



**(19) 대한민국특허청(KR)**  
**(12) 등록특허공보(B1)**

(45) 공고일자 2008년05월22일  
(11) 등록번호 10-0831192  
(24) 등록일자 2008년05월15일

(51) Int. Cl.  
G02B 5/30 (2006.01) G02B 1/08 (2006.01)  
(21) 출원번호 10-2007-7000064(분할)  
(22) 출원일자 2007년01월02일  
심사청구일자 2007년01월02일  
번역문제출일자 2007년01월02일  
(65) 공개번호 10-2007-0015634  
(43) 공개일자 2007년02월05일  
(62) 원출원 특허 10-2005-7019368  
원출원일자 2005년10월11일  
심사청구일자 2005년10월11일  
(86) 국제출원번호 PCT/JP2004/014479  
국제출원일자 2004년10월01일  
(87) 국제공개번호 WO 2005/059609  
국제공개일자 2005년06월30일  
(30) 우선권주장 JP-P-2003-00418558 2003년12월16일 일본(JP)  
(56) 선행기술조사문헌 JP15315554 A\*  
KR1020030022791 A\*  
KR1019910000870 A\*  
\*는 심사관에 의하여 인용된 문헌

(73) 특허권자  
닛토덴코 가부시카이가이사  
일본국 오사카후 이바라키시 시모호즈미 1-1-2  
(72) 발명자  
이시바시 쿠니아키  
일본 오사카후 이바라키시 시모호즈미 1쵸메 1방  
2고 닛토덴코가부시카이가이사 나이  
츠치모토 가즈키  
일본 오사카후 이바라키시 시모호즈미 1쵸메 1방  
2고 닛토덴코가부시카이가이사 나이  
요시미 히로유키  
일본 오사카후 이바라키시 시모호즈미 1쵸메 1방  
2고 닛토덴코가부시카이가이사 나이  
(74) 대리인  
특허법인코리아나

전체 청구항 수 : 총 13 항

심사관 : 정성용

**(54) 복굴절 필름의 제조 방법, 그것을 사용한 광학 필름 및화상 표시 장치**

**(57) 요약**

면내 위상차, 두께방향 위상차, 배향축의 균일성이 우수한 복굴절 필름을 제공한다. 폴리머 필름을 연신하는 공정에 있어서, 상기 폴리머 필름을 폭방향으로 연신함과 동시에, 그 길이방향으로 수축시키고, 연신 전의 폴리머 필름의 폭방향의 길이 및 길이방향의 길이를 각각 1로 한 경우에 있어서, 상기 연신에 의한 폭방향의 길이의 변화 배율 (STD) 과 상기 수축에 의한 길이방향의 길이의 변화 배율 (SMD) 의 관계가 하기 식 (1) 을 만족함으로써 복굴절 필름을 제조한다.

$$(1/STD)^{1/2} \leq SMD < 1 \quad \dots (1)$$

**특허청구의 범위**

**청구항 1**

폴리머 필름을 연신하는 공정을 포함하는 복굴절 필름의 제조 방법으로서,

상기 연신 공정에 있어서, 폴리머 필름을 폭방향으로 연신함과 동시에, 그 길이방향으로 수축시키고,

연신 전의 폴리머 필름의 폭방향의 길이 및 길이방향의 길이에 기초하여, 상기 연신에 의한 폭방향의 길이의 변화 배율 (STD) 과 상기 수축에 의한 길이방향의 길이의 변화 배율 (SMD) 의 관계는, 하기 식 (1),

$$(1/STD)^{1/2} \leq SMD < 1 \quad \dots (1)$$

을 만족하는 것을 특징으로 하는 복굴절 필름의 제조 방법.

**청구항 2**

제 1 항에 있어서,

SMD 는 0.99 미만인, 복굴절 필름의 제조 방법.

**청구항 3**

제 1 항에 있어서,

$(1/STD)^{1/2}$  는 0.99 미만인, 복굴절 필름의 제조 방법.

**청구항 4**

제 1 항에 있어서,

STD 가 1.2 인 경우에, SMD 는 0.9 내지 0.92 의 범위인, 복굴절 필름의 제조 방법.

**청구항 5**

제 1 항에 있어서,

STD 가 1.3 인 경우에, SMD 는 0.86-0.90 의 범위인, 복굴절 필름의 제조 방법.

**청구항 6**

삭제

**청구항 7**

삭제

**청구항 8**

삭제

**청구항 9**

삭제

**청구항 10**

삭제

**청구항 11**

삭제

**청구항 12**

삭제

**청구항 13**

삭제

**청구항 14**

삭제

**청구항 15**

제 1 항에 있어서,

상기 폴리머 필름은 폴리카보네이트 또는 폴리이미드를 함유하는 필름인, 복굴절 필름의 제조 방법.

**청구항 16**

제 1 항 내지 제 5 항 또는 제 15 항 중 어느 한 항에 기재된 제조 방법에 의해 획득되는, 복굴절 필름.

**청구항 17**

제 16 항에 기재된 복굴절 필름을 포함하는, 광학 필름.

**청구항 18**

제 17 항에 있어서,

편광자를 더 포함하는 광학 필름.

**청구항 19**

제 18 항에 있어서,

투명 보호 필름을 더 포함하고, 상기 편광자의 적어도 일방의 표면에 상기 투명 보호 필름이 배치되어 있는, 광학 필름.

**청구항 20**

액정셀의 적어도 일방의 표면에 제 17 항에 기재된 광학 필름이 배치된, 액정 패널.

**청구항 21**

제 20 항에 기재된 액정 패널을 포함하는, 액정 표시 장치.

**청구항 22**

제 17 항에 기재된 광학 필름을 포함하는, 화상 표시 장치.

**명세서**

**발명의 상세한 설명**

**발명의 목적**

**발명이 속하는 기술 및 그 분야의 종래기술**

- <1> 본 발명은, 복굴절 필름의 제조 방법, 그것을 사용한 광학 필름 및 각종 화상 표시 장치에 관한 것이다.
- <2> 액정 표시 장치 등의 각종 화상 표시 장치에는 표시 특성을 향상시키기 위해서, 예를 들어 착색의 해소나 시야 각 확대 등을 목적으로 통상 복굴절성 필름이 사용되고 있다. 이러한 복굴절 필름은, 일반적으로, 폴리머 필름에 1 축 연신이나 2 축 연신을 실시함으로써 그 복굴절이나 위상차를 조정하여 제조되고 있다.
- <3> 이러한 복굴절 필름을 편광 필름과 함께 액정 표시 장치에 사용할 때에는, 통상 상기 복굴절 필름의 지상축(遲

相軸) 과 편광 필름의 투과축이 평행하게 되도록 상기 양 필름을 배치할 필요가 있다. 또한, 일반적으로 복굴절 필름의 지상축은, 그 연신방향과 일치하고, 편광 필름의 투과축은 그 연신방향에 대하여 수직방향과 일치한다.

<4> 그러나, 복굴절 필름과 편광 필름을 이와 같이 배치하는 것에는, 제조상 다음과 같은 문제가 있다. 즉, 공업적으로 폴리머 필름을 연신하는 경우, 필름에 연신 처리를 실시하면서, 동시에 그 필름을 길이방향으로 이동시켜 롤로 감는 것이 일반적이다. 그리고, 이와 같이 롤로 감은 복굴절 필름과 롤로 감은 편광 필름을 부착하는 경우, 각 필름의 길이방향을 일정하게 한 상태에서 양자를 부착하면서 다시 롤로 감으면, 연속적인 부착을 실현할 수 있다. 이 때문에, 상기 양 필름을, 상기 투과축과 상기 지상축을 평행하게 배치하면서 연속적으로 접착하기 위해서는, 상기 편광 필름을 길이방향으로 연신시키는 것에 반해, 상기 복굴절 필름은 폭방향으로 연신시킬 필요가 있다. 즉, 편광 필름의 투과축 (연신방향과 수직방향) 의 방향과 복굴절 필름의 지상축 (연신방향) 의 방향을 각 필름의 폭방향에 설정하기 위해서는, 상기 복굴절 필름을 폭방향으로 연신시킬 필요가 있다는 것이다. 그러나, 상기 복굴절 필름의 제조에 있어서, 폴리머 필름을 폭방향으로 연속적으로 연신하면, 예를 들어 면내의 배향축이 부채모양으로 되는 즉 보잉 현상이 생기기 때문에, 폭방향의 연신에 의해 균일한 배향축이나 복굴절, 위상차를 발생시키기가 곤란하였다.

<5> 따라서, 폴리머 필름을 폭방향으로 연신하는 방법으로서, 일단 폭방향으로 연신한 후, 원래의 폭 위치에 되돌리는 완화 처리를 실시함으로써, 폭방향 (연신방향) 의 지상축의 균일성을 향상시키는 방법이 채용되어 있다. 그러나, 일반적으로 폴리머 필름은, 기재 상에 직접 형성된 후, 상기 기재와 함께 연신되기 때문에, 이 방법에서는 상기 기재의 물성치의 편차 등의 영향을 받거나, 또 폴리머 필름에 따라서는 완화 효과가 작은 것이 있기 때문에 공업적으로 안정적이고 균일한 복굴절 필름을 생산하기가 어렵다. 또한, 연신 후에 냉각함으로써 보잉 현상을 감소시키려는 시도도 있지만, 완전히 상기 보잉 현상을 회피하기는 불가능하다 (예를 들어 비특허문헌 1). 또한, 텐터 연신기의 척 사이에서, 폴리머 필름이 형성된 기재를 느슨하게 하여 상기 기재를 열수축하는 방법도 개시되어 있지만 (예를 들어 특허문헌 1), 상기 기재가 열수축성을 갖는 기재에 한정된다는 것이나, 기재의 두께가 지나치게 두꺼우면 상기 기재를 느슨하게 할 때에 주름이 발생하여 안정적으로 기재를 느슨하게 하기 곤란하다는 문제도 있다. 또한, 이들 외에도 연신 조건을 설정하는 방법, 예를 들어 연신 필름의 폭을 연신 배율의 평방근 (平方根) 으로 하는 방법 (예를 들어 특허문헌 2), 종연신에 수반되는 수축의 폭을 규정하는 방법 (예를 들어 특허문헌 3), 연신 후에 열완화시키는 방법 (예를 들어 특허문헌 4) 등이 개시되어 있지만, 공업적인 견지에서 안정적인 생산이 어렵다.

<6> 비특허문헌 1: T. Yamada 외. Intn. Polym. Process., Vo.X, Issue 4, 334-340 (1995)

<7> 특허문헌 1: 일본 공개특허공보 평6-51116호

<8> 특허문헌 2: 일본 공개특허공보 평3-23405호

<9> 특허문헌 3: 일본 공개특허공보 평2-191904호

<10> 특허문헌 4: 일본 공개특허공보 평5-249316호

**발명이 이루고자 하는 기술적 과제**

<11> 따라서, 본 발명의 목적은, 폴리머 필름을 폭방향으로 연신하여 복굴절 필름을 제조할 때에, 외관이 우수하고, 또한, 복굴절이나 위상차, 배향축각의 편차가 억제된 광학 특성의 균일성이 우수한 복굴절 필름의 제조 방법을 제공하는 것이다.

