

	(19) 대한민국특허청(KR) (12) 공개특허공보(A)	(11) 공개번호 10-2018-0086271 (43) 공개일자 2018년07월30일
(51) 국제특허분류(Int. Cl.) <i>G02B 5/30</i> (2006.01) <i>B32B 27/30</i> (2006.01) <i>B32B 27/36</i> (2006.01) <i>C08G 63/189</i> (2006.01) <i>C08G 63/85</i> (2006.01) <i>C08J 5/18</i> (2006.01) <i>C08K 5/56</i> (2006.01) <i>C08L 67/03</i> (2006.01) <i>C08L 67/07</i> (2006.01)		(71) 출원인 쓰리엠 이노베이티브 프로퍼티즈 컴파니 미국 55133-3427 미네소타주 세인트 폴 피.오.박스 33427 쓰리엠 센터
(52) CPC특허분류 <i>G02B 5/3083</i> (2013.01) <i>B32B 27/308</i> (2013.01)		(72) 발명자 존슨 스티븐 에이 미국 55133-3427 미네소타주 세인트 폴 포스트 오피스 박스 33427 쓰리엠 센터
(21) 출원번호 10-2018-7020076		파빅 라이언 티 미국 55133-3427 미네소타주 세인트 폴 포스트 오피스 박스 33427 쓰리엠 센터 (뒷면에 계속)
(22) 출원일자(국제) 2016년12월14일 심사청구일자 없음		(74) 대리인 양영준, 조윤성, 김영
(85) 번역문제출일자 2018년07월13일		
(86) 국제출원번호 PCT/US2016/066440		
(87) 국제공개번호 WO 2017/106223 국제공개일자 2017년06월22일		
(30) 우선권주장 14/974,198 2015년12월18일 미국(US)		

전체 청구항 수 : 총 20 항

(54) 발명의 명칭 **저탁도를 갖는 복굴절 폴리에스테르 필름**

(57) 요약

복굴절 폴리에스테르 필름은 나프탈레이트 단위, 에틸렌 단위, 티타네이트 화합물, 평면형 분지화 단위(planar branching unit), 및 1 내지 80 ppm의 금속 함량을 포함한다. 복굴절 폴리에스테르 필름은 633 nm에서의 평면 외 복굴절이 적어도 0.1이다.

(52) CPC특허분류

B32B 27/36 (2013.01)
C08G 63/189 (2013.01)
C08G 63/85 (2013.01)
C08J 5/18 (2013.01)
C08K 5/56 (2013.01)
C08L 67/03 (2013.01)
C08L 67/07 (2013.01)

(72) 발명자

키벨 에드워드 제이

미국 55133-3427 미네소타주 세인트 폴 포스트 오피스 박스 33427 쓰리엠 센터

호 빅터

미국 55133-3427 미네소타주 세인트 폴 포스트 오피스 박스 33427 쓰리엠 센터

벤딩 벤자민 제이

미국 55133-3427 미네소타주 세인트 폴 포스트 오피스 박스 33427 쓰리엠 센터

크로헤 크리스토퍼 더블유 에이

미국 55133-3427 미네소타주 세인트 폴 포스트 오피스 박스 33427 쓰리엠 센터

명세서

청구범위

청구항 1

나프탈레이트 단위;

에틸렌 단위;

티타네이트 화합물;

평면형 분지화 단위(planar branching unit) - 평면형 분지화 단위는 나프탈레이트 단위 및 분지화 단위의 총 몰%를 기준으로 0.1 내지 2 몰%임 -;

1 내지 80 ppm의 금속 함량; 및

633 nm에서 적어도 0.1의 평면외 복굴절(out-of-plane birefringence)을 포함하는 복굴절 폴리에스테르 필름.

청구항 2

제1항에 있어서, 분지형 또는 환형 C4-C10 알킬 단위를 추가로 포함하고, 분지형 또는 환형 C4-C10 알킬 단위는 에틸렌 단위 및 분지형 또는 환형 C4-C10 알킬 단위의 총 몰%를 기준으로 2 몰% 미만의 양으로 존재하는 필름.

청구항 3

제1항에 있어서, 금속 함량은 3 내지 30 ppm의 범위인 필름.

청구항 4

제1항에 있어서, 티타네이트 화합물은 테트라부틸 티타네이트를 포함하는 필름.

청구항 5

제1항에 있어서, 평면형 분지화 단위는 트라이메산 또는 트라이멜리트산으로부터 유도되는 필름.

청구항 6

제1항에 있어서, 섭씨 280도 및 10 sec^{-1} 의 전단율에서의 Tan 델타 값이 3 내지 8의 범위인 필름.

청구항 7

633 nm에서의 평면외 복굴절이 적어도 0.10인 제1 복굴절 폴리에스테르 층 - 폴리에스테르 층은

나프탈레이트 단위;

에틸렌 단위;

티타네이트 화합물;

평면형 분지화 단위 - 평면형 분지화 단위는 나프탈레이트 단위 및 분지화 단위의 총 몰%를 기준으로 0.1 내지 2 몰%임 -;

1 내지 80 ppm의 금속 함량을 포함함 -; 및

제1 복굴절 폴리에스테르 층보다 더 낮은 복굴절을 갖고 제1 복굴절 폴리에스테르 층 상에 배치된 제2 중합체 층을 포함하는 다층 필름.

청구항 8

제7항에 있어서, 제2 중합체 층은 아크릴레이트 단위를 포함하는 다층 필름.

청구항 9

제7항에 있어서, 제2 중합체 층은 등방성인 다층 필름.

청구항 10

제7항에 있어서, 제1 복굴절 폴리에스테르 층은 633 nm에서의 평면외 복굴절이 적어도 0.20인 다층 필름.

청구항 11

제7항에 있어서, 제1 복굴절 폴리에스테르 층은 분지형 또는 환형 C4-C10 알킬 단위를 추가로 포함하고, 분지형 또는 환형 C4-C10 알킬 단위는 에틸렌 단위 및 분지형 또는 환형 C4-C10 알킬 단위의 총 몰%를 기준으로 2 몰% 미만의 양으로 존재하는 다층 필름.

청구항 12

제7항에 있어서, 제1 복굴절 폴리에스테르 층의 금속 함량은 3 내지 30 ppm의 범위인 다층 필름.

청구항 13

제7항에 있어서, 티타네이트 화합물은 테트라부틸 티타네이트를 포함하는 다층 필름.

청구항 14

제7항에 있어서, 평면형 분지화 단위는 트라이메산 또는 트라이멜리트산으로부터 유도되는 다층 필름.

청구항 15

제7항에 있어서, 제1 복굴절 폴리에스테르 층 및 제2 중합체 층은 각각 섭씨 280도 및 10 sec^{-1} 의 전단율에서의 Tan 델타 값이 서로에서 3 이내에 있는 다층 필름.

청구항 16

복수의 제1 복굴절 폴리에스테르 층 - 각각은 633 nm에서의 평면외 복굴절이 적어도 0.10이고, 금속 함량이 100 ppm 미만이고, 섭씨 280도 및 10 sec^{-1} 의 전단율에서의 제1 Tan 델타 값을 가짐 -; 및

제1 복굴절 폴리에스테르 층들 사이에서 교번하는 복수의 제2 등방성 아크릴레이트 층 - 각각의 제2 등방성 아크릴레이트 층은 섭씨 280도 및 10 sec^{-1} 의 전단율에서의 제2 Tan 델타 값을 가짐 - 을 포함하고,

제1 Tan 델타 값은 제2 Tan 델타 값의 30% 이하 이내에 있는 다층 광학 필름.

