



SCHWEIZERISCHE EIDGENOSSENSCHAFT
BUNDESAMT FÜR GEISTIGES EIGENTUM

① CH 649 850 A5

⑤ Int. Cl. 4: G 02 B 5/12
B 32 B 27/08

Erfindungspatent für die Schweiz und Liechtenstein
Schweizerisch-liechtensteinischer Patentschutzvertrag vom 22. Dezember 1978

⑫ PATENTSCHRIFT A5

<p>⑳ Gesuchsnummer: 9225/80</p>	<p>⑦③ Inhaber: The Mearl Corporation, Ossining/NY (US)</p>
<p>㉑ Anmeldungsdatum: 15.12.1980</p>	
<p>③⑩ Priorität(en): 26.12.1979 US 107351</p>	<p>⑦② Erfinder: Cooper, Scott, Yorktown Heights/NY (US) Shetty, Ramakrishna, White Plains/NY (US) Pinsky, Jules, Bloomfield/CT (US)</p>
<p>㉒ Patent erteilt: 14.06.1985</p>	
<p>④⑤ Patentschrift veröffentlicht: 14.06.1985</p>	<p>⑦④ Vertreter: Dietlin, Mohnhaupt & Cie, Genève</p>

⑤④ Licht reflektierende Mehrschichtfolie.

⑤⑦ Eine Licht reflektierende Mehrschichtfolie unter Verwendung von thermoplastischem Terephthalat-Polyester als die Systemkomponente mit hohem Brechungsindex, in einem System, in welchem zwei oder mehrere Harze eine Mehrzahl von Schichten bilden, wird beschrieben.

Die Folie liegt als transparente Folie aus thermoplastischem Kunststoff mit mindestens 10, bevorzugt 35 und mehr Einzelschichten mit praktisch gleichförmiger Dicke von je 30 bis 500 nm vor. Als Kunststoff mindestens einer Schicht liegen gegebenenfalls modifizierte Terephthalat-Polyester oder Copolyester vor, deren Brechungsindex im Gebiet von 1,55 bis 1,61 liegt, wobei sich unmittelbar benachbarte, einander berührende Schichten im Brechungsindex um mindestens 0,03 unterscheiden.

Die Folien erscheinen farbig und irisierend.

PATENTANSPRÜCHE

1. Licht reflektierende Mehrschichtfolie in Form einer durchsichtigen thermoplastischen Kunstharzfolie mit wenigstens zehn im wesentlichen parallelen Schichten von im wesentlichen gleichförmiger Dicke, wobei unmittelbar aneinanderliegende benachbarte Schichten aus voneinander verschiedenen durchsichtigen thermoplastischen Kunstharzmaterialien bestehen, dadurch gekennzeichnet, dass mindestens eine Schicht aus einem thermoplastischen, gegebenenfalls modifizierten Terephthalat-Polyester- oder -Copolyester-Harz mit einem Brechungsindex im Bereich von 1,55 bis 1,61 vorgesehen ist und das Kunstharzmaterial der jeweils unmittelbar anliegenden benachbarten Schicht einen um wenigstens 0,03 niedrigeren Brechungsindex besitzt, derart, dass unmittelbar aneinanderliegende benachbarte Schichten sich im Brechungsindex um wenigstens 0,03 unterscheiden.

2. Folie nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, dass sie wenigstens fünfunddreissig Schichten umfasst.

3. Folie nach Anspruch 1 oder 2, dadurch gekennzeichnet, dass sie wenigstens siebzig Schichten umfasst.

4. Folie nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass das Kunstharzmaterial der unmittelbar anliegenden benachbarten Schichten einen um wenigstens 0,06 niedrigeren Brechungsindex besitzt.

5. Folie nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass das Polyester- oder Copolyestermaterial ein Stoff aus der Gruppe Polyäthylenterephthalat und Copolyester von Cyclohexandimethanol und einer Terephthalsäure enthaltenden Säure ist.