<12> 상기 목적을 달성하기 위해, 본 발명의 복굴절 필름의 제조 방법은, 상기 연신 공정에 있어서, 폴리머 필름을 폭방향으로 연신함과 동시에, 그 길이방향 (상기 폭방향에 대하여 수직방향) 으로 수축시키고, 연신 전의 폴리머 필름의 폭방향의 길이 및 길이방향의 길이에 기초하여, 상기 연신에 의한 폭방향의 길이의 변화 배율 (STD) 과, 상기 수축에 의한 길이방향의 길이의 변화 배율 (SMD) 의 관계가, 하기 식 (1) 을 만족하는 것을 특징으로 한다. 또, 본 발명에 있어서, 상기 연신에 의한 폭방향의 길이의 변화 배율 (STD) 과, 상기 수축에 의한 길이방향의 길이의 변화 배율 (SMD) 이, 연신 전의 폴리머 필름의 폭방향의 길이 및 길이방향의 길이를 각각 1로 한 경우에 기초하는 것이어도 된다.

<13> 
$$(1/STD)^{1/2} \leq SMD < 1 \quad \dots (1)$$

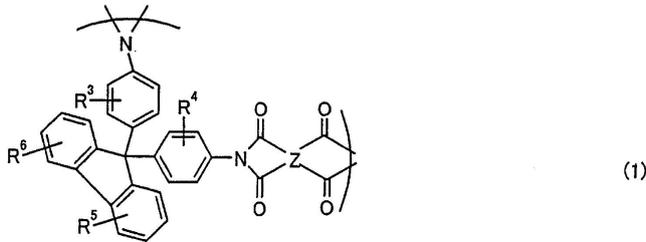
**발명의 구성 및 작용**

- <14> 본 발명의 복굴절 필름의 제조 방법은, 전술한 바와 같이, 상기 연신 공정에 있어서, 폴리머 필름을 폭방향으로 연신함과 동시에, 그 길이방향으로 수축시키고, 연신 전의 폴리머 필름의 폭방향의 길이 및 길이방향의 길이를 각각 1 로 한 경우에 있어서, 상기 연신에 의한 폭방향의 길이의 변화 배율 (STD) 과 상기 수축에 의한 길이방향의 길이의 변화 배율 (SMD) 이 하기 식 (1) 을 만족하는 것을 특징으로 한다. 또한, 본 발명에 있어서 길이방향이란 폴리머 필름이 직사각형인 경우에 양단의 거리가 긴 방향을 나타내고, 폭방향은 상기 길이방향과 수직인 방향을 나타낸다. 또한, 폴리머 필름이 정사각형인 경우에는 양 방향이 수직이 되는 방향이면 된다.
- <15>  $(1/STD)^{1/2} \leq SMD < 1 \quad \dots(1)$
- <16> 「SMD=1」, 즉 길이방향의 치수가 변화하지 않는 경우, 보잉 현상의 발생이라는 문제를 해결할 수 없고, 「 $(1/STD)^{1/2} > SMD$ 」가 되면, 폭방향에 주름이 발생한다는 외관상의 문제가 있다.
- <17> 상기 식 (1) 에 있어서,  $SMD=(1/STD)^{1/2}$  가 바람직하다. 또한, SMD 는, 구체적으로, 0.99 미만이 바람직하고, 보다 바람직하게는 0.85~0.95 이고, 특히 바람직하게는 0.88~0.93 이다. 또한, 상기 식 (1) 에 있어서  $(1/STD)^{1/2}$  은, 바람직하게는 0.99 미만이 되고, 보다 바람직하게는 0.85~0.95, 특히 바람직하게는 0.88~0.93 이고, 즉, STD 는 1.5 미만이 바람직하고, 보다 바람직하게는 1.01 이상 1.5 미만, 특히 바람직하게는 1.1~1.3 이다. 구체적으로는, STD 가 1.2 인 경우에, SMD 가 0.9~0.92 인 것이 바람직하고, STD 가 1.3 인 경우에, SMD 가 0.86~0.90 인 것이 바람직하다. 본 발명의 바람직한 조건으로서, 상기 식 (1) 에 있어서  $SMD=(1/STD)^{1/2}$  의 경우, 폴리머 필름의 3 차원의 변화 배율은, 예를 들어 길이방향이  $SMD=(1/STD)^{1/2}$ , 폭방향이 STD, 두께방향이  $(1/STD)^{1/2}$  가 되는 것으로 추측된다.
- <18> 전술한 바와 같이 동시에 실시하는 연신 처리와 수축 처리는, 상기 폴리머 필름에 직접 실시할 수 있다. 또한, 상기 폴리머 필름을 기재 상에 배치하고, 상기 기재에 연신 처리 및 수축 처리를 동시에 실시함으로써 상기 폴리머 필름에 간접적으로 실시해도 되고, 상기 기재와 폴리머 필름의 적층체에 동시에 실시해도 된다.
- <19> 상기 폴리머 필름으로는, 특별히 제한되지 않고, 복굴절 필름의 형성 재료로서 사용되는 종래 공지의 폴리머계 필름을 사용할 수 있다. 상기 폴리머로는, 예를 들어 폴리카보네이트; 폴리알릴레이트; 폴리술폰; 폴리에틸렌테레프탈레이트 (PET), 폴리에틸렌나프탈레이트 등의 폴리에스테르; 폴리에테르술폰; 폴리비닐알코올; 폴리에틸렌, 폴리프로필렌 등의 폴리올레핀; 셀룰로오스계 폴리머; 폴리스티렌, 폴리메타크릴레이트; 폴리염화비닐; 폴리염화비닐리덴; 폴리아미드; 노르보르넨계 폴리머; 이소부텐과 N-메틸말레이미드로 이루어지는 교호 (交互) 공중합체와 아크릴로니트릴·스티렌 공중합체를 함유하는 혼합물 등을 들 수 있다.
- <20> 상기 폴리머 필름은, 예를 들어 광투과성인 것이 바람직하고, 예를 들어 그 광투과율이 85% 이상인 것이 바람직하고, 보다 바람직하게는 90% 이다. 또한, 배향 불균일이 적은 것이 바람직하다.
- <21> 기재 상에 직접 폴리머 필름을 형성하는 경우에는, 예를 들어 이하에 나타내는 바와 같은 비액정성 폴리머를 사용하는 것도 바람직하다. 상기 비액정성 폴리머를 사용하면, 예를 들어 기재의 배향성에 관계없이 도포하는 것만으로 그 자체의 성질에 의해 광학적으로 부(負)의 1 축성 ( $n_x > n_z$ ), ( $n_y > n_z$ ) 을 나타내는 복굴절성 폴리머 필름을 형성할 수 있고, 또한 연신 처리함으로써, 광학 특성을 부의 2 축성 ( $n_x > n_y > n_z$ ) 으로 변화시킬 수 있다. 이 때문에, 복굴절이나 위상차를 한층 더 조정하기 쉽고, 또한 상기 기재가 배향 기재에 한정되는 경우도 없다. 또한,  $n_x$ ,  $n_y$  및  $n_z$  는, 각각 상기 폴리머 필름의 X 축 (지상축), Y 축 및 Z 축 방향의 굴절률을 나타내고, 상기 X 축 방향이란 상기 폴리머 필름의 면내에서 최대의 굴절률을 나타내는 축방향이고, Y 축방향은 상기 면내에서 상기 X 축에 대하여 수직한 축방향이고, Z 축은 상기 X 축 및 Y 축에 수직한 두께방향을 나타낸다.
- <22> 상기 비액정성 폴리머로는, 예를 들어 내열성, 내약품성, 투명성이 우수하고, 강성도 풍부하는 점에서, 폴리아미드, 폴리이미드, 폴리에스테르, 폴리에테르케톤, 폴리아릴에테르케톤, 폴리아미드이미드, 폴리에스테르이미드 등의 폴리머가 바람직하다. 이들 폴리머는, 임의의 1 종류를 단독으로 사용해도 되고, 예를 들어 폴리아릴에테르케톤과 폴리아미드의 혼합물과 같이, 상이한 관능기를 갖는 2 종 이상의 혼합물로서 사용해도 된다. 이러한 폴리머 중에서도, 높은 복굴절성이 얻어진다는 점에서 폴리이미드 등이 바람직하다.

<23> 상기 폴리머의 분자량은 특별히 제한되지 않지만, 예를 들어 중량평균 분자량 (Mw) 이 1,000~1,000,000 의 범위인 것이 바람직하고, 보다 바람직하게는 2,000~500,000 의 범위이다.

<24> 상기 폴리이미드로는, 예를 들어 면내 배향성이 높고, 유기용제에 가용인 폴리이미드가 바람직하다. 구체적으로는, 예를 들어 일본 특허공표공보 2000-511296호에 개시된, 9,9-비스(아미노아릴)플루오렌과 방향족 테트라카르복시산 2무수물과의 축합 중합 생성물, 구체적으로는, 하기 식 (1) 에 나타내는 반복 단위를 1 개 이상 포함한 폴리머를 사용할 수 있다.

<25> [화학식 1]

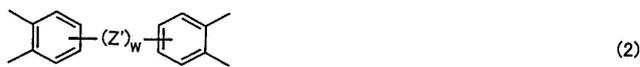


<26>

<27> 상기 식 (1) 중, R<sup>3</sup>~R<sup>6</sup> 은, 수소, 할로젠, 페닐기, 1~4 개의 할로젠원자 또는 C<sub>1</sub>~C<sub>10</sub> 알킬기로 치환된 페닐기, 및 C<sub>1</sub>~C<sub>10</sub> 알킬기로 이루어지는 군에서 각각 독립적으로 선택되는 1 종류 이상의 치환기이다. 바람직하게는, R<sup>3</sup>~R<sup>6</sup> 은, 할로젠, 페닐기, 1~4 개의 할로젠원자 또는 C<sub>1</sub>~C<sub>10</sub> 알킬기로 치환된 페닐기, 및 C<sub>1</sub>~C<sub>10</sub> 알킬기로 이루어지는 군에서 각각 독립적으로 선택되는 1 종류 이상의 치환기이다.

<28> 상기 식 (1) 중, Z 는, 예를 들어 C<sub>6</sub>~C<sub>20</sub> 의 4 가 방향족 기이고, 바람직하게는, 피로멜리트기, 다환식 방향족기, 다환식 방향족기의 유도체, 또는 하기 식 (2) 로 나타내는 기이다.

