸
75	PEN.56	75	sPS-200	25	9.8	6% GMAPS2	0.25% ETPB	.	.	.
76	PEN.56	75	sPS-200	25	16.3	6% GMAPS2	0.25% ETPB	0.8	1	x
77	PEN.56	75	sPS-200	25	9.8	2% GMAPS2	0.25% ETPB	.	.	.
78	PEN.56	75	sPS-200	25	16.3	2% GMAPS2	0.25% ETPB	.	.	.
79	PEN.56	75	sPS-200	25	9.8	6% GMAPS2	0.25% ETPB	.	.	.
80	PEN.56	75	sPS-200	25	16.3	6% GMAPS2	0.25% ETPB	.	.	x
81	PEN.56	75	sPS-200	25	9.8	6% GMAPS2	0.25% ETPB	.	.	.
82	PEN.56	75	sPS-200	25	16.3	6% GMAPS2	0.25% ETPB	0.5	.	.

10

20

30

40

実施例 番号	主要相	主要相 (%)	従属相	従属相 (%)	コア層 (ミクロン)	添加剤 1	添加剤 2	SEMs	TEM (ミクロン)	パッチ式 延伸
83	PEN.56	95	sPS-200	5	9.8	2% GMAPS2	0.25% ETPB	-	-	-
84	PEN.56	95	sPS-200	5	16.3	2% GMAPS2	0.25% ETPB	-	-	-
85	PEN.56	75	sPS-200	25	9.8	0.5% GMAPS2	0.25% ETPB	-	-	-
86	PEN.56	75	sPS-200	25	9.8	0.5% GMAPS2	0.25% ETPB	-	-	-
87	PEN.47	75	Eastar	25	16.3	-	-	-	-	x
88	PEN.47	75	Eastar	25	9.8	-	-	-	-	-
89	PEN.47	75	Eastar	25	16.3	-	-	-	-	-
90	PEN.47	75	Eastar	25	9.8	-	-	-	-	-
91	PEN.47	75	PMMA VO44	25	9.8	-	-	-	-	-
92	PEN.47	75	PMMA VO44	25	16.3	-	-	10	-	-

10

20

30

40

実施例 番号	主要相	主要相 (%)	従属相	従属相 (%)	コア層 (ミクロン)	添加剤 1	添加剤 2	SEMs	TEM (ミクロン)	バッチ式 延伸
93	PEN.47	75	PMMA VO44	25	16.3	6% MMA/GMA	-	-	0.7	-
94	PEN.47	75	PMMA VO44	25	9.8	6% MMA/GMA	-	-	-	-
95	PEN.47	75	PMMA VO44	25	9.8	2% MMA/GMA	-	-	1.2	-
96	PEN.47	75	PMMA	25	16.3	2% MMA/GMA	-	-	-	x
97	PEN.47	75	sPS-200-4 VO44	25	916.3	0.5% コンゴールレッド	-	-	-	x
98	PEN.47	75	sPS-200-4	25	16.3	0.15% コンゴールレッド	-	-	-	x
99	PEN.47	75	sPS-200-4	25	9.8	0.25% メチレンブルー	-	-	-	-

10

20

30

40

実施例 番号	主要相	主要相 (%)	従属相	従属相 (%)	コア層 (ミクロン)	添加剤 1	添加剤 2	SEMs	TEM (ミクロン)	バッチ式 延伸
100	PEN.47	75	sPS-200-4	25	9.8	0-0.25% メチレンブルー

10

20

30

40

種々の相溶化剤を存在させると、包含された相すなわち分散相のサイズは減少することが分かった。

実施例 101

実施例 101 において、光学薄膜は、得られたコア厚さが約 420 ミクロン、各々の表皮層の厚さが約 105 ミクロンであることを除き、実施例 4 と同様の方法で作製した。PEN は 0.56 IV であった。流延薄膜は、伸張温度が 165 であり、流延と伸張との間に 15 日間の遅れがあったことを除き、実施例 1 と同様に延伸した。透過率は、平行および垂

