



(21) 申請案號：112108636 (22) 申請日：中華民國 112 (2023) 年 03 月 09 日

(51) Int. Cl. : C09J123/08 (2006.01) C09J131/04 (2006.01)
 C09J201/00 (2006.01) C09J7/30 (2018.01)
 B65D85/86 (2006.01) B65D75/34 (2006.01)

(30) 優先權：2022/03/15 日本 2022-040794

(71) 申請人：日商三井 陶氏聚合化學股份有限公司 (日本) DOW-MITSUI POLYCHEMICALS
 CO., LTD. (JP)
 日本

(72) 發明人：清水貴廣 SHIMIZU, TAKAHIRO (JP)；大木和幸 OOGI, KAZUYUKI (JP)；山本貞
 樹 YAMAMOTO, SADAKI (JP)

(74) 代理人：賴經臣；宿希成

申請實體審查：無 申請專利範圍項數：20 項 圖式數：0 共 55 頁

(54) 名稱

接著性樹脂組成物、層合玻璃中間膜、層合玻璃、太陽電池密封材及太陽電池模組

(57) 摘要

本發明的接著性樹脂組成物係含有：乙烯·不飽和酯共聚合體(A)、與含環氧基之乙烯系共聚合體(B)(其中，上述乙烯·不飽和酯共聚合體(A)除外)；其中，上述乙烯·不飽和酯共聚合體(A)中，源自不飽和酯的構成單位之含量，相對於構成上述乙烯·不飽和酯共聚合體(A)的總構成單位，為超過 20 質量%；源自乙烯的構成單位相對於構成上述乙烯·不飽和酯共聚合體(A)之總構成單位的含量(X_1)、與源自乙烯的構成單位相對於構成上述含環氧基之乙烯系共聚合體(B)之總構成單位的含量(X_2)的差($X_1 - X_2$)之絕對值，為 10 質量%以下。

The adhesive resin composition of the present invention comprises: an ethylene-unsaturated ester copolymer (A) and an epoxy group-containing ethylene copolymer (B) (excluding the ethylene-unsaturated ester copolymer (A)), wherein the content of the constituent units derived from the unsaturated ester in the ethylene-unsaturated ester copolymer (A) is more than 20% by mass relative to the total constituent units constituting the ethylene-unsaturated ester copolymer (A); and the absolute value of the difference ($X_1 - X_2$) between the content (X_1) of the constituent units derived from ethylene relative to the total constituent units constituting the ethylene-unsaturated ester copolymer (A) and the content (X_2) of the constituent units derived from ethylene relative to the total constituent units constituting the epoxy group-containing ethylene copolymer (B) is 10% by mass or less.

【發明摘要】

【中文發明名稱】 接著性樹脂組成物、層合玻璃中間膜、層合玻璃、太陽電池密封材及太陽電池模組

【英文發明名稱】 ADHESIVE RESIN COMPOSITION, LAMINATED GLASS INTERLAYER FILM, LAMINATED GLASS, SOLAR CELL ENCAPSULANT, AND SOLAR CELL MODULE

【中文】

本發明的接著性樹脂組成物係含有：乙烯·不飽和酯共聚合體(A)、與含環氧基之乙烯系共聚合體(B)(其中，上述乙烯·不飽和酯共聚合體(A)除外)；其中，上述乙烯·不飽和酯共聚合體(A)中，源自不飽和酯的構成單位之含量，相對於構成上述乙烯·不飽和酯共聚合體(A)的總構成單位，為超過20質量%；源自乙烯的構成單位相對於構成上述乙烯·不飽和酯共聚合體(A)之總構成單位的含量(X_1)、與源自乙烯的構成單位相對於構成上述含環氧基之乙烯系共聚合體(B)之總構成單位的含量(X_2)的差($X_1 - X_2$)之絕對值，為10質量%以下。

【英文】

The adhesive resin composition of the present invention comprises: an ethylene-unsaturated ester copolymer (A) and an epoxy group-containing ethylene copolymer (B) (excluding the ethylene-unsaturated ester copolymer (A)), wherein the content of the constituent units derived from the unsaturated ester in the ethylene-unsaturated ester copolymer (A) is more than 20% by mass relative to

the total constituent units constituting the ethylene-unsaturated ester copolymer (A); and the absolute value of the difference ($X_1 - X_2$) between the content (X_1) of the constituent units derived from ethylene relative to the total constituent units constituting the ethylene-unsaturated ester copolymer (A) and the content (X_2) of the constituent units derived from ethylene relative to the total constituent units constituting the epoxy group-containing ethylene copolymer (B) is 10% by mass or less.