<29> [화학식 2]



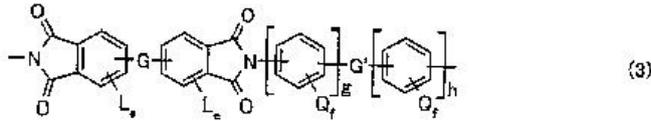
<30>

<31> 상기 식 (2) 중, Z' 는, 예를 들어 공유 결합, C(R<sup>7</sup>)<sub>2</sub> 기, CO 기, O 원자, S 원자, SO<sub>2</sub> 기, Si(C<sub>2</sub>H<sub>5</sub>)<sub>2</sub> 기, 또는 NR<sup>8</sup> 기이고, 복수의 경우, 각각 동일하거나 또는 상이하다. 또한, w 는, 1 내지 10 까지의 정수를 나타낸다. R<sup>7</sup> 은, 각각 독립적으로, 수소 또는 C(R<sup>9</sup>)<sub>3</sub> 이다. R<sup>8</sup> 은, 수소, 탄소원자수 1~약 20 의 알킬기, 또는 C<sub>6</sub>~C<sub>20</sub> 아릴기이고, 복수인 경우, 각각 동일하거나 또는 상이하다. R<sup>9</sup> 는, 각각 독립적으로 수소, 불소, 또는 염소이다.

<32> 상기 다환식 방향족기로는, 예를 들어 나프탈렌, 플루오렌, 벤조플루오렌 또는 안트라센으로부터 유도되는 4 가의 기를 들 수 있다. 또한, 상기 다환식 방향족기의 유도체로는, 예를 들어 C<sub>1</sub>~C<sub>10</sub> 의 알킬기, 그 불소화 유도체, 및 F 나 Cl 등의 할로젠으로 이루어지는 군에서 선택되는 하나 이상의 기로 치환된 상기 다환식 방향족기를 들 수 있다.

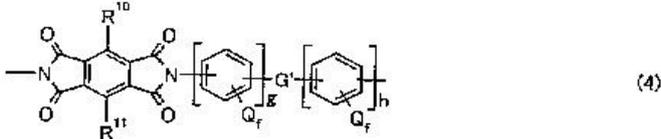
<33> 이밖에, 예를 들어 일본 특허공표공보 평8-511812호에 기재된 반복 단위가 하기 일반식 (3) 또는 (4) 로 표시되는 호모 폴리머나, 반복 단위가 하기 일반식 (5) 로 표시되는 폴리이미드 등을 들 수 있다. 또한, 하기 식 (5) 의 폴리이미드는, 하기 식 (3) 의 호모 폴리머의 바람직한 형태이다.

<34> [화학식 3]



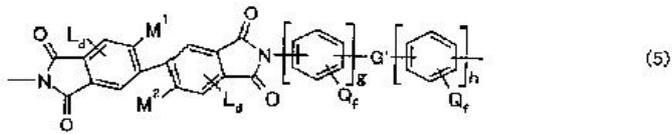
<35>

<36> [화학식 4]



<37>

<38> [화학식 5]



<39>

<40> 상기 일반식 (3) ~ (5) 중, G 및 G' 는, 예를 들어 공유 결합, CH<sub>2</sub> 기, C(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub> 기, C(CF<sub>3</sub>)<sub>2</sub> 기, C(CX<sub>3</sub>)<sub>2</sub> 기 (여기서, X 는 할로젠이다), CO 기, O 원자, S 원자, SO<sub>2</sub> 기, Si(CH<sub>2</sub>CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub> 기, 및 N(CH<sub>3</sub>) 기로 이루어지는 군에서 각각 독립적으로 선택되는 기를 나타내고, 각각 동일하거나 상이할 수도 있다.

<41> 상기 식 (3) 및 식 (5) 중, L 은 치환기이고, d 및 e 는 그 치환수를 나타낸다. L 은, 예를 들어 할로젠, C<sub>1</sub>~C<sub>3</sub> 알킬기, C<sub>1</sub>~C<sub>3</sub> 할로겐화 알킬기, 페닐기, 또는 치환 페닐기이고, 복수의 경우, 각각 동일하거나 또는 상이하다. 상기 치환 페닐기로는, 예를 들어 할로젠, C<sub>1</sub>~C<sub>3</sub> 알킬기, 및 C<sub>1</sub>~C<sub>3</sub> 할로겐화 알킬기로 이루어지는 군에서 선택되는 1 종류 이상의 치환기를 갖는 치환 페닐기를 들 수 있다. 또한, 상기 할로젠으로는, 예를 들어 불소, 염소, 브롬 또는 요오드를 들 수 있다. d 는 0 내지 2 까지의 정수이고, e 는 0 내지 3 까지의 정수이다.

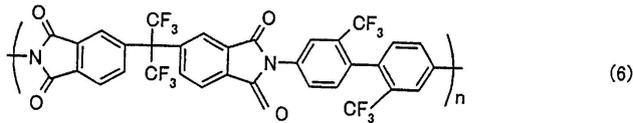
<42> 상기 식 (3) ~ (5) 중, Q 는 치환기이고, f 는 그 치환수를 나타낸다. Q 로는, 예를 들어 수소, 할로젠, 알킬기, 치환 알킬기, 니트로기, 시아노기, 티오알킬기, 알콕시기, 아릴기, 치환 아릴기, 알킬에스테르기, 및 치환 알킬에스테르기로 이루어지는 군에서 선택되는 원자 또는 기이고, Q 가 복수인 경우, 각각 동일하거나 또는 상이하다. 상기 할로젠으로는, 예를 들어 불소, 염소, 브롬 및 요오드를 들 수 있다. 상기 치환 알킬기로는, 예를 들어 할로겐화 알킬기를 들 수 있다. 또한 상기 치환 아릴기로는, 예를 들어 할로겐화 아릴기를 들 수 있다. f 는 0 내지 4 까지의 정수이고, g 및 h 는 각각 0 내지 3 및 1 내지 3 까지의 정수이다. 또한, g 및 h 는 1 보다 큰 것이 바람직하다.

<43> 상기 식 (4) 중, R<sup>10</sup> 및 R<sup>11</sup> 은, 수소, 할로젠, 페닐기, 치환 페닐기, 알킬기, 및 치환 알킬기로 이루어지는 군에서 각각 독립적으로 선택되는 기이다. 그 중에서도, R<sup>10</sup> 및 R<sup>11</sup> 은, 각각 독립적으로 할로겐화 알킬기인 것이 바람직하다.

<44> 상기 식 (5) 중, M<sup>1</sup> 및 M<sup>2</sup> 는 동일하거나 또는 상이하고, 예를 들어 할로젠, C<sub>1</sub>~C<sub>3</sub> 알킬기, C<sub>1</sub>~C<sub>3</sub> 할로겐화 알킬기, 페닐기, 또는 치환 페닐기이다. 상기 할로젠으로는, 예를 들어 불소, 염소, 브롬 및 요오드를 들 수 있다. 또한, 상기 치환 페닐기로는, 예를 들어 할로젠, C<sub>1</sub>~C<sub>3</sub> 알킬기, 및 C<sub>1</sub>~C<sub>3</sub> 할로겐화 알킬기로 이루어지는 군에서 선택되는 1 종류 이상의 치환기를 갖는 치환 페닐기를 들 수 있다.

<45> 상기 식 (3) 에 나타내는 폴리이미드의 구체예로는, 예를 들어 하기 식 (6) 으로 나타내는 것 등을 들 수 있다.

<46> [화학식 6]



<47>

<48> 또한, 상기 폴리이미드로는, 예를 들어 전술한 바와 같은 골격 (반복 단위) 이외의 산 2 무수물이나 디아민을 적절히 공중합시킨 코폴리머를 들 수 있다.

<49> 상기 산 2 무수물로는, 예를 들어 방향족 테트라카르복시산 2 무수물을 들 수 있다. 상기 방향족 테트라카르복시산 2 무수물로는, 예를 들어 피로멜리트산 2 무수물, 벤조페논테트라카르복시산 2 무수물, 나프탈렌테트라카르복시산 2 무수물, 복소환식 방향족 테트라카르복시산 2 무수물, 2,2'-치환 비페닐테트라카르복시산 2 무수물 등을 들 수 있다.

<50> 상기 피로멜리트산 2 무수물로는, 예를 들어 피로멜리트산 2 무수물, 3,6-디페닐피로멜리트산 2 무수물, 3,6-비스(트리플루오로메틸)피로멜리트산 2 무수물, 3,6-디브로모피로멜리트산 2 무수물, 3,6-디클로로피로멜리트산 2 무수물 등을 들 수 있다. 상기 벤조페논테트라카르복시산 2 무수물로는, 예를 들어 3,3',4,4'-벤조페논테트라카르복시산 2 무수물, 2,3,3',4'-벤조페논테트라카르복시산 2 무수물, 2,2',3,3'-벤조페논테트라카르복시산 2 무수물 등을 들 수 있다. 상기 나프탈렌테트라카르복시산 2 무수물로는, 예를 들어 2,3,6,7-나프탈렌-테트라카르복시산 2 무수물, 1,2,5,6-나프탈렌-테트라카르복시산 2 무수물, 2,6-디클로로나프탈렌-1,4,5,8-테트라카르복시산 2 무수물 등을 들 수 있다. 상기 복소환식 방향족 테트라카르복시산 2 무수물로는, 예를 들어 티오펜-2,3,4,5-테트라카르복시산 2 무수물, 피라진-2,3,5,6-테트라카르복시산 2 무수물, 피리딘-2,3,5,6-테트라카르복시산 2 무수물 등을 들 수 있다. 상기 2,2'-치환 비페닐테트라카르복시산 2 무수물로는, 예를 들어 2,2'-디브로모-4,4',5,5'-비페닐테트라카르복시산 2 무수물, 2,2'-디클로로-4,4',5,5'-비페닐테트라카르복시산 2 무수물, 2,2'-비스(트리플루오로메틸)-4,4',5,5'-비페닐테트라카르복시산 2 무수물 등을 들 수 있다.

<51> 또한, 상기 방향족 테트라카르복시산 2 무수물의 그 밖의 예로는, 3,3',4,4'-비페닐테트라카르복시산 2 무수물, 비스(2,3-디카르복시페닐)메탄 2 무수물, 비스(2,5,6-트리플루오로-3,4-디카르복시페닐)메탄 2 무수물, 2,2-비스(3,4-디카르복시페닐)-1,1,1,3,3,3-헥사플루오로프로판 2 무수물, 4,4'-비스(3,4-디카르복시페닐)-2,2-디페닐프로판 2 무수물, 비스(3,4-디카르복시페닐)에테르 2 무수물, 4,4'-옥시디프탈산 2 무수물, 비스(3,4-디카르복시페닐)술폰산 2 무수물, 3,3',4,4'-디페닐술폰테트라카르복시산 2 무수물, 4,4'-[4,4'-이소프로필리텐-디(p-페닐렌옥시)]비스(프탈산무수물), N,N-(3,4-디카르복시페닐)-N-메틸아민 2 무수물, 비스(3,4-디카르복시페닐)디에틸실란 2 무수물 등을 들 수 있다.