50

直に偏光された光について、それぞれ 87.1% および 39.7% であった。

実施例 102 ~ 121

実施例 102 ~ 121 において、光学薄膜を実施例 101 と同様に作製した。ただし、延伸条件を変え、および / または表 3 に一覧するように、sPS-200-0 をパラ-メチルスチレンの 4 または 8 モル % を含む sPS のコーポリマか、またはアタクチック形スチレン、すなわち、Styron 663 (ミシガン州、ミッドランドのダウケミカルカンパニー製) と取り替えた。透過特性の評価もまた記録する。透過性の値は、450 ~ 700 nm の間の全ての波長にわたって平均した。

表 3

実施例	sPS (%)	PS	PEN IV	引張り時の温度 (°C)	レートの設定 (cm)	垂直方向の透過率 (%)	平行方向の透過率 (%)
101	25	200-0	0.56	165	152	87.1	39.7
102	35	200-0	0.56	165	152	87.8	44.4
103	15	200-4	0.56	165	152	86.1	43.5
104	25	200-4	0.56	165	152	86.5	43.6
105	35	200-4	0.56	165	152	88.2	50.7
106	15	200-8	0.56	165	152	89.3	40.7
107	25	200-8	0.56	165	152	88.5	42.8
108	35	200-8	0.56	165	152	88.6	43.3
109	15	スチロン 663	0.56	165	152	89.3	45.7
110	25	スチロン 663	0.56	165	152	87.8	41.6
111	35	スチロン 663	0.56	165	152	88.8	48.2
112	15	スチロン 663	0.48	165	152	88.5	62.8
113	25	スチロン 663	0.48	165	152	87.1	59.6
114	35	スチロン 663	0.48	165	152	86.8	59.6
115	15	200-0	0.48	165	152	88.0	58.3
116	25	200-0	0.48	165	152	88.0	58.7
117	35	200-0	0.48	165	152	88.5	60.6
118	15	200-4	0.48	165	152	89.0	57.4
119	35	200-4	0.48	165	152	87.3	64.0
120	35	200-0	0.56	171	127	86.5	65.1
121	35	200-0	0.56	171	152	88.1	61.5

これらの例は、含まれる相の粒子が低 IV PEN よりも高 IV PEN においていっそう縦方向に伸長されることを表す。これは、低 IV PEN においては、薄膜の内部の場所におけるよりも薄膜の表面付近が非常に伸張されることが一致して観察されており、結果として、フィブリル構造が表面近くに形成され、球形の構造が中心に向かって形成される。

これらの実施例のいくつかは、延伸温度と配向度とが所望の効果を得るための重要な変数であることを示唆する。実施例 109 ~ 114 は、不活性な結晶化が、好ましい偏光透過が得られない唯一の理由である必要がないことを示唆する。

実施例 122 ~ 124

実施例 122 において、多層光学薄膜を、209 層フィードブロックによって本発明に従

10

20

30

40

50

って作製した。フィードブロックに下記の２つの物質を送り込んだ。(１) １時間毎に 38.6 キログラムのPEN (0.48 の固有粘度)、(２) 95 % のCoPEN と 5 重量 % のsPS ホモポリマー (分子量が 200,000) とのブレンド。CoPEN は、70 モル % のナフタレンジカルボキシレートと、エチレングリコールと重合させて 0.59 の固有粘度にした 30 モル % ジメチルイソフタレートとを主成分とするコーポリマーである。CoPEN / sPS ブレンドを、1 時間毎に 34.1 キログラムの速度においてフィードブロックに送り込んだ。CoPEN ブレンド物質は押出物の外側に担持され、得られた層のスタック層の組成は、2 つの物質が交互に並んだ。層の厚さは、最も薄い層から最も厚い層までの比が 1.3 であり、線状こう配の 4 分の 1 波長のスタックが得られるよう作られている。次いで、sPS を欠いた CoPEN のより厚い表皮層 (CoPEN / sPS ブレンドを作製するように上記の方法に従って