청구항 17

제16항에 있어서, 입사광의 적어도 99.0%를 반사하는 다층 필름.

청구항 18

제16항에 있어서, 제1 Tan 델타 값은 제2 Tan 델타 값에서 2 단위 이하 이내에 있는 다층 필름.

청구항 19

제16항에 있어서, 제1 복굴절 폴리에스테르 층의 금속 함량은 3 내지 30 ppm의 범위인 다층 필름.

청구항 20

제16항에 있어서, 제1 복굴절 폴리에스테르 층은 633 nm에서의 평면외 복굴절이 적어도 0.20이고, 제2 등방성 아크릴레이트 층은 평면외 굴절률이 제1 복굴절 폴리에스테르 층의 평면외 굴절률에서 0.05 이내에 있는 다층 필름.

발명의 설명

기술분야

배경기술

- [0001] 중합체 필름은 매우 다양한 응용에 사용된다. 다층 중합체 광학 필름은 거울 및 편광기로서 사용되는 것을 비롯하여 다양한 목적을 위하여 널리 사용된다. 이들 필름은 흔히 경량이고 파손에 대한 저항력을 가지면서 반사율이 매우 높다. 이들 필름에 대한 예시적인 응용에는 휴대폰, 휴대용 개인 정보 단말기, 컴퓨터, 텔레비전 및 기타 장치에 위치한 액정 디스플레이 (LCD)를 비롯한 소형 전자 디스플레이가 포함된다.
- [0002] 편광기 또는 거울 필름을 생성하는 데 있어서 유용한 한 가지 유형의 중합체는 폴리에스테르이다. 폴리에스테르 기재 편광기의 한 예는 상이한 조성의 폴리에스테르 층들의 스택(stack)을 포함한다. 폴리에스테르는 하나 이상의 상이한 다이카르복실레이트 단량체 (예컨대, 2개 이상의 카르복실산 또는 카르복실산 에스테르 작용기를 가진 화합물)와 하나 이상의 상이한 글리콜 단량체 (예컨대, 2개 이상의 하이드록시 작용기를 가진 화합물)의 반응에 의해 제조된다. 다층 광학 필름에 유용한 폴리에스테르의 한 예는, 예를 들어 나프탈렌 다이카르복실산 (또는 다이카르복실산 에스테르)과 에틸렌 글리콜의 반응에 의해 제조될 수 있는 폴리에틸렌 나프탈레이트 (PEN)이다.

발명의 내용

- [0003] 본 발명은 저광흡수율(low optical absorption), 고복굴절(high birefringence) 및 저탁도(low haze)를 나타내는 복굴절 폴리에스테르 필름에 관한 것이다. 이들 복굴절 폴리에스테르 필름은 또한 다층 필름으로의 공압출을 위한 다른 중합체 필름 층과 유사할 수 있는 고 용융 탄성(high melt elasticity)을 나타낼 수 있다. 복굴절 폴리에스테르 필름은 나프탈레이트 단위, 에틸렌 단위, 티타네이트 화합물, 평면형 분지화 단위(planar branching unit), 및 1 내지 80 ppm의 금속 함량을 포함할 수 있다. 복굴절 폴리에스테르 필름은 633 nm에서의 평면외 복굴절(out-of-plane birefringence)이 적어도 0.1이고, Tan 델타 값이 3 내지 8의 범위이다.
- [0004] 일 태양에서, 복굴절 폴리에스테르 필름은 나프탈레이트 단위, 에틸렌 단위, 티타네이트 화합물, 평면형 분지화 단위 - 평면형 분지화 단위는 나프탈레이트 단위 및 분지화 단위의 총 몰%를 기준으로 0.1 내지 2 몰%임 -, 및 1 내지 80 ppm의 금속 함량을 포함한다. 복굴절 폴리에스테르 필름은 633 nm에서의 평면외 복굴절이 적어도 0.1이다.
- [0005] 다른 태양에서, 다층 필름은 633 nm에서의 평면외 복굴절이 적어도 0.10인 제1 복굴절 폴리에스테르 층 및 제1 복굴절 폴리에스테르 층보다 더 낮은 복굴절을 갖고 제1 복굴절 폴리에스테르 층 상에 배치된 제2 중합체 층을 포함한다. 폴리에스테르 층은 나프탈레이트 단위, 에틸렌 단위, 티타네이트 화합물, 평면형 분지화 단위 - 평면형 분지화 단위는 나프탈레이트 단위 및 분지화 단위의 총 몰%를 기준으로 0.1 내지 2 몰%임 -, 및 1 내지 80 ppm의 금속 함량을 포함한다.
- [0006] 다른 태양에서, 다층 광학 필름은 복수의 제1 복굴절 폴리에스테르 층 - 각각은 633 nm에서의 평면외 복굴절이 적어도 0.10이고, 금속 함량이 100 ppm 미만이고, 섭씨 280도 및 10 sec⁻¹의 전단율에서의 제1 Tan 델타 값을 가짐 -, 및 제1 복굴절 폴리에스테르 층들 사이에서 교번하는 복수의 제2 등방성 아크릴레이트 층 - 각각의 제2 등방성 아크릴레이트 층은 섭씨 280도 및 10 sec⁻¹의 전단율에서의 제2 Tan 델타 값을 가짐 - 을 포함한다. 제1 Tan 델타 값은 제2 Tan 델타 값의 30% 이하 이내에 있다.
- [0007] 하기의 상세한 설명을 읽음으로써 이들 및 다양한 기타 특징 및 이점이 명백해질 것이다.

발명을 실시하기 위한 구체적인 내용

- [0008] 이하의 상세한 설명에서, 본 명세서의 일부를 형성하고 예시로서 몇몇 특정 실시 형태가 도시된 첨부 도면을 참조한다. 다른 실시 형태가 고려되며 본 발명의 범주 또는 사상으로부터 벗어남이 없이 이루어질 수 있다는 것이 이해되어야 한다. 따라서, 하기의 상세한 설명은 제한적 의미로 해석되어서는 안 된다.
- [0009] 본 명세서에서 사용되는 모든 과학 기술 용어는 달리 명시되지 않는 한, 당업계에서 통상적으로 사용되는 의미를 갖는다. 본 명세서에 제공된 정의는 본 명세서에 빈번하게 사용되는 소정 용어의 이해를 용이하게 하기 위한 것이며 본 발명의 범주를 제한하고자 하는 것은 아니다.

