



(19)
Bundesrepublik Deutschland
Deutsches Patent- und Markenamt

(10) **DE 603 12 788 T2** 2007.12.13

(12) **Übersetzung der europäischen Patentschrift**

(97) **EP 1 403 297 B1**

(21) Deutsches Aktenzeichen: **603 12 788.6**

(96) Europäisches Aktenzeichen: **03 020 558.7**

(96) Europäischer Anmeldetag: **17.09.2003**

(97) Erstveröffentlichung durch das EPA: **31.03.2004**

(97) Veröffentlichungstag

der Patenterteilung beim EPA: **28.03.2007**

(47) Veröffentlichungstag im Patentblatt: **13.12.2007**

(51) Int Cl.⁸: **C08F 222/40** (2006.01)

G02B 1/04 (2006.01)

G02B 5/30 (2006.01)

(30) Unionspriorität:

2002286212 **30.09.2002** **JP**

2003008138 **16.01.2003** **JP**

2003008139 **16.01.2003** **JP**

2003204632 **31.07.2003** **JP**

(73) Patentinhaber:

Tosoh Corp., Shunan, JP

(74) Vertreter:

Vossius & Partner, 81675 München

(84) Benannte Vertragsstaaten:

DE, FR, GB, NL

(72) Erfinder:

Toyomasu, Shinsuke, Yokkaichi-shi Mie, 510-8022, JP; Ikai, Yojiro, Yokkaichi-shi Mie, 510-8034, JP

(54) Bezeichnung: **Optisches Material aus transparentem wärmebeständigem Harz und Folie**

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

Fachgebiet der Erfindung

[0001] Die vorliegende Erfindung betrifft ein optisches Material aus transparentem wärmebeständigem Harz mit negativer Doppelbrechung, hergestellt aus einem transparenten wärmebeständigen Harz mit hervorragender Wärmebeständigkeit und hervorragenden dynamischen Eigenschaften und mit einem hohen Brechungsindex und einer hohen Abbeschen Zahl, und insbesondere Folien, Bahnen und Verzögerungsfolien.

Beschreibung des Standes der Technik

[0002] Bisher wurden anorganische Gläser im Allgemeinen als optische Materialien verwendet. Der Status in der jüngsten Vergangenheit ist, dass unter den Gesichtspunkten Leichtgewichtigkeit, Produktivität und Kosten häufig Polymermaterialien verwendet werden.

[0003] Beispiele für Materialien, die verwendet werden können, in denen derartige Vorteile von Polymermaterialien genutzt werden, schließen Polymethylmethacrylat (nachstehend als "PMMA" abgekürzt), Polystyrole (nachstehend als "PS" abgekürzt), Polycarbonate (nachstehend als "PC" abgekürzt) und cyclische Polyolefine (nachstehend als „cyclisches PO“ abgekürzt) ein.

[0004] Hinsichtlich der Funktion optischer Materialien wurden bisher Materialien gefordert, die nicht nur hervorragende Wärmebeständigkeit, Beständigkeit gegenüber Umwelteinflüssen und hervorragende dynamische Eigenschaften, sondern auch eine hohe Transparenz, einen hohen Brechungsindex, eine hohe Abbesche Zahl und eine niedrige Doppelbrechung aufweisen. Es wurden auch Materialien untersucht und entwickelt, die keine optische Anisotropie und keine Doppelbrechung aufweisen.

[0005] Obwohl PMMA und PS eine hervorragende Transparenz aufweisen, war ihr Nutzen eingeschränkt, da sie eine Glasübergangstemperatur (nachstehend als „Tg“ bezeichnet) in der Nähe von 100°C und eine unzureichende Wärmebeständigkeit aufweisen und spröde sind.

[0006] Von den transparenten Harzen weist PC hervorragende Transparenz und Zähigkeit auf und besitzt eine Tg in der Nähe von 140°C und wird daher häufig als wärmebeständiges Harz verwendet. Mit PC ist jedoch das Problem verbunden, dass die Doppelbrechung aufgrund der Konformation eines Skeletts, das Bisphenol in der Molekülkette enthält, hoch ist.

[0007] In der jüngsten Vergangenheit wurden Flüss-

sigkristallanzeigen (nachstehend als „LCD“ bezeichnet) usw. als optische Anzeigeelemente aufmerksam verfolgt. Zum Zweck der Steuerung des optischen Verhaltens nehmen die Anforderungen an die Steuerung der optischen Anisotropie von Polymermaterialien zu, und Untersuchungen zu diesem Sachverhalt nehmen zu. Eines der optischen Materialien, die zum Zweck der optischen Kompensation verwendet werden, sind optische Kompensationsfolien, wie Verzögerungsfolien.

[0008] Unter diesen Umständen wird PMMA oder PS als ein Material angesehen, das eine negative Doppelbrechung aufweist dergestalt, dass es, wenn seine Molekülkette gereckt und orientiert wird, eine optische Anisotropie aufweist, bei der der Brechungsindex in einer von der Orientierungsrichtung verschiedenen Richtung (zum Beispiel einer dazu senkrechten Richtung) groß wird. Es wird jedoch darauf hingewiesen, dass PMMA oder PS keine ausreichende Wärmebeständigkeit aufweisen.

[0009] Andererseits ist PC oder cyclisches PO ein Material, das eine positive Doppelbrechung aufweist dergestalt, dass es, wenn seine Molekülkette gereckt und orientiert wird, eine optische Anisotropie aufweist, bei der der Brechungsindex in Richtung der Orientierung groß wird. Derzeit werden PC oder cyclisches PO häufig für Betriebsmittel, wie Folien, die in der Lage sind, Flüssigkristallzellen optisch zu kompensieren, um den Sichtbarkeitswinkel von LCD zu verbessern, verwendet. Hinsichtlich der gleichen Betriebsmittel waren bisher noch keine optischen Materialien, von denen im Allgemeinen eine Wärmebeständigkeit im Sinne einer Tg mit dem gleichen Wert wie in PC, d.h. 140°C, gefordert wird, verfügbar, die eine ausreichende Wärmebeständigkeit und eine negative Doppelbrechung als optische Anisotropie aufweisen.

[0010] Als Verfahren zur Steuerung der optischen Anisotropie, d.h. der Doppelbrechung, ist über Untersuchungen berichtet worden, bei denen ein Material mit einer positiven Doppelbrechung und ein Material mit einer negativen Doppelbrechung gemischt oder copolymerisiert werden, woraufhin sie eine niedrige Doppelbrechung aufweisen (siehe zum Beispiel J. Appl. Polym. Sci., 13, S. 2541 (1969), Plaste und Kautschuk, 29, S. 618 (1982) und Kino Zairyo (Functional Materials), März (1987)).

[0011] Daneben wird berichtet, dass es durch Mischen von zwei verschiedenen Arten eines Polymermaterials, das eine positive Doppelbrechung aufweist, und eines Polymers, das eine negative Doppelbrechung aufweist, und Recken und Orientieren des Gemisches möglich ist, die Doppelbrechung durch Berechnung und Optimierung (siehe zum Beispiel JP-A-2002-071956) einfach zu berechnen und abzuschätzen. Andererseits wird als ein Ergebnis der

Bewertung der Doppelbrechung durch Recken und Orientieren einer Zusammensetzung auf der Basis eines Gemisches aus einem Material, das eine positive Doppelbrechung aufweist, und einem Material, das eine negative Doppelbrechung aufweist, berichtet, dass die additive Eigenschaft, über die in JP-A-2002-071956 berichtet wird, nicht wirksam wird (siehe zum Beispiel Polymer, 35, Nr. 7, S. 1452–1461 (1994)). Daher ist eine einfache Abschätzung der Doppelbrechung von verschiedenen Arten von Copolymeren und Polymergemischen schwierig.

[0012] Kino Zairyo (Functional Materials), März (1987), berichtet, dass Beispiele für diejenigen, die eine negative Doppelbrechung aufweisen, ein alternierendes Copolymer aus Styrol und Maleinsäureanhydrid, ein Copolymer aus Styrol und Acrylnitril, ein alternierendes Copolymer aus Styrol und Laurylmaleimid, ein alternierendes Copolymer aus Styrol und Phenylmaleimid und ein alternierendes Copolymer aus Styrol und Cyclohexylmaleimid einschließen. Andererseits wird berichtet, dass N-Alkylmaleimid-Einheiten eine positive Doppelbrechung aufweisen (siehe zum Beispiel Polymer Preprints, Japan, 39, Nr. 10, S. 3824–3826 (1990)). Weiterhin wird berichtet, dass Copolymere aus einem N-Alkylmaleimid und Styrol eine negative Doppelbrechung durch eine Styroleinheit aufweisen, was dadurch bedingt ist, dass die Styroleinheit eine negative Doppelbrechung aufweist (siehe zum Beispiel Kobunshi no Kotai Kozo (Solid Structure of Polymers) II, S. 390 (Kyoritsu Shuppan)).

[0013] Es ist jedoch nicht der Fall, dass die Styroleinheit immer eine negative Doppelbrechung erkennen lässt. Gemäß Polymer, 35, Nr. 7, S. 1452–1461 (1994) und Kobunshi no Kotai Kozo (Solid Structure of Polymers) II, S. 390 (Kyoritsu Shuppan) ist zum Beispiel bekannt, dass selbst Polystyrole in dem Fall, in dem ein Phenylrest als Substituent in der Seitenkette parallel zur Achsrichtung der Molekülkette vorhanden ist, eine positive Doppelbrechung aufweisen, und dass sie nur in dem Fall, in dem der Phenylrest die Achse der Molekülkette im rechten Winkel kreuzt, eine negative Doppelbrechung zeigen.

[0014] Anisotropiedaten einer polarisierten Atomgruppen-Einheit, aus der ein Material mit hohem Molekulargewicht besteht, werden in Kobunshi no Kotai Kozo (Solid Structure of Polymers) II, S. 390 (Kyoritsu Shuppan) usw. beschrieben. Derartige Informationen lassen jedoch keine Abschätzung der optischen Anisotropie eines Polymermaterials zu, und es ist schwierig, die optische Anisotropie zu steuern, wenn nicht in die Gesamtbetrachtung das Verhältnis der Monomere als Struktureinheiten, die sterische Regularität durch das Polarisationsverfahren und die molekulare Orientierung oder das Spannungsbelastungsverhalten usw. aufgenommen werden. Eine Beziehung zwischen der Molekularstruktur und dem die

Funktion offenbarenden Mechanismus, der eine positive oder negative Doppelbrechung erkennen lässt, wurde bisher noch nicht erläutert.

[0015] Es wird ein Verfahren zur Offenbarung einer Funktion vorgeschlagen, die der Funktion, die eine negative Doppelbrechung erkennen lässt, entspricht, wobei ein Material verwendet wird, das durch ein spezielles Formungsverfahren eine positive Doppelbrechung aufweist (siehe zum Beispiel JP-A-2000-162436, JP-A-2000-304924, JP-A-2000-304925 und JP-A-2000-329939).

[0016] PC-Folien als wärmebeständiges transparentes Harz, das eine positive Doppelbrechung aufweist, wiesen bei monoaxialem Recken unter einer geeigneten Bedingung eine Beziehung der dreidimensionalen Brechungsindizes von $n_x > n_y \geq n_z$, wie in [Fig. 2](#) dargestellt, für den Fall auf, dass, wenn, wie in [Fig. 1](#) dargestellt, die Reckrichtung in der Folienebene eine x-Achse bildet, die senkrechte Richtung in der Folienebene eine y-Achse bildet und die vertikale Richtung außerhalb der Folienebene eine z-Achse bildet, n_x für einen Brechungsindex in Richtung der x-Achse steht, n_y für einen Brechungsindex in Richtung der y-Achse steht und n_z für einen Brechungsindex in Richtung der x-Achse steht. Auch wenn sie biaxial gereckt und orientiert wurden, wiesen derartige PC-Folien eine Beziehung von $n_x \geq n_y > n_z$ oder $n_y \geq n_x > n_z$ für den Fall auf, dass, wenn, wie in [Fig. 3](#) dargestellt, die Reckrichtungen in der Folienebene eine x-Achse und eine y-Achse bilden und die vertikale Richtung außerhalb der Folienebene eine z-Achse bildet, n_x für einen Brechungsindex in Richtung der x-Achse steht, n_y für einen Brechungsindex in Richtung der y-Achse steht und n_z für einen Brechungsindex in Richtung der x-Achse steht.