10

作製した。ただし、モル比は、ナフタレンジカルボキシレート / ジメチルテレフタレート / ジメチルイソフタレートが 70 / 15 / 15 であった) を、209 層の複合材料の各側面に加えた。全表皮層を、1 時間当たり 29.5 kg の速度において、スタックの各々の側面または表面にこの量の約 2 分の 1 が担持されるように添加した。得られた表皮層を被着した多層複合材料を、マルチプライヤーを介して押し出して、421 層の多層の複合材料を得た。次に、得られた多層の複合材料に、各側面にこの量の約 2 分の 1 が担持されるように 1 時間当たり 29.5 キログラムの全速度において、それぞれの表面に 70 / 15 / 15 の CoPEN の別の表皮層を被着させた。この第 2 の表皮層は、既存の表皮層から別々に検出可能ではない場合もある (物質が同じであるとき) ので、この論議の目的のために、得られた特別に厚い表皮層を単一層とみなす。

20

得られた 421 層の複合材料を、1.40 の比率の不整マルチプライヤーによって再び押し出して 841 層の薄膜を得て、次に、ダイを介して押し出し急冷して厚さ約 30 ミルのシートに流延した。次いで、得られた流延シートは従来の薄膜作製幅出し装置を用いて幅方向に延伸した。そのシートを、約 300 (149) の温度において約 6 : 1 の延伸比に毎秒約 20 % の伸張速度において伸張した。得られた伸張された薄膜は、厚さが約 5 ミルであった。

実施例 123 において、多層の光学薄膜を、CoPEN / sPS ブレンド中の sPS の量が 5 % ではなく 20 % であったことを除き、実施例 122 と同様に作製した。

実施例 124 において、多層の光学薄膜を、sPS を薄膜に加えなかったことを除き、実施例 122 と同様に作製した。

30

表 4 で記録した結果は、薄膜の光学ゲインの評価を含む。薄膜の光学ゲインは、バックライトから LCD パネルを介して両者の間に薄膜を挿入して透過される光と、薄膜を配置せずに透過される光との比率である。光学薄膜環境での光学ゲインの意味は、国際公開第 95/17692 号においてその文献の図 2 に関連して記載されている。ゲイン値が高くなるのが、一般に望ましい。透過値は、光源が伸張方向に平行に偏光させられたとき (T_{||})、および伸張方向に垂直な偏光されたとき (T_⊥) に得られる値を含む。角度によって生じる色 (OAC) を、400 ~ 700 nm の波長の 50 度の入射光において、p-偏光された透過の平方自乗平均偏差としてオリエル分光光度計を用いて測定した。

表 4

実施例	モル% sPS	ゲイン	T _⊥ (%)	T (%)	OAC (%)
122	5	1.5	83	2	1.5
123	20	1.45	81	1.5	1.2
124	0	1.6	87	5	3.5

40

角度によって生じる色 (OAC) の値は、本発明に関連した多層膜構造を用いる利点について示す。特に、このような構造を用いて、ゲインの低下を適度におさえたまま OAC を実質的に減らすことができる。こうした妥協策は、若干の用途においては利点があるかもしれない。本発明の実施例の T_{||} の値は、sPS 分散相によって散乱させられた光が検出器によって感知されないかもしれないので、予想以上に低い場合がある。

50

実施例 1 2 5

3層の薄膜を、実施例 4 に従って作製した。コア層は、60%のフェノール、40%のジクロロベンゼン、70%のsPS 200-7、更に2%のDylark 332-80 (NOVAケミカル製)を加えて測定すると、固有粘度が0.55の70%のCoPENからなった。それぞれの表皮は、塩化メチレンで測定すると固有粘度が0.65である100%のCoPETからなった。

CoPENは、62モル%のナフタレンジカルボキシレートと38モル%のジメチルテレフタレートとを主成分とするコーポリマであった。CoPETは、80モル%のジメチルカルボキシ酸と20モル%のジメチルイソフタレートとを主成分とするコーポリマであった。流延薄膜を、実施例 1 と同じ方法で延伸した。147cm (58インチ)の押出し幅で毎分5.8m (毎分19フィート)において伸張した。伸張温度は124であった。ヒートセット温度は163であった。垂直方向の透過は85.3%であり、平行方向の透過は21.7%であった。