6. Folie nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass das Polyesterharz Polybutylen-terephthalat ist.

7. Folie nach Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, dass das Kunstharz der benachbarten Schichten Polymethylmethacrylat ist.

8. Folie nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass die äussersten Schichten der Folie ein stoss-modifiziertes Acrylharz aufweisen und die Dicke jeder der äussersten Schichten etwa 5% der Gesamtdicke der Folie beträgt.

9. Folie nach Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, dass das stoss-modifizierte Acrylharz ein Terpolymer von Methylmethacrylat, Butadien und Acrylnitril, oder Methylmethacrylat, kombiniert mit einem Elastomer, ist.

10. Folie nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch gekennzeichnet, dass das Polyesterharz Polybutylen-terephthalat und das Harz anliegender Schichten Polymethylmethacrylat sind.

Die Erfindung betrifft eine lichtreflektierende Mehrschichtenfolie in Form einer durchsichtigen Folie aus thermoplastischem Kunstharz mit mindestens zehn im wesentlichen parallelen Schichten von praktisch gleichförmiger Dicke, wobei unmittelbar aneinanderliegende, benachbarte Schichten aus voneinander verschiedenen durchsichtigen thermoplastischen Kunstharzmaterialien bestehen.

Solche Folien, die an sich bekannt sind, können nach einem einheitlichen Extrusionsverfahren erhalten werden und haben infolge Lichtinterferenz ein schmales Reflexionsband.

Derartige Mehrschichtfolien und Verfahren zu ihrer Herstellung sind bekannt. Hierzu wird auf die folgenden US-Patentschriften verwiesen, die hier mit ihrem Offenbarungsgehalt in Bezug genommen werden: 3 328 003, 3 442 755, 3 448 183, 3 479 425, 3 480 502, 3 487 505, 3 511 903, 3 549 405, 3 555 128, 3 565 985, 3 576 707, 3 642 612,

3 711 176, 3 759 647, 3 773 882 und 3 801 429.

Derartige Mehrschichtfolien bestehen aus mehreren allgemein parallelen Schichten aus durchsichtigem thermoplastischem Kunstharzmaterial, wobei jeweils unmittelbar aneinanderliegende Schichten aus unterschiedlichem Kunstharzmaterial bestehen, deren Brechungsindizes sich um wenigstens 0,03 voneinander unterscheiden. Die Folie weist wenigstens zehn Schichten oder Lagen und zumeist wenigstens fünfunddreissig, vorzugsweise sogar wenigstens siebzig Schichten auf.

Die einzelnen Schichten der Folie sind sehr dünn mit Schichtstärken im Bereich von etwa 30 bis 500 nm, vorzugsweise von etwa 50 bis 400 nm, wodurch eine Verstärkungs-Interferenz von an den vielen Grenzflächen reflektierten Lichtwellen zustande kommt. Je nach der Schichtdicke und dem Brechungsindex der Polymermaterialien wird ein vorherrschendes Wellenlängenband reflektiert, während das übrige Licht von der Folie durchgelassen wird. Die reflektierte Wellenlänge ist jeweils proportional der Summe der optischen Dicken eines Schichtpaares; sie kann nach der folgenden Formel berechnet werden:

$$\lambda_M = 2/M(n_1t_1 + n_2t_2)$$

In dieser Formel bedeutet λ die reflektierte Wellenlänge, M die Reflexionsordnung, t die Schichtdicke, n den Brechungsindex und 1 bzw. 2 jeweils das Polymer der ersten bzw. der zweiten Schicht. Die Grösse nt ist die optische Dicke einer Schicht. Für die Reflexion erster Ordnung, d.h. für $M=1$, wird sichtbares Licht reflektiert, falls die Summe der optischen Dicken einen Wert im Bereich etwa zwischen 200 und 350 nm besitzt. Ist der Betrag der Summe kleiner als etwa 200, liegt die Reflexion im UV-Spektralbereich, ist sie grösser als etwa 350 nm, so liegt die Reflexion im Infrarot-Bereich.