【指定代表圖】 無

【發明說明書】

【中文發明名稱】 接著性樹脂組成物、層合玻璃中間膜、層合玻璃、太陽電池密封材及太陽電池模組

【英文發明名稱】 ADHESIVE RESIN COMPOSITION,
LAMINATED GLASS INTERLAYER FILM, LAMINATED GLASS,
SOLAR CELL ENCAPSULANT, AND SOLAR CELL MODULE

【技術領域】

【0001】 本發明係關於接著性樹脂組成物、層合玻璃中間膜、層合玻璃、太陽電池密封材及太陽電池模組。

【先前技術】

【0002】 層合玻璃中間膜係夾入設置於2片玻璃間使用。可防止玻璃破損時的碎片散亂、或玻璃碎裂時能利用中間膜的自立性防止玻璃崩壞，就安全面而言被偏好使用。

【0003】 高透明性之層合玻璃中間膜的材料，係使用例如離子聚合物樹脂。離子聚合物樹脂係具有透明性優異、且對玻璃的接著性優異之特徵。

【0004】 例如專利文獻1所記載的層合玻璃用中間膜，係由(A)乙烯、與(B)(甲基)丙烯酸或(甲基)丙烯酸丙烯酸酯的二元共聚合體利用金屬離子進行交聯，且 $190^{\circ}\text{C}\times 2.16\text{Kgf}$ 下的MFR為5~15g/10分之離子聚合物樹脂構成。又，專利文獻1記載此種層合玻璃用中間膜係不需要濕度管理步驟(調濕步驟)，且即使與玻璃板的貼合加工簡便，仍能獲得與玻璃板間之充分接著性、以及對玻璃板的優異追蹤性，而且能在廣溫度區域內保

持優異韌性，且針對直射日光與紫外線均不易發生變色，兼顧優異的耐候性與透明性。

【0005】 再者，專利文獻2所記載的高分子片材，係具有10密耳(0.25mm)以上的厚度，具有至少1層之含有導入了經部分性之中和 α, β -乙烯性不飽和羧酸之離子聚合物或離子聚合物摻合物的高分子片材；其中，上述離子聚合物或離子聚合物摻合物係以上述 α, β -乙烯性不飽和羧酸之中和總量為基準，含有約1~約60%範圍量的1種以上一價金屬離子、與約40~約99%範圍量的1種以上多價金屬離子。又，專利文獻2記載此種高分子片材呈現對玻璃相乘性高的黏著力。

【0006】 再者，專利文獻3所記載的玻璃積層，係含有薄玻璃片與離子聚合物中間層片材的玻璃積層；其中，上述薄玻璃片係具有1.5mm以下的厚度。又，專利文獻3記載根據此種玻璃積層，不僅輕量，且能保持良好之衝擊接著水準、良好耐濕性及低應力等有利的性能特性。

[先前技術文獻]

[專利文獻]

【0007】

專利文獻1：日本專利特開2013-28486號公報

專利文獻2：日本專利特表2009-512763號公報

專利文獻3：日本專利特表2012-519646號公報

【發明內容】

(發明所欲解決之問題)

【0008】 近年為了對高透明性層合玻璃賦予設計性，在玻璃與層合玻璃中間膜之間設置經施行裝飾過之聚酯樹脂層的需求正高漲中。然而，離子聚合物雖玻璃接著性優異，但對聚酯樹脂缺乏接著性，因而有較難將

含離子聚合物之層(以下亦稱為「離子聚合物樹脂層」)、與含聚酯樹脂之聚酯樹脂層(以下亦稱「聚酯樹脂層」)直接積層的情況。

【0009】 用於將離子聚合物樹脂層與聚酯樹脂層進行積層的策略之一，可舉例如在離子聚合物樹脂層與聚酯樹脂層之間積層含接著性樹脂組成物的層。然而，對聚酯樹脂層具高接著性的接著性樹脂組成物係透明性不足，若將含此種接著性樹脂組成物的層積層於離子聚合物樹脂層與聚酯樹脂層之間，有導致層合玻璃的透明性降低之情況。

再者，因為太陽電池模組亦使用玻璃、聚酯樹脂層，故對於用於將太陽電池模組中之太陽電池元件予以密封的太陽電池密封材，亦要求透明性、及對聚酯樹脂層之接著性提升。

即，期待經提升透明性、以及對聚酯樹脂層之接著性的接著性樹脂組成物。

【0010】 本發明係有鑑於上述實情而完成，提供：經提升透明性、以及對聚酯樹脂層之接著性的接著性樹脂組成物，以及經提升透明性、對聚酯樹脂層之接著性、及對玻璃之接著性的層合玻璃中間膜、層合玻璃、太陽電池密封材及太陽電池模組。

(解決問題之技術手段)

【0011】 根據本發明，提供以下所示的接著性樹脂組成物、層合玻璃中間膜、層合玻璃、太陽電池密封材、及太陽電池模組。

【0012】 [1]一種接著性樹脂組成物，係含有乙烯·不飽和酯共聚合體(A)、與含環氧基之乙烯系共聚合體(B)(其中，上述乙烯·不飽和酯共聚合體(A)除外)；其中，

上述乙烯·不飽和酯共聚合體(A)中，源自不飽和酯的構成單位之含量，相對於構成上述乙烯·不飽和酯共聚合體(A)的總構成單位，為超過20質量%；

源自乙烯的構成單位相對於構成上述乙烯·不飽和酯共聚合體(A)之總構成單位的含量(X_1)、與源自乙烯的構成單位相對於構成上述含環氧基之乙烯系共聚合體(B)之總構成單位的含量(X_2)的差(X_1-X_2)之絕對值為10質量%以下。