- [0010] 달리 나타내지 않는 한, 본 명세서 및 청구범위에 사용되는 특징부 크기, 양 및 물리적 특성을 표현하는 모든 수치는 모든 경우에 용어 "약"에 의해 수식되는 것으로 이해되어야 한다. 따라서, 반대로 지시되지 않는 한, 이어지는 명세서 및 첨부된 청구범위에 기술된 수치적 파라미터는 본 명세서에 개시된 교시를 이용하는 당업자가 얻고자 하는 특성에 따라 변할 수 있는 근사치이다.
- [0011] 종점(endpoint)에 의한 수치 범위의 언급은 그 범위 내에 포함되는 모든 수 (예를 들어, 1 내지 5는 1, 1.5, 2, 2.75, 3, 3.80, 4 및 5를 포함함)와 그 범위 내의 임의의 범위를 포함한다.
- [0012] 본 명세서 및 첨부된 청구범위에 사용되는 바와 같이, 단수 형태 ("a", "an" 및 "the")는, 그 내용이 명백하게 달리 나타내지 않는 한, 복수의 지시 대상을 갖는 실시 형태를 포함한다.
- [0013] 본 명세서 및 첨부된 청구범위에 사용되는 바와 같이, 용어 "또는"은 일반적으로, 그 내용이 명백하게 달리 나타내지 않는 한, 그의 의미에 "및/또는"을 포함하는 것으로 이용된다.
- [0014] 본 명세서에 사용되는 바와 같이, "갖는다", "갖는", "함유하다", "함유하는", "포함하다", "포함하는" 등은 그의 개방형 의미로 사용되며, 일반적으로 "포함하지만 이로 한정되지 않는"을 의미한다. "~로 본질적으로 이루어진", "~로 이루어진" 등은 "포함하는" 등에 포괄됨이 이해될 것이다.
- [0015] 달리 나타내지 않는 한, "굴절 지수", "굴절률", "지수", 또는 "RI"는, 재료의 평면 내에서 633 nm의 수직 또는 근수직 (예를 들어, 8도 이하의 오프셋(off-set)) 입사광에 대한 재료의 굴절률을 지칭한다.
- [0016] "복굴절성"은 직교하는 x, y 및 z 방향의 굴절률들이 모두 동일하지는 않음을 의미한다. 본 명세서에서 설명되는 중합체 층의 경우, 층들은, x 및 y축이 층의 평면 내에 있고 z축이 층의 평면에 수직이고 전형적으로 층의 두께 또는 높이에 대응하도록 선택된다. 복굴절률 값은, 달리 나타내지 않는 한, 633 nm의 법선 입사광에 대하여 기록된다.
- [0017] "고굴절률" 및 "저굴절률"은 상대적인 용어이며; 두 층을 관심 평면내 방향 둘 모두에서 비교할 때, 더 큰 평균 평면내 굴절률을 갖는 층이 고굴절률 층이고, 더 낮은 평균 평면내 굴절률을 갖는 층이 저굴절률 층이다.
- [0018] "중합체"는, 달리 나타내지 않는 한, 중합체 및 공중합체 (즉, 예를 들어, 삼원공중합체를 비롯한, 둘 이상의 단량체 또는 공단량체로부터 형성된 중합체), 및 예를 들어, 에스테르 교환(transesterification)을 비롯한, 예를 들어, 공압출 또는 반응에 의해 혼화성 블렌드로 형성될 수 있는 공중합체 또는 중합체를 지칭한다. 달리 나타내지 않는 한, 블록, 랜덤, 그래프트, 및 교번 중합체(alternating polymer)가 포함된다.
- [0019] "폴리에스테르"는 중합체 주쇄 내에 에스테르 작용기를 함유하는 중합체를 지칭한다. 코폴리에스테르는 용어 "폴리에스테르"에 포함된다.
- [0020] "Tan 델타" 값은 점성 모듈러스 (G') 대 탄성 모듈러스 (G'')의 비이고, 중합체의 점탄성을 지칭하며, 더 낮은 Tan 델타 값은 더 높은 탄성 재료를 나타낸다. 본 명세서에 보고되어 있거나 언급된 Tan 델타 값은 섭씨 280도에서 10 sec^{-1} 의 전단율에서 아레스 플레이트-온-플레이트 레오미터(Ares Plate-on-Plate rheometer) (미국 텔라웨어주 뉴 캐슬 소재의 티에이 인스트루먼트(TA Instruments)로부터 구매가능함)에 의해 결정된다.
- [0021] 본 발명은 저광흡수율, 고복굴절 및 저탁도를 나타내는 복굴절 폴리에스테르 필름에 관한 것이다. 이들 복굴절 폴리에스테르 필름은 또한 다층 필름으로의 공압출을 위한 다른 중합체 필름 층과 유사할 수 있는 고 용융 탄성을 나타낼 수 있다. 이들 복굴절 폴리에스테르 필름은 100 ppm 미만의 금속 또는 80 ppm 미만의 금속 또는 30 ppm 미만의 금속과 같은 낮은 금속 함량을 가질 수 있다. 복굴절 폴리에스테르 필름은 나프탈레이트 단위, 에틸렌 단위, 티타네이트 화합물, 및 평면형 분지화 단위를 포함할 수 있다. 복굴절 폴리에스테르 필름은 평면외 복굴절이 적어도 0.1이고, Tan 델타 값이 3 내지 8의 범위이다. 폴리에틸렌 나프탈레이트 (PEN)는 다층 필름 구조물에서 이용되는 다른 중합체 (예컨대, 아크릴레이트 또는 올레핀)보다 수 자리(orders of magnitude) 더 높은 흡수율을 갖는 것으로 알려져 있다. PEN은 또한 다층 필름 구조물에서 이용되는 다른 중합체 (예컨대, 아크릴레이트 또는 올레핀)와 상이한 용융 탄성을 갖는 것으로 알려져 있다. 이들 레올로지 차이는, 특히 다층 필름 구조물의 횡방향 또는 크로스-웹 방향에서 층 제어 및 균일성 문제를 초래하는 경향이 있다. 본 명세서는 PEN 중합체 및 그로부터 제조되는 필름의 물품을 기재하며, 상기 물품은 여전히 다층 필름 응용에 요구되는 높은 수준의 복굴절을 제공하면서도, 그러나 또한 이러한 성능에, 높은 % 투과율 (저흡수율), 저탁도, 및 고 용융 탄성의 이전에는 실현되지 않은 성능 조합을 함께 제공한다. 본 발명은 그렇게 제한되지 않지만, 본 발명의 다양한 태양에 대한 이해는 이하에 제공된 예들의 논의를 통해 얻어질 것이다.