[0017] Jedes der in JP-A-2000-162436, JP-A-2000-304924, JP-A-2000-304925 und JP-A-2000-329939 vorgeschlagenen Verfahren ist ein Verfahren, in dem eine Schrumpffolie auf eine Oberfläche oder auf beide Oberflächen einer PC-Folie befestigt wird und die Schrumpfung in Richtung in der Folienebene in der Phase des Reckvorgangs gesteuert wird, um den Brechungsindex in Richtung der z-Achse, als die vertikale Richtung außerhalb der Folienebene, zu erhöhen.

[0018] Die aktuelle Situation ist jedoch dergestalt, dass es sehr schwierig ist, den Brechungsindex durch Recken und Orientieren zu steuern, wenn beabsichtigt wird, den Brechungsindex in Richtung der z-Achse unter Verwendung von PC als Material mit einer positiven Doppelbrechung zu erhöhen.

[0019] Im Hinblick auf die vorstehenden Tatsachen erfolgte daher die Erfindung und zielt darauf ab, optische Materialien aus transparentem wärmebeständigem Harz mit negativer Doppelbrechung, die hervor-

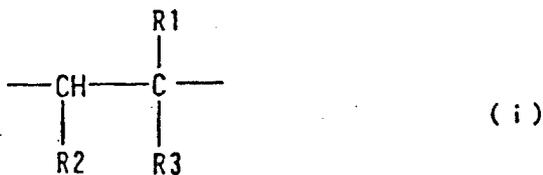
ragende Wärmebeständigkeit und hervorragende dynamische Eigenschaften und einen hohen Brechungsindex und eine hohe Abbesche Zahl aufweisen, und insbesondere Folien, Bahnen und Verzögerungsfolien zur Verfügung zu stellen.

[0020] US-A-3 352 832 offenbart ein transparentes Material, umfassend ein Copolymer, das eine Olefinrest-Einheit und eine N-Phenylmaleimidrest-Einheit, die gegebenenfalls am Phenylrest substituiert ist, umfasst. Diese Druckschrift bezieht sich nicht auf ein optisches Material, das eine negative Doppelbrechung aufweist.

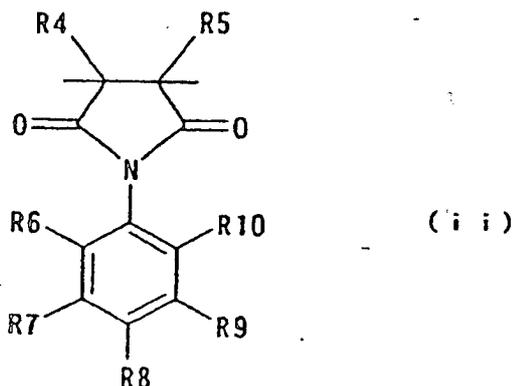
Zusammenfassung der Erfindung

[0021] Die Erfinder haben umfangreiche und eingehende Untersuchungen zu den vorstehenden Problemen durchgeführt. Als Ergebnis wurde festgestellt, dass ein optisches Material aus transparentem wärmebeständigem Harz, umfassend ein Copolymer, das aus einer bestimmten Olefinrest-Einheit und einer bestimmten N-Phenyl-substituierten Maleimidrest-Einheit gebildet wird, und ein bestimmtes Gewichtsmittel des Molekulargewichts aufweist, eine negative Doppelbrechung aufweist, was zur Vollenkung der Erfindung führte.

[0022] Insbesondere betrifft die Erfindung ein optisches Material aus transparentem wärmebeständigem Harz, umfassend ein Copolymer, das eine Olefinrest-Einheit der folgenden Formel (i) und eine N-Phenyl-substituierte Maleimidrest-Einheit der folgenden Formel (ii) umfasst, und ein Gewichtsmittel des Molekulargewichts, reduziert auf Standard-Polystyrol, von 5×10^3 bis 5×10^6 aufweist, wobei das optische Material aus transparentem wärmebeständigem Harz durch Orientierung der Molekülkette des Copolymers negative Doppelbrechung aufweist.



wobei R1, R2 und R3 jeweils Wasserstoff oder einen Alkylrest mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen bedeuten.



wobei R4 und R5 jeweils Wasserstoff oder einen linearen oder verzweigten Alkylrest mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen bedeuten; R7, R8 und R9 jeweils Wasserstoff, ein Element auf Halogenbasis, eine Carbonsäure, einen Carbonsäureester, eine Hydroxylgruppe, eine Cyanogruppe, eine Nitrogruppe oder einen linearen oder verzweigten Alkylrest mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen bedeuten; und R6 und R10 jeweils Wasserstoff, ein Element auf Halogenbasis, eine Carbonsäure, einen Carbonsäureester, eine Hydroxylgruppe, eine Cyanogruppe, eine Nitrogruppe oder einen linearen oder verzweigten Alkylrest mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen bedeuten, und wenn mindestens einer der Reste R6 oder R10 Wasserstoff bedeutet, der andere nicht Wasserstoff sein sollte, sondern ein Element auf Halogenbasis, eine Carbonsäure, einen Carbonsäureester, eine Hydroxylgruppe, eine Cyanogruppe, eine Nitrogruppe oder einen linearen oder verzweigten Alkylrest mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen bedeuten sollte.

Kurze Beschreibung der Zeichnungen

[0023] **Fig. 1** ist eine Ansicht, welche die Richtungen der Achsen von dreidimensionalen Brechungsindizes in der Folienebene zeigt.

[0024] **Fig. 2** ist eine Ansicht, welche die dreidimensionalen Brechungsindizes eines optischen Materials mit positiver Doppelbrechung durch monoaxiales Recken zeigt.

[0025] **Fig. 3** ist eine Ansicht, welche die dreidimensionalen Brechungsindizes eines optischen Materials mit positiver Doppelbrechung durch biaxiales Recken zeigt.

[0026] **Fig. 4** ist eine Ansicht, welche die dreidimensionalen Brechungsindizes eines optischen Materials mit negativer Doppelbrechung durch monoaxiales Recken zeigt.

[0027] **Fig. 5** ist eine Ansicht, welche die dreidimensionalen Brechungsindizes eines optischen Materials mit negativer Doppelbrechung durch biaxiales Recken zeigt.

Ausführliche Beschreibung der Erfindung

[0028] Die Erfindung wird nachstehend ausführlich beschrieben.

[0029] Das erfindungsgemäße optische Material aus transparentem wärmebeständigem Harz umfasst ein Copolymer, das eine Olefinrest-Einheit der vorstehenden Formel (i) und eine N-Phenyl-substituierte Maleimidrest-Einheit der vorstehenden Formel (ii) umfasst und ein Gewichtsmittel des Molekulargewichts, reduziert auf Standard-Polystyrol, von 5×10^3 bis 5×10^6 aufweist.

[0030] In der Formel (i) als Baueinheit des Copolymers zur Verwendung in der Erfindung bedeuten R1, R2 und R3 jeweils Wasserstoff oder einen Alkylrest mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen. Beispiele für den Alkylrest mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen schließen ein: eine Methylgruppe, eine Ethylgruppe, eine n-Propylgruppe, eine Isopropylgruppe, eine n-Butylgruppe, eine sec-Butylgruppe, eine tert-Butylgruppe, eine Pentylgruppe, eine Hexylgruppe, eine Cyclopropylgruppe, eine Cyclobutylgruppe und eine Cyclohexylgruppe. In dem Fall, in dem die Anzahl der Kohlenstoffatome des Alkylrests 6 übersteigt, kann die Wärmebeständigkeit des Copolymers möglicherweise verringert sein oder das Copolymer kristallisiert sein, was zu einer Verschlechterung der Transparenz führt.

[0031] Beispiele für Olefine, von denen sich die Olefinrest-Einheit der Formel (i) ableitet, schließen ein: Isobuten, 2-Methyl-1-buten, 2-Methyl-1-penten, 2-Methyl-1-hexen, 2-Methyl-1-hepten, 1-Isoocten, 2-Methyl-1-octen, 2-Ethyl-1-penten, 2-Methyl-2-penten, 2-Methyl-2-hexen, Ethylen, Propylen, 1-Buten und 1-Hexen. Es werden vor allem 1,2-disubstituierte Olefine, insbesondere Isobuten, bevorzugt, da sie Copolymere mit hervorragender Wärmebeständigkeit und hervorragenden mechanischen Eigenschaften bereitstellen können. Die Olefine können einzeln oder in Kombination aus zwei oder mehreren davon verwendet werden, wobei ihr Verhältnis nicht eingeschränkt ist.

[0032] In der Formel (ii) als Baueinheit des Copolymers zur Verwendung in der Erfindung bedeuten R4 und R5 jeweils Wasserstoff oder einen linearen oder verzweigten Alkylrest mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen. Beispiele für den Alkylrest mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen schließen ein:

eine Methylgruppe, eine Ethylgruppe, eine n-Propylgruppe, eine Isopropylgruppe, eine n-Butylgruppe, eine sec-Butylgruppe, eine tert-Butylgruppe, eine Pentylgruppe, eine Hexylgruppe, eine Octylgruppe, eine Cyclopropylgruppe, eine Cyclobutylgruppe und eine Cyclohexylgruppe. In dem Fall, in dem die Anzahl der Kohlenstoffatome des linearen oder verzweigten Alkylrests 8 übersteigt, kann sich die Wärmebeständigkeit des Copolymers möglicherweise verschlechtern oder das Copolymer kann eine teilweise Kristallisation verursachen. R7, R8 und R9 bedeuten jeweils Wasserstoff, ein Element auf Halogenbasis, eine Carbonsäure, einen Carbonsäureester, eine Hydroxylgruppe, eine Cyanogruppe, eine Nitrogruppe oder einen linearen oder verzweigten Alkylrest mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen. Beispiele für das Element auf Halogenbasis schließen Fluor, Chlor, Brom und Iod ein. Beispiele für den Carbonsäureester schließen Methylcarboxylat, Ethylcarboxylat, Propylcarboxylat, Butylcarboxylat, Phenylcarboxylat und Cyclohexylcarboxylat ein. Beispiele für den linearen oder verzweigten Alkylrest mit 1 bis 8

Kohlenstoffatomen schließen ein: eine Methylgruppe, eine Ethylgruppe, eine n-Propylgruppe, eine Isopropylgruppe, eine n-Butylgruppe, eine sec-Butylgruppe, eine tert-Butylgruppe, eine Pentylgruppe, eine Hexylgruppe, eine Octylgruppe, eine Cyclopropylgruppe, eine Cyclobutylgruppe und eine Cyclohexylgruppe. In dem Fall, in dem die Anzahl der Kohlenstoffatome des linearen oder verzweigten Alkylrests 8 übersteigt, kann sich die Wärmebeständigkeit des Copolymers möglicherweise verschlechtern oder das Copolymer kann eine teilweise Kristallisation verursachen. Weiterhin bedeuten R6 und R10 jeweils Wasserstoff, ein Element auf Halogenbasis, eine Carbonsäure, einen Carbonsäureester, eine Hydroxylgruppe, eine Cyanogruppe, eine Nitrogruppe oder einen linearen oder verzweigten Alkylrest mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen, und wenn mindestens einer der Reste R6 oder R10 Wasserstoff bedeutet, sollte der andere nicht Wasserstoff sein, sondern ein Element auf Halogenbasis, eine Carbonsäure, einen Carbonsäureester, eine Hydroxylgruppe, eine Cyanogruppe, eine Nitrogruppe oder einen linearen oder verzweigten Alkylrest mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen bedeuten. Beispiele für das Element auf Halogenbasis schließen Fluor, Chlor, Brom und Iod ein. Beispiele für den Carbonsäureester schließen Methylcarboxylat, Ethylcarboxylat, Propylcarboxylat, Butylcarboxylat, Phenylcarboxylat und Cyclohexylcarboxylat ein. Beispiele für den linearen oder verzweigten Alkylrest mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen schließen ein: eine Methylgruppe, eine Ethylgruppe, eine n-Propylgruppe, eine Isopropylgruppe, eine n-Butylgruppe, eine sec-Butylgruppe, eine tert-Butylgruppe, eine Pentylgruppe, eine Hexylgruppe, eine Octylgruppe, eine Cyclopropylgruppe, eine Cyclobutylgruppe und eine Cyclohexylgruppe. In dem Fall, in dem die Anzahl der Kohlenstoffatome des linearen oder verzweigten Alkylrests 8 übersteigt, kann sich die Wärmebeständigkeit des Copolymers möglicherweise verschlechtern oder das Copolymer kann eine teilweise Kristallisation verursachen.