Im folgenden soll die Folie auch als Film, ein nahes Synonym, bezeichnet werden.

Der Betrag bzw. die Menge des reflektierten Lichts (das Reflexionsvermögen) und die Farbintensität hängen vom Unterschied zwischen den beiden Brechungsindizes, vom Verhältnis der optischen Dicken der Schichten, von der Anzahl der Schichten und von der Gleichförmigkeit der Schichtdicken ab. Sind die Brechungsindizes gleich gross, so tritt an den Grenzflächen zwischen den Schichten überhaupt keine Reflexion auf. In Mehrschichtfilmen der hier in Frage stehenden Art unterscheiden sich die Brechungsindizes unmittelbar benachbarter Schichten um wenigstens 0,03, vorzugsweise um wenigstens 0,06 oder mehr. Für Reflexionen erster Ordnung wird das Reflexionsvermögen am grössten, wenn die optischen Dicken der beiden Schichten gleich gross sind, obwohl sich ausreichend hohe Werte des Reflexionsvermögens auch noch erzielen lassen, falls das Verhältnis der beiden optischen Dicken in den Bereich zwischen 5:95 und 95:5 fällt. Deutlich farbige Reflexionen lassen sich schon mit etwa zehn Schichten erzielen; für maximale Farbintensität sind jedoch zwischen fünfunddreissig und tausend Schichten oder mehr erwünscht. Einer hohen Farbintensität entspricht ein Reflexionsband, das verhältnismässig schmal ist und in seinem Scheitelpunkt ein hohes Reflexionsvermögen besitzt. Es sei darauf hingewiesen, dass hier zwar der Einfachheit halber die Bezeichnung «Farbintensität» verwendet wurde, dass jedoch die gleichen Überlegungen für die unsichtbare Reflexion im UV- und im Infrarot-Bereich gelten.

Die Mehrschichtfilme können nach einem Hartwalzgiessverfahren («chill roll casting») hergestellt werden, unter Verwendung eines herkömmlichen einzigen Mehrfach-Flachfilm-Giesswerkzeugs («single manifold flat film die» = Mehrfach-Breitschlitzdüsen) in Verbindung mit einem Zufuhrblock, welcher die Schmelzen aus jedem der beiden oder mehreren Extruder aufnimmt und sie zu der gewünschten Schichtstruktur

tur anordnet. Derartige Zufuhrblöcke sind in den oben bereits genannten US-Patentschriften 3 565 985 und 3 773 882 beschrieben. Die Zufuhrblöcke können zur Herstellung aufeinanderfolgender Schichtfolgen aus entweder zwei Komponenten (d.h. ABAB ...), drei Komponenten (beispielsweise ABCABCA ... oder ACBCACBC ...), oder mehr Komponenten verwendet werden. Der sehr schmale Mehrschichtstrom fließt durch ein gemeinsames Mehrfach-Flachfilm-Giesswerkzeug («single manifold flat film die = Mehrfach-Breitschlitzdüsen), in welchem die Schichten gleichzeitig auf die Breite des Formwerkzeugs ausgespreizt und ihre Dicke auf die endgültige Austrittsdicke des Formwerkzeugs verringert wird. Die Anzahl der Schichten und ihre Dickenverteilung kann durch Einsetzen unterschiedlicher Zufuhrmoduls geändert bzw. variiert werden. Üblicherweise ist die äusserste Schicht bzw. sind die äussersten Schichten zu beiden Seiten des Films dicker als die übrigen Schichten. Diese dickere Haut kann aus einer der Komponenten bestehen, welche den optischen Kern bilden; sie können aber auch aus einem hier von verschiedenen Polymer bestehen, um dem Erzeugnis gewünschte mechanische, Wärmeversiegelungs- oder anderweitige Eigenschaften zu verleihen, oder die Haut kann aus einer Kombination der den optischen Kern bildenden Komponenten bestehen.