<52> 이들 중에서도, 상기 방향족 테트라카르복시산 2 무수물로는, 2,2'-치환 비페닐테트라카르복시산 2 무수물이 바람직하고, 보다 바람직하게는, 2,2'-비스(트리할로메틸)-4,4',5,5'-비페닐테트라카르복시산 2 무수물이고, 더욱 바람직하게는, 2,2'-비스(트리플루오로메틸)-4,4',5,5'-비페닐테트라카르복시산 2 무수물이다.

<53> 상기 디아민으로는, 예를 들어 방향족 디아민을 들 수 있고, 구체예로는, 벤젠디아민, 디아미노벤조페논, 나프탈렌디아민, 복소환식 방향족 디아민, 및 그 밖의 방향족 디아민을 들 수 있다.

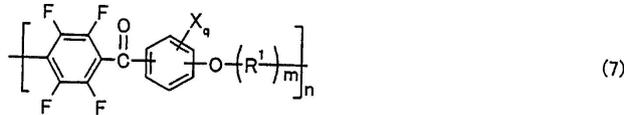
<54> 상기 벤젠디아민으로는, 예를 들어 o-, m- 및 p-페닐렌디아민, 2,4-디아미노톨루엔, 1,4-디아미노-2-메톡시벤젠, 1,4-디아미노-2-페닐벤젠 및 1,3-디아미노-4-클로로벤젠과 같은 벤젠디아민으로 이루어지는 군에서 선택되는 디아민 등을 들 수 있다. 상기 디아미노벤조페논의 예로는, 2,2'-디아미노벤조페논, 및 3,3'-디아미노벤조페논 등을 들 수 있다. 상기 나프탈렌디아민으로는, 예를 들어 1,8-디아미노나프탈렌, 및 1,5-디아미노나프탈렌 등을 들 수 있다. 상기 복소환식 방향족 디아민의 예로는, 2,6-디아미노피리딘, 2,4-디아미노피리딘, 및 2,4-디아미노-S-트리아진 등을 들 수 있다.

<55> 또한, 상기 방향족 디아민으로는, 이들 외에, 4,4'-디아미노비페닐, 4,4'-디아미노디페닐메탄, 4,4'-(9-플루오레닐리덴)-디아닐린, 2,2'-비스(트리플루오로메틸)-4,4'-디아미노비페닐, 3,3'-디클로로-4,4'-디아미노디페닐메탄, 2,2'-디클로로-4,4'-디아미노비페닐, 2,2',5,5'-테트라클로로벤지딘, 2,2-비스(4-아미노페녹시페닐)프로판, 2,2-비스(4-아미노페닐)프로판, 2,2-비스(4-아미노페닐)-1,1,1,3,3,3-헥사플루오로프로판, 4,4'-디아미노디페닐 에테르, 3,4'-디아미노디페닐 에테르, 1,3-비스(3-아미노페녹시)벤젠, 1,3-비스(4-아미노페녹시)벤젠, 1,4-비스(4-아미노페녹시)벤젠, 4,4'-비스(4-아미노페녹시)비페닐, 4,4'-비스(3-아미노페녹시)비페닐, 2,2-비스[4-(4-아

미노페녹시)페닐]프로판, 2,2-비스[4-(4-아미노페녹시)페닐]-1,1,1,3,3,3-헥사플루오로프로판, 4,4'-디아미노디페닐티오에테르, 4,4'-디아미노디페닐술폰 등을 들 수 있다.

<56> 상기 복굴절 필름의 형성 재료인 상기 폴리에테르케톤으로는, 예를 들어 일본 공개특허공보 2001-49110호에 기재된, 하기 일반식 (7) 로 나타내는 폴리아릴에테르케톤을 들 수 있다.

<57> [화학식 7]



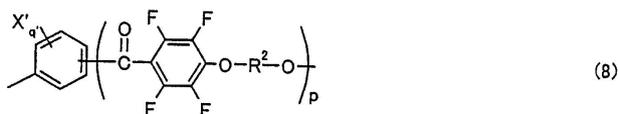
<58>  
<59> 상기 식 (7) 중, X 는 치환기를 나타내고, q 는 그 치환수를 나타낸다. X 는, 예를 들어 할로겐원자, 저급 알킬기, 할로겐화 알킬기, 저급 알콕시기, 또는, 할로겐화 알콕시기이고, X 가 복수인 경우, 각각 동일하거나 또는 상이하다.

<60> 상기 할로겐원자로는, 예를 들어 불소원자, 브롬원자, 염소원자 및 요오드원자를 들 수 있고, 이들 중에서도, 불소원자가 바람직하다. 상기 저급 알킬기로는, 예를 들어 C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub> 의 직쇄 또는 분기쇄를 갖는 저급 알킬기가 바람직하고, 보다 바람직하게는 C<sub>1</sub>~C<sub>4</sub> 의 직쇄 또는 분기쇄의 알킬기이다. 구체적으로는, 메틸기, 에틸기, 프로필기, 이소프로필기, 부틸기, 이소부틸기, sec-부틸기, 및 tert-부틸기가 바람직하고, 특히 바람직하게는 메틸기 및 에틸기이다. 상기 할로겐화 알킬기로는, 예를 들어 트리플루오로메틸기 등의 상기 저급 알킬기의 할로겐화물을 들 수 있다. 상기 저급 알콕시기로는, 예를 들어 C<sub>1</sub>~C<sub>6</sub> 의 직쇄 또는 분기쇄의 알콕시기가 바람직하고, 보다 바람직하게는 C<sub>1</sub>~C<sub>4</sub> 의 직쇄 또는 분기쇄의 알콕시기이다. 구체적으로는, 메톡시기, 에톡시기, 프로폭시기, 이소프로폭시기, 부톡시기, 이소부톡시기, sec-부톡시기, 및 tert-부톡시기가 더욱 바람직하고, 특히 바람직하게는 메톡시기 및 에톡시기이다. 상기 할로겐화 알콕시기로는, 예를 들어 트리플루오로메톡시기 등의 상기 저급 알콕시기의 할로겐화물을 들 수 있다.

<61> 상기 식 (7) 중, q 는 0 내지 4 까지의 정수이다. 상기 식 (7) 에 있어서는, q=0 이고, 또한 벤젠환의 양단에 결합된 카르보닐기와 에테르의 산소원자가 서로 파라위에 존재하는 것이 바람직하다.

<62> 또한, 상기 식 (7) 중, R<sup>1</sup> 은 하기 식 (8) 로 나타내는 기이고, m 은 0 또는 1 의 정수이다.

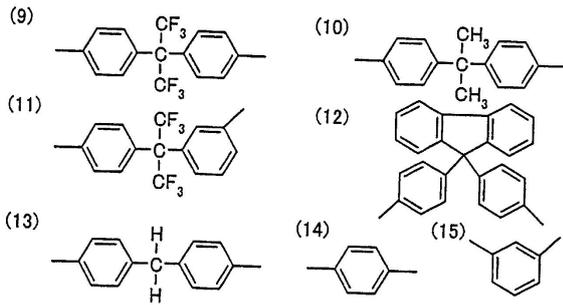
<63> [화학식 8]



<64>  
<65> 상기 식 (8) 중, X' 는 치환기를 나타내고, 예를 들어 상기 식 (7) 에 있어서의 X 와 동일하다. 상기 식 (8) 에 있어서, X' 가 복수인 경우, 각각 동일하거나 또는 상이하다. q' 는 상기 X' 의 치환수를 나타내고, 0 내지 4 까지의 정수이고, q'=0 이 바람직하다. 또한, p 는 0 또는 1 의 정수이다.

<66> 상기 식 (8) 중, R<sup>2</sup> 는 2 개의 방향족기를 나타낸다. 이 2 개의 방향족기로는, 예를 들어 o-, m- 또는 p-페닐렌기, 또는 나프탈렌, 비페닐, 안트라센, o-, m- 또는 p-테르페닐, 페난트렌, 디벤조푸란, 비페닐에테르, 또는 비페닐술폰으로부터 유도되는 2 개의 기 등을 들 수 있다. 이들 2 개의 방향족기에 있어서, 방향족에 직접 결합되어 있는 수소가 할로겐원자, 저급 알킬기 또는 저급 알콕시기로 치환되어도 된다. 이들 중에서도, 상기 R<sup>2</sup> 로는, 하기 식 (9)~(15) 로 이루어지는 군에서 선택되는 방향족기가 바람직하다.

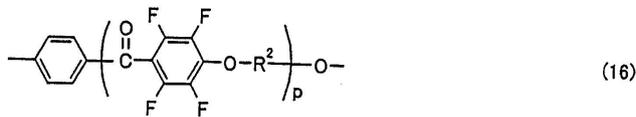
<67> [화학식 9]



<68>

<69> 상기 식 (7) 중, 상기 R<sup>1</sup> 로는, 하기 식 (16) 으로 나타내는 기가 바람직하고, 하기 식 (16) 에 있어서, R<sup>2</sup> 및 p 는 상기 식 (8) 과 동일한 의미이다.

<70> [화학식 10]

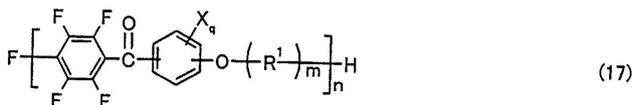


<71>

<72> 또한, 상기 식 (7) 중, n 은 중합도를 나타내고, 예를 들어 2~5000 의 범위이고, 바람직하게는 5~500 의 범위이다. 또한, 그 중합은 동일한 구조의 반복 단위로 이루어지는 것이어도 되고, 상이한 구조의 반복 단위로 이루어지는 것이어도 된다. 후자의 경우에는, 반복 단위의 중합 형태는, 블록 중합이어도 되고, 랜덤 중합이어도 된다.

<73> 또한, 상기 식 (7) 로 나타내는 폴리아릴에테르케톤의 말단은, p-테트라플루오로벤조일렌기측이 불소이고, 옥시알킬렌기측이 수소원자인 것이 바람직하고, 이러한 폴리아릴에테르케톤은 하기 일반식 (17) 로 나타낼 수 있다. 또한, 하기 식에 있어서, n 은 상기 식 (7) 과 동일한 중합도를 나타낸다.

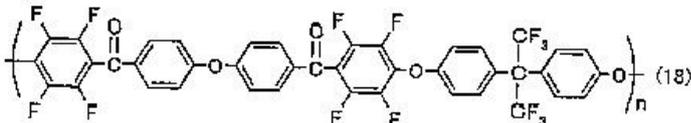
<74> [화학식 11]



<75>

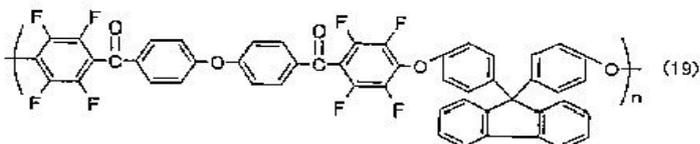
<76> 상기 식 (7) 로 나타내는 폴리아릴에테르케톤의 구체예로는, 하기 식 (18) ~ (21) 로 나타내는 것 등을 들 수 있고, 하기 각 식에 있어서, n 은 상기 식 (7) 과 동일한 중합도를 나타낸다.