[0033] In dem Fall, in dem R6 und R10 jeweils Wasserstoff bedeuten, d.h. in dem Fall, in dem kein Substituent in den ortho-Stellungen des Phenylrests vorhanden ist, weist das erhaltene Copolymer eine niedrige Abbesche Zahl auf. Optische Materialien, die aus einem derartigen Polymer erhalten werden, weisen keine negative Doppelbrechung auf.

[0034] Als N-Phenyl-substituierte Maleimide, von denen sich die N-Phenyl-substituierte Maleimidrest-Einheit der Formel (ii) ableitet, können N-Phenyl-substituierte Maleimide verwendet werden, in denen ein bestimmter Substituent in ortho-Stellung(en) als N-Substituent der Maleimidverbindung vorhanden ist. Beispiele schließen ein: N-(2-Methylphenyl)maleimid, N-(2-Ethylphenyl)maleimid, N-(2-n-Propylphenyl)maleimid, N-(2-Isopropylphenyl)maleimid, N-(2-n-Butylphenyl)maleimid,

N-(2-sec-Butylphenyl)maleimid, N-(2-tert-Butylphenyl)maleimid, N-(2-n-Pentylphenyl)maleimid, N-(2-tert-Pentylphenyl)maleimid, N-(2,6-Dimethylphenyl)maleimid, N-(2,6-Diethylphenyl)maleimid, N-(2,6-Di-n-propylphenyl)maleimid, N-(2,6-Düso-propylphenyl)maleimid, N-(2-Methyl-6-ethylphenyl)maleimid, N-(2-Methyl-6-isopropylphenyl)maleimid, N-(2-Chlorphenyl)maleimid, N-(2-Bromphenyl)maleimid, N-(2,6-Dichlorphenyl)maleimid, N-(2,6-Dibromphenyl)maleimid, N-(2-Biphenyl)maleimid, N-(2-Diphenylether)maleimid, N-(2-Cyanophenyl)maleimid und N-(2-Nitrophenyl)maleimid. Diese Verbindungen können einzeln oder in Kombination aus zwei oder mehreren davon verwendet werden, wobei ihr Verhältnis nicht eingeschränkt ist. Vor allem ein oder mehrere N-Phenyl-substituierte Maleimide, die aus N-(2-Methylphenyl)maleimid, N-(2,6-Dimethylphenyl)maleimid, N-(2,6-Diethylphenyl)maleimid und N-(2,6-Düso-propylphenyl)maleimid ausgewählt sind, werden besonders bevorzugt, da optische Materialien aus transparentem wärmebeständigem Harz mit hervorragender Wärmebeständigkeit und hervorragenden mechanischen Eigenschaften, die eine vergleichsweise hohe negative Doppelbrechung aufweisen, erhalten werden.

[0035] Hinsichtlich des in den Phenylrest in der Formel (ii) einzuführenden Substituenten ist es unter dem Gesichtspunkt der gewünschten optischen Funktion wichtig, diejenigen zu verwenden, in denen ein bestimmter Substituent in ortho-Stellung(en) eingeführt wird. Außerdem können andere Substituenten in meta-Stellung(en) und/oder der para-Stellung eingeführt werden. Beispiele für derartige N-Phenyl-substituierte Maleimide schließen N-(2,4,6-Tri-methylphenyl)maleimid, N-(2,4-Dimethylphenyl)maleimid, N-(Perbromphenyl)maleimid, N-(2-Methyl-4-hydroxyphenyl)maleimid und N-(2,6-Diethyl-4-hydroxyphenyl)maleimid ein.

[0036] Das Copolymer, das im erfindungsgemäßen optischen Material aus transparentem wärmebeständigem Harz verwendet wird, weist ein Gewichtsmittel des Molekulargewichts, reduziert auf Standard-Polystyrol, von 5×10^3 bis 5×10^6 auf. Im Fall von Copolymeren mit einem Gewichtsmittel des Molekulargewichts, das 5×10^6 übersteigt, ist es schwierig, diese als optische Materialien zu formen. Andererseits sind im Fall von Copolymeren mit einem Gewichtsmittel des Molekulargewichts von weniger als 5×10^3 die erhaltenen Copolymere sehr spröde, so dass es schwierig ist, sie als optische Materialien zu verwenden. Im Übrigen kann das Gewichtsmittel des Molekulargewichts durch Messen einer Elutionskurve des Copolymers durch Gelpermeationschromatographie (nachstehend als „GPC“ bezeichnet), reduziert auf Standard-Polystyrol, erhalten werden.

[0037] Als Copolymer zur Verwendung in der Erfindung wird ein alternierendes Copolymer, in dem die

Olefinrest-Einheit der Formel (i) und die N-Phenyl-substituierte Maleimidrest-Einheit der Formel (ii) alternierend copolymerisiert sind, besonders bevorzugt, da optische Materialien aus transparentem wärmebeständigem Harz mit hervorragender Wärmebeständigkeit und hervorragenden mechanischen Eigenschaften zur Verfügung gestellt werden.

[0038] Das Copolymer zur Verwendung in der Erfindung, das die Olefinrest-Einheit der Formel (i) und die N-Phenyl-substituierte Maleimidrest-Einheit der Formel (ii) umfasst, kann zum Beispiel durch Polymerisieren des vorstehenden Olefins und des vorstehenden N-Phenyl-substituierten Maleimids in einem bekannten Polymerisationsverfahren, wie einem Radikalkettenpolymerisationsverfahren, synthetisiert werden. Als Radikalkettenpolymerisationsverfahren sind verschiedene Polymerisationsverfahren, wie ein Blockpolymerisationsverfahren, ein Lösungspolymerisationsverfahren, ein Suspensionspolymerisationsverfahren und ein Emulsionspolymerisationsverfahren, verwendbar.

[0039] In einem weiteren Verfahren kann das Copolymer auch durch Copolymerisieren des vorstehenden Olefins mit Maleinsäureanhydrid erhalten werden, wobei ein Olefin-Maleinsäureanhydrid-Copolymer erhalten wird, zu dem dann ein Anilin mit einem Substituenten in mindestens einer seiner ortho-Stellungen zugegeben wird, um die Maleinsäureanhydridstelle durch Umsetzung mit dem Anilin zu amidieren, gefolgt von einer Imidation, wobei ein Ringschluß erfolgt. Beispiele für Aniline, die verwendet werden können, schließen ein: 2-Methylanilin, 2-Ethylanilin, 2-n-Propylanilin, 2-Isopropylanilin, 2-n-Butylanilin, 2-sec-Butylanilin, 2-tert-Butylanilin, 2-n-Pentylanilin, 2-tert-Pentylanilin, 2,6-Dimethylanilin, 2,6-Diethylanilin, 2,6-Di-n-propylanilin, 2,6-Diisopropylanilin, 2-Methyl-6-ethylanilin, 2-Methyl-6-isopropylanilin, 2-Chloranilin, 2-Bromanilin, 2,6-Dichloranilin und 2,6-Dibromanilin. Diese Verbindungen können einzeln oder als Kombination aus zwei oder mehreren davon verwendet werden, wobei deren Verhältnis nicht eingeschränkt ist. Vor allem werden ein oder mehrere Aniline, die aus 2-Methylanilin, 2,6-Dimethylanilin, 2,6-Diethylanilin und 2,6-Diisopropylanilin ausgewählt sind, besonders bevorzugt, da optische Materialien aus transparentem wärmebeständigem Harz mit hervorragender Wärmebeständigkeit und hervorragenden mechanischen Eigenschaften, die eine vergleichsweise hohe negative Doppelbrechung aufweisen, erhalten werden.

[0040] Das Copolymer zur Verwendung in der Erfindung weist einen Phenylsubstituenten mit einer großen Atomgruppenpolarisation als N-Substituenten der Maleimidrest-Einheit auf, so dass es einen hohen Brechungsindex aufweist. Dies wird auch aus der Lorentz-Lorentz-Gleichung deutlich, welche die Beziehung zwischen der Molekularstruktur und dem

Brechungsindex zeigt, wie in Polymer Science, One Point 10: Optical Properties of Polymers (Kapitel 1: Refractive Index) (Autor: Yasuhiro Koike, editiert von The Society of Polymer Science, Japan, und herausgegeben von Kyoritsu Shuppan (1994)) beschrieben.

[0041] Das Copolymer zur Verwendung in der Erfindung weist auch eine hohe Abbesche Zahl auf. Im Allgemeinen wird erwartet, dass die Abbesche Zahl durch aromatische Reste, wie einen Phenylrest, der als N-Substituent der Maleimidrest-Einheit eingeführt werden soll, niedrig wird, da der Brechungsindex in Bereichen kurzer Wellenlängen zunimmt. Im Copolymer zur Verwendung in der Erfindung ist es jedoch möglich, durch Einführen eines funktionellen Rests als Substituent in ortho-Stellung(en) (d.h. R6 und R10) des Phenylrests, der als N-Substituent eingeführt werden soll, eine Verbesserung der Abbeschen Zahl zu erreichen. Außerdem ist es möglich, durch Einführen eines funktionellen Rests als Substituent in meta-Stellung(en) und para-Stellung (d.h. R7, R8 und R9), die Verbesserung der Abbeschen Zahl noch weiter zu verstärken.

[0042] Das erfindungsgemäße optische Material aus transparentem wärmebeständigem Harz ist ein optisches Material mit negativer Doppelbrechung.

[0043] Im erfindungsgemäßen optischen Material aus transparentem wärmebeständigem Harz wird die negative Doppelbrechung durch Orientieren der Molekülkette des Copolymers, das die Olefinrest-Einheit der Formel (i) und die N-Phenyl-substituierte Maleimidrest-Einheit der Formel (ii) umfasst, während des Formens offenbart.

[0044] Als Verfahren zum Orientieren der Molekülkette kann jedes Verfahren, das eine Orientierung der Molekülkette ermöglicht, verwendet werden, und Beispiele schließen verschiedene Verfahren, wie Recken, Kalandern und Ziehen, ein. Vor allem Recken wird zur Herstellung besonders bevorzugt, da optische Materialien aus transparentem wärmebeständigem Harz mit negativer Doppelbrechung mit guter Produktivität hergestellt werden können. Beispiele für das Recken, das verwendet werden kann, schließen monoaxiales Recken, wie monoaxiales Recken mit freier Breite und monoaxiales Recken mit fester Breite, und biaxiales Recken, wie aufeinanderfolgendes biaxiales Recken und gleichzeitiges biaxiales Recken, ein. Daneben sind als Einrichtungen zur Durchführung des Kalanderns zum Beispiel eine Walzenreckmaschine und eine Reckmaschine vom Reckrahmentyp bekannt. Daneben können als experimentelle biaxiale Kleinreckeinrichtungen alle Einrichtungen verwendet werden, die in der Lage sind, monoaxiales Recken mit freier Breite, monoaxiales Recken mit fester Breite, aufeinanderfolgendes biaxiales Recken oder gleichzeitiges biaxiales Recken durchzuführen.

[0045] Da das erfindungsgemäße optische Material aus transparentem wärmebeständigem Harz ein besonders hervorragendes optisches Material ist, weist es vorzugsweise einen Brechungsindex von 1,50 oder mehr, eine Abbesche Zahl von 30 oder mehr und eine Tg von 100°C oder höher, vorzugsweise 120°C oder höher und besonders bevorzugt 140°C oder höher auf.

[0046] Das erfindungsgemäße optische Material aus transparentem wärmebeständigem Harz kann zum Beispiel als Folie oder Bahn verwendet werden. Vorzugsweise wird die Folie oder Bahn durch monoaxiales Recken oder biaxiales Recken hergestellt. Im Fall der Folie ist es besonders bevorzugt, die Folie als Verzögerungsfolie, wie als Verzögerungsfolie mit positiver Doppelbrechung und als Verzögerungsfolie mit negativer Doppelbrechung, zu verwenden, einer der Gesichtspunkte, die bisher gefordert wurden. Der hier verwendete Begriff „Folie“ bedeutet eine mit einer Dicke von nicht mehr als etwa 200 µm, und der hier verwendete Begriff „Bahn“ bedeutet eine mit einer Dicke, welche diesen Bereich übersteigt. Außerdem ist das erfindungsgemäße optische Material aus transparentem wärmebeständigem Harz als optisches Kompensationselement für Flüssigkristallanzeigeelemente, wie Verzögerungsfolien, geeignet.