- [0022] 복굴절 폴리에스테르 필름은 나프탈레이트 단위, 에틸렌 단위, 티타네이트 화합물, 평면형 분지화 단위 - 평면형 분지화 단위는 나프탈레이트 단위 및 분지화 단위의 총 몰%를 기준으로 0.1 내지 2 몰%임 -, 및 1 내지 80 ppm의 금속 함량을 포함한다. 복굴절 폴리에스테르 필름은 633 nm에서의 평면의 복굴절이 적어도 0.1 또는 적어도 0.15 또는 적어도 0.2이다.
- [0023] 복굴절 폴리에스테르 필름은 낮은 금속 함량을 나타낸다. 복굴절 폴리에스테르 필름은 100 ppm 미만, 또는 80 ppm 미만, 또는 30 ppm 미만, 또는 10 ppm 미만, 또는 5 ppm 미만의 총 금속 함량을 나타낼 수 있다. 복굴절 폴리에스테르 필름은 1 내지 100 ppm 범위, 또는 1 내지 80 ppm 범위, 또는 1 내지 30 ppm 범위, 또는 1 내지 10 ppm 범위, 또는 1 내지 5 ppm 범위의 총 금속 함량을 나타낼 수 있다. 복굴절 폴리에스테르 필름은 4 ppm, 또는 3 ppm, 또는 2 ppm 또는 1 ppm의 총 금속 함량을 나타낼 수 있다. 복굴절 폴리에스테르 필름, 그리고 특히 폴리에틸렌 나프탈레이트는 낮은 금속 함량으로부터 이익을 얻는다. 폴리에스테르 필름 내의 금속의 양을 감소시킴으로써 광흡수를 및 탁도 중 하나 또는 둘 모두가 감소되는 것으로 여겨진다.
- [0024] 많은 실시 형태에서, 금속 함량은 티타네이트 화합물 또는 티타늄을 포함한다. 일부 실시 형태에서, 금속 함량은 주로, 지속가능하게, 또는 단지 티타네이트 화합물 또는 티타늄이다. 티타네이트 화합물은 폴리에스테르의 생성을 위한 중합 촉매로서 이용될 수 있다. 임의의 유용한 티타네이트 화합물이 이용될 수 있다. 티타네이트 화합물은 티타늄 알콕사이드일 수 있다. 티타늄 화합물 또는 티타늄 알콕사이드의 예에는 테트라-n-프로필 티타네이트, 테트라-i-프로필 티타네이트, 테트라-n-부틸 티타네이트, 테트라-n-부틸 티타네이트 사량체, 테트라-t-부틸 티타네이트, 테트라사이클로헥실 티타네이트, 테트라페닐 티타네이트, 및 테트라벤질 티타네이트가 포함된다. 한 가지 유용한 티타네이트 화합물은 테트라-n-부틸 티타네이트 (TBT)이다.
- [0025] 폴리에스테르 중합체 물질은 전체 조성, 즉 50 몰% 카르복실레이트 또는 산 단위와 50 몰% 글리콜 단위 또는 다이올 단위로부터 유도되는 100 몰% 단위에 대하여 본 명세서에서 기재될 수 있다. 폴리에스테르 중합체 물질은 또한 카르복실레이트 또는 산 하위단위의 몰% 및 글리콜 또는 다이올 하위단위의 몰%에 대하여 본 명세서에서 기재될 수 있다 (즉, 코폴리에스테르의 제조에서 100 몰%의 카르복실레이트 또는 산 하위단위가 100 몰%의 글리콜 또는 다이올 하위단위와 반응된다).
- [0026] 폴리에스테르는 일반적으로 나프탈렌 다이카르복실산 (또는 나프탈렌 다이카르복실산 에스테르)과 에틸렌 글리콜, 및 평면형 분지화 단위에 기여하는 적어도 하나의 추가의 공단량체의 반응에 의해 제조된다. 일부 실시 형태에서, 폴리에스테르는 일반적으로 나프탈렌 다이카르복실산 (또는 나프탈렌 다이카르복실산 에스테르)과 에틸렌 글리콜, 및 분지형 또는 환형 C4-C10 알킬 단위에 기여하는 적어도 하나의 추가의 공단량체의 반응에 의해 제조된다. 추가의 실시 형태에서, 폴리에스테르는 일반적으로 나프탈렌 다이카르복실산 (또는 나프탈렌 다이카르복실산 에스테르)과 에틸렌 글리콜, 및 적어도, 평면형 분지화 단위에 기여하는 공단량체 및 분지형 또는 환형 C4-C10 알킬 단위에 기여하는 공단량체의 반응에 의해 제조된다.
- [0027] 폴리에스테르의 나프탈레이트 하위단위를 형성하는 데 사용하기에 적합한 나프탈렌 카르복실레이트 단량체 분자는 2개 이상의 카르복실산 또는 카르복실산 에스테르 작용기를 갖는 나프탈렌 카르복실레이트 단량체를 포함한다. 이러한 나프탈렌 카르복실레이트 단량체는 나프탈렌 다이카르복실산, 예컨대 2,6-나프탈렌 다이카르복실산 단량체 및 그의 이성질체를 포함할 수 있다. 이러한 나프탈렌 카르복실레이트 단량체는 나프탈렌 다이카르복실산 에스테르, 예컨대 2,6-나프탈렌 다이카르복실산 에스테르 단량체 및 그의 이성질체를 포함할 수 있다.
- [0028] 2,6-나프탈렌 다이카르복실산 (또는 2,6-나프탈렌 다이카르복실산 에스테르) 단량체 및/또는 그의 이성질체는 카르복실레이트 하위단위의 95 내지 100 몰%가 나프탈레이트 하위단위로 구성되도록 하는 농도로 사용된다. 바람직하게는, 카르복실레이트 하위단위의 적어도 96, 97, 98, 99, 99.25, 99.5 또는 99.75 몰%가 나프탈레이트 하위단위로 구성된다.
- [0029] 복굴절 폴리에스테르 층 또는 필름은 평면형 분지화 단위를 포함할 수 있다. 평면형 분지화 단위는 복굴절 폴리에스테르 층 또는 필름의 배향 또는 복굴절을 유지하면서 폴리에스테르 물질의 분자량을 증가시킨다. 평면형 분지화 단위는 폴리에스테르 물질을 형성하는 나프탈레이트 단위 및 분지화 단위의 총 몰%를 기준으로 0.1 내지 2 몰% 범위의 양으로 복굴절 폴리에스테르 층 또는 필름 내에 존재할 수 있다. 많은 실시 형태에서, 평면형 분지화 단위는 폴리에스테르 물질을 형성하는 나프탈레이트 단위 및 분지화 작용성 단위의 총 몰%를 기준으로 0.1 내지 1 몰% 범위의 양으로 복굴절 폴리에스테르 층 또는 필름 내에 존재할 수 있다. 일부 실시 형태에서, 평면형 분지화 단위는 폴리에스테르 물질을 형성하는 나프탈레이트 단위 및 분지화 단위의 총 몰%를 기준으로 0.2 내지 0.8 몰% 범위의 양으로 복굴절 폴리에스테르 층 또는 필름 내에 존재할 수 있다. 평면형 분지화 단위는

예를 들어 트라이메산 또는 트라이멜리트산으로부터 유도될 수 있다.