<77> [화학식 12]



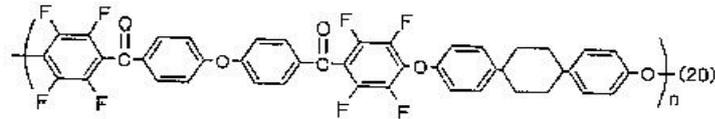
<78>

<79> [화학식 13]



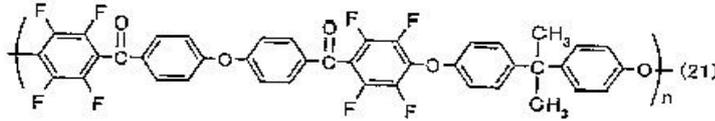
<80>

<81> [화학식 14]



<82>

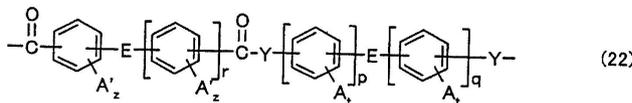
<83> [화학식 15]



<84>

<85> 또한, 이들 외에, 상기 복굴절 필름의 형성 재료인 상기 폴리아미드 또는 폴리에스테르로는, 예를 들어 일본 특허공표공보 평10-508048호에 기재되는 폴리아미드나 폴리에스테르를 들 수 있고, 이들의 반복 단위는, 예를 들어 하기 일반식 (22) 로 나타낼 수 있다.

<86> [화학식 16]



<87>

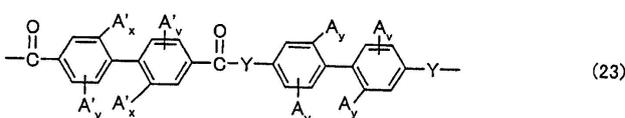
<88> 상기 식 (22) 중, Y 는 O 또는 NH 이다. 또한, E 는, 예를 들어 공유 결합, C<sub>2</sub> 알킬렌기, 할로젠화 C<sub>2</sub> 알킬렌기, CH<sub>2</sub> 기, C(CX<sub>3</sub>)<sub>2</sub> 기 (여기서, X 는 할로젠 또는 수소이다), CO 기, O 원자, S 원자, SO<sub>2</sub> 기, Si(R)<sub>2</sub> 기, 및 N(R) 기로 이루어지는 군에서 선택되는 1 종류 이상의 기이고, 각각 동일하거나 상이할 수도 된다. 상기 E 에 있어서, R 은 C<sub>1</sub>~C<sub>3</sub> 알킬기 및 C<sub>1</sub>~C<sub>3</sub> 할로젠화 알킬기 중 1 종류 이상이고, 카르보닐 관능기 또는 Y 기에 대하여 메타 위치 또는 파라 위치에 있다.

<89> 또한, 상기 (22) 중, A 및 A' 는 치환기이고, t 및 z 는 각각의 치환수를 나타낸다. 또한, p 는 0 내지 3 까지의 정수이고, q 는 1 내지 3 까지의 정수이고, r 은 0 내지 3 까지의 정수이다.

<90> 상기 A 는, 예를 들어 수소, 할로젠, C<sub>1</sub>~C<sub>3</sub> 알킬기, C<sub>1</sub>~C<sub>3</sub> 할로젠화 알킬기, OR (여기서, R 은 상기 정의한 것이다.) 로 나타내는 알콕시기, 아릴기, 할로젠화 등에 의한 치환 아릴기, C<sub>1</sub>~C<sub>9</sub> 알콕시카르보닐기, C<sub>1</sub>~C<sub>9</sub> 알킬 카르보닐옥시기, C<sub>1</sub>~C<sub>12</sub> 아릴옥시카르보닐기, C<sub>1</sub>~C<sub>12</sub> 아릴카르보닐옥시기 및 그 치환 유도체, C<sub>1</sub>~C<sub>12</sub> 아릴카르바모일기, 및 C<sub>1</sub>~C<sub>12</sub> 아릴카르보닐아미노기 및 그 치환 유도체로 이루어지는 군에서 선택되고, 복수인 경우, 각각 동일하거나 또는 상이하다. 상기 A' 는, 예를 들어 할로젠, C<sub>1</sub>~C<sub>3</sub> 알킬기, C<sub>1</sub>~C<sub>3</sub> 할로젠화 알킬기, 페닐기 및 치환 페닐기로 이루어지는 군에서 선택되고, 복수인 경우, 각각 동일하거나 또는 상이하다. 상기 치환 페닐기의 페닐환 상의 치환기로는, 예를 들어 할로젠, C<sub>1</sub>~C<sub>3</sub> 알킬기, C<sub>1</sub>~C<sub>3</sub> 할로젠화 알킬기 및 이들 조합을 들 수 있다. 상기 t 는 0 내지 4 까지의 정수이고, 상기 z 는 0 내지 3 까지의 정수이다.

<91> 상기 식 (22) 로 나타내는 폴리아미드 또는 폴리에스테르의 반복 단위 중에서도, 하기 일반식 (23) 으로 나타내는 것이 바람직하다.

<92> [화학식 17]



<93>

<94> 상기 식 (23) 중, A, A' 및 Y 는 상기 식 (22) 에서 정의한 것이고, v 는 0 내지 3 의 정수, 바람직하게는 0 내지 2 의 정수이다. x 및 y 는 각각 0 또는 1 이지만, 함께 0 인 경우는 없다.

- <95> 한편, 상기 기재로는, 연신 및 수축이 가능한 투광성의 폴리머 필름이 바람직하고, 특히 실용면에서, 연신에 의해서도 위상차가 발생하지 않는 것이 바람직하다. 특히 투명성이 우수한 폴리머 필름이면, 예를 들어 상기 기재와 상기 기재 상에 형성된 복굴절 필름을 적층체 그대로 광학 필름으로서 사용할 수도 있기 때문에 바람직하다. 또한, 상기 기재는, 전술한 바와 같은 길이방향의 수축을 원활하게 실시하기 위해, 미리 연신되어 있는 것이나 열수축성의 필름 등도 바람직하고, 이러한 기재의 형성 재료로는 예를 들어 열가소성 수지가 바람직하다.
- <96> 상기 기재의 형성 재료로는, 구체적으로는, 예를 들어 폴리에틸렌, 폴리프로필렌, 폴리(4-메틸펜텐-1) 등의 폴리올레핀, 폴리이미드, 폴리아미드이미드, 폴리아미드, 폴리에테르이미드, 폴리에테르에테르케톤, 폴리케톤술퍼드, 폴리에테르술폰, 폴리술폰, 폴리페닐렌술퍼드, 폴리페닐렌옥사이드, 폴리에틸렌테레프탈레이트, 폴리부틸렌테레프탈레이트, 폴리에틸렌나프탈레이트, 폴리아세탈, 폴리카보네이트, 폴리알릴레이트, 아크릴 수지, 폴리비닐알코올, 폴리프로필렌, 셀룰로오스계 플라스틱, 에폭시 수지, 페놀 수지 등, 트리아세틸셀룰로오스 (TAC) 등의 아세테이트 수지, 폴리에스테르 수지, 아크릴 수지, 폴리노르보르넨 수지, 셀룰로오스 수지, 폴리스티렌 수지, 폴리비닐알코올 수지, 폴리염화비닐 수지, 폴리염화비닐리덴 수지, 폴리아크릴 수지나, 이들 혼합물 등을 들 수 있고, 또한 액정 폴리머 등도 사용할 수 있다. 이들 중에서도, 예를 들어 내용제성이나 내열성의 면에서 폴리프로필렌, 폴리에틸렌테레프탈레이트, 폴리에틸렌나프탈레이트 등이 바람직하다. 또한, 예를 들어 일본 공개특허공보 평2001-343529호 (WO 01/37007호) 에 기재되어 있는 바와 같은, 측쇄에 치환 이미드기 또는 비치환 이미드기를 갖는 열가소성 수지와 측쇄에 치환 페닐기 또는 비치환 페닐기와 니트릴기를 갖는 열가소성 수지의 혼합물 등도 사용할 수 있다. 구체적으로는, 예를 들어 이소부텐과 N-메틸말레이미드로 이루어지는 교호 공중합체와 아크릴로니트릴·스티렌 공중합체를 갖는 수지 조성물 등이다. 이들 형성 재료 중에서도, 예를 들어 전술한 측쇄에 치환 이미드기 또는 비치환 이미드기를 갖는 열가소성 수지와 측쇄에 치환 페닐기 또는 비치환 페닐기와 니트릴기를 갖는 열가소성 수지의 혼합물이 바람직하다.
- <97> 다음에, 본 발명의 복굴절 필름의 제조 방법의 일례를 설명한다.
- <98> 우선, 연신·수축 처리하는 폴리머 필름을 준비한다. 상기 폴리머 필름의 두께는 특별히 제한되지 않고, 제조하는 복굴절 필름의 목적하는 위상차나, 상기 폴리머 필름의 재료 등에 따라서 적절히 결정할 수 있다. 일반적으로는, 예를 들어 5~500 $\mu$ m 의 범위이고, 바람직하게는 10~350 $\mu$ m 의 범위, 보다 바람직하게는 20~200 $\mu$ m 의 범위이다. 상기 범위이면, 연신·수축 처리에 있어서, 예를 들어 절단되는 일없이 충분한 강도를 나타낸다. 또한, 그 길이방향 및 폭방향의 길이는 특별히 제한되지 않고, 예를 들어 사용하는 연신기 등의 크기에 따라서 적절히 결정할 수 있다.
- <99> 이 폴리머 필름에 상기 식 (1) 의 조건을 만족하도록, 폭방향으로 연신 처리, 길이방향으로 수축 처리를 동시에 실시한다. 이와 같이 폭방향의 연신과 길이방향의 수축은 예를 들어 2 축 연신기를 사용하여 실시할 수 있고, 구체적으로는, 상기 연신과 수축을 자동적으로 실시할 수 있는 이치킨공업사 제조의 고기능 박막 장치 (상품명 FITZ) 등을 사용할 수 있다. 이 장치는, 종방향 (필름의 길이방향=필름의 진행방향) 의 연신 배율과 횡방향 (폭방향=필름의 진행방향과 수직방향) 의 연신 배율을 임의로 설정할 수 있고, 또 종방향 (길이방향) 의 수축 배율도 임의로 설정 가능하기 때문에, 연신 및 수축을 동시에 소정 조건으로 실시할 수 있다. 또한, 예를 들어 일반적으로 알려져 있는 레일 폭 제어 방식, 팬더그래프 방식, 리니어모터에 의한 주행 속도를 제어하는 방식 등을 적절히 조합함으로써, 폭방향의 연신 배율을 제어함과 함께 필름 단부를 사이에 끼운 클립의 간격을 변화시켜 길이방향의 길이를 제어하도록 한 2 축 연신기 등도 사용할 수 있다.
- <100> 상기 연신·수축 처리에 있어서의 온도는 특별히 한정되지 않고, 상기 폴리머 필름의 종류에 따라서 적절히 결정할 수 있지만, 예를 들어 상기 폴리머 필름의 유리전이온도에 맞춰 설정하는 것이 바람직하다. 예를 들어 유리전이온도 $\pm 30^{\circ}\text{C}$  의 범위인 것이 바람직하고, 보다 바람직하게는 유리전이온도 $\pm 20^{\circ}\text{C}$  의 범위, 특히 바람직하게는 상기 유리전이온도 $\pm 10^{\circ}\text{C}$  의 범위이다.
- <101> 이러한 제조 방법에 의해, 상기 폴리머 필름으로부터 본 발명의 복굴절 필름을 얻을 수 있고, 이 복굴절 필름은, 복굴절, 위상차, 배향축 등의 특성, 특히 폭방향에서의 이들 특성의 균일성이 우수한 필름이 된다. 또한, 복굴절 필름의 복굴절이나 위상차의 값은, 예를 들어 사용하는 폴리머 필름의 재료나 연신 배율 등에 따라 다르지만, 상기 식 (1) 에 나타낸 조건에 따라서 제조하면, 복굴절이나 위상차의 크기에 상관없이, 그 균일성이 우수한 것이 된다.
- <102> 상기 복굴절 필름은, 면내의 위상차값 「(nx-ny)·d」의 정밀도, 즉 위상차의 편차가, 예를 들어 -9~+9%의 범위가 바람직하고, 보다 바람직하게는 -8~+8% 이고, 더욱 바람직하게는 -7~+7% 이다. 또한, 두께방