[2]如上述[1]所記載的接著性樹脂組成物，其中，上述乙烯·不飽和酯共聚合體(A)根據JIS K 7210：1999，依190°C、2160g荷重條件所測定的熔體流動速率為1g/10分以上且100g/10分以下。

[3]如上述[1]或[2]所記載的接著性樹脂組成物，其中，上述乙烯·不飽和酯共聚合體(A)係含有乙烯·醋酸乙烯酯共聚合體。

[4]如上述[1]~[3]中任一項所記載的接著性樹脂組成物，其中，上述含環氧基之乙烯系共聚合體(B)係含有從乙烯·(甲基)丙烯酸環氧丙酯共聚合體、乙烯·(甲基)丙烯酸環氧丙酯·醋酸乙烯酯共聚合體、及乙烯·(甲基)丙烯酸環氧丙酯·(甲基)丙烯酸酯共聚合體所構成群組中選擇之至少一種。

[5]如上述[1]~[4]中任一項所記載的接著性樹脂組成物，其中，上述含環氧基之乙烯系共聚合體(B)中，源自乙烯的構成單位的含量相對於構成上述含環氧基之乙烯系共聚合體(B)的總構成單位，為82質量%以下。

[6]如上述[1]~[5]中任一項所記載的接著性樹脂組成物，其中，上述含環氧基之乙烯系共聚合體(B)依JIS K 7206：1999所規定的域克軟化點為65°C以下。

[7]如上述[1]~[6]中任一項所記載的接著性樹脂組成物，其中，上述含環氧基之乙烯系共聚合體(B)根據JIS K 7121-1987所測定的熔點為90°C以下。

[8]如上述[1]~[7]中任一項所記載的接著性樹脂組成物，其中，依下述方法所測定的霧度為10%以下。

(方法)

將上述接著性樹脂組成物依140°C、9.8MPa之條件施行衝壓後，再依20°C、14.7MPa之條件冷卻，而製作厚度3mm的衝壓片。接著，利用霧度計根據JIS K 7136：2000測定所獲得之上述衝壓片的霧度。

[9]如上述[1]~[8]中任一項所記載的接著性樹脂組成物，其中，將上述乙烯·不飽和酯共聚合體(A)、與上述含環氧基之乙烯系共聚合體(B)的合計含量設為100質量%時，上述乙烯·不飽和酯共聚合體(A)的含量為40質量%以上且99質量%以下。

[10]如上述[1]~[9]中任一項所記載的接著性樹脂組成物，其中，將上述接著性樹脂組成物全體設為100質量%時，上述乙烯·不飽和酯共聚合體(A)、與上述含環氧基之乙烯系共聚合體(B)的合計含量為70質量%以上且100質量%以下。

[11]如上述[1]~[10]中任一項所記載的接著性樹脂組成物，其中，依下述方法所測定之霧度為5%以下。

(方法)

依序將厚度3.2mm之玻璃、厚度1500 μm 之離子聚合物樹脂層、厚度100 μm 之由上述接著性樹脂組成物構成的片材、以及厚度3.2mm之玻璃進行積層，再依加熱溫度140°C、加熱時壓力1atm、加熱時間20分鐘進行

貼合。利用自然冷卻進行徐冷，而製作光學性評價用玻璃積層體。接著，利用霧度計根據JIS K 7136:2000測定所獲得之上述玻璃積層體的霧度。

[12]如上述[1]~[11]中任一項所記載的接著性樹脂組成物，其中，依照下述方法所測定之對PET薄膜的接著強度，係於初期、經500小時後、及經1000小時後均為15N/15mm以上。

(方法)

依序將厚度3.9mm之玻璃(以非錫面設為接著面)、厚度300 μ m之由上述接著性樹脂組成物構成的片材、以及厚度之100 μ mPET薄膜(未施行電暈處理)進行積層，再依加熱溫度140 $^{\circ}$ C、加熱時壓力1atm、加熱時間60分鐘進行貼合，而製作玻璃積層體。然後，將上述玻璃積層體靜置於大氣中，利用自然冷卻進行徐冷。在所獲得之上述玻璃積層體的片材部分處刻劃寬15mm之狹縫，而作成試驗片，並設置於拉伸試驗機中。依拉伸速度100mm/分、剝離角度180 $^{\circ}$ 撕開PET薄膜，求取平均應力作為初期接著強度(N/15mm)。將上述玻璃積層體依85 $^{\circ}$ C、相對濕度90%之條件進行保管，分別求取經保管500小時後的上述玻璃積層體之接著強度、與經保管1000小時後的上述玻璃積層體之接著強度。

[13]如上述[1]~[12]中任一項所記載的接著性樹脂組成物，其中，依下述方法所測定之經保管1000小時後對PET薄膜的接著強度為50N/15mm以上。

(方法)

依序將厚度之3.9mm玻璃(以非錫面設為接著面)、厚度300 μ m之由上述接著性樹脂組成物構成的片材、以及厚度之100 μ mPET薄膜(未施行電暈處理)進行積層，依加熱溫度140 $^{\circ}$ C、加熱時壓力1atm、加熱時間60分鐘進行貼合，而製作玻璃積層體。然後，將上述玻璃積層體靜置於大氣