実施例 1 2 6 ~ 1 3 0

以下の例は、本発明の光学系において共-連続したモフォロジーの生成について説明する。

実施例 1 2 6 ~ 1 3 0 において、コア層中のsPSの率と伸張温度を表 5 に示すように変えたことを除き、一連の光学薄膜を実施例 1 2 5 と同様の方法で作製して評価した。

表 5

実施例 の番号	sPS の率	分散相 または 連続相	伸張時の 温度 (°C)	透過率 垂直 方向	透過率 平行 方向
125	0.30	分散相	124	85.3	21.7
126	0.35	分散相	135	86.3	21.1
127	0.40	分散相	129	86.4	21.9
128	0.44	--	124	85.8	25.9
129	0.53	連続相	129	86.6	33.6
130	0.81	分散相	135	88.1	69

実施例 1 2 5 ~ 1 3 0 の平行方向、および垂直方向の透過値は、良好な光学性能を示す。実施例 1 3 0 の透過率の垂直方向の透過値が高いのは、伸張方向に垂直な方向に整列された偏光に対する両方の相の屈折率が有効に整合することを示す。

実施例 1 2 6 および 1 2 7 については、流延ウェブの破断面の走査型電子顕微鏡写真を撮った。実施例 1 2 5 のように、異なった仕方で連続マトリックス内に分散された球形または楕円形の粒子の明確な証拠があった。透過電子顕微鏡写真を、実施例 1 2 9 および 1 3 0 について撮った。これらはそれぞれ、図6aおよび6bに示す。図6aは、共-連続相のモフォロジーを示す。顕微鏡写真検査により、coPENおよびsPS相の両方の包含物、並びにそれぞれが連続相であるように思われる領域を示す。それと対照して、図6bは、sPSマトリックス中に分散したcoPENを示す。

本出願では、以下の態様が提供される。

1. 第1の相と、少なくとも1つの軸に沿って該第1の相と共-連続的である第2の相と、を含む光学体において、該第1の相と第2の相とがポリマーであり、該第1の相と第2の相との間の屈折率の差が、第1の軸に沿って少なくとも約0.05であり、第2の軸に沿って約0.05未満である光学体。
2. 前記第2の相が、少なくとも2つの相互に直交した軸に沿って前記第1の相と共-連続的である、態様1に記載の光学体。
3. 前記第2の相が、3つの相互に直交した軸に沿って前記第1の相と共-連続的である、態様1に記載の光学体。
4. 前記光学体が薄膜であり、前記第2の軸が、該薄膜の面に垂直である、態様1に記載

の光学体。

5. 前記第1の相と第2の相とが、第1および第2の相互に直交した軸によって規定される平面内で共-連続的であり、前記第1の相と第2の相とが、前記第1の軸と第2の軸とに沿って共-連続的である、態様1に記載の光学体。

6. 前記第1の相と第2の相のうちの一方の複屈折率が、少なくとも約0.05であり、前記第1の相と第2の相とのうちの他方の複屈折率が、約0.05未満である、態様1に記載の光学体。

7. 前記第1の相の複屈折率が少なくとも約0.1であり、前記第2の相の複屈折率が約0.05未満である、態様1に記載の光学体。

8. 前記第1の相の複屈折率が少なくとも約0.2であり、前記第2の相の複屈折率が約0.05未満である、態様1に記載の光学体。

9. 前記第1の相の複屈折率が少なくとも約0.05であり、前記第2の相の複屈折率が約0.02未満である、態様1に記載の光学体。

10. 前記第1の相の複屈折率が少なくとも0.05であり、前記第1の相と第2の相とのうちの他方の複屈折率が、約0.01未満である、態様1に記載の光学体。

11. 前記第1の相が、前記第1の軸に沿って、前記第2の相の屈折率との差が約0.1より大きい屈折率を有する、態様1に記載の光学体。

12. 前記第1の相が、前記第1の軸に沿って、前記第2の相の屈折率との差が約0.15より大きい屈折率を有する、態様1に記載の光学体。

13. 前記第1の相が、前記第1の軸に沿って、前記第2の相の屈折率との差が約0.2より大きい屈折率を有する、態様1に記載の光学体。

14. 前記第1の相が、前記第2の軸に沿って、前記第2の相の屈折率との差が約0.03より小さい屈折率を有する、態様1に記載の光学体。

15. 前記第1の相が、前記第2の軸に沿って、前記第2の相の屈折率との差が約0.01より小さい屈折率を有する、態様1に記載の光学体。

16. 前記第1の相と第2の相が全体として、電磁放射線の両方の偏光に対して、前記少なくとも1つの軸に沿って少なくとも約50%の拡散反射率を有する、態様1に記載の光学体。