Als Komponente mit hohem Brechungsindex wurde bisher für kommerzielle Zwecke Polystyrol (Brechungsindex 1,60) verwendet. Anderweitige Kunstharze mit hohem Brechungsindex, die optisch geeignet sind, die jedoch aus Kostengründen oder wegen Schwierigkeiten bei der Extrusion in dem Mehrschichtverfahren Nachteile besitzen, sind Polycarbonat (1,59), Vinylidenchlorid(85%)-Vinylchlorid(15%)-Copolymer (1,61) sowie Polydichlorstyrol (1,62). Polystyrol in Verbindung mit Polymeren mit niedrigem Brechungsindex, wie etwa Polymethylmethacrylat, Polypropylen sowie Äthylvinylacetat, die sämtlich einen Brechungsindex nahe 1,50 aufweisen, ergibt irisierende Filme der gewünschten optischen Eigenschaften, die jedoch Mängel hinsichtlich bestimmter mechanischer Eigenschaften besitzen. Beispielsweise kann die Adhäsion zwischen den einzelnen Schichten des Mehrschichtgebildes unzureichend sein und der Film daher im Gebrauch an einer inneren Delaminierung oder Schichtentrennung leiden. Der irisierende Film wird häufig wegen seines Dekoreffekts auf Papier oder Pappe aufgebracht und dann für Glückwunschkarten, Kartons und dergleichen verwendet. Eine Delaminierung des Films wirkt unansehnlich und kann sogar zu einer Trennung von geklebten Kartonverbindungsstellen führen. Ausserdem sind die Lösungsmittelbeständigkeit und die Wärmefestigkeit derartiger Filme nicht so hoch, wie dies für ein breites Anwendungsspektrum erwünscht ist.

Der Erfindung liegt daher als Aufgabe die Schaffung Licht reflektierender Mehrschichtfolien der eingangs genannten Art zugrunde, welche eine verbesserte Delaminierungsbeständigkeit, erhöhte Lösungsmittelbeständigkeit und/oder erhöhte Wärmefestigkeit besitzen.

Diese Aufgabe wird erfindungsgemäss durch eine Mehrschichtfolie gelöst, bei der mindestens eine Schicht aus einem gegebenenfalls modifizierten thermoplastischen Terephthalat-Polyester- oder Copolyester-Harze mit einem Brechungsindex im Bereich von 1,55 bis 1,61 vorgesehen ist und das Kunstharzmaterial der jeweils unmittelbar anliegenden benachbarten Schicht einen um mindestens 0,03 niedrigeren Brechungsindex derart besitzt, dass sich unmittelbar aneinanderliegende benachbarte Schichten im Brechungsindex um mindestens 0,03 unterscheiden.

Erfindungsgemäss wird als mindestens eine Komponente mit hohem Brechungsindex ein gegebenenfalls modifiziertes transparentes thermoplastisches Terephthalat-Polyester- oder

Copolyesterharz verwendet, das durch einen Brechungsindex von 1,55 bis 1,61 gekennzeichnet ist. Beispiele solcher thermoplastischer Polyesterharze sind unter anderem: Polyäthylenterephthalat (PET), das durch Reaktion von Terephthalsäure oder Dimethylterephthalat mit Äthylenglycol erhalten wird; Polybutylenterephthalat (PBT), das durch katalysierte Kondensation von 1,4-Butandiol entweder mit Terephthalsäure oder Dimethylterephthalat erhalten wird; sowie die verschiedenen thermoplastischen Copolyester, die durch Synthese unter Verwendung von mehr als einem Glycol und/oder mehr als einer dibasischen Säure erhalten werden. Beispielsweise ist PETG-Copolyester ein mit Glycol modifiziertes PET, das aus Äthylenglycol und Cyclohexandimethanol (CHDM) und Terephthalsäure erhalten wird; PCTA-Copolyester ist ein mit Säure modifizierter Copolyester von CHDM mit Terephthal- und Isophthalsäuren. Durch Verwendung derartiger thermoplastischer Polyesterharze als Harze hohen Brechungsindex' in Verbindung mit thermoplastischen Harzen mit niedrigerem Brechungsindex lassen sich irisierende Folien hoher Farbintensität und ausserordentlich verbesserter Eigenschaften erzielen. Eine Liste typischer Harze mit niedrigerem Brechungsindex ist in der nachfolgenden Tabelle 1 zusammengestellt, mit der Massgabe, dass bei Zusammenstellung geeigneter Kombinationen jeweils ein Brechungsindexunterschied von wenigstens 0,03, vorzugsweise von wenigstens 0,06 eingehalten wird.