中，利用自然冷卻進行徐冷。接著，將上述玻璃積層體在85°C、相對濕度90%之條件下保管1000小時。在所獲得上述玻璃積層體的片材部分處刻劃寬15mm之狹縫，而作成試驗片，並設置於拉伸試驗機中。依拉伸速度100mm/分、剝離角度180°撕開PET薄膜，求取平均應力作為經保管1000小時後之對PET薄膜的接著強度(N/15mm)。

[14]一種層合玻璃中間膜，係設有含上述[1]~[13]中任一項所記載接著性樹脂組成物的接著性樹脂層。

[15]一種層合玻璃中間膜，係依序具備有：

離子聚合物樹脂層，其係含有乙烯·不飽和羧酸系共聚合體之離子聚合物(C)；

接著性樹脂層，其係含有上述[1]~[13]中任一項所記載的接著性樹脂組成物；以及

聚酯樹脂層，其係含有聚酯樹脂(D)。

[16]如上述[15]所記載的層合玻璃中間膜，其中，上述離子聚合物樹脂層與上述接著性樹脂層係相鄰接；

上述聚酯樹脂層係鄰接於上述接著性樹脂層之與上述離子聚合物樹脂層鄰接面的相反側面。

[17]一種層合玻璃，係具備有：

上述[14]~[16]中任一項所記載的層合玻璃中間膜；以及
設置於上述層合玻璃中間膜之雙面的透明板狀構件。

[18]如上述[17]所記載的層合玻璃，其中，含有至少1個上述透明板狀構件與離子聚合物樹脂層相鄰接的構成。

[19]一種太陽電池密封材，係設有含上述[1]~[13]中任一項所記載接著性樹脂組成物的接著性樹脂層。

[20]一種太陽電池模組，係具備有：

太陽電池元件；以及

密封樹脂，其係用於密封上述太陽電池元件，並由上述[19]所記載的太陽電池密封材構成。

(對照先前技術之功效)

【0013】 根據本發明可提供：經提升透明性、以及對聚酯樹脂層之接著性的接著性樹脂組成物，以及經提升透明性、對聚酯樹脂層之接著性、及對玻璃之接著性的層合玻璃中間膜、層合玻璃、太陽電池密封材及太陽電池模組。

【實施方式】

【0014】 以下，針對本發明根據實施形態進行說明。另外，本說明書中，表示數值範圍的「A~B」係在無特別聲明前提下表示A以上且B以下。又，「(甲基)丙烯酸」係表示「從丙烯酸及甲基丙烯酸所構成群組中選擇之至少一種」，「(甲基)丙烯酸酯」係表示「從丙烯酸酯及甲基丙烯酸酯所構成群組中選擇之至少一種」。

【0015】

1. 接著性樹脂組成物

本發明的接著性樹脂組成物係含有：乙烯·不飽和酯共聚合體(A)(以下亦稱為「共聚合體(A)」)、與含環氧基之乙烯系共聚合體(B)(以下亦稱為「共聚合體(B)」)；其中，上述乙烯·不飽和酯共聚合體(A)中，源自不飽和酯的構成單位之含量相對於構成上述乙烯·不飽和酯共聚合體(A)的總構成單位為超過20質量%，且源自乙烯的構成單位相對於構成上述乙烯·不飽和酯共聚合體(A)之總構成單位的含量(X_1)、與源自乙烯的構成單位相對於構成上述含環氧基之乙烯系共聚合體(B)之總構成單位的

含量(X_2)之差(X_1-X_2)的絕對值(以下亦稱「乙烯含量差」), 為10質量%以下。其中, 從含環氧基之乙烯系共聚合體(B)中排除上述乙烯·不飽和酯共聚合體(A)。

【0016】 根據本發明的接著性樹脂組成物, 可提升透明性、及對聚酯樹脂層的接著性。又, 根據本發明的接著性樹脂組成物, 可實現經提升透明性、對聚酯樹脂層之接著性、及對玻璃之接著性的層合玻璃中間膜、層合玻璃、太陽電池密封材、及太陽電池模組。

能獲得此種效果的理由推測如下。

首先, 認為藉由組合使用乙烯·不飽和酯共聚合體(A)、與含環氧基之乙烯系共聚合體(B), 可提升對聚酯樹脂層的接著性。而且, 認為藉由將乙烯·不飽和酯共聚合體(A)之源自不飽和酯之構成單位的含量設在上述下限值以上, 則乙烯·不飽和酯共聚合體(A)的結晶化度降低, 且藉由將乙烯含量差設在上述上限值以下, 可提升乙烯·不飽和酯共聚合體(A)與含環氧基之乙烯系共聚合體(B)的相容性, 且藉由各共聚合體的折射率差變小則可提升透明性。

【0017】 本發明的接著性樹脂組成物中, 上述乙烯含量差為10質量%以下, 從更加提升透明性、及對聚酯樹脂層的接著性的觀點而言, 較佳係8質量%以下、更佳係6質量%以下、特佳係4質量%以下、進而更佳係3質量%以下, 又, 較佳係0質量%以上。