[0047] Das erfindungsgemäße optische Material aus transparentem wärmebeständigem Harz mit negativer Doppelbrechung kann durch ein Verfahren der Orientierung der Molekülkette, wie Recken oder Kalandern, hergestellt werden. Als Herstellungsverfahren kann ein Verfahren benannt werden, in dem das primäre Formen durch ein übliches Formungsverfahren, wie Spritzgießen, Extrusionsformen, Bläsformen, Aufblähformen, Walzenformen und Formen durch Lösungsgießen, durchgeführt wird und die Molekülkette dann durch das vorstehende monoaxiale Recken, wie monoaxiales Recken mit freier Breite und monoaxiales Recken mit fester Breite; biaxiales Recken, wie aufeinanderfolgendes biaxiales Recken und gleichzeitiges biaxiales Recken; Walzenrecken; Recken mit Reckrahmen oder dergleichen, als sekundäres Formen orientiert wird.

[0048] Insbesondere bei der Herstellung von Folien oder Bahnen, insbesondere Verzögerungsfolien, als optisches Material aus transparentem wärmebeständigem Harz wird vorzugsweise mittels eines üblichen Verfahrens zur Herstellung von Folien oder Bahnen als primäres Formen, wie Spritzgießen, Extrusionsformen, Aufblähformen und Lösungsgießen, eine rohe Folienrolle oder Bahnrolle hergestellt und die erhaltene Folie oder Bahn durch monoaxiales Recken, wie Recken mit freier Breite und Recken mit fester Breite, oder biaxiales Recken, wie aufeinanderfolgendes Recken und gleichzeitiges Recken, gereckt, da Folien oder Bahnen mit guter Qualität und hoher negativer Doppelbrechung, insbesondere Verzöge-

rungsfolien, mit gutem Wirkungsgrad hergestellt werden können. Beim Recken wird das Recken und Orientieren vorzugsweise bei einer Temperatur im Bereich von $[T_g \text{ (des Copolymers)} -20^\circ\text{C}]$ bis $[T_g +30^\circ\text{C}]$, insbesondere im Bereich von $[T_g -20^\circ\text{C}]$ bis $[T_g +20^\circ\text{C}]$ durchgeführt, da optische Materialien aus transparentem wärmebeständigem Harz mit besonders hoher negativer Doppelbrechung, die als Verzögerungsfolie geeignet sind, mit guter Produktivität hergestellt werden können.

[0049] In dem Fall, in dem eine Folie oder eine Bahn durch Extrusionsformen als primäres Formen durch Formen des Copolymers, indem es durch eine schmale Öffnung einer Düse, genannt T-Düse, tritt, hergestellt wird, ist es möglich, eine Folie oder Bahn mit beliebiger Dicke zu erhalten. Während dessen ist es wünschenswert, das Copolymer vorher bei einer Temperatur im Bereich von 80 bis 130°C zu erwärmen und zu trocknen. So ist es möglich, eine Störung des Aussehens durch Vergasung während des Formens usw. zu vermeiden. Beim Extrusionsformen wird vorzugsweise in Abhängigkeit der gewünschten Dicke und optischen Reinheit zum Abfiltrieren von Verunreinigungen ein Filter gesetzt. Hinsichtlich der Extrusionsformbedingungen wird das Formen vorzugsweise bei einer Temperatur, die ausreichend höher ist als die T_g , bei der das Copolymer aufgrund der Scherspannung schmelzfließt, und bei einer Scherrate von weniger als 1.000/s durchgeführt, um die Orientierung der Molekülkette zu steuern. Zum Abkühlen zum Verfestigen der Folie in geschmolzenem Zustand nach dem Durchtritt durch die Düse ist es möglich, eine Metallwalze oder ein Stahlband mit niedriger Temperatur zu verwenden.

[0050] In dem Fall, in dem eine Folie oder eine Bahn durch Lösungsgießen als primäres Formen hergestellt wird, werden Lösungsmittel gewählt, in denen das Copolymer löslich ist, und es kann je nach Erfordernis eine Vielzahl an Lösungsmitteln verwendet werden. Beispiele für Lösungsmittel, die zum Lösungsgießen verwendet werden können, schließen Methylenchlorid, Chloroform, Chlorbenzol, Toluol, Xylol und Methylethylketon ein, wobei dies nicht dahingehend auszulegen ist, dass das Lösungsmittel auf diese Verbindungen beschränkt ist. Insbesondere kann ein gutes Lösungsmittel für das Copolymer (wie Methylenchlorid und Chloroform) mit einem schlechten Lösungsmittel (wie Alkohole, einschließlich Methanol und Ethanol) kombiniert werden, um die Verdampfungsrate des Lösungsmittels zu steuern.

[0051] Beim Trocknen des Substrats beim Lösungsgießen ist es wichtig, durch Einstellen der Erwärmungsbedingungen keine Blasen oder inneren Hohlräume in der Folie oder Bahn zu erzeugen, und die Konzentration des Restlösungsmittels beträgt zum Zeitpunkt des Reckvorgangs als anschließendes sekundäres Formen vorzugsweise nicht mehr als 2

Gew.-%. Damit die Folie oder Bahn, die nach dem Recken erhalten wird, eine gleichförmige negative Doppelbrechung erkennen lässt, ist es wünschenswert, dass die durch das primäre Formen erhaltene Folie oder Bahn frei von heterogener Orientierung oder Restspannung ist und optisch isotrop ist. Als ein derartiges Verfahren wird Lösungsgießen bevorzugt.

[0052] Im Reckschritt als sekundäres Formen wird der Reckvorgang vorzugsweise bei einer Temperatur im Bereich von $[T_g \text{ (des Copolymers)} -20^\circ\text{C}]$ bis $[T_g +30^\circ\text{C}]$ durchgeführt. Der Begriff „ T_g “ bedeutet hier einen Bereich von einer Temperatur, bei der der Speichermodul des Copolymers beginnt abzunehmen, wenn begonnen wird, das betreffende Material zu verringern, wodurch der Verlustmodul höher wird als der Speichermodul, bis zu einer Temperatur, bei der die Orientierung der Polymerkette aufgrund von Relaxation verschwindet. Die T_g kann durch ein Differentialscanningkalorimeter (DSC) gemessen werden.

[0053] Auch die Recktemperatur beim Reckvorgang während des Recken, die Spannungsrate während des Reckens der Folie, die Deformationsrate und dergleichen können angemessen gewählt werden, solange die Aufgabe der Erfindung gelöst werden kann. Dabei kann auf Polymer Processing, One Point 2 (To Make Films) (Autor: Kiyochi Matsumoto, editiert von The Society of Polymer Science, Japan, und herausgegeben von Kyoritsu Shuppan (1993)) Bezug genommen werden.

[0054] In dem Fall, in dem das erfindungsgemäße optische Material aus transparentem wärmebeständigem Harz eine negative Doppelbrechung aufweist und die durch primäres Formen erhaltene Folie monoaxial gereckt wird, werden optische Kompensationselemente, wie Verzögerungsfolien, die eine Beziehung der dreidimensionalen Brechungsindizes von $n_z \geq n_y > n_x$, wie in [Fig. 4](#) dargestellt, für den Fall aufweisen, dass, wenn die Reckrichtung eine x-Achse in der Folienebene bildet, die senkrechte Richtung in der Folienebene eine y-Achse bildet und die vertikale Richtung außerhalb der Folienebene eine z-Achse bildet, n_x für einen Brechungsindex in Richtung der x-Achse steht, n_y für einen Brechungsindex in Richtung der y-Achse steht und n_z für einen Brechungsindex in Richtung der z-Achse steht, bevorzugt. Derartige optische Kompensationselemente können durch Formen eines Copolymers, welches die Olefinrest-Einheit der Formel (i) und die N-Phenyl-substituierte Maleimidrest-Einheit der Formel (ii) umfasst und ein Gewichtsmittel des Molekulargewichts, reduziert auf Standard-Polystyrol, von 5×10^3 bis 5×10^6 aufweist, zu einer Folie durch das vorstehende Extrusionsformen, Lösungsgießen usw. als primäres Formen und Unterwerfen der Folie einem monoaxialen Recken, wie monoaxiales Recken mit freier Breite und monoaxiales Recken mit fester Breite, als sekundäres Formen im Temperaturbereich,

bezogen auf eine Glasübergangstemperatur des Copolymers, von $(T_g - 20^\circ\text{C})$ bis $(T_g + 30^\circ\text{C})$, und vorzugsweise von $(T_g - 20^\circ\text{C})$ bis $(T_g + 20^\circ\text{C})$, hergestellt werden.

[0055] Außerdem werden in dem Fall, in dem das erfindungsgemäße optische Material aus transparentem wärmebeständigem Harz eine negative Doppelbrechung aufweist und die durch primäres Formen erhaltene Folie biaxial gereckt wird, optische Kompensationselemente, wie Verzögerungsfolien, die eine Beziehung der dreidimensionalen Brechungsindizes von $n_z > n_y \geq n_x$ oder $n_z > n_x \geq n_y$, wie in [Fig. 5](#) dargestellt, für den Fall aufweisen, dass, wenn die biaxialen Reckrichtungen eine x-Achse in der Folienebene und eine y-Achse in der Folienebene bilden und die vertikale Richtung außerhalb der Folienebene eine z-Achse bildet, n_x für einen Brechungsindex in Richtung der x-Achse steht, n_y für einen Brechungsindex in Richtung der y-Achse steht und n_z für einen Brechungsindex in Richtung der z-Achse steht, bevorzugt. Derartige optische Kompensationselemente können durch Formen eines Copolymers, welches die Olefinrest-Einheit der Formel (i) und die N-Phenyl-substituierte Maleimidrest-Einheit der Formel (ii) umfasst und ein Gewichtsmittel des Molekulargewichts, reduziert auf Standard-Polystyrol, von 5×10^3 bis 5×10^6 aufweist, zu einer Folie durch das vorstehende Extrusionsformen, Lösungsgießen usw. als primäres Formen und Unterwerfen der Folie einem biaxialen Recken, wie aufeinanderfolgendes biaxiales Recken und gleichzeitiges biaxiales Recken, als sekundäres Formen im Temperaturbereich, bezogen auf eine Glasübergangstemperatur des Copolymers, von $(T_g - 20^\circ\text{C})$ bis $(T_g + 30^\circ\text{C})$ und vorzugsweise von $(T_g - 20^\circ\text{C})$ bis $(T_g + 20^\circ\text{C})$ hergestellt werden.

[0056] Im erfindungsgemäßen optischen Material aus transparentem wärmebeständigem Harz, insbesondere in der Verzögerungsfolie, ist es möglich, die Doppelbrechungseigenschaften durch Verwendung eines Verzögerungsgrads als Verzögerung zu erfassen. Hinsichtlich der Definition des Verzögerungsgrads, auf den hier Bezug genommen wird, kann der Verzögerungsgrad in dem Fall, in dem das optische Material aus transparentem wärmebeständigem Harz eine Folie ist, durch einen Wert ausgedrückt werden, der durch Multiplizieren jeder der Differenzen von n_x , n_y und n_z als dreidimensionale Brechungsindizes in Richtung der x-Achse, y-Achse beziehungsweise z-Achse der durch Recken erhaltene Folie, mit einer Dicke (d) der Folie erhalten wird. Insbesondere können $(n_x - n_y)$ als Differenz der Brechungsindizes in der Folienebene und $(n_x - n_z)$ und $(n_y - n_z)$ als Differenzen außerhalb der Folienebene einzeln benannt werden. In dem Fall, in dem die Doppelbrechungseigenschaften in Form des Verzögerungsgrads bewertet wird, insbesondere im Fall der monoaxial gereckten Folie, können, wenn die Reckrichtung die x-Achse bildet, die senkrechte Richtung

in der Ebene die y-Achse bildet und die vertikale Richtung außerhalb der Ebene die z-Achse bildet, der Verzögerungsgrad in der Folienebene durch $Re = (n_x - n_y)d$ und die Verzögerungsgrade außerhalb der Folienebene durch $Re = (n_x - n_z)d$ beziehungsweise $Re = (n_y - n_z)d$ ausgedrückt werden. Im Fall der biaxial gereckten Folie besteht, wenn die Reckrichtungen die x-Achse und die y-Achse bilden und die vertikale Richtung außerhalb der Ebene die z-Achse bildet, wenn die Reckverhältnisse auf der x-Achse und der y-Achse identisch sind, die Möglichkeit, dass die Doppelbrechungseigenschaften nicht mit einem Verzögerungsgrad in der Folienebene, $Re = (n_x - n_y)d$, erfasst werden kann. In einem derartigen Fall ist es wirkungsvoller, die Verzögerungsgrade durch $Re = (n_x - n_z)d$ und $Re = (n_y - n_z)d$ auszudrücken.