Tabelle 1

Polymerbezeichnung	Ungefäher Brechungsindex
FEP (fluoriertes Äthylen-Propylen-Copolymer)	1,34
Polytetrafluoräthylen	1,35
Polyvinylidenfluorid	1,42
Polychlortrifluoräthylen	1,42
Polybutylacrylat	1,46
Polyvinylacetat	1,47
Äthylcellulose	1,47
Polyformaldehyd	1,48
Polyisobutylmethacrylat	1,48
Polybutylmethacrylat	1,48
Polymethylacrylat	1,48
Polypropylmethacrylat	1,48
Polyäthylmethacrylat	1,48
Polymethylmethacrylat	1,49
Cellulose-acetat	1,49
Cellulosepropionat	1,49
Celluloseacetat-Butyrat	1,49
Cellulosenitrat	1,49
Polyvinylbutyral	1,49
Polypropylen	1,49
Äthylvinylacetat	1,50
Polyäthylen niedriger Dichte (verzweigt)	1,51
Polyisobutylene	1,51
Ionomer	1,51
Naturkautschuk	1,52
Perbunan	1,52
Polybutadien	1,52
Nylon (Kondensationscopolymer von Hexamethyldiamin und Adipinsäure)	1,53
Polyvinylchloracetat	1,54
Polyäthylen (hohe Dichte, linear)	1,54
Polyvinylchlorid	1,54
Ein Copolymer aus 85 Gewichtsteilen Methylmethacrylat und 33 Gewichtsteilen Styrol	1,54

Eine bevorzugte Kombination ist die Verwendung von Polybutylenterephthalat (PBT) als thermoplastisches Polyester und Polymethylmethacrylat (PMMA) als Material mit niedrigem Brechungsindex. Zur Herstellung des Films wurde das Polyester dem Zufuhrblock aus einem Extruder und das PMMA aus einem zweiten Extruder zugeführt, unter Bildung eines Films von 20 µm Dicke, der aus 115 optischen Schichten und zwei Polyesterdeckschichten bestand. Jede der beiden Deckschichten betrug dabei etwa 10% der Dicke des Gesamtfilms. Die optischen Polyesterschichten besaßen eine optische Dicke von jeweils etwa 0,2 µm, die optischen PMMA-Schichten von etwa 0,1 µm. Unter Verwendung einer Giessform von 112 cm wurde ein 90 cm breiter Film von gleichmäßiger Gesamtdicke erzeugt. Der Film war lebhaft irisierend und besaß in Reflexion bei senkrechter Einfallrichtung vorherrschend grüne und rote Farbe.

Zur Untersuchung dieses Polyester/PMMA-Films hinsichtlich seiner Delaminierungsbeständigkeit wurde eine Oberfläche des Films festgelegt, und zwar durch Unterlegen entweder mit einem Klebeband oder durch Klebelaminierung auf starrem Karton. Auf die andere Oberfläche des Films wurde ein Druckklebeband aufgebracht. Der Film widerstand vielfachem Ziehen an dem Band ohne jegliches Anzeichen von Delaminierung, selbst wenn das Band an der Kante des Films aufgebracht wurde. Der Test wurde noch verschärft, indem man die freiliegende Seite mit einem Lösungsmittel wie beispielsweise Toluol bestrich, das in irisierenden Filmen anderen Typs wie beispielsweise Polystyrol(PS)/Propylenäthylen-Copolymer (PP) und PS/Äthylvinylacetat (EVA) zu Delaminierung führt. Der erfindungsgemäße Polyester/PMMA-Film überstand den Klebebandtest ohne jedes Anzeichen von Delaminierung.