17. 電磁放射線の第1の偏光に対する前記光学体の全反射率が、約50%を超えると共に、該第1の偏光に直交した電磁放射線の第2の偏光に対する全透過率が約50%を超える、態様1に記載の光学体。

18. 前記電磁放射線の第1の偏光に対する前記光学体の全反射率が、約60%を超える、態様17に記載の光学体。

19. 前記電磁放射線の第1の偏光に対する前記光学体の全反射率が、約70%を超える、態様17に記載の光学体。

20. 前記電磁放射線の第2の偏光に対する前記光学体の全反射率が、約60%を超える、態様17に記載の光学体。

21. 前記電磁放射線の第2の偏光に対する前記光学体の全反射率が、約70%を超える、態様17に記載の光学体。

22. 第1の偏光が本質的に拡散反射され、かつ、該第1の偏光に直交して偏光された第2の偏光の少なくとも約40%が、前記光学体を介して約8°未満の偏向角において透過させられる、態様1に記載の光学体。

23. 前記第2の偏光の少なくとも約60%が、前記光学体を介して約8°未満の偏向角において透過させられる、態様22に記載の光学体。

24. 前記第2の偏光の少なくとも約70%が、前記光学体を介して約8°未満の偏向角において透過させられる、態様22に記載の光学体。

25. 前記第1の相と第2の相のうちの少なくとも1つが、熱可塑性樹脂を含む、態様1に記載の光学体。

26. 前記熱可塑性樹脂が、ビニル芳香族モノマーから誘導されるシンジオタクチックビニル芳香族ポリマーである、態様25に記載の光学体。

10

20

30

40

50

27. 前記熱可塑性樹脂が、シンジオタクチックポリスチレンの共重合単位を含む、態様25に記載の光学体。

28. 前記熱可塑性樹脂がポリエチレンナフタレートを含む、態様25に記載の光学体。

29. 前記第1の相と第2の相のうちの一方が、シンジオタクチックポリスチレンを含み、前記第1の相と第2の相のうちの他方が、ポリエチレンナフタレートを含む、態様25に記載の光学体。

30. 前記第1の相と第2の相との両方が、熱可塑性ポリマーを含む、態様25に記載の光学体。

31. 前記光学体が、少なくとも約2の延伸比まで延伸される、態様1に記載の光学体。

32. 前記光学体が、少なくとも約4の延伸比まで延伸される、態様1に記載の光学体。

33. 前記光学体が、少なくとも約6の延伸比まで延伸される、態様1に記載の光学体。

34. 前記第1の相と第2の相とが、非混和性である、態様1に記載の光学体。

35. 前記第1の相が連続気泡材料であり、該第1の相の気泡が、少なくとも1つの共通軸に沿って本質的に整列される、態様1に記載の光学体。

36. 前記第2の相が、前記第1の相の気泡中に分散される、態様35に記載の光学体。

37. 前記気泡のアスペクト比が、少なくとも約2である、態様35に記載の光学体。

38. 前記気泡のアスペクト比が、少なくとも約5である、態様35に記載の光学体。

39. 前記気泡の横断面が本質的に楕円形である、態様35に記載の光学体。

40. 前記光学体が、少なくとも2つの方向に延伸される、態様1に記載の光学体。

41. 前記光学体が、複数の層を有する、態様1に記載の光学体。

42. 前記光学体の吸光比が、約3を超える、態様1に記載の光学体。

43. 前記光学体の吸光比が、約5を超える、態様1に記載の光学体。

44. 前記光学体の吸光比が、約10を超える、態様1に記載の光学体。

45. 前記光学体が薄膜であり、前記第1の相と第2の相との間の屈折率の差が、前記薄膜の表面に垂直な軸に沿って約0.05未満である、態様1に記載の光学体。

46. 可視、紫外、または赤外の電磁放射線のうちの少なくとも1つの偏光に対して、前記第1の相と第2の相の全体としての少なくとも1つの軸に沿う拡散反射率が、少なくとも約30%である、態様1に記載の光学体。