[0057] Das erfindungsgemäße optische Material aus transparentem wärmebeständigem Harz kann, falls Bedarf besteht, weiterhin Zusatzstoffe, wie Wärmestabilisatoren und Ultraviolettstabilisatoren, Gleitmittel und Weichmacher enthalten, sofern die Aufgabe der Erfindung nicht beeinträchtigt wird. Als derartige Zusatzstoffe, einschließlich Stabilisatoren, Gleitmittel und Weichmacher, können bekannte Zusatzstoffe für Harzmaterialien verwendet werden.

[0058] Das erfindungsgemäße optische Material aus transparentem wärmebeständigem Harz kann zum Zweck des Schutzes seiner Oberfläche mit einer harten Beschichtung versehen werden.

[0059] Obwohl das erfindungsgemäße optische Material aus transparentem wärmebeständigem Harz einzeln verwendet werden kann, ist es möglich, das optische Verhalten weiterhin zu steuern, wenn es mit einem optischen Material der gleichen Art und/oder einem optischen Material einer anderen Art laminiert wird. Beispiele für optische Materialien zum Laminieren schließen polarisierende Platten, umfassend eine Kombination aus Polyvinylalkohol/Pigment/Acetylcellulose, und aus Polycarbonat hergestellte, gereckte und orientierte Folien ein, sind aber nicht als die Erfindung einschränkend anzusehen.

[0060] Das erfindungsgemäße optische Material aus transparentem wärmebeständigem Harz mit negativer Doppelbrechung wird geeigneterweise als optisches Kompensationselement für Flüssigkristallanzeigeelemente verwendet. Beispiele schließen Verzögerungsfolien, wie STN-Typ LCD, TFT-TN-Typ LCD, OCB-Typ LCD, VA-Typ LCD und IPS-Typ LCD; Platten mit $\frac{1}{2}$ Wellenlänge; Platten mit $\frac{1}{4}$ Wellenlänge; Folien mit reziprokem Wellenlängendispersionsverhalten; optische Kompensationsfolien; Farbfilter; laminierte Folien mit einer polarisierenden Platte und optische Kompensationsfolien mit einer polarisierenden Platte, ein. Der Nutzen der Erfindung für Anwendungen ist nicht darauf beschränkt, sondern die Erfindung kann im Fall des Nutzens negativer Doppelbre-

chung weitverbreitete Verwendung finden.

[0061] Die Erfindung wird unter Bezugnahme auf die folgenden Beispiele ausführlicher beschrieben, wobei diese nicht als die Erfindung einschränkend anzusehen sind.

[0062] Die erhaltenen optischen Materialien aus transparentem wärmebeständigem Harz wurden mit den folgenden Verfahren bewertet.

Messung der Lichtdurchlässigkeit:

[0063] Als eine Bewertung der Transparenz wurde die Lichtdurchlässigkeit gemäß JIS K7105 (1981) gemessen.

Messung der Trübung:

[0064] Als eine Bewertung der Transparenz wurde die Trübung gemäß JIS K7105 (1981) gemessen.

Beurteilung, ob die Doppelbrechung positiv oder negativ ist:

[0065] Ob die Doppelbrechung positiv oder negativ ist, wurde durch das additive Farbverfahren mit einer $\lambda/4$ -Platte unter Verwendung eines Polarisationsmikroskops, wie in Primer of Polarization Microscope of Polymer Materials (Autor: Hiroshi Awaya, herausgegeben von Agune Gijutsu Center, Kapitel 5, S.78–82 (2001)) beschrieben, beurteilt.

Messung des Verzögerungsgrads:

[0066] Der Verzögerungsgrad wurde mit einem Polarisationsmikroskop (Senarmont-Kompensationsverfahren) unter Verwendung eines Senarmont-Kompensators, wie in Primer of Polarization Microscope of Polymer Materials (Autor: Hiroshi Awaya, herausgegeben von Agune Gijutsu Center, Kapitel 5, S.78–82 (2001)) beschrieben, gemessen.

Messung des Brechungsindex und der Abbeschen Zahl:

[0067] Die Messung wurde gemäß JIS K7142 (1981) durchgeführt.

Messung der Glasübergangstemperatur:

[0068] Die Messung wurde bei einer Rate der Temperaturerhöhung von $10^{\circ}\text{C}/\text{min}$ unter Verwendung eines Differentialscanningkalorimeters (hergestellt von Seiko Instruments Inc., Handelsname: DSC2000) durchgeführt.

Messung des Gewichtsmittels des Molekulargewichts und des Zahlenmittels des Molekulargewichts:

[0069] Das Molekulargewicht wurde als Wert, reduziert auf Standard-Polystyrol, aus einer Elutionskurve des Copolymers, gemessen unter Verwendung eines Gelpermeationschromatographen (hergestellt von Tosoh Corporation, Handelsname: HLC-802A), erhalten.

Messung der dreidimensionalen Brechungsindizes:

[0070] Die Messung wurde unter Verwendung eines automatischen Doppelbrechungsanalysators mit Probenneigung (hergestellt von Oji Scientific Instruments, Handelsname: KOBRA-21) durchgeführt.

Beispiel 1

[0071] Ein 1-Liter Autoklav wurde mit 400 ml Toluol als Polymerisationslösungsmittel, 0,001 Mol Perbutylneodecanoat als Polymerisationsinitiator, 0,42 Mol N-(2-Methylphenyl)maleimid und 4,05 Mol Isobuten beschickt, und das Gemisch wurde der Polymerisationsreaktion unter der Polymerisationsbedingung einer Polymerisationstemperatur von 60°C für eine Polymerisationszeit von 5 Stunden unterworfen, wobei ein alternierendes N-(2-Methylphenyl)maleimid-Isobuten-Copolymer erhalten wurde. Das erhaltene alternierende N-(2-Methylphenyl)maleimid-Isobuten-Copolymer wies ein Gewichtsmittel des Molekulargewichts (M_w) (reduziert auf Standard-Polystyrol) von 160.000 und eine Molekulargewichtsverteilung (M_w/M_n), die durch $[(\text{Gewichtsmittel des Molekulargewichts } (M_w))/(\text{Zahlenmittel des Molekulargewichts } (M_n))]$ ausgedrückt wird, von 2,7 auf.

[0072] Eine Lösung, bestehend aus 20 Gew.-% des erhaltenen alternierenden N-(2-Methylphenyl)maleimid-Isobuten-Copolymers und 80 Gew.-% Methylenchlorid, wurde hergestellt und auf eine Polyethylenterephthalat-Folie (nachstehend als „PET-Folie“ bezeichnet) gegossen. Nach Verdampfen des Methylenchlorids bildete sich eine Folie aus alternierendem N-(2-Methylphenyl)maleimid-Isobuten-Copolymer und wurde aus der Lösung erstarrt abgezogen. Nach dem Abziehen wurde die Folie bei 100°C für 4 Stunden und weiterhin während einer Erhöhung der Temperatur von 120°C auf 160°C mit einem Intervall von 10°C für eine Stunde bei der jeweiligen Temperatur getrocknet. Danach wurde die erhaltene Folie im Vakuum bei 180°C für 4 Stunden unter Verwendung eines Vakuumentrockners getrocknet, wobei eine Folie mit einer Dicke von etwa $100\ \mu\text{m}$ erhalten wurde. Die erhaltene Folie wies eine Lichtdurchlässigkeit von 92%, eine Trübung von 0,3%, einen Brechungsindex von 1,57, eine Abbesche Zahl von 37, einen Verzögerungsgrad von 0 nm und eine Tg von 206°C auf.

[0073] Die Folie wurde zu einem Stück mit einer

Größe von 5 cm × 5 cm geschnitten, das dann durch monoaxiales Recken mit freier Breite unter der Bedingung einer Temperatur von 220°C und einer Reckrate von 15 mm/min unter Verwendung einer biaxialen Reckmaschine (hergestellt von Shibayama Scientific Co., Ltd.) um +50% gereckt wurde, wobei eine gereckte Folie erhalten wurde. Die erhaltene gereckte Folie wies eine negative Doppelbrechung und einen Verzögerungsgrad, $Re = (n_x - n_y)d$, von -125 nm pro 100 µm Dicke der gereckten Folie auf. Hier bedeutet d die Foliendicke.

Beispiel 2

[0074] Ein 1-Liter Autoklav wurde mit 400 ml Toluol als Polymerisationslösungsmittel, 0,001 Mol Perbutylneodecanoat als Polymerisationsinitiator, 0,42 Mol N-(2,6-Diethylphenyl)maleimid und 4,05 Mol Isobuten beschickt, und das Gemisch wurde der Polymerisationsreaktion unter der Polymerisationsbedingung einer Polymerisationstemperatur von 60°C für eine Polymerisationszeit von 5 Stunden unterworfen, wobei ein alternierendes N-(2,6-Diethylphenyl)maleimid-Isobuten-Copolymer erhalten wurde. Das erhaltene alternierende N-(2,6-Diethylphenyl)maleimid-Isobuten-Copolymer wies ein Gewichtsmittel des Molekulargewichts (M_w) (reduziert auf Standard-Polytyrol) von 170.000 und ein M_w/M_n von 2,6 auf.

[0075] Eine Lösung, bestehend aus 20 Gew.-% des erhaltenen alternierenden N-(2,6-Diethylphenyl)maleimid-Isobuten-Copolymers und 80 Gew.-% Methylenchlorid, wurde hergestellt und auf eine PET-Folie gegossen. Nach Verdampfen des Methylenchlorids bildete sich eine Folie aus alternierendem N-(2,6-Diethylphenyl)maleimid-Isobuten-Copolymer und wurde aus der Lösung erstarrt abgezogen. Nach dem Abziehen wurde die Folie bei 100°C für 4 Stunden und weiterhin während einer Erhöhung der Temperatur von 120°C auf 160°C mit einem Intervall von 10°C für eine Stunde bei der jeweiligen Temperatur getrocknet. Danach wurde die erhaltene Folie im Vakuum bei 180°C für 4 Stunden unter Verwendung eines Vakuumtrockners getrocknet, wobei eine Folie mit einer Dicke von etwa 100 µm erhalten wurde. Die erhaltene Folie wies eine Lichtdurchlässigkeit von 92%, eine Trübung von 0,3%, einen Brechungsindex von 1,55, eine Abbesche Zahl von 40, einen Verzögerungsgrad von 0 nm und eine Tg von 209°C auf.

[0076] Die Folie wurde zu einem Stück mit einer Größe von 5 cm × 5 cm geschnitten, das dann durch monoaxiales Recken mit freier Breite unter der Bedingung einer Temperatur von 220°C und einer Reckrate von 15 mm/min unter Verwendung einer biaxialen Reckmaschine (hergestellt von Shibayama Scientific Co., Ltd.) um +50% gereckt wurde, wobei eine gereckte Folie erhalten wurde. Die erhaltene gereckte Folie wies eine negative Doppelbrechung und einen Verzögerungsgrad in der Folienebene, $Re = (n_x - n_y)d$, von -120 nm pro 100 µm Dicke der gereckten Folie auf. Hier bedeutet d die Foliendicke. Die dreidimensionalen Brechungsindizes waren $n_x = 1,53913$, $n_y = 1,54042$ und $n_z = 1,54045$. Damit ist zu erkennen, dass die erhaltene gereckte Folie als Verzögerungsfolie mit negativer Doppelbrechung geeignet war.

– n_y)d, von -120 nm pro 100 µm Dicke der gereckten Folie auf. Hier bedeutet d die Foliendicke. Die dreidimensionalen Brechungsindizes waren $n_x = 1,53913$, $n_y = 1,54042$ und $n_z = 1,54045$. Damit ist zu erkennen, dass die erhaltene gereckte Folie als Verzögerungsfolie mit negativer Doppelbrechung geeignet war.