Andere bekannte Filme nach dem Stande der Technik genügten diesen Delaminationstests ebenfalls nicht. Beispielsweise war der glänzend irisierende Film aus PS/PMMA so spröde, dass er unter den Testbedingungen zu Bruch ging. Irisierende Filme aus PS/PP und PS/EVA zeigten unter den gleichen Testbedingungen eine starke Delaminierung.

Auch hinsichtlich einer Zahl weiterer Eigenschaften sind die erfindungsgemäßen Filme den entsprechenden Eigenschaften bekannter Filme überlegen. So unter anderem durch ausgezeichnete Kratzfestigkeit, Temperaturbeständigkeit und Lösungsmittelbeständigkeit. Diese letzterwähnte Eigenschaft ist besonders bedeutsam für Filmmaterial, das mit Klebstoffen, Druckfarben oder organische Lösungsmittel enthaltenden Lacken in Berührung gelangt.

Zur Prüfung der Lösungsmittelbeständigkeit des Films wurde eine Anzahl von Lösungsmitteln jeweils mittels eines getränkten Wollbauschs auf die Oberfläche einzelner Proben aufgebracht. Das Lösungsmittel wurde an der Luft trocknen gelassen. Der erfindungsgemäße irisierende Film aus PBT/PMMA erfuhr bei Behandlung mit aliphatischen oder aromatischen Kohlenwasserstoffen oder Gemischen dieser, Alkoholen, aliphatischen Estern wie beispielsweise Äthylacetat und Butylacetat, oder Ketonen wie beispielsweise Aceton und Methylisobutylketon keinerlei Änderung. Die nach dem gleichen Verfahren getesteten bekannten kommerziellen Filme aus PS/PMMA, PS/PP und PS/EVA zeigten bei Behandlung mit verschiedenen dieser Lösungsmittel, darunter Heptan, Toluol, sowie verschiedenen handelsüblichen Lösungsmitteln aus Kohlenwasserstoffgemischen sowie Butylacetat und Methylisobutylketon, Rissbildungen, Glanzverlust, Farbänderung oder sogar Farbverlust.

Auch die Temperaturbeständigkeit des erfindungsgemäßen Polyesterfilms war der herkömmlicher bekannter Filme in gleicher Weise überlegen. Hierzu wurden Proben 30 min lang bei unterschiedlichen Temperaturen in Luftzirkulationsöfen gebracht. Es wurde jeweils die Temperatur bestimmt, bei der

eine erste Änderung eintrat, mit den folgenden Ergebnissen: erfindungsgemäßer Polyesterfilm PBT/PMMA, 220 °C; bekannte Filme nach dem Stande der Technik PS//PMMA, 150 °C; PS/PP, 130 °C; PS/EVA, 120 °C. Eine verbesserte Temperaturstabilität ist besonders bedeutsam für Anwendungszwecke, bei denen der Film nach einem Verfahren, bei welchem erhöhte Temperatur Anwendung findet, auf eine andere Oberfläche laminiert oder anderweitig haftend aufgebracht werden soll.