- [0030] 폴리에스테르의 에틸렌 하위단위를 형성하는 데 사용하기에 적합한 글리콜 단량체 분자는 에틸렌 글리콜을 포함한다. 일부 실시 형태에서, 에틸렌 글리콜은 다이올 하위단위의 95 내지 100 몰%가 에틸렌 하위단위로 구성되도록 하는 농도로 사용된다. 바람직하게는, 다이올 하위단위의 적어도 97.5, 98, 98.5, 99, 또는 99.5 몰%가 에틸렌 하위단위로 구성된다.
- [0031] 복굴절 폴리에스테르 층 또는 필름은 분지형 또는 환형 C4-C10 알킬 글리콜, 예컨대 네오펜틸 글리콜, 사이클로헥산다이메탄올, 및 이들의 혼합물로부터 유도되는 분지형 또는 환형 C4-C10 알킬 단위를 포함할 수 있다. 분지형 또는 환형 C4-C10 알킬 단위는 폴리에스테르 물질을 형성하는 데 사용되는 에틸렌 단위 및 분지형 또는 환형 C4-C10 알킬 단위의 총 몰%를 기준으로 2 몰% 미만, 또는 1.5 몰% 미만, 또는 1 몰% 미만의 양으로 복굴절 폴리에스테르 층 또는 필름 내에 존재할 수 있다.
- [0032] 복굴절 폴리에스테르 층 또는 필름은 감소된 Tan 델타 값을 나타낼 수 있다. 예를 들어, 통상적인 PEN 층 또는 필름은, 예를 들어 섭씨 280도에서 그리고 10 sec^{-1} 전단율에서 측정될 때 18 내지 25 범위의 Tan 델타 값을 나타낼 수 있다. 본 명세서에 기재된 평면형 분지화 단위를 이용함으로써, 예를 들어 섭씨 280도에서 그리고 10 sec^{-1} 전단율에서 측정될 때 3 내지 8 범위로 Tan 델타 값을 감소시킬 수 있다.
- [0033] 다층 필름은 633 nm에서의 평면외 복굴절이 적어도 0.10 또는 적어도 0.15 또는 적어도 0.2인 제1 복굴절 폴리에스테르 층 및 제1 복굴절 폴리에스테르 층보다 더 낮은 복굴절을 갖고 제1 복굴절 폴리에스테르 층 상에 배치된 제2 중합체 층을 포함할 수 있다. 폴리에스테르 층은 전술되어 있다.
- [0034] 제2 중합체 층은 등방성일 수 있거나 0.05 미만 또는 0.01 미만의 복굴절을 가질 수 있다. 용어 "등방성"은 직교하는 x, y, 및 z 방향에서의 (633 nm에서 측정된) 굴절률이 모두 서로에서 0.02 이내, 또는 서로에서 0.1 이내에 있거나, 또는 실질적으로 동일한 것을 지칭한다.
- [0035] 많은 실시 형태에서, 제2 중합체 층은 아크릴레이트 단위를 포함한다. 일부 실시 형태에서, 제2 중합체 층은 올레핀 단위를 포함한다. 제1 복굴절 폴리에스테르 층 및 제2 중합체 층은 각각 10 sec^{-1} 의 전단율에서의 섭씨 280도에서의 Tan 델타 값이 서로에서 3 이내, 또는 2 이내, 또는 1 이내, 또는 서로의 30% 이내, 또는 25% 이내, 또는 20% 이내, 또는 10% 이내에 있을 수 있다.
- [0036] 예시적인 제2 중합체는, 10 sec^{-1} 의 전단율에서의 섭씨 280도에서의 Tan 델타 값이 약 7.9인, 공압출을 위한 폴리아크릴레이트, 예컨대 폴리메틸메타크릴레이트 (PMMA) (프랑스 파리 소재의 아르케마(Arkema)로부터 상표명 V044 플렉시글라스(Plexiglas)로 구매가능함)이다. 다른 예시적인 제2 중합체는, 10 sec^{-1} 의 전단율에서의 섭씨 280도에서의 Tan 델타 값이 약 5.0인, 공압출을 위한 코-PMMA (프랑스 파리 소재의 아르케마로부터 상표명 아토글라스(Atoglas) 510A로 구매가능함)이다. 예시적인 제2 중합체는, 10 sec^{-1} 의 전단율에서의 섭씨 280도에서의 Tan 델타 값이 약 2.9인, 공압출을 위한 폴리올레핀, 예컨대 폴리프로필렌 (PP) (미국 텍사스주 휴스턴 소재의 라이온텔-바젤(Lyondell-Bassell)로부터 상표명 SR549 PP로 구매가능함)이다. 따라서, 제1 복굴절 폴리에스테르 층은 10 sec^{-1} 의 전단율에서의 섭씨 280도에서의 Tan 델타 값이 2 내지 9의 범위, 또는 3 내지 8의 범위, 또는 4 내지 7의 범위일 수 있다.
- [0037] 다층 필름은 낮은 탁도 값을 가질 수 있다. 다층 필름은 탁도 값이 2% 이하, 또는 1.5% 이하, 또는 1% 이하, 또는 0.5% 이하일 수 있다. 다층 필름은 높은 가시광 투과율을 가질 수 있다. 다층 필름은 85% 이상, 또는 90% 이상의 높은 가시광 투과율을 가질 수 있다.
- [0038] 다층 광학 필름은, 복수의 제1 복굴절 폴리에스테르 층 - 각각은 633 nm에서의 평면외 복굴절이 적어도 0.10, 또는 적어도 0.15, 또는 적어도 0.2이고, 금속 함량이 100 ppm 미만, 또는 80 ppm 미만, 또는 30 ppm 미만, 또는 10 ppm 미만, 또는 5 ppm 미만이고, 10 sec^{-1} 의 전단율에서 섭씨 280도에서의 제1 Tan 델타 값을 가짐 -; 및 제1 복굴절 폴리에스테르 층들 사이에서 교번하는 복수의 제2 등방성 층 (아크릴레이트를 포함할 수 있음) - 각각의 제2 등방성 층은 10 sec^{-1} 의 전단율에서 섭씨 280도에서의 제2 Tan 델타 값을 가짐 - 을 포함한다. 제1 Tan 델타 값은 제2 Tan 델타 값의 30% 이하 이내, 또는 25% 이하 이내, 또는 20% 이하 이내에 있다.
- [0039] 제2 중합체 층은 등방성일 수 있거나 0.05 미만의 복굴절을 가질 수 있다. 많은 실시 형태에서, 제2 중합체 층

은 아크릴레이트 단위를 포함한다. 제1 복굴절 폴리에스테르 층 및 제2 등방성 중합체 층은 각각 10 sec^{-1} 의 전단율에서의 썩씨 280도에서의 Tan 델타 값이 서로에서 3 이내, 또는 2 이내, 또는 1 이내, 또는 서로의 30% 이내, 또는 25% 이내, 또는 20% 이내, 또는 10% 이내에 있을 수 있다. PMMA는 10 sec^{-1} 의 전단율에서의 썩씨 280도에서의 Tan 델타 값이 약 7.9이고, 코-PMMA는 10 sec^{-1} 의 전단율에서의 썩씨 280도에서의 Tan 델타 값이 약 5.0이고, PP는 10 sec^{-1} 의 전단율에서의 썩씨 280도에서의 Tan 델타 값이 약 2.9이다. 따라서, 제1 복굴절 폴리에스테르 층은 10 sec^{-1} 의 전단율에서의 썩씨 280도에서의 Tan 델타 값이 2 내지 9의 범위, 또는 3 내지 8의 범위, 또는 4 내지 7의 범위일 수 있다.

[0040] 다층 광학 필름의 반사 및 투과 특성은 각각의 층의 굴절률 및 각각의 층의 두께와 두께 분포의 함수이다. 각각의 층은, 적어도 필름 내의 국부 위치에서, 평면내 굴절률(n_x , n_y) 및 필름의 두께 축과 연관된 굴절률(n_z)에 의해 특징지어질 수 있다. 이들 굴절률은, 각각 서로 직교하는 x-축, y-축, 및 z-축을 따른 광에 대한 대상 물질의 굴절률을 나타낸다.

[0041] 실제로, 굴절률은 적절한 재료 선택 및 처리 조건에 의해 제어된다. 다층 필름은 2가지 교번하는 중합체 A, B를 다수 개, 예를 들어 수십 또는 수백 개의 층들로 공압출하고, 선택적으로 후속으로 다층 압출물을 하나 이상의 층 다중화 디바이스(layer multiplication device)(들), 및 캐스팅 다이(casting die)에 통과시키고, 이로써 웨브를 캐스팅하고, 이어서 압출물을 연신하거나 달리 배향하여 최종 필름을 형성함으로써 제조된다. 생성된 필름은 전형적으로, 가시광선 또는 근적외선에서와 같은 원하는 스펙트럼 영역(들) 내에서 하나 이상의 반사대역을 제공하도록 두께 및 굴절률이 조정된 수백 개의 개별 층 또는 미세층으로 구성된다.

[0042] 다층 광학 필름은 적어도 100개의 층, 또는 적어도 300개의 층, 또는 적어도 400개의 층, 또는 적어도 500개의 층을 포함할 수 있다. 다층 광학 필름은 400 내지 800개, 또는 500 내지 700개, 또는 550 내지 650개 범위의 다수 개의 층을 포함할 수 있다. 일부 실시 형태에서, 다층 광학 필름은 적어도 700개의 층, 또는 적어도 800개의 층, 또는 적어도 900개의 층, 또는 적어도 1000개의 층을 포함할 수 있다. 다층 광학 필름은 800 내지 1500개, 또는 900 내지 1200개, 또는 1000 내지 1150개 범위의 다수 개의 층을 포함할 수 있다. 층들은 제1 복굴절 폴리에스테르 층과 제2 등방성 층 사이에서 교번할 수 있다.