향의 위상차값 「 $(n_x - n_z) \cdot d$ 」의 정밀도는, 예를 들어  $-7 \sim +7\%$ 의 범위가 바람직하고, 보다 바람직하게는  $-6 \sim +6\%$ 이고, 더욱 바람직하게는  $-5 \sim +5\%$ 이다. 또한, 각 위상차의 정밀도는 아래와 같이 하여 측정할 수 있다. 우선, 복굴절 필름의 길이방향의 중간점이고, 또한 그 폭방향에 있어서 등간격으로 8 등분했을 때, 말단을 제외한 7 점에서 면내의 위상차 및 두께방향의 위상차를 측정한다. 그리고 이들 평균치를 100%로 했을 때, 각 측정치와 평균치 차이를 면내의 위상차 및 두께방향의 위상차의 정밀도 (%)로서 산출한다.

- <103> 본 발명의 복굴절 필름은, X 축방향 (지상축방향)에 있어서의 배향축 각도의 편차가  $5^\circ$  이하인 것이 바람직하고, 보다 바람직하게는  $4^\circ$  이하이다. 전술한 방법에 의하면, 축 각도의 편차를 이러한 범위로 제어할 수 있기 때문에, 굴절률의 균일화를 향상시킬 수 있다. 상기 배향축 각도란, 지상축의 편차를 의미하고, 예를 들어 자동 복굴절계 (상품명 KOBRA-21ADH; 오우지계측기기사 제조)를 사용하여 자동 계산할 수 있으며, 상기 편차, 예를 들어 전술한 위상차와 동일하게 하여 복수점 (7 점)에 있어서 배향축 각도를 측정했을 때, 최대값과 최소값의 차이로 나타낼 수 있다. 또한, 본 발명에 있어서는, 변화 배율이 큰 폭방향이 지상축방향이 된다.
- <104> 얻어지는 복굴절 필름의 두께는, 사용하는 폴리머 필름의 두께나 연신 배율 등에 따라 다르지만, 일반적으로  $5 \sim 500\mu\text{m}$ 의 범위이고, 바람직하게는  $10 \sim 350\mu\text{m}$ 의 범위이고, 보다 바람직하게는  $20 \sim 200\mu\text{m}$ 의 범위이다.
- <105> 또한, 이러한 제조 방법에 한정되지 않고, 예를 들어 기재 상에 전술한 비액정성 폴리머로 이루어지는 폴리머 필름을 형성하고, 이 적층체에 연신·수축 처리를 동시에 실시해도 된다. 이 경우, 후술하는 바와 같이 기재와 상기 폴리머 필름을 함께 연신·수축해도 되고, 상기 적층체 중, 상기 기재만을 연신·수축함으로써 간접적으로 상기 폴리머 필름을 처리해도 된다. 또한, 기재로부터 폴리머 필름을 박리한 후, 상기 폴리머 필름에만 처리할 수도 있다.
- <106> 이와 같이 기재 상에 폴리머 필름을 직접 형성한 경우의 일례를 이하에 나타낸다. 우선, 폴리머 필름의 형성 재료를 용제에 분산 또는 용해하여 도포액을 조제한다. 상기 도포액에 있어서의 형성 재료의 농도는 특별히 제한되지 않지만, 예를 들어 도포하기 용이한 점도로 된다는 점에서, 상기 형성 재료 0.5~50중량%인 것이 바람직하고, 보다 바람직하게는 1~40중량%, 특히 바람직하게는 2~30중량%이다. 구체적으로, 상기 형성 재료가 비액정성 폴리머인 경우, 상기 폴리머의 첨가량은, 용제 100중량부에 대하여, 예를 들어 상기 형성 재료 5~50중량부인 것이 바람직하고, 보다 바람직하게는 10~40중량부이다.
- <107> 상기 용제는, 특별히 제한되지 않고 형성 재료에 따라 적절히 선택할 수 있지만, 예를 들어 상기 형성 재료를 용해할 수 있고, 기재가 잘 침식되지 않는 것이 바람직하다. 구체적으로는, 예를 들어 클로로포름, 디클로로메탄, 4염화탄소, 디클로로에탄, 테트라클로로에탄, 트리클로로에틸렌, 테트라클로로에틸렌, 클로로벤젠, 오르소디클로로벤젠 등의 할로젠화 탄화수소류, 페놀, 파라클로로페놀 등의 페놀류, 벤젠, 톨루엔, 자일렌, 메톡시벤젠, 1,2-디메톡시벤젠 등의 방향족 탄화수소류, 아세톤, 메틸에틸케톤, 메틸이소부틸케톤, 시클로헥산, 시클로헥타논, 2-피롤리돈, N-메틸-2-피롤리돈과 같은 케톤계 용제, 아세트산에틸, 아세트산부틸 등의 에스테르계 용제, t-부틸알코올, 글리세린, 에틸렌글리콜, 트리에틸렌글리콜, 에틸렌글리콜모노메틸에테르, 디에틸렌글리콜디메틸에테르, 프로필렌글리콜, 디프로필렌글리콜, 2-메틸-2,4-펜탄디올 등의 알코올계 용제, 디메틸포름아미드, 디메틸아세트아미드 등의 아미드계 용제, 아세토니트릴, 부티로니트릴 등의 니트릴계 용제, 디에틸에테르, 디부틸에테르, 테트라히드로푸란과 같은 에테르계 용제, 2 황화탄소, 에틸셀로솔브, 부틸셀로솔브, 황산 등을 사용할 수 있다. 또한, 이들 용제는 단독으로 사용해도 되고, 2 종류 이상을 혼합하여 사용할 수도 있다.
- <108> 상기 도포액에는, 예를 들어 필요에 따라 추가로 계면활성제, 안정제, 가소제, 금속류 등의 각종 첨가제를 배합해도 된다.
- <109> 또한, 상기 도포액은, 예를 들어 상기 형성 재료의 배향성 등이 현저하게 저하되지 않는 범위에서 상이한 기타 수지를 함유해도 된다. 상기 기타 수지로는, 예를 들어 각종 범용 수지, 엔지니어링 플라스틱, 열가소성 수지, 열경화성 수지 등을 들 수 있다.
- <110> 상기 범용 수지로는, 예를 들어 폴리에틸렌 (PE), 폴리프로필렌 (PP), 폴리스티렌 (PS), 폴리메틸메타크릴레이트 (PMMA), ABS 수지, 및 AS 수지 등을 들 수 있다. 상기 엔지니어링 플라스틱으로는, 예를 들어 폴리아세테이트 (POM), 폴리카보네이트 (PC), 폴리아미드 (PA:나일론), 폴리에틸렌테레프탈레이트 (PET), 및 폴리부틸렌테레프탈레이트 (PBT) 등을 들 수 있다. 상기 열가소성 수지로는, 예를 들어 폴리페닐렌술퍼드 (PPS), 폴리에테르술폰 (PES), 폴리케톤 (PK), 폴리이미드 (PI), 폴리시클로헥산디메탄올테레프탈레이트 (PCT), 폴리알릴레이

트 (PAR), 및 액정 폴리머 (LCP) 등을 들 수 있다. 상기 열경화성 수지로는, 예를 들어 에폭시 수지, 페놀 노볼락 수지 등을 들 수 있다. 이와 같이, 상기 기타 수지 등을 상기 도포액에 배합하는 경우, 그 배합량은, 예를 들어 상기 형성 재료에 대하여 0~50중량% 이고, 바람직하게는 0~30중량% 이다.