【0018】 本發明的接著性樹脂組成物中, 將乙烯·不飽和酯共聚合體(A)與含環氧基之乙烯系共聚合體(B)的合計含量設為100質量%時, 從更加提升透明性、對聚酯樹脂層之接著性、及加工性的觀點而言, 乙烯·不飽和酯共聚合體(A)的含量較佳係40質量%以上、更佳係45質量%以上、特佳係50質量%以上; 從更加提升透明性、對聚酯樹脂層之接著性、

及加工性的觀點而言，較佳係99質量%以下、更佳係97質量%以下、特佳係95質量%以下。

【0019】 本發明的接著性樹脂組成物中，乙烯·不飽和酯共聚合體(A)與含環氧基之乙烯系共聚合體(B)的合計含量，在將接著性樹脂組成物全體設為100質量%時，從更加提升透明性、及對聚酯樹脂層之接著性的觀點而言，較佳係70質量%以上、更佳係80質量%以上、特佳係90質量%以上、進而更佳係95質量%以上，又，較佳係100質量%以下。

【0020】 以下，針對構成本發明接著性樹脂組成物的各成分進行說明。

【0021】

< 乙烯·不飽和酯共聚合體(A) >

乙烯·不飽和酯共聚合體(A)係由乙烯、與至少1種不飽和酯進行共聚合的聚合體。乙烯·不飽和酯共聚合體(A)係可例示如含有乙烯與不飽和酯的共聚合體。

再者，乙烯·不飽和酯共聚合體(A)較佳係含有從乙烯·丙烯酸酯共聚合體及乙烯·不飽和羧酸酯共聚合體所構成群組中選擇之至少一種的聚合體。

再者，乙烯·不飽和酯共聚合體(A)亦可含有乙烯及不飽和酯以外的聚合性單體，可例示如：丙烯、丁烯、己烯等烯烴。

【0022】 乙烯·丙烯酸酯共聚合體係可使用例如從乙烯·醋酸乙烯酯共聚合體、乙烯·丙酸乙烯酯共聚合體、乙烯·丁酸乙烯酯共聚合體、及乙烯·硬脂酸乙烯酯共聚合體等所構成群組中選擇之至少一種。

【0023】 乙烯·不飽和羧酸酯共聚合體係由乙烯、與至少一種不飽和羧酸酯進行共聚合的聚合體。

具體可例示如由乙烯、與不飽和羧酸烷基酯所構成的共聚合體。

【0024】 不飽和羧酸酯中的不飽和羧酸係可使用例如從：丙烯酸、甲基丙烯酸、2-乙基丙烯酸、巴豆酸、順丁烯二酸、反丁烯二酸、伊康酸、順丁烯二酸酐、反丁烯二酸酐、伊康酸酐、順丁烯二酸單甲酯、及順丁烯二酸單乙酯等所構成群組中選擇之至少一種。

該等之中，上述不飽和羧酸係從提升乙烯·不飽和酯共聚合體(A)之生產性與衛生性的觀點而言，較佳係含有從丙烯酸及甲基丙烯酸所構成群組中選擇之至少一種。

【0025】 不飽和羧酸烷基酯中的烷基部位係可舉例如碳數1以上且12以下者，更具體可例示如：甲基、乙基、正丙基、異丙基、正丁基、異丁基、第二丁基、2-乙基己基、異辛基等烷基。本實施形態中，烷基酯的烷基部位之碳數較佳係1以上且8以下、更佳係1以上且4以下。

【0026】 不飽和羧酸酯較佳係含有從(甲基)丙烯酸甲酯、(甲基)丙烯酸乙酯、(甲基)丙烯酸異丙酯、(甲基)丙烯酸正丙酯、(甲基)丙烯酸異丁酯、(甲基)丙烯酸正丁酯、(甲基)丙烯酸異辛酯、及(甲基)丙烯酸-2-乙基己酯等(甲基)丙烯酸酯所構成群組中選擇之至少一種。該等不飽和羧酸酯係可單獨使用1種、亦可組合使用2種以上。該等之中，較佳係含有從(甲基)丙烯酸甲酯、(甲基)丙烯酸乙酯、(甲基)丙烯酸異丙酯、(甲基)丙烯酸正丙酯、(甲基)丙烯酸異丁酯、及(甲基)丙烯酸正丁酯所構成群組中選擇之至少一種。

【0027】 本實施形態中，較佳的乙烯·不飽和羧酸酯共聚合體係乙烯·(甲基)丙烯酸酯共聚合體。其中，較佳係(甲基)丙烯酸酯為由1種化合物構成的共聚合體。此種共聚合體係可舉例如從：乙烯·(甲基)丙烯酸甲酯共聚合體、乙烯·(甲基)丙烯酸乙酯共聚合體、乙烯·(甲基)丙烯酸異

丙酯共聚合體、乙烯·(甲基)丙烯酸正丙酯共聚合體、乙烯·(甲基)丙烯酸異丁酯共聚合體、乙烯·(甲基)丙烯酸正丁酯共聚合體、乙烯·(甲基)丙烯酸異辛酯共聚合體、及乙烯·(甲基)丙烯酸-2-乙基己酯共聚合體所構成群組中選擇之至少一種。