[0043] 다층 광학 필름은 낮은 탁도 값을 가질 수 있다. 다층 광학 필름은 탁도 값이 2% 이하, 또는 1.5% 이하, 또는 1% 이하, 또는 0.5% 이하일 수 있다. 다층 광학 필름은 거울 필름을 형성할 수 있다. 거울 필름은 입사광의 적어도 99.0%, 또는 적어도 99.1%, 또는 적어도 99.2%, 또는 적어도 99.3%, 또는 적어도 99.4%, 또는 적어도 99.5%, 또는 적어도 99.6%를 반사할 수 있다.

[0044] 이러한 반사 특성은 "반구 반사율" $R_{\text{hemi}}(\lambda)$ 로서 기재될 수 있는데, 이는 (관심 있는 소정 파장 또는 파장 범위의) 광이 모든 가능한 방향으로부터 구성요소 (표면, 필름, 또는 필름들의 집합체)에 입사할 때 상기 구성요소의 총 반사율을 의미한다. 따라서, 구성요소는 수직 방향에 중심을 둔 반구 내로 모든 방향으로부터 입사하는 광으로 (그리고 달리 특정되지 않는 한, 모든 편광 상태로) 조명되고, 동일한 반구 내로 반사되는 모든 광이 수 집된다. 관심 파장 범위에 대한 입사광의 총 광속(flux)에 대한 반사광의 총 광속의 비가 반구 반사율 또는 $R_{\text{hemi}}(\lambda)$ 를 산출한다.

[0045] 제1 복굴절 폴리에스테르 층은 633 nm에서의 평면외 복굴절이 적어도 0.20일 수 있고, 제2 등방성 (예를 들어, 아크릴레이트) 층은 (633 nm에서 측정된) 평면외 굴절률이 제1 복굴절 폴리에스테르 층의 평면외 굴절률에서 0.05 이내, 또는 0.04 이내, 또는 0.03 이내, 또는 0.02 이내, 또는 0.01 이내에 있을 수 있다.

[0046] 본 발명의 목적 및 이점은 하기의 실시예에 의해 추가로 예시되지만, 이들 실시예에 인용된 특정 재료 및 그 양뿐만 아니라 기타 조건이나 상세 사항은 본 발명을 부당하게 제한하는 것으로 해석되어서는 안 된다.

[0047] 실시예

[0048] 실시예에서 모든 부, 백분율, 비 등은 달리 나타내지 않는 한 중량 기준이다. 사용되는 용매 및 기타 시약은 달리 명시되지 않는 한 미국 미주리주 세인트루이스 소재의 시그마-알드리치 코포레이션(Sigma-Aldrich Corp.)으로부터 입수하였다.

[0049] 재료 약어 - 일반 화학명 - 공급처 (소재지)

- [0050] • NDC - 2,6-나프탈렌 다이카르복실산 에스테르 - 비피 아모코(BP Amoco) (미국 일리노이주 네이퍼빌 소재)
- [0051] • Trimesic - 트라이메산 - 알파 에이사(Alfa Aesar) (미국 매사추세츠주 워드 힐 소재)
- [0052] • Trimellitic - 트라이멜리트산 - 랭커스터 신테시스, 인크.(Lancaster Synthesis, Inc.) (미국 뉴햄프셔주 펠햄 소재)
- [0053] • EG - 에틸렌 글리콜 - 엠이 글로벌(ME Global) (미국 미시간주 미들랜드 소재)
- [0054] • CHDM - 사이클로헥산 다이메탄올 - 이스트만(Eastman) (미국 테네시주 킹스포트 소재)
- [0055] • TEPA - 트라이에틸포스포노아세테이트 - 로디아(Rhodia) (미국 뉴저지주 크랜베리 소재)
- [0056] • Na 아세테이트 - 소듐 아세테이트 - 알파 에이사 (미국 매사추세츠주 워드 힐 소재)
- [0057] • Co 아세테이트 - 코발트 아세테이트 - 셰퍼드 케미칼(Shepherd Chemical) (미국 오하이오주 신시내티 소재)
- [0058] • Mn 아세테이트 - 망간 아세테이트 - 셰퍼드 케미칼 (미국 오하이오주 미들타운 소재)
- [0059] • Sb 아세테이트 - 안티몬 트리아세테이트 - 아르케마 (미국 펜실베이니아주 필라델피아 소재)
- [0060] • Ca 아세테이트 - 칼슘 아세테이트 - 말린크로트 케미칼 인크.(Mallinckrodt Chemical Inc.) (미국 미주리주 세인트 루이스 소재)

[0061] 하기 실시예에서의 모든 중합체는 하기 절차에 따라 합성하였다:

[0062] 실온 10 갤런 스테인리스 강, 오일 재킷형 배치 반응기(room temperature 10 gallon stainless steel, oil jacketed batch reactor)에 하기 표 1에 지시된 양의 단량체 및 촉매를 장입하였다. 내용물을 질소를 이용하여 239.2 kPa로 가압하고, 257℃로 가열하였다. 에스테르 교환 동안, 발생된 메탄올 및 물 부산물은 분리 컬럼을 통해 제거하였다. 메탄올 및 물을 제거한 후에, 배치 압력을 대기압으로 감소시켰다. 일부 경우에, 이 시점에서 안정화제 TEPA를 배치에 첨가하였다. 이어서, 배치를 280℃로 가열하고, 압력을 (진공을 통해) 500 Pa 미만으로 감소시켰다. 30℃에서 60/40 중량%의 페놀/o-다이클로로벤젠에서 측정될 때, 고유 점도가 약 0.50 dL/g인 폴리에틸렌 나프탈레이트 수지와 관련된 원하는 점도 형성을 달성한 중합체 수지가 생성될 때까지, 촉합 반응 부산물인 에틸렌 글리콜을 분리 컬럼을 통해 계속 제거하였다.

[0063] [표 1]

실시예 번호	C-1	A-1	A-2	A-3	A-4
에스테르 및 산 장입량 (kg)					
NDC	22.17	22.17	22.17	22.17	22.17
트라이메산			0.143	0.048	0.096
다이올 장입량 (kg)					
EG	12.96	12.96	13.06	12.94	13.03
CHDM				0.131	
촉매 장입량 (g)					
Mn 아세테이트	4.88				
Co 아세테이트	5.1				
Sb 아세테이트	10.64				
Ca 아세테이트					
Na 아세테이트					4.45
TBT		1.11	1.12	1.11	1.11
안정화제 장입량 (g)					
TEPA	9.09				

[0064]

[0065] 표 2는 이들 실시예에서의 중합체들의 얻어진 조성을 열거한다. 단량체들은 몰 기준으로 표현되어 있는데, 여기서는 에스테르 작용성 단량체 및 산 작용성 단량체를 합하여 100%가 되고, 글리콜 작용성 단량체들을 합하여 100%가 된다. 결정 및 안정화제는 PPM 기준으로 열거되어 있다.

[0066] [표 2]

실시에 번호	C-1	A-1	A-2	A-3	A-4
에스테르/산 (몰%)					
NDC	100%	100%	99.25%	99.75%	99.50%
트라이메스산			0.75%	0.25%	0.50%
다이올 (몰%)					
EG	100%	100%	100%	99%	100%
CHDM				1%	
촉매 (PPM)					
Mn 아세테이트	49				
Co 아세테이트	54				
Sb 아세테이트	195				
Ca 아세테이트					
Na 아세테이트					56
TBT		7	7	7	7
총 금속 (PPM)	299	7	7	7	63
안정화제					
TEPA	57				

[0067]

[0068] 생성된 수지들을 중합 반응 속도론, 열 안정성, 점탄성 및 켄칭 모폴로지(quench morphology)에 대해 평가하였으며, 이들은 표 3에 비교되어 있다.