47. 前記光学体が、正反射軸を有し、前記電磁放射線が該正反射軸を中心にして異方的に分配される、態様46に記載の光学体。

48. 前記光学体が、少なくとも1つの方向に延伸されると共に正反射軸を有し、電磁放射線の前記少なくとも1つの偏光の拡散反射部分が、主として、前記延伸方向を中心軸とし正反射方向を含む表面を有する円錐の表面に沿ってまたはその近くに分配される、態様46に記載の光学体。

49. 前記第1の相と第2の相とが共通軸に沿って整列され、前記光学体が少なくとも1つの方向に延伸され、かつ、電磁放射線の前記少なくとも1つの偏光の拡散反射部分が、主として、前記第1の相と第2の相との整列軸を中心軸とし正反射方向を含む表面を有する円錐の表面に沿って、またはその近くに分配される、態様47に記載の光学体。

50. 前記光学体が正透過軸を有し、前記電磁放射線が該正透過軸を中心にして異方的に分配される、態様49に記載の光学体。

51. 前記光学体が少なくとも1つの方向に延伸されると共に少なくとも1つの方向に光を分光透過し、第1の偏光に直交して偏光された光の少なくとも約40%が、前記光学体を介して拡散透過せられ、かつ、拡散透過光線が、主として、前記延伸方向を中心軸とし正透過方向を含む表面を有する円錐の表面に沿ってまたはその近くに分配される、態様1に記載の光学体。

52. 前記第2の相が、伸長軸が共通方向に整列させられる伸長された包含物を含み、前記光学体が少なくとも1つの方向に延伸され、かつ、電磁放射線の前記少なくとも1つの偏光の拡散透過部分が、主として、前記伸長軸を中心軸とし拡散透過方向を含む表面を有する円錐の表面に沿ってまたはその近くに分配される、態様1に記載の光学体。

53. 前記第1の相と第2の相との間の屈折率の差が、前記薄膜の表面に垂直な軸に沿っ

10

20

30

40

50

て約 0.02 未満である、態様 1 に記載の光学体。

54. 二色性染料をさらに含む、態様 1 に記載の光学体。

55. 第 1 のポリマーと第 2 のポリマーとの相互貫入網目構造物を含む光学体において、該第 1 のポリマーと第 2 のポリマーとの間の屈折率の差が、第 1 の軸に沿って少なくとも約 0.05 であり、第 2 の軸に沿って約 0.05 未満である光学体。

56. 前記第 1 の相と第 2 の相との屈折率の差の絶対値が、第 1 の軸に沿って n_1 であり、該第 1 の軸に直交した第 2 の軸に沿って n_2 であり、かつ、 n_1 と n_2 との差の絶対値が少なくとも約 0.05 である、態様 55 に記載の光学体。

57. 連続気泡ポリマーの第 1 の相と、該第 1 の相の気泡中に存在する第 2 の相とを含む光学体において、前記第 1 の相と第 2 の相との屈折率の差の絶対値が、第 1 の軸に沿って n_1 であり、該第 1 の軸に直交した第 2 の軸に沿って n_2 であり、かつ、 n_1 と n_2 との差の絶対値が少なくとも約 0.05 である光学体。

10

58. 電磁放射線の少なくとも 1 つの偏光に対して少なくとも 1 つの軸に沿う前記第 1 の相と第 2 の相との拡散反射率が全体として、少なくとも約 30 % である、態様 57 に記載の光学体。