【0028】 乙烯·不飽和酯共聚合體(A)較佳係含有從乙烯·醋酸乙酯共聚合體、乙烯·(甲基)丙烯酸甲酯共聚合體、乙烯·(甲基)丙烯酸乙酯共聚合體、乙烯·(甲基)丙烯酸異丙酯共聚合體、乙烯·(甲基)丙烯酸正丙酯共聚合體、乙烯·(甲基)丙烯酸異丁酯共聚合體、及乙烯·(甲基)丙烯酸正丁酯共聚合體所構成群組中選擇之至少一種，更佳係含有乙烯·醋酸乙酯共聚合體，特佳係乙烯·醋酸乙酯共聚合體。

本實施形態中，乙烯·不飽和酯共聚合體(A)係可單獨使用、亦可組合使用二種以上。

【0029】 乙烯·不飽和酯共聚合體(A)根據JIS K 7210：1999，依190°C、2160g荷重的條件所測定之熔體流動速率(MFR)，從更加提升透明性及對聚酯樹脂層之接著性的觀點而言，較佳係1g/10分以上、更佳係10g/10分以上、特佳係11g/10分以上、進而更佳係12g/10分以上、進而特佳係13g/10分以上，又從更提升所獲得之層合玻璃中間膜或太陽電池密封材的耐熱性、機械強度、透明性等觀點而言，較佳係100g/10分以下、更佳係50g/10分以下、特佳係30g/10分以下、進而更佳係20g/10分以下、進而特佳係18g/10分以下、最佳係15g/10分以下。

乙烯·不飽和酯共聚合體(A)的MFR亦可將複數種具有不同MFR的乙烯·不飽和酯共聚合體(A)進行摻合而調整。此處，當摻合複數種具不同MFR的乙烯·不飽和酯共聚合體(A)之情況，則將摻合物的MFR設為乙烯·不飽和酯共聚合體(A)的MFR。

【0030】 乙烯·不飽和酯共聚合體(A)中，源自乙烯的構成單位的含量，係相對於構成乙烯·不飽和酯共聚合體(A)的總構成單位，從更加提升耐熱性、機械強度、耐水性、加工性、以及生產性等觀點而言，較佳係50質量%以上、更佳係55質量%以上、特佳係60質量%以上、進而更佳係65質量%以上，又，從更加提升透明性、柔軟性及對聚酯樹脂層之接著性的觀點而言，較佳係80質量%以下、更佳係76質量%以下、特佳係73質量%以下、進而更佳係70質量%以下、進而特佳係68質量%以下。

【0031】 乙烯·不飽和酯共聚合體(A)中，源自不飽和酯的構成單位的含量，係相對於構成乙烯·不飽和酯共聚合體(A)的總構成單位為超過20質量%，從更加提升透明性、柔軟性及對聚酯樹脂層之接著性的觀點而言，較佳係24質量%以上、更佳係27質量%以上、特佳係30質量%以上、進而更佳係32質量%以上，又，從更加提升耐熱性、機械強度、耐水性、加工性、以及生產性等觀點而言，較佳係50質量%以下、更佳係45質量%以下、特佳係40質量%以下、進而更佳係35質量%以下。

當不飽和酯為醋酸乙烯酯的情況，源自不飽和酯的構成單位的含量係例如可根據JIS K 7192：1999進行測定。又，當不飽和酯為不飽和羧酸酯的情況，源自不飽和酯的構成單位的含量係例如利用隸屬於不飽和羧酸酯的紅外吸收光譜(IR)進行測定。例如當不飽和羧酸酯為丙烯酸乙酯(EA)的情況，可從隸屬於EA的 860cm^{-1} 的吸光度求取。其中，標準曲線係利用核磁共振光譜(NMR)求取EA濃度，再利用與IR的 860cm^{-1} 吸光度間之相關性求取。

【0032】 乙烯·不飽和酯共聚合體(A)的製造方法並無特別的限定，可利用公知方法進行製造。例如藉由將各聚合成分在高溫與高壓下進行

自由基共聚合便可獲得。又，乙烯·不飽和酯共聚合體(A)亦可使用市售物。

【0033】 從更加提升接著性的觀點而言，較佳係乙烯·不飽和酯共聚合體(A)之至少其中一部分利用矽烷偶合劑進行改質。

此處，乙烯·不飽和酯共聚合體(A)的上述矽烷偶合劑，較佳係含有從具聚合性基之矽烷偶合劑、具胺基之矽烷偶合劑、及具環氧基之矽烷偶合劑所構成群組中選擇之至少一種。

矽烷偶合劑之含量係從更加提升接著性的觀點而言，相對於乙烯·不飽和酯共聚合體(A)100質量份，較佳係0.02質量份以上、更佳係0.1質量份以上、特佳係0.5質量份以上，又，較佳係5質量份以下、更佳係4質量份以下、特佳係3質量份以下。