Beispiel 3

[0077] Das in Beispiel 2 erhaltene alternierende N-(2,6-Diethylphenyl)maleimid-Isobuten-Copolymer wurde durch Extrusion durch eine T-Düse bei einer Verarbeitungstemperatur von 285°C unter Verwendung eines biaxialen Extruders mit 20 mm Durchmesser (hergestellt von Toyo Seiki Seisaku-Sho, Ltd., Handelsname: Labo Plastomill) zu einer Folie geformt. Es wurde eine Folie mit einer Dicke von 100 µm erhalten. Die erhaltene Folie wies eine Lichtdurchlässigkeit von 92%, eine Trübung von 0,5%, einen Brechungsindex von 1,55 und eine Abbesche Zahl von 40 auf. Diese Folie wurde in einem Ofen für eine Stunde auf 240°C erwärmt. Die erhaltene Folie wies einen Verzögerungsgrad von 2 nm und eine Tg von 209°C auf.

[0078] Die erhaltene Folie wurde auf die gleiche Weise wie in Beispiel 2 einem monoaxialen Recken mit freier Breite unterworfen, wobei eine gereckte Folie erhalten wurde. Die erhaltene gereckte Folie wies eine negative Doppelbrechung und einen Verzögerungsgrad in der Folienebene, $Re = (n_x - n_y)d$, von -120 nm pro 100 µm Dicke der gereckten Folie auf. Hier bedeutet d die Foliendicke. Die dreidimensionalen Brechungsindizes waren $n_x = 1,53913$, $n_y = 1,5404$ und $n_z = 1,54045$. Damit ist zu erkennen, dass die erhaltene gereckte Folie als Verzögerungsfolie mit negativer Doppelbrechung geeignet war.

Beispiel 4

[0079] Eine gereckte Folie wurde auf die gleiche Weise erhalten wie in Beispiel 2, mit der Ausnahme, dass gegenüber Beispiel 2 die Temperatur zum Recken der Folie auf 230°C anstelle von 220°C geändert wurde. Die erhaltene gereckte Folie wies eine negative Doppelbrechung und einen Verzögerungsgrad in der Folienebene, $Re = (n_x - n_y)d$, von -68 nm pro 100 µm Dicke der gereckten Folie auf. Hier bedeutet d die Foliendicke. Die dreidimensionalen Brechungsindizes waren $n_x = 1,53946$, $n_y = 1,54023$ und $n_z = 1,54031$. Damit ist zu erkennen, dass die erhaltene gereckte Folie als Verzögerungsfolie mit negativer Doppelbrechung geeignet war.

Beispiel 5

[0080] Eine gereckte Folie wurde auf die gleiche Weise erhalten wie in Beispiel 2, mit der Ausnahme, dass gegenüber Beispiel 2 das Recken der Folie

durch gleichzeitiges biaxiales Recken unter Verwendung einer biaxialen Reckmaschine (hergestellt von Imoto Machinery Co., Ltd.) anstelle des monoaxialen Reckens mit freier Breite unter Verwendung einer biaxialen Reckmaschine (hergestellt von Shibayama Scientific Co., Ltd.), durchgeführt wurde, so dass die Folie um +50% in Richtung der x-Achse beziehungsweise in Richtung der y-Achse gereckt wurde. Die erhaltene gereckte Folie wies eine negative Doppelbrechung und einen Verzögerungsgrad außerhalb der Folienebene, $Re = (n_x - n_z)d$, von -120 nm pro 100 μm Dicke der gereckten Folie auf. Hier bedeutet d die Foliendicke. Die dreidimensionalen Brechungsindizes waren $n_x = 1,53990$, $n_y = 1,53986$ und $n_z = 1,54021$. Damit ist zu erkennen, dass die erhaltene gereckte Folie als Verzögerungsfolie mit negativer Doppelbrechung geeignet war.

Beispiel 6

[0081] Eine gereckte Folie wurde auf die gleiche Weise erhalten wie in Beispiel 3, mit der Ausnahme, dass gegenüber Beispiel 3 das Recken der Folie durch gleichzeitiges biaxiales Recken unter Verwendung einer biaxialen Reckmaschine (hergestellt von Imoto Machinery Co., Ltd.) anstelle des monoaxialen Reckens mit freier Breite unter Verwendung der biaxialen Reckmaschine (hergestellt von Shibayama Scientific Co., Ltd.), durchgeführt wurde, so dass die Folie um +50% in Richtung der x-Achse beziehungsweise in Richtung der y-Achse gereckt wurde. Die erhaltene gereckte Folie wies eine negative Doppelbrechung und einen Verzögerungsgrad außerhalb der Folienebene, $Re = (n_x - n_z)d$, von -120 nm pro 100 μm Dicke der gereckten Folie auf. Hier bedeutet d die Foliendicke. Die dreidimensionalen Brechungsindizes waren $n_x = 1,53994$, $n_y = 1,53986$ und $n_z = 1,54026$. Damit ist zu erkennen, dass die erhaltene gereckte Folie als Verzögerungsfolie mit negativer Doppelbrechung geeignet war.

Beispiel 7

[0082] Ein 1-Liter Autoklav wurde mit 400 ml Toluol als Polymerisationslösungsmittel, 0,001 Mol Perbutylneodecanoat als Polymerisationsinitiator, 0,42 Mol N-(2,6-Diisopropylphenyl)maleimid und 4,05 Mol Isobuten beschickt, und das Gemisch wurde der Polymerisationsreaktion unter der Polymerisationsbedingung einer Polymerisationstemperatur von 60°C für eine Polymerisationszeit von 5 Stunden unterworfen, wobei ein alternierendes N-(2,6-Diisopropylphenyl)maleimid-Isobuten-Copolymer erhalten wurde. Das erhaltene alternierende N-(2,6-Diisopropylphenyl)maleimid-Isobuten-Copolymer wies ein Gewichtsmittel des Molekulargewichts (M_w) (reduziert auf Standard-Polystyrol) von 158.000 und ein M_w/M_n von 2,6 auf.

[0083] Eine Lösung, bestehend aus 20 Gew.-% des

erhaltenen alternierenden N-(2,6-Diisopropylphenyl)maleimid-Isobuten-Copolymers und 80 Gew.-% Methylenchlorid, wurde hergestellt und auf eine PET-Folie gegossen. Nach Verdampfen des Methylenchlorids bildete sich eine Folie aus alternierendem N-(2,6-Diisopropylphenyl)maleimid-Isobuten-Copolymer und wurde aus der Lösung erstarrt abgezogen. Nach dem Abziehen wurde die Folie bei 100°C für 4 Stunden und weiterhin während einer Erhöhung der Temperatur von 120°C auf 160°C mit einem Intervall von 10°C für eine Stunde bei der jeweiligen Temperatur getrocknet. Danach wurde die erhaltene Folie im Vakuum bei 180°C für 4 Stunden unter Verwendung eines Vakuumtrockners getrocknet, wobei eine Folie mit einer Dicke von etwa 100 μm erhalten wurde. Die erhaltene Folie wies eine Lichtdurchlässigkeit von 92%, eine Trübung von 0,3%, einen Brechungsindex von 1,55, eine Abbesche Zahl von 42, einen Verzögerungsgrad von 0 nm und eine Tg von 235°C auf.

[0084] Die Folie wurde zu einem Stück mit einer Größe von 5 cm \times 5 cm geschnitten, das dann durch monoaxiales Recken mit freier Breite unter der Bedingung einer Temperatur von 240°C und einer Reckrate von 15 mm/min unter Verwendung einer biaxialen Reckmaschine (hergestellt von Shibayama Scientific Co., Ltd.) um +50% gereckt wurde, wobei eine gereckte Folie erhalten wurde. Die erhaltene gereckte Folie wies eine negative Doppelbrechung und einen Verzögerungsgrad in der Folienebene, $Re = (n_x - n_y)d$, von -130 nm pro 100 μm Dicke der gereckten Folie auf. Hier bedeutet d die Foliendicke. Damit ist zu erkennen, dass die erhaltene gereckte Folie als Verzögerungsfolie mit negativer Doppelbrechung geeignet war.

Vergleichsbeispiel 1

[0085] Ein 1-Liter Autoklav wurde mit 400 ml Toluol als Polymerisationslösungsmittel, 0,001 Mol Perbutylneodecanoat als Polymerisationsinitiator, 0,42 Mol N-Phenylmaleimid und 4,05 Mol Isobuten beschickt, und das Gemisch wurde der Polymerisationsreaktion unter der Polymerisationsbedingung einer Polymerisationstemperatur von 60°C für eine Polymerisationszeit von 5 Stunden unterworfen, wobei ein alternierendes N-Phenylmaleimid-Isobuten-Copolymer erhalten wurde. Das erhaltene alternierende N-Phenylmaleimid-Isobuten-Copolymer wies ein Gewichtsmittel des Molekulargewichts (M_w) (reduziert auf Standard-Polystyrol) von 162.000 und ein M_w/M_n von 2,6 auf.

[0086] Eine Lösung, bestehend aus 20 Gew.-% des erhaltenen alternierenden N-Phenylmaleimid-Isobuten-Copolymers und 80 Gew.-% Methylenchlorid, wurde hergestellt und auf eine PET-Folie gegossen. Nach Verdampfen des Methylenchlorids bildete sich eine Folie aus alternierendem N-Phenylmaleimid-Isobuten-Copolymer und wurde aus der Lösung

erstarrt abgezogen. Nach dem Abziehen wurde die Folie bei 100°C für 4 Stunden und weiterhin während einer Erhöhung der Temperatur von 120°C auf 160°C mit einem Intervall von 10°C für eine Stunde bei der jeweiligen Temperatur getrocknet. Danach wurde die erhaltene Folie im Vakuum bei 180°C für 4 Stunden unter Verwendung eines Vakuumtrockners getrocknet, wobei eine Folie mit einer Dicke von etwa 100 µm erhalten wurde. Die erhaltene Folie wies eine Lichtdurchlässigkeit von 92%, eine Trübung von 0,3%, einen Brechungsindex von 1,55, eine Abbesche Zahl von 42, einen Verzögerungsgrad von 0 nm und eine Tg von 192°C auf.

[0087] Die Folie wurde zu einem Stück mit einer Größe von 5 cm × 5 cm geschnitten, das dann durch monoaxiales Recken mit freier Breite unter der Bedingung einer Temperatur von 210°C und einer Reckrate von 15 mm/min unter Verwendung einer biaxialen Reckmaschine (hergestellt von Shibayama Scientific Co., Ltd.) um +50% gereckt wurde, wobei eine gereckte Folie erhalten wurde. Die erhaltene gereckte Folie wies eine positive Doppelbrechung und einen Verzögerungsgrad in der Folienebene, $Re = (n_x - n_y)d$, von +85 nm pro 100 µm Dicke der gereckten Folie auf. Hier bedeutet d die Foliendicke.

Vergleichsbeispiel 2

[0088] Ein 1-Liter Autoklav wurde mit 400 ml Toluol als Polymerisationslösungsmittel, 0,001 Mol Perbutylneodecanoat als Polymerisationsinitiator, 0,42 Mol N-Methylmaleimid und 4,05 Mol Isobuten beschickt, und das Gemisch wurde der Polymerisationsreaktion unter der Polymerisationsbedingung einer Polymerisationstemperatur von 60°C für eine Polymerisationszeit von 5 Stunden unterworfen, wobei ein alternierendes N-Methylmaleimid-Isobuten-Copolymer erhalten wurde. Das erhaltene alternierende N-Methylmaleimid-Isobuten-Copolymer wies ein Gewichtsmittel des Molekulargewichts (Mw) (reduziert auf Standard-Polystyrol) von 165.000 und ein Mw/Mn von 2,6 auf.

[0089] Eine Lösung, bestehend aus 20 Gew.-% des erhaltenen alternierenden N-Methylmaleimid-Isobuten-Copolymers und 80 Gew.-% Methylenchlorid, wurde hergestellt und auf eine PET-Folie gegossen. Nach Verdampfen des Methylenchlorids bildete sich eine Folie aus alternierendem N-Methylmaleimid-Isobuten-Copolymer und wurde aus der Lösung erstarrt abgezogen. Nach dem Abziehen wurde die Folie bei 100°C für 4 Stunden und weiterhin während einer Erhöhung der Temperatur von 120°C auf 140°C mit einem Intervall von 10°C für eine Stunde bei der jeweiligen Temperatur getrocknet. Danach wurde die erhaltene Folie im Vakuum bei 140°C für 4 Stunden unter Verwendung eines Vakuumtrockners getrocknet, wobei eine Folie mit einer Dicke von etwa 100 µm erhalten wurde. Die erhaltene Folie wies eine Licht-

durchlässigkeit von 92%, eine Trübung von 0,3%, einen Brechungsindex von 1,53, eine Abbesche Zahl von 47, einen Verzögerungsgrad von 0 nm und eine Tg von 159°C auf.