Es wurde oben bereits erwähnt, dass die Haut- oder Deckschicht dicker als die optischen Schichten ist. Jede Deckschicht sollte jeweils eine Dicke von wenigstens etwa 5% der Gesamtdicke des Films besitzen und kann beispielsweise etwa 40% der Gesamtfilmdicke ausmachen. Nach einer Variante des erfindungsgemäßen Films kann unter Verwendung eines dritten Extruders auf jeder Oberfläche eine Aussenhaut aus einem thermoplastischen stoss-modifizierten Acrylharz aufgebracht werden. Diese Deckschicht kann entweder anstelle der üblichen Deckschicht, welche aus einer der optischen Komponenten besteht, oder zusätzlich zu dieser auf ihr aufgebracht werden. Jede derartige stossmodifizierte Acrylschicht sollte jeweils eine Dicke von wenigstens etwa 5% der Gesamtdicke des Films besitzen; die Summe aus der Dicke jeder stoss-modifizierten Acrylschicht und der gegebenenfalls benachbarten optischen Harzdeckschicht kann bis zu etwa 40% der Gesamtfilmdicke oder sogar mehr ausmachen.

Stoss-modifiziertes Acryl verleiht Wickeleigenschaften und Beständigkeit gegen Blockieren und ergibt eine für Kleber, Druckfarben und Heissprägefolien äusserst aufnahmefähige Oberfläche. Ausserdem besitzt ein derartiger Film eine verbesserte UV-Beständigkeit.

Das stoss-modifizierte Acrylharz kann ein Copolymer, beispielsweise mit einem anderen Monomeren wie etwa Methylacrylat, Äthylacrylat, Butylacrylat, Acrylnitril, Styrol oder Butadien polymerisiertes Methylmethacrylat sein; ein Terpolymer oder Multipolymer aus drei oder mehreren solchen Monomeren; oder ein Gemisch aus Methylmethacrylat mit Elastomer, Vinyl oder anderen Modifikatoren. Im Handel erhältliche stoss-modifizierte Acrylharze sind Lucite T-1000 (DuPont) und Plexiglas DR (Rohm & Haas).

Die irisierenden Zwei-Komponenten-Filme zeigen ausgezeichnete Beständigkeit gegen Delaminierung und gute Irideszenzfarbe, unabhängig davon, welche Komponente als äussere Haut- oder Deckschicht dient. Andere Eigenschaften können verbessert werden, wenn die eine oder die andere Komponente die Deckschicht bildet. Bei der erfindungsgemäßen Polyester/PMMA-Kombination beispielsweise ist der Film flexibler, wenn Polyester die Deckschicht bildet, und spröder mit PMMA als Deckschicht. Daher wird Polyester als Deckschicht in Fällen vorgezogen, wo Flexibilität erwünscht ist, wie beispielsweise für dekorative Umhüllungen; PMMA ist in solchen Fällen vorzuziehen, wo der Film in kleine Stücke wie Flocken oder «Glitzer» zerschnitten werden soll. Die Wahl hängt von dem jeweiligen speziellen Komponentenpaar in dem optischen Kern und dem Anwendungszweck, für welchen der Film bestimmt ist, ab.

Durch die Verwendung eines dritten Harzes als Haut- bzw. Deckschicht wird die Bedeutung der inneren Aufeinanderfolge wesentlich herabgesetzt, da die Eigenschaften durch das jeweilige spezielle Deckschichtharz modifiziert werden. In dem obigen Beispiel kann stoss-modifiziertes Acryl als Deckschicht entweder an das Polyester oder an PMMA angrenzen. In anderen Kombinationen kann die Wahl einer bestimmten Aufeinanderfolge erwünscht sein, um eine maximale Haftung zwischen der Deckschicht und dem optischen Mehrschichtkern zu gewährleisten.

Im folgenden wird die Erfindung anhand verschiedener Beispiele erläutert, denen keinerlei einschränkende Bedeu-

tung zukommt. Soweit nichts anderes ausdrücklich gesagt ist, sind in der gesamten Beschreibung und in den Ansprüchen die Temperaturen jeweils °C und Teile und Prozentangaben jeweils Gewichtsteile bzw. -prozente.