【0034】 此處，矽烷偶合劑對乙烯·不飽和酯共聚合體(A)的改質，係可舉例如與後述矽烷偶合劑對含環氧基之乙烯系共聚合體(B)的改質相同的方法。

再者，矽烷偶合劑對乙烯·不飽和酯共聚合體(A)的改質、與矽烷偶合劑對含環氧基之乙烯系共聚合體(B)的改質亦可同時實施。

當矽烷偶合劑對乙烯·不飽和酯共聚合體(A)的改質、與矽烷偶合劑對含環氧基之乙烯系共聚合體(B)的改質為同時實施的情況，改質所使用之聚合起始劑的含量，係相對於乙烯·不飽和酯共聚合體(A)與含環氧基之乙烯系共聚合體(B)合計100質量份，較佳係0.05質量份以上、更佳係0.1質量份以上、特佳係0.2質量份以上，又，較佳係5質量份以下、更佳係3質量份以下、特佳係1.5質量份以下、進而更佳係1質量份以下、進而特佳係0.3質量份以下。

矽烷偶合劑之含量係從更加提升接著性的觀點而言，相對於乙烯·不飽和酯共聚合體(A)與含環氧基之乙烯系共聚合體(B)合計100質量份，較佳係0.02質量份以上、更佳係0.1質量份以上、特佳係0.5質量份以上，又，較佳係5質量份以下、更佳係4質量份以下、特佳係3質量份以下、進而更佳係1.5質量份以下。

【0035】

<含環氧基之乙烯系共聚合體(B)>

含環氧基之乙烯系共聚合體(B)係可舉例如含環氧丙基之乙烯系共聚合體。

含環氧丙基之乙烯系共聚合體係從更加提升透明性、及對聚酯樹脂層之接著性的觀點而言，較佳係從乙烯·(甲基)丙烯酸環氧丙酯共聚合體、乙烯·(甲基)丙烯酸環氧丙酯·醋酸乙烯酯共聚合體、及乙烯·(甲基)丙烯酸環氧丙酯·(甲基)丙烯酸酯共聚合體所構成群組中選擇之至少一種，更佳係乙烯·(甲基)丙烯酸環氧丙酯·(甲基)丙烯酸酯共聚合體，特佳係乙烯·(甲基)丙烯酸環氧丙酯·(甲基)丙烯酸甲酯共聚合體，進而更佳係乙烯·甲基丙烯酸環氧丙酯·丙烯酸甲酯共聚合體。

【0036】含環氧基之乙烯系共聚合體(B)係藉由將縮水甘油(甲基)(以下亦稱「(甲基)丙烯酸環氧丙酯」)、乙烯環氧丙醚、1,2-環氧-4-烯基環己烷、甲基丙烯酸酯-3,4-環氧環己基甲酯等具有聚合性基與環氧基的單體，與乙烯進行共聚合便可獲得。又，亦可對乙烯系共聚合體使具環氧基單體接枝聚合而導入環氧基。

【0037】含環氧基之乙烯系共聚合體(B)中，源自具環氧基單體的構成單位的含量，係相對於構成含環氧基之乙烯系共聚合體(B)的總構成單位，從更加提升接著性、透明性及柔軟性的觀點而言，較佳係0.5質量

%以上、更佳係1質量%以上、特佳係2質量%以上、進而更佳係3質量%以上，又，從更加提升加工性的觀點而言，較佳係30質量%以下、更佳係20質量%以下、特佳係10質量%以下、進而更佳係8質量%以下、進而特佳係6質量%以下。

另外，所謂「(甲基)丙烯酸環氧丙酯」係表示從甲基丙烯酸環氧丙酯及丙烯酸環氧丙酯所構成群組中選擇之至少一種。

【0038】 含環氧基之乙烯系共聚合體(B)的「乙烯系共聚合體」，係指以源自乙烯的構成單位為主成分。又，此處所謂「主成分」係指總構成單位中「源自乙烯的構成單位」含量最多者。例如當由分別源自乙烯、(甲基)丙烯酸環氧丙酯以及醋酸乙烯酯的構成單位所構成之共聚合體的情況，便指源自乙烯的構成單位之比率為較多於源自(甲基)丙烯酸環氧丙酯的構成單位、源自醋酸乙烯酯的構成單位。

含環氧基之乙烯系共聚合體(B)中，源自乙烯的構成單位的含量係相對於構成含環氧基之乙烯系共聚合體(B)的總構成單位，從提升生產性的觀點而言，較佳係50質量%以上、更佳係55質量%以上、特佳係60質量%以上、進而更佳係65質量%以上、進而特佳係67質量%以上，又，從更加提升透明性及對聚酯樹脂層之接著性的觀點而言，較佳係82質量%以下、更佳係80質量%以下、特佳係78質量%以下、進而更佳係75質量%以下、進而特佳係72質量%以下、最佳係70質量%以下。

【0039】 含環氧基之乙烯系共聚合體(B)亦可更進一步含有具乙烯與環氧基之單體以外的其他單體單位。

其他單體係可舉例如：醋酸乙烯酯、丙酸乙烯酯等乙烯酯；丙烯酸酯、甲基丙烯酸酯、乙基丙烯酸酯、巴豆酸酯、反丁烯二酸酯、順丁烯二酸酯、順丁烯二酸酐酯、伊康酸酯、伊康酸酐酯等不飽和羧酸酯等等。酯