59. n_1 と n_2 との差の絶対値が、少なくとも約 0.1 である、態様 57 に記載の光学体。

60. 前記第 1 の相が、前記第 2 の相よりも複屈折率が高い、態様 57 に記載の光学体。

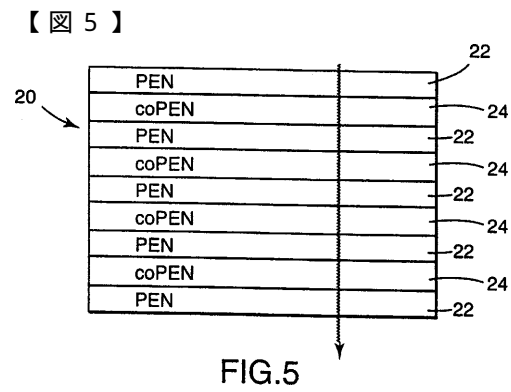
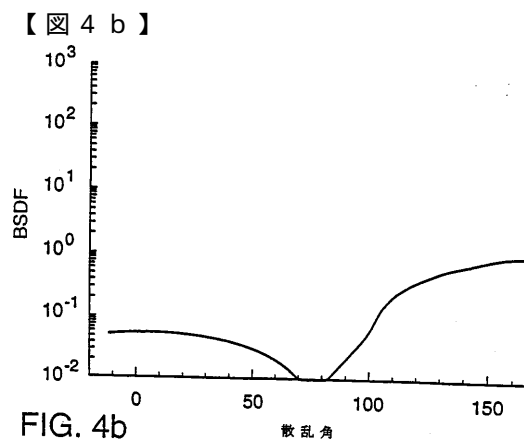
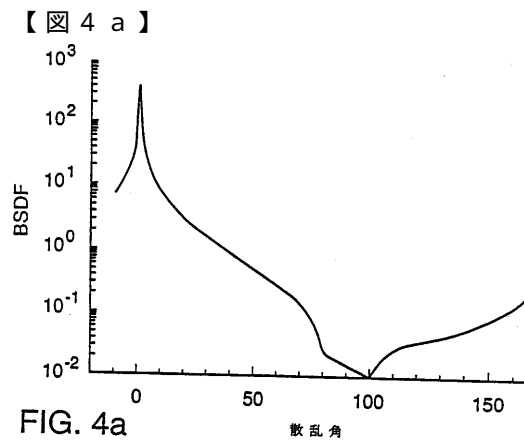
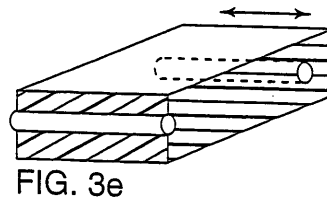
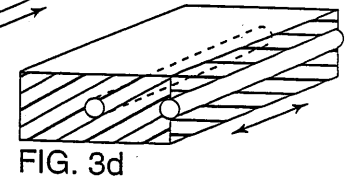
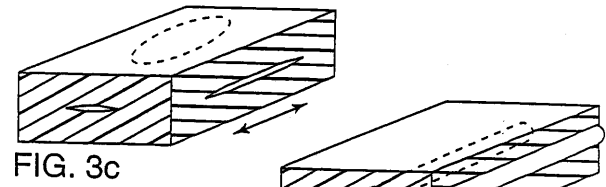
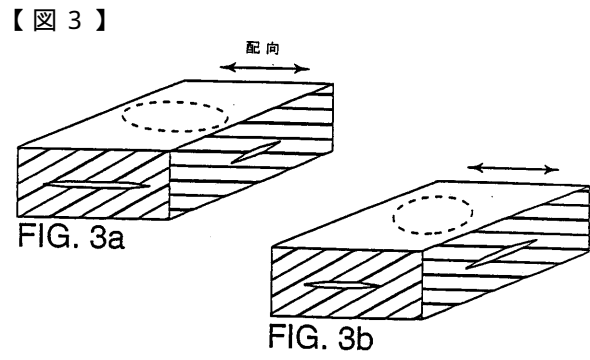
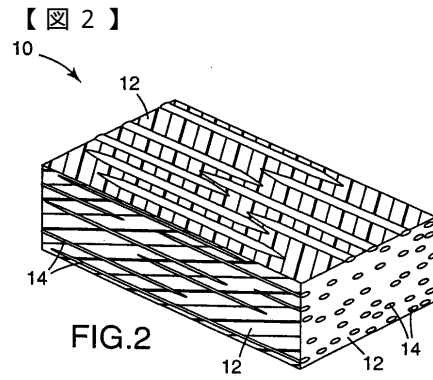
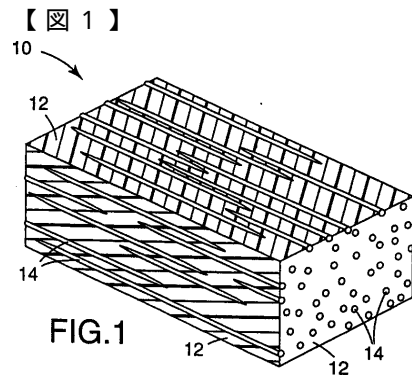
61. 前記第 1 の相の複屈折率が、前記第 2 の相の複屈折率よりも少なくとも 0.02 大きい、態様 57 に記載の光学体。