Beispiel 1:

Abwechselnde Schichten aus Polyester und Polymethylmethacrylat (PMMA)

Ein thermoplastisches Polyestermaterial aus Polybutylen-terephthalat wurde dem Zufuhrblock aus einem Extruder und PMMA aus einem zweiten Extruder zugeführt, unter Bildung eines 19 µm dicken Films, der aus 115 optischen Schichten und zwei Polyester-Deckschichten bestand. Jede Deckschicht betrug etwa 20% der Dicke des Gesamtfilms. Die optischen Polyesterschichten hatten eine optische Dicke von etwa 0,15 µm, die PMMA-Schichten eine solche von etwa 0,07 µm. Der Film war leuchtend irisierend und besass vorwiegend blaue und grüne Farbe bei Betrachtung in Reflexion und bei rechtwinkligem Einfall. Der Film zeigte eine ausgezeichnete Beständigkeit gegen Delaminierung sowie überlegene Lösungsmittel- und Temperaturbeständigkeit.

Beispiel 2:

Polyester/PMMA-Mehrschichtgebilde mit zusätzlichen Deck-

schichten aus stoss-modifiziertem Acrylcopolymer

Es wurde ein ähnliches Mehrschichtgebilde wie in Beispiel 1 hergestellt, mit dem Unterschied, dass jeweils auf beide Oberflächen eine zweite Deckschicht mit Hilfe eines dritten Extruders aufgebracht wurde. Diese äussere Deckschicht bestand aus einem Gemisch zu gleichen Teilen von zwei Harzen, (1) PMMA und (2) einem stoss-modifizierten Acrylharz, nämlich Lucite T-1000 (DuPont), einem mit Elastomer modifizierten Polymethylmethacrylat. Dieser Film war dem Film aus Beispiel 1 hinsichtlich seiner Wickel- und Antiblockiereigenschaften überlegen und eignete sich noch besser zum Bedrucken und Heissprägen.

Beispiele 3 bis 15

Verschiedene thermoplastische Polyesterpolymere und -copolymere wurden in Verbindung mit einer Anzahl Polymeren von niedrigerem Brechungsindex verwendet, manchmal als Zweikomponentengebilde, manchmal in Form von Gebilden unter Verwendung zusätzlicher Komponenten für Deckschichten, wie in der folgenden Tabelle zusammengestellt. Sämtliche Beispiele ergaben intensiv irisierende Filme mit verbesserter Hitzebeständigkeit und, insbesondere bei Verwendung von PMMA als das Polymer von niedrigerem Brechungsindex, verbesserte Delaminierbeständigkeit.

Beispiel	Polymer mit hohem Brechungsindex	Polymer mit niedrigem Brechungsindex	Deckschichtpolymer(e)
3	PBT	EVA	PBT
4	PBT	EVA	PMMA und stoss-modifiziertes Polymethylmethacrylat
5	PBT	PP	PBT
6	PBT	PP	PP
7	PBT	PP	PMMA und stoss-modifiziertes Polymethylmethacrylat
8	PBT	Ionomer	PBT
9	PBT	Ionomer	Stoss-modifiziertes Copolymer aus Methylmethacrylat und Butylacrylat
10	PETG	PMMA	PETG
11	PETG	PMMA	PMMA und stoss-modifiziertes Polymethylmethacrylat
12	PET	PMMA	PET
13	PET	PMMA	Modifiziertes Acrylterpolymer von Methylmethacrylat, Butadien und Acrylnitril
14	PCTA	PMMA	PCTA
15	PCTA	PMMA	PMMA und stoss-modifiziertes Polymethylmethacrylat

Die Erfindung wurde vorstehend anhand bevorzugter Ausführungsformen und Beispiele erläutert, die jedoch selbstverständlich in mannigfacher Weise abgewandelt und modifiziert werden können, ohne dass hierdurch der Rahmen der

Erfindung verlassen wird. Beispielsweise wurde die Erfindung vorstehend unter Bezugnahme auf gegossene Filme, d.h. ein Flachfilm-Herstellungsverfahren, beschrieben; jedoch können irisierende Filme auch nach dem Rohrverfahren (Blasfilm) hergestellt werden.