[0069] 수지 속도론이, 수지가 0.48 IV 목표와 관련된 원하는 점도 형성을 달성하는 데 걸린 시간 (단위: 분)에 의해 비교되어 있다.

[0070] 수지 샘플의 열 안정성은, 건조 수지의 약 5 g 샘플을 썬서 280도의 질소 퍼지된 플레이트-온-플레이트 아레스 레오미터 (미국 델라웨어주 뉴 캐슬 소재의 티에이 인스트루먼트로부터 구매가능함) 내로 넣어서, 시험의 출발 시점에서의 수지의 복소 점도를 측정하고 이 결과를 레오미터에서의 썬서 280도에서 추가 30분 후의 복소 점도와 대비함으로써 결정된다. 결과는 상대적으로 기록되어 있다 (100% = 초기값). 모든 측정은 100 sec^{-1} 의 전단율에서 수행된다.

[0071] 수지들의 점탄성은 이들 수지의 계산된 Tan 델타 값을 이용하여 비교되는데, 이러한 Tan 델타 값 또한 10 sec^{-1} 의 전단율에서 썬서 280도의 질소 퍼지된 플레이트-온-플레이트 아레스 레오미터로부터 얻어진다. Tan 델타 값은 점성 모듈러스 (G'') 대 탄성 모듈러스 (G')의 비로서 계산되고, 유체에서의 탄성의 존재 및 정도의 유용한 정량자(quantifier)이다 (더 낮은 값 = 더 큰 탄성).

[0072] 켄칭 모폴로지는 시차 주사 열량측정 (DSC) 시험 방법을 통해 측정된다. DSC (미국 델라웨어주 뉴 캐슬 소재의 티에이 인스트루먼트로부터 구매가능한 Q2000)를 이용하여 재료를 시험하였다. 각각의 수지에 대해 약 5 내지 10 mg의 샘플을 사용하였다. 상세하게는, 수지를 썬서 300도로 가열하고 (용융시키고), 이어서 (썬서 5도/분 또는 썬서 10도/분으로) 제어된 속도로 냉각시킨다. 켄칭 모폴로지는 이러한 냉각 사이클 동안 얻어진 결정화 피크와 관련된 에너지 편차(energy deviation)를 측정함으로써 특성화될 수 있다 (더 큰 에너지 값은 더 큰 결정화와 상관된다).

[0073] [표 3]

실시에 번호	C-1	A-1	A-2	A-3	A-4
에스테르/산 (몰%)					
NDC	100%	100%	99.25%	99.75%	99.50%
트라이메산			0.75%	0.25%	0.50%
다이올 (몰%)					
EG	100%	100%	100%	99%	100%
CHDM				1%	
촉매 (PPM)					
Mn 아세테이트	49				
Co 아세테이트	54				
Sb 아세테이트	195				
Ca 아세테이트					
Na 아세테이트					56
TBT		7	7	7	7
총 금속 (PPM)	299	7	7	7	63
안정화제					
TEPA	57				
중합					
시간 (분)	95	75	45	75	45
열 안정성	105%	99%	104%	102%	104%
Tan 델타	19.9	14.9	3.2	6.5	5.0
5 C/min에서의 켄칭 모폴로지 (J/g)	47	42.9	40.5	13.3	33.9
10 C/min에서의 켄칭 모폴로지 (J/g)	18.8	6.3	4.6	1.3	3.5

[0074]

[0075]

하기 표 4는, 본 명세서에 기재된 폴리에스테르 수지와 공압출될 수 있는 예시적인 중합체 수지 (아크릴레이트 또는 올레핀)에 대한 Tan 델타 값을 제공한다. 예시적인 아크릴레이트는 상업적으로 아르케마 (프랑스 파리 소재)로부터 상표명 V044 플렉시글라스 PMMA로 구매가능한 PMMA이다. 다른 예시적인 아크릴레이트는 상업적으로 아르케마 (프랑스 파리 소재)로부터 상표명 아토글라스 510A 코-PMMA로 구매가능한 코-PMMA이다. 예시적인 올레핀은 PP, 즉 라이온텔-바젤 (미국 텍사스주 휴스턴 소재)로부터 입수가능한 SR549 PP이다.

[0076]

[표 4]

중합체	Tan 델타		
유형	260 C	270 C	280 C
PMMA	4.1	5.8	7.9
코PMMA	3.4	4.1	5.0
PP	2.7	2.8	2.9

[0077]

[0078]

따라서, 본 명세서에 기재된 폴리에스테르 수지는, 공압출된 필름의 기계 방향 및 횡방향에 걸쳐 균일한 물리적 및 광학 특성을 제공하기 위하여, 공압출된 수지와 유사한 용융 또는 점탄성을 제공하도록 Tan 델타 값이 약 3 내지 약 8의 범위일 수 있다.

[0079]

이어서, 예시적인 폴리에스테르를 이축 압출기, 넥튜브(necktube), 피드블록(feedblock) 및 다이를 통해 압출하였으며, 이때 점진적인 온도 프로파일은 282℃에서 피크를 형성하였다. 압출된 물질을 캐스팅하고 켄칭하여 20 밀(mil) 필름을 형성하였다. 캐스팅 웹(cast web) 필름을 투과율 성능 및 % 탁도에 대해 평가하였다.

[0080]

이들 20 밀 캐스팅 웹 필름을 카로(KARO) IV 실험실 연신 기계 (독일 직스도르프 소재의 브루엑크너 머시넨바우 게엠베하 운트 컴퍼니 카게(Bruckner Maschinenbau GmbH & Co. KG)) 내에서 배향 및 어닐링하였다. 45초 예열 시간과 함께 섭씨 140도 오븐을 사용하여 원래 길이의 350% x 350%로의 기계 방향 및 횡방향으로의 동시적 이축 연신을 달성하였다. 이들 배향된 필름에 섭씨 240도에서 추가 10초의 어닐링을 실시하였다. 배향된 필름을 탁도 및 복굴절에 대해 평가하였다.

[0081]

굴절률 (RI) 측정: 다양한 샘플의 굴절률을 MD, TD 및 TM 방향에 있어서 메트리콘 프리즘 커플러(Metricon Prism coupler) (미국 뉴저지주 페닝톤 소재의 메트리콘 코퍼레이션(Metricon corporation))를 사용하여 측정하였다. MD 및 TD는 평면내 방향이고, TM은 필름 표면에 수직이다. MD, TD 및 TM의 굴절률은 각각 n_x , n_y , 및 n_z 로 표시된다.

[0082] 평면내 복굴절, Δn_{in} : 단축 연신 필름의 복굴절 특성을 측정하기 위하여, 평면내 복굴절이 사용된다. 평면내 복굴절은 직교하는 평면내 방향으로의 굴절률들 (n_x , n_y)의 차이에 관계한다. 더 구체적으로는, 단축 연신 필름의 경우, 평면내 복굴절은 연신 방향과 비연신 방향 사이의 차이를 지칭한다. 예를 들어, 필름이 MD 방향으로 단축 연신된다고 가정하면, 평면내 복굴절은 하기와 같이 표현된다:

[0083]
$$\Delta n_{in} = n_x - n_y$$

[0084] 여기서, n_x 는 연신 방향 (이 경우에는, MD)의 굴절률이고, n_y 는 비연신 방향 (이 경우에는, TD)의 굴절률이다.