- <111> 계속해서, 조제한 상기 도포액을 기재 표면에 도포하여, 상기 형성 재료의 도포막을 형성한다. 상기 도포의 도포 방법으로는, 예를 들어 스핀 코트법, 롤 코트법, 프린트법, 침지 인상 (引上) 법, 커튼 코트법, 와이어바 코트법, 닥터 블레이드법, 나이프 코트법, 다이 코트법, 그라비아 코트법, 마이크로그라비아 코트법, 오프셋그라비아 코트법, 립 코트법, 스프레이 코트법 등을 들 수 있다. 또한, 도포에 있어서는, 필요에 따라 폴리머 층의 중첩 방식도 채용할 수 있다.
- <112> 상기 기재의 두께는 특별히 제한되지 않지만, 통상 10 $\mu$ m 이상이고, 10~200 $\mu$ m 의 범위가 바람직하고, 보다 바람직하게는 20~150 $\mu$ m 의 범위이고, 특히 바람직하게는 30~100 $\mu$ m 의 범위이다. 10 $\mu$ m 이상이면 후술하는 연신·수축 처리에 있어서 충분한 강도를 나타내기 때문에, 연신·수축 처리에 있어서의 불균일의 발생 등을 충분히 억제할 수 있다. 또한, 200 $\mu$ m 이하이면, 적절한 장력으로 연신 처리가 가능하기 때문에 바람직하다.
- <113> 그리고, 상기 기재 상에 형성된 도포막을 건조시킨다. 이 건조에 의해, 상기 형성 재료가 상기 기재 상에서 고정되어, 상기 기재 상에 폴리머 필름을 직접 형성할 수 있다.
- <114> 상기 건조 방법으로는 특별히 제한되지 않고, 예를 들어 자연 건조나 가열 건조를 들 수 있다. 그 조건도, 예를 들어 상기 형성 재료의 종류나, 상기 용제의 종류 등에 따라서 적절히 결정할 수 있는데, 온도는, 예를 들어 40 $^{\circ}$ C~250 $^{\circ}$ C 이고, 바람직하게는 50 $^{\circ}$ C~200 $^{\circ}$ C 이다. 또한, 도포막의 건조는, 예를 들어 일정 온도에서 실시해도 되고, 단계적으로 온도를 상승 또는 하강시키면서 실시해도 된다. 건조 시간도 특별히 제한되지 않고, 예를 들어 10초~60분, 바람직하게는 30초~30분이다.
- <115> 상기 건조 처리 후에 있어서, 상기 폴리머 필름 중에 잔존하는 상기 폴리머액의 용제는, 그 양에 비례하여 광학 특성을 경시적으로 변화시킬 우려가 있기 때문에, 그 잔존량은 예를 들어 5% 이하가 바람직하고, 보다 바람직하게는 2% 이하이고, 더욱 바람직하게는 0.2% 이하이다.
- <116> 상기 기재 상에 형성되는 폴리머 필름의 두께는 특별히 제한되지 않지만, 예를 들어 통상 0.5~10 $\mu$ m 로 설정하는 것이 바람직하고, 보다 바람직하게는 1~8 $\mu$ m, 특히 바람직하게는 1~7 $\mu$ m 이다.
- <117> 계속해서, 상기 기재 상에 형성된 폴리머 필름에 대해, 전술한 바와 같은 조건에 의해 연신·수축 처리를 동시에 실시한다. 이 경우, 예를 들어 상기 폴리머 필름만을 직접 연신·수축시켜도 되고, 상기 기재와 상기 폴리머 필름의 적층체를 함께 연신·수축시켜도 된다. 특히, 다음의 이유에서 상기 기재만을 처리하는 것이 바람직하다. 즉, 상기 기재만을 연신·수축한 경우, 상기 기재의 연신·수축에 동반하여 간접적으로 상기 기재 상의 폴리머 필름이 연신·수축된다. 통상적으로 적층체를 처리하는 것보다 단층체를 처리하는 쪽이 균일한 처리를 실시하기 쉽다. 따라서, 전술한 바와 같이 기재만을 처리하면, 상기 기재를 균일하게 연신·수축할 수 있고, 이에 따라서 상기 기재 상의 상기 폴리머 필름에 관해서도 균일하게 연신·수축할 수 있기 때문이다. 또한, 상기 기재로부터 폴리머 필름을 박리한 후에, 전술한 바와 같이 상기 폴리머 필름만을 처리할 수도 있다.
- <118> 본 발명의 복굴절 필름은, 전술한 바와 같이 기재 상에 형성한 경우, 예를 들어 상기 기재와의 적층체로서 사용해도 되고, 상기 기재로부터 박리한 단층체로서 사용할 수도 있다. 또한, 상기 기재 (이하, 「제 1 기재」라고 한다)로부터 박리한 후, 예를 들어 그 광학 특성을 방해하지 않는 기재 (이하, 「제 2 기재」라고 한다)에, 접착층을 사이에 두고 다시 적층 (전사) 하여 사용할 수도 있다.
- <119> 상기 제 2 기재로는, 적절한 평면성을 갖는 것이면 특별히 한정되지 않고, 예를 들어 유리나, 투명하고 광학적 등방성을 갖는 폴리머 필름 등이 바람직하다. 상기 폴리머 필름으로는, 예를 들어 폴리메타크릴레이트, 폴리아릴레이트, 폴리카보네이트, 폴리에테르술폰, 폴리페닐렌술폰, 폴리아릴레이트, 아몰퍼스 폴리올레핀, TAC, 에폭시 수지, 전술한 바와 같은 이소부텐/N-메틸말레이미드 공중합체와 아크릴로니트릴/스티렌 공중합체의 수지 조성물 등으로 형성된 필름을 들 수 있다. 이들 중에서도, 폴리메틸메타크릴레이트, 폴리카보네이트, 폴리아릴레이트, TAC, 폴리에테르술폰, 이소부텐/N-메틸말레이미드 공중합체와 아크릴로니트릴/스티렌 공중합체의 수지 조성물 등이 바람직하다. 또한, 광학적으로 이방성을 나타내는 기재라도 목적에 따라서 사용할 수 있다. 이러한 광학적 이방성의 기재로는, 예를 들어 폴리카보네이트폴리스티렌, 노르보르넨계 수지 등의 폴리머 필름을 연신한 위상차 필름이나 편광 필름 등을 들 수 있다.
- <120> 전술한 바와 같은 전사에서의 접착층으로는, 광학적 용도에 사용할 수 있으면 되고, 예를 들어 아크릴계, 에폭

시계, 우레탄계 등의 접착제나 점착제를 사용할 수 있다.

- <121> 다음으로, 본 발명의 광학 필름은, 전술한 바와 같은 본 발명의 복굴절 필름을 포함하고 있으면 되고, 예를 들어 전술한 바와 같은 기재를 구비하는 등, 그 구성은 제한되지 않는다.
- <122> 본 발명의 광학 필름은, 최외층에 추가로 점착제층을 갖는 것이 바람직하다. 이것에 의해, 예를 들어 본 발명의 광학 필름을 다른 광학층이나 액정셀 등의 타부재와 접착하는 것이 용이해지고, 본 발명의 광학 필름의 박리를 방지할 수 있기 때문이다. 또한, 상기 점착제층은, 본 발명의 광학 필름의 일면에만 배치해도 되고, 양면에 배치해도 된다.
- <123> 상기 점착층의 재료로는 특별히 제한되지 않지만, 예를 들어 아크릴계, 실리콘계, 폴리에스테르계, 고무계 등의 점착제를 사용할 수 있다. 또한, 이들 재료에, 미립자를 함유시켜 광확산성을 나타내는 층으로 해도 된다. 이들 중에서도, 예를 들어 흡습성이나 내열성이 우수한 재료가 바람직하다. 이러한 성질이면, 예를 들어 액정 표시 장치에 사용한 경우에, 흡습에 의한 발포나 박리, 열팽창차 등에 의한 광학 특성의 저하나, 액정셀의 휨 등을 방지할 수 있고, 고품질이면서 내구성도 우수한 표시 장치가 된다.
- <124> 본 발명의 광학 필름은, 전술한 바와 같이 본 발명의 복굴절 필름 단독이어도 되고, 또는 필요에 따라 다른 광학부재와 조합한 적층체어도 된다. 상기 다른 광학부재로는 특별히 제한되지 않고, 예를 들어 다른 복굴절 필름, 다른 위상차 필름, 액정 필름, 광산란 필름, 렌즈 시트, 회절 필름, 편광판 등을 들 수 있다.
- <125> 본 발명의 광학 필름이 상기 편광판을 포함하는 경우, 상기 편광판은 편광자만이어도 되고, 상기 편광자의 일면 또는 양면에 투명 보호층이 적층될 수도 있다.
- <126> 본 발명의 광학 필름은, 액정 표시 장치 등의 각종 장치의 형성에 사용하는 것이 바람직하고, 예를 들어 액정셀의 일측 또는 양측에 배치하여 액정 패널로 하여 액정 표시 장치에 사용할 수 있다. 또한, 광학 필름의 배치 방법은 특별히 제한되지 않고, 종래의 복굴절 필름을 포함하는 광학 필름과 동일하다.
- <127> \*액정 표시 장치를 형성하는 상기 액정셀의 종류는 임의로 선택할 수 있고, 예를 들어 박막 트랜지스터나 MIM 등의 액티브매트릭스 구동형, IPS 구동형, 플라즈마 어드레싱 구동형, 트위스트네마틱형이나 슈퍼트위스트네마틱형으로 대표되는 단순 매트릭스 구동형 등, 각종 타입의 액정셀을 사용할 수 있다. 구체적으로는, 예를 들어 STN (Super Twisted Nematic) 셀, TN (Twisted Nematic) 셀, IPS (In-Plane Switching) 셀, VA (Vertical Nematic) 셀, OCB (Optically Controlled Birefringence) 셀, HAN (Hybrid Aligned Nematic) 셀, ASM (Axially Symmetric Aligned Microcell) 셀, 강유전·반강유전 셀, 및 이들에 규칙적인 배향 분할을 실시한 것, 랜덤 배향 분할을 실시한 것 등을 들 수 있다.
- <128> 이러한 본 발명의 광학 필름을 구비하는 액정 표시 장치로는, 예를 들어 백라이트 시스템을 구비한 투과형, 반사판을 구비한 반사형, 투사형 등의 형태어도 된다.
- <129> 또한, 본 발명의 광학 필름은, 전술한 바와 같은 액정 표시 장치에는 한정되지 않고, 예를 들어 유기 일렉트로루미네선스 (EL) 디스플레이, PDP, FED 등의 자발광형 표시 장치에도 사용할 수 있다. 이 경우, 종래의 광학 필름을 대신하여 본 발명의 광학 필름을 사용하는 것 외에는 그 구성이 제한되지 않는다.
- <130> 이하, 실시예 및 비교예를 사용하여 본 발명을 더욱 구체적으로 설명하지만, 본 발명은 이하의 실시예에 한정되는 것은 아니다. 또한, 각종 특성에 대해서는 이하의 방법에 의해 측정을 하였다.
- <131> (복굴절률·위상차·축 각도 분포의 측정)
- <132> 자동 복굴절계 (상품명 KOBRA-21ADH; 오우지계측기기사 제조) 를 사용하여, 파장 590nm 에서의 값을 측정하였다.
- <133> (막두께 측정)
- <134> 순간 멀티 측광 시스템 (상품명 MCPD-2000; 오오쓰카전자사 제조) 을 사용하여 복굴절층의 막두께를 측정하였다.
- <135> 실시예 1
- <136> 고기능 박막 장치 (상품명 FITZ; 이치킨공업사 제조) 를 사용하여, 두께 68 $\mu$ m, 폭 330mm 의 미연신 폴리카보네이트 필름 (가네카후치화학공업사 제조) 을, 연속적으로 폭방향으로 연신하고 동시에 길이방향으로 수축시켜, 복굴절 필름을 형성하였다. 또한, 처리 온도는 160 $^{\circ}$ C, 폭방향의 STD 를 1.2 배, 상기 길이방향의 SMD 를

0.93 배로 하였다.  $(1/STD)^{1/2}$  는 0.913 이 되기 때문에, 상기 식 (1) 의 조건을 만족하고 있다. 이 복굴절 필름에 관해서, 폭방향의 배향축 각도의 편차, 면내 위상차 ( $\Delta nd=(n_x-n_y) \cdot d$ ) 및 그 편차, 두께방향 위상차 ( $R_{th}=(n_x-n_z) \cdot d$ ) 및 그 편차를 전술한 방법으로 측정하여, 주름이나 균열의 발생을 육안으로 관찰하였다.