20

62. 前記第 1 の相の複屈折率が、前記第 2 の相の複屈折率よりも少なくとも 0.05 大きい、態様 57 に記載の光学体。

63. 前記第 1 の相が、相互に結合した気孔の網目構造物を含み、かつ、前記第 2 の相が前記網目構造物内に配置される、態様 57 に記載の光学体。

本発明の前述の記述は、ただ説明上のものであり、制限を加えようとするものではない。それ故に、本発明の範囲は、添付したクレームを参照することによってのみ、解釈されるべきである。



【図 6 B】



FIG.6B

フロントページの続き

(51)Int.Cl.		F I
C 0 8 L 25/00	(2006.01)	C 0 8 L 25/00
B 2 9 K 25/00	(2006.01)	B 2 9 K 25:00
B 2 9 K 67/00	(2006.01)	B 2 9 K 67:00
B 2 9 L 7/00	(2006.01)	B 2 9 L 7:00
B 2 9 L 11/00	(2006.01)	B 2 9 L 11:00

- (72)発明者 アレン, リチャード シー .
アメリカ合衆国, ミネソタ 5 5 1 3 3 3 4 2 7, セントポール, ポストオフィス ボックス
3 3 4 2 7
- (72)発明者 コッツ, アーサー エル .
アメリカ合衆国, ミネソタ 5 5 1 3 3 3 4 2 7, セントポール, ポストオフィス ボックス
3 3 4 2 7
- (72)発明者 カールソン, ロックウッド ダブリュ .
アメリカ合衆国, ミネソタ 5 5 1 3 3 3 4 2 7, セントポール, ポストオフィス ボックス
3 3 4 2 7
- (72)発明者 ネビット, ティモシー ジェイ .
アメリカ合衆国, ミネソタ 5 5 1 3 3 3 4 2 7, セントポール, ポストオフィス ボックス
3 3 4 2 7
- (72)発明者 オーダーカーク, アンドリュー ジェイ .
アメリカ合衆国, ミネソタ 5 5 1 3 3 3 4 2 7, セントポール, ポストオフィス ボックス
3 3 4 2 7
- (72)発明者 ストバー, カール エー .
アメリカ合衆国, ミネソタ 5 5 1 3 3 3 4 2 7, セントポール, ポストオフィス ボックス
3 3 4 2 7
- (72)発明者 ウェバー, マイケル エフ .
アメリカ合衆国, ミネソタ 5 5 1 3 3 3 4 2 7, セントポール, ポストオフィス ボックス
3 3 4 2 7
- (72)発明者 マジャムダー, ビスワロップ
アメリカ合衆国, ミネソタ 5 5 1 3 3 3 4 2 7, セントポール, ポストオフィス ボックス
3 3 4 2 7

審査官 大橋 憲

- (56)参考文献 米国特許第 0 2 6 0 4 8 1 7 (U S , A)
特開平 0 4 - 1 0 4 1 0 3 (J P , A)

(58)調査した分野(Int.Cl. , D B 名)

G02B 5/30
C08L 67/02
B29C 55/02
B29K 25/00
B29K 67/00
B29L 7/00
B29L 11/00
C08J 5/00
C08J 5/18
C08L 25/00