[0090] Die Folie wurde zu einem Stück mit einer Größe von 5 cm × 5 cm geschnitten, das dann durch monoaxiales Recken mit freier Breite unter der Bedingung einer Temperatur von 180°C und einer Reckrate von 15 mm/min unter Verwendung einer biaxialen Reckmaschine (hergestellt von Shibayama Scientific Co., Ltd.) um +50% gereckt wurde, wobei eine gereckte Folie erhalten wurde. Die erhaltene gereckte Folie wies eine positive Doppelbrechung und einen Verzögerungsgrad in der Folienebene, $Re = (n_x - n_y)d$, von +90 nm pro 100 µm Dicke der gereckten Folie auf. Hier bedeutet d die Foliendicke.

Vergleichsbeispiel 3

[0091] Ein 1-Liter Autoklav wurde mit 400 ml Toluol als Polymerisationslösungsmittel, 0,001 Mol Perbutylneodecanoat als Polymerisationsinitiator, 0,42 Mol N-(4-Ethylphenyl)maleimid und 4,05 Mol Isobuten beschickt, und das Gemisch wurde der Polymerisationsreaktion unter der Polymerisationsbedingung einer Polymerisationstemperatur von 60°C für eine Polymerisationszeit von 5 Stunden unterworfen, wobei ein alternierendes N-(4-Ethylphenyl)maleimid-Isobuten-Copolymer erhalten wurde. Das erhaltene alternierende N-(4-Ethylphenyl)maleimid-Isobuten-Copolymer wies ein Gewichtsmittel des Molekulargewichts (Mw) (reduziert auf Standard-Polystyrol) von 155.000 und ein Mw/Mn von 2,6 auf.

[0092] Eine Lösung, bestehend aus 20 Gew.-% des erhaltenen alternierenden N-(4-Ethylphenyl)maleimid-Isobuten-Copolymers und 80 Gew.-% Methylenchlorid, wurde hergestellt und auf eine PET-Folie gegossen. Nach Verdampfen des Methylenchlorids bildete sich eine Folie aus alternierendem N-(4-Ethylphenyl)maleimid-Isobuten-Copolymer und wurde aus der Lösung erstarrt abgezogen. Nach dem Abziehen wurde die Folie bei 100°C für 4 Stunden und weiterhin während einer Erhöhung der Temperatur von 120°C auf 160°C mit einem Intervall von 10°C für eine Stunde bei der jeweiligen Temperatur getrocknet. Danach wurde die erhaltene Folie im Vakuum bei 180°C für 4 Stunden unter Verwendung eines Vakuumtrockners getrocknet, wobei eine Folie mit einer Dicke von etwa 100 µm erhalten wurde.

[0093] Die erhaltene Folie wies eine Lichtdurchlässigkeit von 92%, eine Trübung von 0,3%, einen Brechungsindex von 1,56, eine Abbesche Zahl von 28, einen Verzögerungsgrad von 0 nm und eine Tg von 187°C auf.

[0094] Die Folie wurde zu einem Stück mit einer Größe von 5 cm × 5 cm geschnitten, das dann durch

monoaxiales Recken mit freier Breite unter der Bedingung einer Temperatur von 220°C und einer Reckrate von 15 mm/min unter Verwendung einer biaxialen Reckmaschine (hergestellt von Shibayama Scientific Co., Ltd.) um +50% gereckt wurde, wobei eine gereckte Folie erhalten wurde. Die erhaltene gereckte Folie wies eine positive Doppelbrechung und einen Verzögerungsgrad in der Folienebene, $Re = (n_x - n_y)d$, von +140 nm pro 100 µm Dicke der gereckten Folie auf.

Vergleichsbeispiel 4

[0095] Eine gereckte Folie wurde auf die gleiche Weise erhalten wie in Vergleichsbeispiel 1, mit der Ausnahme, dass gegenüber Vergleichsbeispiel 1 die Temperatur zum Recken der Folie anstelle von 210°C auf 200°C geändert wurde. Die erhaltene gereckte Folie wies eine positive Doppelbrechung und einen Verzögerungsgrad in der Folienebene, $Re = (n_x - n_y)d$, von +65 nm pro 100 µm Dicke der gereckten Folie auf. Hier bedeutet d die Foliendicke. Die Beziehung zwischen n_x , n_y und n_z in den dreidimensionalen Brechungsindizes war $n_x > n_y = n_z$.

Vergleichsbeispiel 6

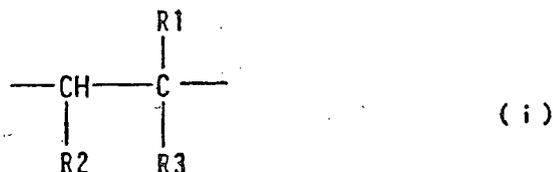
[0096] Eine gereckte Folie wurde auf die gleiche Weise erhalten wie in Vergleichsbeispiel 1, mit der Ausnahme, dass gegenüber Vergleichsbeispiel 1 das Recken der Folie durch gleichzeitiges biaxiales Recken unter Verwendung einer biaxialen Reckmaschine (hergestellt von Imoto Machinery Co., Ltd.) anstelle des monoaxialen Reckens mit freier Breite unter Verwendung einer biaxialen Reckmaschine (hergestellt von Shibayama Scientific Co., Ltd.), durchgeführt wurde, so dass die Folie um +50% in Richtung der x-Achse beziehungsweise in Richtung der y-Achse gereckt wurde, und dass die Temperatur für das Recken der Folie auf 220°C anstelle von 210°C geändert wurde. Die erhaltene Folie wies eine positive Doppelbrechung und einen Verzögerungsgrad in der Folienebene, $Re = (n_x - n_y)d$, von +100 nm pro 100 µm Dicke der gereckten Folie auf. Hier bedeutet d die Foliendicke. Die dreidimensionalen Brechungsindizes waren $n_x = n_y > n_z$.

[0097] Die Erfindung stellt optische Materialien aus transparentem wärmebeständigem Harz mit hervorragender Wärmebeständigkeit und hervorragenden dynamischen Eigenschaften, mit negativer Doppelbrechung, die einen hohen Brechungsindex und eine hohe Abbesche Zahl aufweisen, zur Verfügung, die insbesondere als optische Kompensationselemente, wie Folien, Bahnen und Verzögerungsfolien für LCD-Anzeigeelemente verwendbar sind.

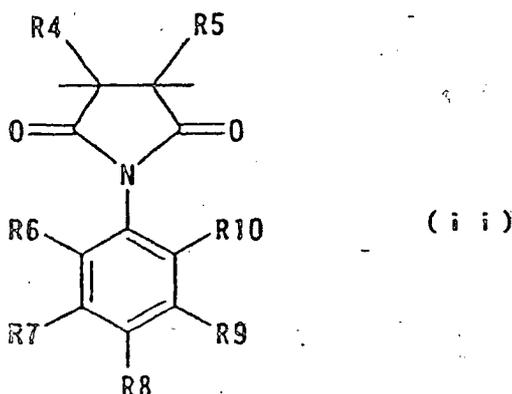
Patentansprüche

1. Optisches Material aus transparentem wärme-

beständigem Harz, umfassend ein Copolymer, das eine Olefinrest-Einheit der folgenden Formel (i):



wobei R1, R2 und R3 jeweils Wasserstoff oder einen Alkylrest mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen bedeuten, und eine N-Phenyl-substituierte Maleimidrest-Einheit der folgenden Formel (ii) umfasst:



wobei R4 und R5 jeweils Wasserstoff oder einen linearen oder verzweigten Alkylrest mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen bedeuten; R7, R8 und R9 jeweils Wasserstoff, ein Element auf Halogenbasis, eine Carbonsäure, einen Carbonsäureester, eine Hydroxylgruppe, eine Cyanogruppe, eine Nitrogruppe oder einen linearen oder verzweigten Alkylrest mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen bedeuten; und R6 und R10 jeweils Wasserstoff, ein Element auf Halogenbasis, eine Carbonsäure, einen Carbonsäureester, eine Hydroxylgruppe, eine Cyanogruppe, eine Nitrogruppe oder einen linearen oder verzweigten Alkylrest mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen bedeuten, und wenn mindestens einer der Reste R6 oder R10 Wasserstoff bedeutet, der andere nicht Wasserstoff sein sollte, sondern ein Element auf Halogenbasis, eine Carbonsäure, einen Carbonsäureester, eine Hydroxylgruppe, eine Cyanogruppe, eine Nitrogruppe oder einen linearen oder verzweigten Alkylrest mit 1 bis 8 Kohlenstoffatomen bedeuten sollte,

wobei das Copolymer ein Gewichtsmittel des Molekulargewichts, reduziert auf Standard-Polystyrol, von 5×10^3 bis 5×10^6 aufweist und das optische Material aus transparentem wärmebeständigem Harz durch Orientierung der Molekülkette des Copolymers negative Doppelbrechung aufweist.

2. Optisches Material aus transparentem wärmebeständigem Harz nach Anspruch 1, wobei das Copolymer, das eine Olefinrest-Einheit der Formel (i) und eine N-Phenyl-substituierte Maleimidrest-Einheit der Formel (ii) umfasst, ein alternierendes Copolymer ist.

3. Optisches Material aus transparentem wärmebeständigem Harz nach Anspruch 1, wobei die Olefinrest-Einheit der Formel (i) eine Rest-Einheit ist, die von Isobuten abgeleitet ist; und der N-Phenyl-substituierte Maleimidrest der Formel (ii) eine Rest-Einheit ist, die von einem oder mehreren aus N-(2-Methylphenyl)maleimid, N-(2,6-Diethylphenyl)maleimid und N-(2,6-Diisopropylphenyl)maleimid ausgewählt ist.

4. Optisches Material aus transparentem wärmebeständigem Harz nach Anspruch 1, wobei das optische Material aus transparentem wärmebeständigem Harz eine Folie oder eine Bahn ist.

5. Optisches Material aus transparentem wärmebeständigem Harz nach Anspruch 1, wobei das optische Material aus transparentem wärmebeständigem Harz eine optische Kompensationsfolie ist.

6. Optisches Material aus transparentem wärmebeständigem Harz nach Anspruch 1, wobei das optische Material aus transparentem wärmebeständigem Harz eine Verzögerungsfolie ist.

7. Optisches Material aus transparentem wärmebeständigem Harz nach Anspruch 1, wobei das optische Material aus transparentem wärmebeständigem Harz eine Folie oder eine Bahn ist, die durch monoaxiales oder multiaxiales Recken eines Copolymers hergestellt wurde, welches die Olefinrest-Einheit der Formel (i) und die N-Phenyl-substituierte Maleimidrest-Einheit der Formel (ii) umfasst und ein Gewichtsmittel des Molekulargewichts, reduziert auf Standard-Polystyrol, von 5×10^3 bis 5×10^6 im Temperaturbereich, bezogen auf eine Glasübergangstemperatur des Copolymers, von [(Glasübergangstemperatur) -20°C] bis [(Glasübergangstemperatur) $+30^\circ\text{C}$] aufweist.

8. Optisches Material aus transparentem wärmebeständigem Harz nach Anspruch 1, wobei das optische Material aus transparentem wärmebeständigem Harz eine Folie oder eine Bahn ist, die durch monoaxiales oder multiaxiales Recken eines Copolymers hergestellt wurden, welches die Olefinrest-Einheit der Formel (i) und die N-Phenyl-substituierte Maleimidrest-Einheit der Formel (ii) umfasst und ein Gewichtsmittel des Molekulargewichts, reduziert auf Standard-Polystyrol, von 5×10^3 bis 5×10^6 im Temperaturbereich, bezogen auf eine Glasübergangstemperatur des Polymers, von [(Glasübergangstemperatur) -20°C] bis [(Glasübergangstemperatur) $+20^\circ\text{C}$] aufweist.