이들 결과를 하기 표 2 에 나타낸다. 표 2 에 있어서의 배향축 각도의 편차란, 7 점 측정한 중의 최대 측정치와 최소 측정치와의 차를 나타낸다. 또한,  $n_x$ ,  $n_y$  및  $n_z$  는, 각각 상기 복굴절 필름의 X 축 (지상 축), Y 축 및 Z 축방향의 굴절률을 나타내고, 상기 X 축방향이란 상기 복굴절 필름의 면내에서 최대의 굴절률을 나타내는 축방향이고, Y 축방향은 상기 면내에서 상기 X 축에 대하여 수직인 축방향이고, Z 축은 상기 X 축 및 Y 축에 수직인 두께방향을 나타내고, d 는 복굴절 필름의 두께를 나타낸다.

<137> (비교예 1)

<138> 폭방향의 STD 를 1.2 배가 되도록 1 축 연신하고, 길이방향을 수축시키지 않은 것 외에는, 상기 실시예 1 과 동일하게 하여 복굴절 필름을 제조하고, 그 특성을 조사하였다. 이들 결과를 하기 표 2 에 나타낸다. 또한, SMD=1 이었다.

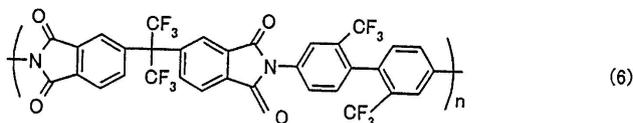
<139> (비교예 2)

<140> 폭방향의 STD 를 1.2 배, 길이방향의 SMD 를 0.9 배로 하고,  $(1/STD)^{1/2}$  를 0.913 으로 한 것 외에는, 상기 실시예 1 과 동일하게 하여 복굴절 필름을 제조하여, 그 특성을 동일하게 조사하였다. 이들 결과를 하기 표 2 에 나타낸다. 또한,  $(1/STD)^{1/2} > SMD$  이었다.

<141> 실시예 2

<142> 폴리머 필름의 형성 재료로서, 2,2'-비스(3,4-디카르복시페닐)헥사플루오로프로판산 2 무수물 (6 FDA) 및 2,2'-비스(트리플루오로메틸)-4,4'-디아미노비페닐 (PFMB) 을 사용하여, 하기 일반식 (6) 으로 나타내는 반복 단위로 구성되는 폴리이미드 ( $M_w=120000$ ) 를 합성하였다. 이 폴리이미드를 20중량% 가 되도록 MIBK 에 용해하여 폴리이미드 용액을 조제하고, 블레이드 코트법에 의해 TAC 필름 (상품명 TF80UL; 후지사진필름사 제조) (폭 400mm, 두께 40 $\mu$ m) 에 연속적으로 도포하였다. 이 도포막을 120 $^{\circ}$ C 에서 2분간 건조시킴으로써, 두께 6.0 $\mu$ m 의 폴리이미드 필름을 형성하였다. 이 폴리이미드 필름은, 광학적 1 축성 ( $n_x=n_y>n_z$ ) 의 복굴절을 나타내고, 면내 위상차 0.4nm, 두께방향 위상차 248nm 였다. 그리고, 기재와 폴리이미드 필름의 적층체를, 연속적으로 폭방향으로 연신하고 동시에 길이방향으로 수축시켜, 복굴절 필름을 형성하였다. 처리 온도는 160 $^{\circ}$ C, 폭방향의 STD 를 1.1 배, 길이방향의 SMD 를 0.97 배로 하였다.  $(1/STD)^{1/2}$  는 0.953 이 되기 때문에, 상기 식 (1) 의 조건을 만족하고 있다. 또한, 상기 기재는, 폭방향의 연신 및 길이방향의 수축에 의해서는 실질적인 위상차가 발생되어 있지 않았다. 이 복굴절 필름에 관해서, 상기 실시예 1 과 동일하게 각 특성을 조사하였다. 이들 결과를 하기 표 2 에 함께 나타낸다.

<143> [화학식 18]



<144>

<145> (비교예 3)

<146> 폭방향의 STD 를 1.1 배가 되도록 1 축 연신하고, 길이방향을 수축시키지 않은 것 외에는, 상기 실시예 2 와 동일하게 하여 복굴절 필름을 제조하고, 그 특성을 동일하게 조사하였다. 이들 결과를 하기 표 2 에 나타낸다. 또한, SMD=1 이었다.

<147> (비교예 4)

<148> 폭방향의 STD 를 1.1 배, 길이방향의 SMD 를 0.9 배로 하고,  $(1/STD)^{1/2}$  를 0.913 으로 한 것 외에는, 상기 실시예 2 와 동일하게 하여 복굴절 필름을 제조하고, 그 특성을 동일하게 조사하였다. 이들 결과를 하기 표 2 에 나타낸다. 또한,  $(1/STD)^{1/2} > SMD$  였다.

표 2

<149>

	배향축각 편차 (°)	$\Delta nd$ (nm)	$\Delta nd$ 편차 (%)	Rth (nm)	Rth 편차 (%)	외관
실시예1	3.6	218.6	$\pm 10.5$	284.8	$\pm 12.1$	이상없음
비교예1	20.6	173.7	$\pm 18.2$	394.1	$\pm 22.5$	이상없음
비교예2	8.1	235.1	$\pm 15.3$	301.4	$\pm 17.2$	주름발생
실시예2	2.3	49.7	$\pm 3.2$	250.7	$\pm 3.0$	이상없음
비교예3	11.3	50.9	$\pm 10.4$	309.2	$\pm 25.5$	이상없음
비교예4	4.3	63.0	$\pm 10.1$	261.4	$\pm 8.5$	주름발생

<150>

상기 표 2에 나타낸 바와 같이, 실시예 1은 상기 식 (1)의 조건을 만족하는 연신 및 수축을 실시하였기 때문에, 폭방향만의 연신을 실시한 비교예 1에 비해 배향축각,  $\Delta nd$  및 Rth의 각각의 편차를 극히 억제할 수 있었다. 또한, 연신 및 수축을 동시에 실시하고 있지만 그 조건이 상기 식 (1)을 만족하고 있지 않은 비교예 2는, 폭방향에 주름이 발생했음에 대하여, 실시예 1은 배향축각,  $\Delta nd$  및 Rth의 각각의 편차를 억제할 수 있었을 뿐만 아니라, 또 외관에 있어서도 우수하였다. 한편, 기재와 폴리이미드 필름과의 적층체를 사용한 실시예 2에 있어서도, 상기 식 (1)의 조건을 만족하는 연신 및 수축을 실시하였기 때문에, 폭방향만의 연신을 실시한 비교예 3에 비해, 배향축각,  $\Delta nd$  및 Rth의 각각의 편차를 극히 억제할 수 있었다. 또한, 연신 및 수축을 동시에 실시하고 있지만 그 조건이 상기 식 (1)을 만족하고 있지 않은 비교예 4는 폭방향에 주름이 발생했음에 대하여, 실시예 2는, 배향축각,  $\Delta nd$  및 Rth의 각각의 편차를 억제할 수 있었을 뿐만 아니라, 또 외관에 있어서도 우수하였다. 이러한 결과로부터, 본 발명의 제조 방법에 의해 제조된 복굴절 필름이면, 우수한 외관뿐 아니라, 배향축각, 면내 위상차, 두께방향 위상차 등의 편차가 억제된 광학 특성의 균일성이 우수하기 때문에, 액정 표시 장치를 비롯한 각종 화상 표시 장치의 표시 특성의 향상에 기여할 수 있다고 할 수 있다. 또한, 이와 같이 폭방향으로 연신을 하더라도, 외관 및 광학 특성이 우수하기 때문에, 예를 들어 전술한 바와 같이 복굴절 필름의 지상축과 편광 필름의 투과축을 평행 상태로 연속적으로 부착할 때에 특히 유용하다.

<151>

**산업상이용가능성**

<152>

이상과 같이, 폭방향의 연신 및 길이방향의 수축을 상기 식 (1)의 조건으로 실시함으로써, 외관이 우수하고, 복굴절률이나 면내방향 및 두께방향에서의 위상차가 균일하고, 광학 특성이 우수한 복굴절 필름을 얻을 수 있다. 이와 같이 광학 특성이 우수한 복굴절 필름은, 예를 들어 각종 광학 필름에 유용하고, 액정 표시 장치 등의 각종 화상 표시 장치에 적용하면, 우수한 표시 특성을 실현할 수 있다.

**발명의 효과**

<153>

이와 같이, 폴리머 필름을 폭방향으로 연신함과 동시에 길이방향으로 수축시키고, 또 상기 폭방향의 연신 정도와 길이방향의 수축 정도를 상기 식 (1)의 조건으로 설정함으로써, 외관이 우수하고, 면내 및 두께방향의 굴절률을 고도로 제어할 수 있으며, 또한, 복굴절, 위상차 및 배향축, 특히 폭방향의 배향축 정밀도가 균일한, 우수한 광학 특성을 갖는 복굴절 필름을 효율적으로 얻을 수 있다. 이러한 제조 방법에 의해 얻어진 복굴절 필름은, 그 특성으로부터, 예를 들어 액정 표시 장치 등과 같은 각종 화상 표시 장치의 표시 특성의 향상을 실현할 수 있고, 또한, 전술한 바와 같은 편광 필름과의 연속적인 부착이 가능하다는 점에서 공업적으로 매우 유용하다고 할 수 있다.

<154>

전술한 바와 같이 폭방향의 연신과 길이방향의 수축을 동시에 실시하고, 그 조건을 상기 식 (1)로 설정하는 것은, 본 발명자들이 예의 연구한 결과 처음으로 발견한 것이다. 즉, 본 발명자들은, 종래의 폭방향 연신에 의한 폴리머 필름의 변형과 종래의 길이방향 연신에 의한 폴리머 필름의 변형을 비교하여, 이들 변형이 하기 표 1에 나타낸 바와 같은 거동을 나타내는 것에 주목하였다. 또한, 하기 표 1은 폴리머 필름의 3차원(길이방향, 폭방향, 두께방향)에 있어서의 변화 배율을 나타내는 표로서, 상기 변화 배율은 미연신 폴리머 필름의 폭, 길이, 두께를 각각 「1」이라고 한 경우의 배율이고, 폭방향의 변화 배율을 STD, 길이방향의 변화 배율을 SMD로 한다. 즉, 하기 표 1에 나타낸 바와 같이, 종래의 폭방향 연신에서는 길이방향에 변형이 생기지 않기 때문에 이것이 하나의 원인이 되어 보잉 현상이 발생하는 것으로 생각되고, 한편 종래의 길이방향 연신에서는 일반적으로 폭방향 및 두께방향을 자유롭게 변형시키기 쉽다는 것에 주목한 것이다. 그리고, 예의 연구한 결과, 본 발명에 도달한 것이다.

표 1

<155>

	길이방향의 변형	폭방향의 변형	두께방향의 변형
종래: 폭방향 연신	1	STD	1/STD
종래: 길이방향 연신	SMD	$STD=(1/SMD)^{1/2}$	$(1/SMD)^{1/2}$
본 발명: 연신+수축	$(1/STD)^{1/2} \leq SMD$	STD	$(1/STD)^{1/2}$