[0085] 이축 연신 필름의 경우, 평면내 복굴절은 상대적으로 작으며 균형이 이루어진다면 때로는 0에 가깝다. 대신, 평면외 복굴절은 연신 필름의 복굴절 특성을 더 나타낸다.

[0086] 평면외 복굴절, Δn_{out} : 이축 배향 필름의 복굴절 특성을 측정하기 위하여, 평면외 복굴절이 사용된다. 평면외 복굴절은 평면내 굴절률 (MD 및 TD)의 평균과 필름에 수직인 굴절률 (n_z) 사이의 차이에 관계한다. 평면외 복굴절은 하기와 같이 표현될 수 있다:

[0087]
$$\Delta n_{out} = ((n_x + n_y) / 2) - n_z$$

[0088] 여기서, n_x 는 기계 방향 (MD)으로의 굴절률 (n_x)이고, n_y 는 횡방향 (TD)으로의 굴절률 (n_y)이고, n_z 는 두께 방향 (TM)으로의 굴절률 (n_z)이다.

[0089] 탁도 측정은 독일 게레츠리트 소재의 비와이케이-가드너 게엠베하(BYK-Gardner GmbH)로부터의 비와이케이 헤이즈-가드 탁도계(BYK Haze-gard Haze Meter)를 사용하여 수행하였다.

[0090] 투과율은 람다(Lambda) 950 분광광도계 (미국 오하이오주 애크런 소재의 퍼킨-엘머(Perkin-Elmer)로부터 입수됨)를 사용하여 600 nm에서 측정하였다.

[0091] [표 5]

실시예 번호	C-1	A-1	A-2	A-3	A-4
에스테르/산 (몰%)					
NDC	100%	100%	99.25%	99.75%	99.50%
트라이메스산			0.75%	0.25%	0.50%
다이올 (몰%)					
EG	100%	100%	100%	99%	100%
CHDM				1%	
촉매 (PPM)					
Mn 아세테이트	49				
Co 아세테이트	54				
Sb 아세테이트	195				
Ca 아세테이트					
Na 아세테이트					56
TBT		7	7	7	7
총 금속 (PPM)	299	7	7	7	63
안정화제					
TEPA	57				
% 투과율 (20 밀)	87.9	86.8	88.5	88.5	88.1
캐스팅 웨브 (20 밀) 탁도	1.3	1.5	0.8	0.8	0.5
배향 필름 % 탁도	0.8	0.4	0.3	0.2	0.4
배향 평면내 굴절률	1.749	1.750	1.747	1.744	1.747
배향 평면외 굴절률	1.493	1.492	1.494	1.497	1.496

[0092]

[0093] 실시예 A-5 내지 실시예 A-8

[0094] 하기 실시예 A-5 내지 실시예 A-8에서의 모든 중합체는 하기 절차에 따라 합성하였다: 실온 2 갤런 스테인리스강, 전기 가열 및 절연 배치 반응기(room temperature 2 gallon stainless steel, electrically heated and insulated batch reactor)에 표 6에 지시된 양의 단량체 및 촉매를 장입하였다. 내용물을 N_2 를 이용하여 239.2 kPa로 가압하고, 257°C로 가열하였다. 에스테르 교환 동안, 발생된 메탄올 및 물 부산물은 분리 컬럼을 통해 제거하였다. 메탄올 및 물을 제거한 후에, 배치 압력을 대기압으로 감소시켰다. 이어서, 배치를 280°C로 가열하고, 압력을 (진공을 통해) 500 Pa 미만으로 감소시켰다. 실시예 A-5, 실시예 A-7 및 실시예 A-8의 경우에는, 30°C에서 60/40 중량%의 페놀/o-다이클로로벤젠에서 측정될 때, 고유 점도가 약 0.50 dL/g인 폴리에틸렌 나프탈

레이트와 관련된 원하는 점도 형성을 달성한 중합체 수지가 생성될 때까지, 축합 반응 부산물인 에틸렌 글리콜을 분리 컬럼을 통해 계속 제거하였다. 배치 A-6의 경우에는, 축합 반응이 약 0.50 dL/g 중점과 관련된 점도 형성으로 진행될 수 없어서, 감소된 점도에서 수평을 유지하였으며, 그 결과 감소된 물리적 특성을 갖는 중합체가 생성되었다.

[표 6]

실시예 번호	A-5	A-6	A-7	A-8
에스테르 및 산 장입량 (kg)				
NDC	4.1	4.1	4.1	4.1
트라이멜리트산				0.0177
트라이메스산	0.0177	0.0177		
다이올 장입량 (kg)				
EG	2.41	2.41	2.4	2.41
CHDM				
촉매 장입량 (g)				
Mn 아세테이트				
Co 아세테이트				
Sb 아세테이트				
Ca 아세테이트				
Na 아세테이트				
TBT	0.1	0.05	0.1	0.21
안정화제 장입량 (g)				
TEPA				

표 7은 이들 실시예에서의 중합체들의 얻어진 조성을 열거한다. 단량체들은 몰 기준으로 표현되어 있는데, 여기서는 에스테르 작용성 단량체 및 산 작용성 단량체를 합하여 100%가 되고, 글리콜 작용성 단량체들을 합하여 100%가 된다. 결정 및 안정화제는 PPM (백만분율) 기준으로 열거되어 있다.

수지 속도론이 또한, 수지가 0.48 IV 목표와 관련된 원하는 점도 형성을 달성하는 데 걸린 시간 (단위: 분)에 의해 표 7에 비교되어 있다. 실시예 A-6은 종점에 도달하지 않았기 때문에, n.a. (적용 불가)의 결과가 표시되어 있다. 100 sec⁻¹에서 280℃에서 아레스 플레이트-온-플레이트 점도계에 의해 측정된 복소 점도가 참고로 포함되어 있다.

[표 7]

실시예 번호	A-5	A-6	A-7	A-8
에스테르/산 (몰%)				
NDC	99.5%	99.5%	100.0%	99.5%
트라이멜리트산				0.5%
트라이메스산	0.5%	0.5%		
다이올 (몰%)				
EG	100%	100%	100%	100%
CHDM				
촉매 (PPM)				
Mn 아세테이트				
Co 아세테이트				
Sb 아세테이트				
Ca 아세테이트				
Na 아세테이트				
TBT	3	2	3	7
총 금속 (PPM)	3	2	3	7
안정화제				
TEPA				
중합 시간 (분)	90	n/a	125	60
복소 점도 (P)	3298	1363	3064	3707

이로써, 저탁도를 갖는 복굴절 폴리에스테르 필름의 실시 형태가 개시되어 있다.

[0102] 본 명세서에 인용된 모든 참고 문헌 및 간행물은, 그것들이 본 발명과 직접적으로 모순될 수 있는 경우를 제외하고는, 명백히 본 발명에 전체적으로 본 명세서에 참고로 포함된다. 특정 실시 형태가 본 명세서에 예시 및 기술되어 있지만, 당업자는 본 발명의 범주로부터 벗어나지 않고서 다양한 대안 및/또는 등가의 구현예가 도시 및 기술된 특정 실시 형태를 대신할 수 있다는 것을 이해할 것이다. 본 출원은 본 명세서에 논의된 특정 실시 형태의 임의의 개조 또는 변형을 포함하도록 의도된다. 따라서, 본 발명은 오직 청구범위 및 이의 등가물에 의해서만 제한되는 것으로 의도된다. 개시된 실시 형태는 제한이 아닌 예시의 목적을 위해 제공된다.