9. Optisches Material aus transparentem wärmebeständigem Harz nach Anspruch 1, wobei das optische Material aus transparentem wärmebeständigem Harz eine Verzögerungsfolie ist, die negative Doppelbrechung aufweist und ein Verhältnis der dreidimensionalen Brechungsindizes von $n_z \geq n_y > n_x$ für

den Fall aufweist, dass, wenn die Reckrichtung eine x-Achse in der Folienebene bildet, die senkrechte Richtung in der Folienebene eine y-Achse bildet und die vertikale Richtung außerhalb der Folienebene eine z-Achse bildet, n_x für einen Brechungsindex in Richtung der x-Achse steht, n_y für einen Brechungsindex in Richtung der y-Achse steht und n_z für einen Brechungsindex in Richtung der z-Achse steht.

10. Optisches Material aus transparentem wärmebeständigem Harz nach Anspruch 1, wobei das optische Material aus transparentem wärmebeständigem Harz eine Folie mit einer negativen Doppelbrechung ist, die durch Formen eines Copolymers, welches die Olefinrest-Einheit der Formel (i) und die N-Phenyl-substituierte Maleimidrest-Einheit der Formel (ii) umfasst und ein Gewichtsmittel des Molekulargewichts, reduziert auf Standard-Polystyrol, von 5×10^3 bis 5×10^6 aufweist, zu einer Folie und weiter monoaxiales Recken des Copolymers im Temperaturbereich, bezogen auf eine Glasübergangstemperatur des Copolymers, von [(Glasübergangstemperatur) -20°C] bis [(Glasübergangstemperatur) $+30^\circ\text{C}$] hergestellt wird, wobei die Folie eine Verzögerungsfolie mit einem Verhältnis der dreidimensionalen Brechungsindizes nach monoaxialem Recken von $n_z \geq n_y > n_x$ für den Fall ist, dass, wenn die Reckrichtung eine x-Achse in der Folienebene bildet, die senkrechte Richtung in der Folienebene eine y-Achse bildet und die vertikale Richtung außerhalb der Folienebene eine z-Achse bildet, n_x für einen Brechungsindex in Richtung der x-Achse steht, n_y für einen Brechungsindex in Richtung der y-Achse steht und n_z für einen Brechungsindex in Richtung der z-Achse steht.

11. Optisches Material aus transparentem wärmebeständigem Harz nach Anspruch 1, wobei das optische Material aus transparentem wärmebeständigem Harz eine Verzögerungsfolie ist, die negative Doppelbrechung aufweist und ein Verhältnis von $n_z > n_y \geq n_x$ oder $n_z > n_x \geq n_y$ für den Fall aufweist, dass, wenn die biaxialen Reckrichtungen eine x-Achse in der Folienebene und eine y-Achse in der Folienebene bilden und die vertikale Richtung außerhalb der Folienebene eine z-Achse bildet, n_x für einen Brechungsindex in Richtung der x-Achse steht, n_y für einen Brechungsindex in Richtung der y-Achse steht und n_z für einen Brechungsindex in Richtung der z-Achse steht.

12. Optisches Material aus transparentem wärmebeständigem Harz nach Anspruch 1, wobei das optische Material aus transparentem wärmebeständigem Harz eine Folie mit negativer Doppelbrechung ist, die durch Formen eines Copolymers, welches die Olefinrest-Einheit der Formel (i) und die N-Phenyl-substituierte Maleimidrest-Einheit der Formel (ii) umfasst und ein Gewichtsmittel des Molekulargewichts, reduziert auf Standard-Polystyrol, von 5×10^3 bis 5×10^6 aufweist, zu einer Folie und weiter biaxia-

les Recken des Copolymers im Temperaturbereich, bezogen auf eine Glasübergangstemperatur des Copolymers, von [(Glasübergangstemperatur) -20°C] bis [(Glasübergangstemperatur) $+30^{\circ}\text{C}$] hergestellt wird, wobei die Folie eine Verzögerungsfolie mit einem Verhältnis der dreidimensionalen Brechungsindizes nach dem biaxialen Recken von $n_z > n_y \geq n_x$ oder $n_z > n_x \geq n_y$ für den Fall ist, dass, wenn die biaxialen Reckrichtungen eine x-Achse in der Folienebene und eine y-Achse in der Folienebene bilden, und die vertikale Richtung außerhalb der Folienebene eine z-Achse bildet, n_x für einen Brechungsindex in Richtung der x-Achse steht, n_y für einen Brechungsindex in Richtung der y-Achse steht und n_z für einen Brechungsindex in Richtung der z-Achse steht.

13. Optisches Material aus transparentem wärmebeständigem Harz nach Anspruch 10, wobei das optische Material aus transparentem wärmebeständigem Harz eine Verzögerungsfolie ist, die durch monoaxiales Recken des Copolymers im Temperaturbereich, bezogen auf eine Glasübergangstemperatur des Copolymers, von [(Glasübergangstemperatur) -20°C] bis [(Glasübergangstemperatur) $+20^{\circ}\text{C}$] hergestellt wird.

14. Optisches Material aus transparentem wärmebeständigem Harz nach Anspruch 12, wobei das optische Material aus transparentem wärmebeständigem Harz eine Verzögerungsfolie ist, die durch biaxiales Recken des Copolymers im Temperaturbereich, bezogen auf eine Glasübergangstemperatur des Copolymers, von [(Glasübergangstemperatur) -20°C] bis [(Glasübergangstemperatur) $+20^{\circ}\text{C}$] hergestellt wird.

15. Optisches Material aus transparentem wärmebeständigem Harz nach Anspruch 10, wobei das optische Material aus transparentem wärmebeständigem Harz eine Folie ist, bei der die Copolymerfolie vor dem Recken durch Gießformen in Lösung oder Strangpressen hergestellt wird.

16. Optisches Material aus transparentem wärmebeständigem Harz nach Anspruch 12, wobei das optische Material aus transparentem wärmebeständigem Harz eine Folie ist, bei der die Copolymerfolie vor dem Recken durch Gießformen in Lösung oder Strangpressen hergestellt wird.

17. Optisches Material aus transparentem wärmebeständigem Harz nach Anspruch 13, wobei das optische Material aus transparentem wärmebeständigem Harz eine Folie ist, bei der die Copolymerfolie vor dem Recken durch Gießformen in Lösung oder Strangpressen hergestellt wird.

18. Optisches Material aus transparentem wärmebeständigem Harz nach Anspruch 14, wobei das optische Material aus transparentem wärmebestän-

digem Harz eine Folie ist, bei der die Copolymerfolie vor dem Recken durch Gießformen in Lösung oder Strangpressen hergestellt wird.

19. Optisches Kompensationselement für ein Flüssigkristallanzeigeelement, umfassend die Verwendung des optischen Materials aus transparentem wärmebeständigem Harz nach Anspruch 1.

Es folgen 2 Blatt Zeichnungen

Anhängende Zeichnungen

FIG. 1

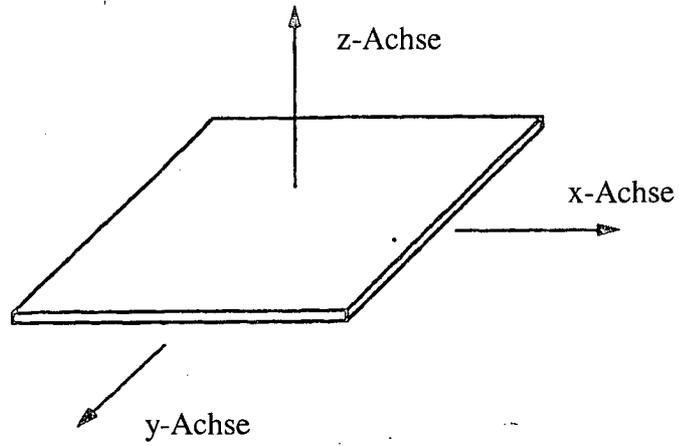


FIG. 2

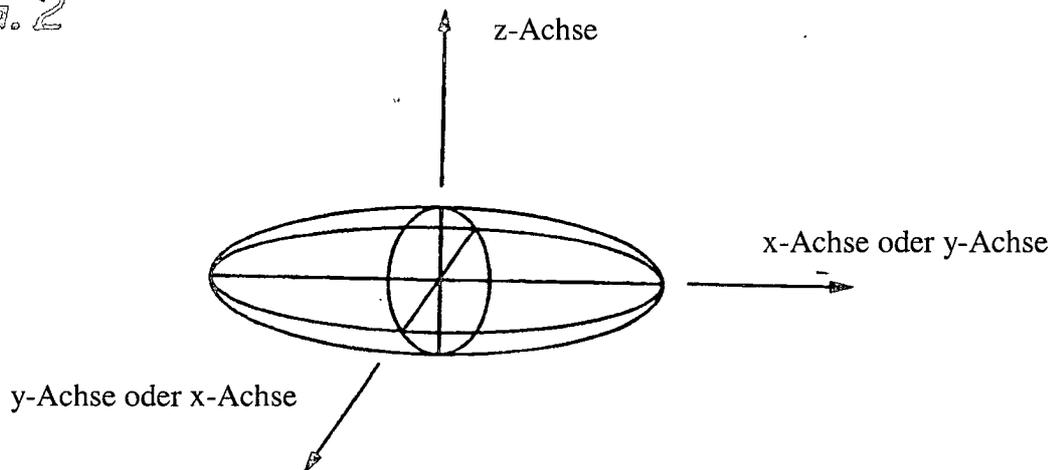


FIG. 3

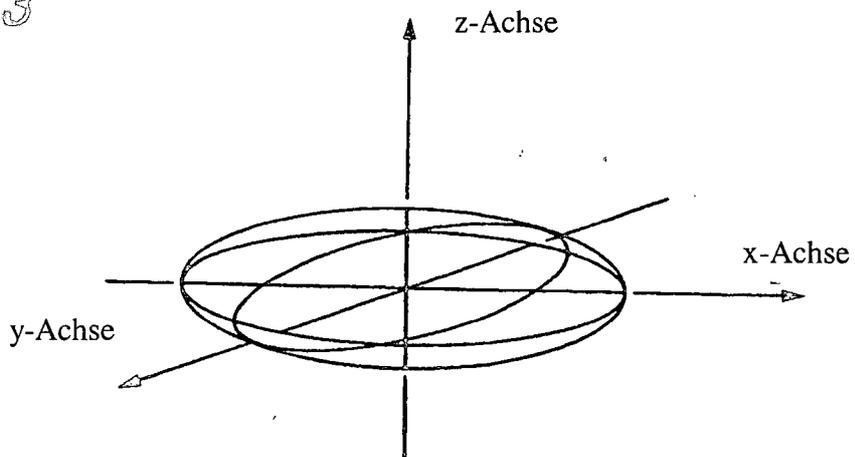


FIG. 4

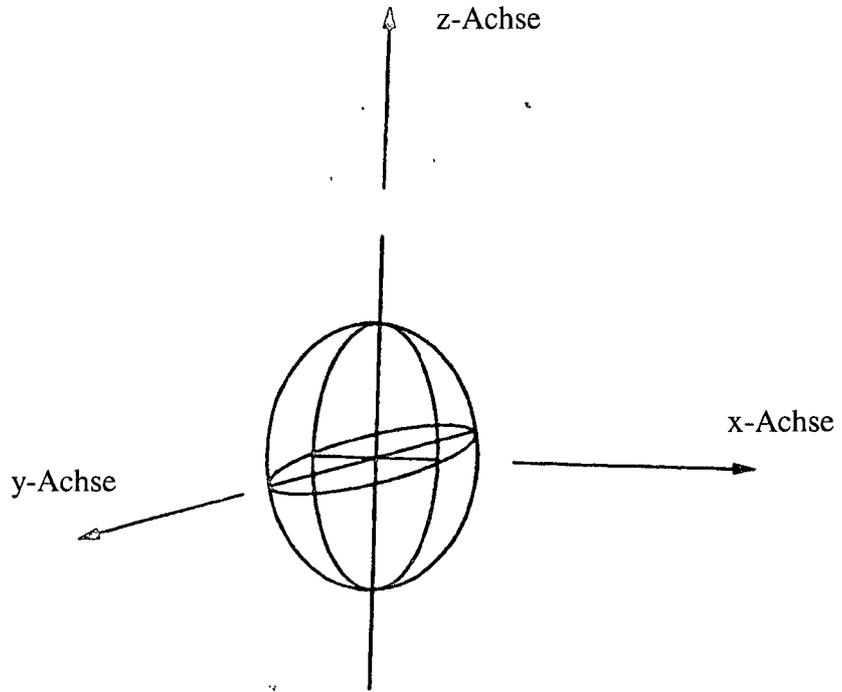


FIG. 5