基係可舉例如碳數1以上且12以下之烷酯基，更具體係可例示如：甲酯、乙酯、正丙酯、異丙酯、正丁酯、異丁酯、第二丁酯、2-乙基己酯、異辛酯等烷酯基。

該等之中，較佳係從醋酸乙烯酯及(甲基)丙烯酸酯所構成群組中選擇之至少一種。

【0040】 具體而言，除了含有源自乙烯的構成單位、與源自(甲基)丙烯酸環氧丙酯的構成單位之共聚合體外，尚可舉例如除了該2個構成單位外，更進一步含有源自醋酸乙烯酯的構成單位、與源自(甲基)丙烯酸酯的構成單位所構成群組中選擇之至少一種構成單位的共聚合體。

【0041】 含環氧基之乙烯系共聚合體(B)中，除了具乙烯與環氧基之單體外，源自其他單體的構成單位的含量係相對於構成含環氧基之乙烯系共聚合體(B)的總構成單位，從更加提升透明性、以及對玻璃、聚酯樹脂層之接著性的觀點而言，較佳係1質量%以上、更佳係5質量%以上、特佳係10質量%以上、進而更佳係15質量%以上、進而特佳係20質量%以上、最佳係25質量%以上、進而最佳係26質量%以上，又，較佳係40質量%以下、更佳係35質量%以下、特佳係30質量%以下、進而更佳係29質量%以下、進而特佳係28質量%以下。

【0042】 含環氧基之乙烯系共聚合體(B)係可單獨使用一種、亦可組合使用二種以上。

【0043】 含環氧基之乙烯系共聚合體(B)之至少其中一部分，係從更加提升對玻璃、聚酯樹脂層之接著性的觀點而言，最好利用矽烷偶合劑進行改質。

【0044】 此處，本發明的接著性樹脂組成物中，含環氧基之乙烯系共聚合體(B)的上述矽烷偶合劑較佳係含有從具聚合性基之矽烷偶合劑、

具胺基之矽烷偶合劑、及具環氧基之矽烷偶合劑所構成群組中選擇之至少一種。

此處，矽烷偶合劑對含環氧基之乙烯系共聚合體(B)的改質，係可舉例如：使含環氧基之乙烯系共聚合體(B)、與具胺基或環氧基之矽烷偶合劑，在加熱下(例如100°C以上且200°C以下)進行反應的方法(改質方法1)；使用聚合起始劑，於含環氧基之乙烯系共聚合體(B)使具聚合性基之矽烷偶合劑接枝聚合的方法(改質方法2)等。

改質方法1係藉由使矽烷偶合劑中的胺基或環氧基、與含環氧基之乙烯系共聚合體(B)中的環氧丙基進行反應，而在含環氧基之乙烯系共聚合體(B)的側鏈導入矽烷偶合劑。

改質方法2係例如將含環氧基之乙烯系共聚合體(B)、具聚合性基之矽烷偶合劑、以及自由基聚合起始劑，使用擠出機、捏和機、班布瑞混合機等，藉由依含環氧基之乙烯系共聚合體(B)的熔點以上、且自由基聚合起始劑之分解溫度以上的溫度進行熔融混練便可製造。另外，該等反應亦可在溶液中實施。

【0045】 聚合起始劑係可使用通常所用者，較佳係有機過氧化物。

有機過氧化物係可採用能使用為聚合起始劑的公知有機過氧化物，具體係可舉例如：過氧化二醯化合物、過氧化烷基酯化合物、過氧化二碳酸酯化合物、過氧化碳酸酯化合物、過氧化縮酮化合物、過氧化二烷基化合物、過氧化氫化合物、過氧化酮化合物等。

其中，較佳係過氧化二烷基化合物，更佳係2,5-二甲基-2,5-二(過氧化第三丁基)己烷、1,3-二(2-過氧化第三丁基異丙基)苯、過氧化二第三丁基、2,5-二甲基-2,5-二(過氧化第三丁基)己炔-3。

【0046】 具聚合性基之矽烷偶合劑係可舉例如：乙烯基三甲氧基矽烷、乙烯基三乙氧基矽烷、3-甲基丙烯醯氧丙基甲基二甲氧基矽烷、3-甲基丙烯醯氧丙基三甲氧基矽烷、3-甲基丙烯醯氧丙基甲基二乙氧基矽烷、3-甲基丙烯醯氧丙基三乙氧基矽烷、3-丙烯醯氧丙基甲基二甲氧基矽烷、3-丙烯醯氧丙基三甲氧基矽烷、3-丙烯醯氧丙基甲基二乙氧基矽烷、3-丙烯醯氧丙基三乙氧基矽烷等。

具胺基之矽烷偶合劑係可舉例如：N-(2-胺乙基)-3-胺丙基三甲氧基矽烷、N-(2-胺乙基)-3-胺丙基甲基二甲氧基矽烷、N-2-(胺乙基)-3-胺丙基三乙氧基矽烷、3-胺丙基三甲氧基矽烷、3-胺丙基三乙氧基矽烷、3-三乙氧基矽烷基-N-(1,3-二甲基-亞丁基)丙基胺、N-苯基-3-胺丙基三甲氧基矽烷、N-(乙烯苄基)-2-胺乙基-3-胺丙基三甲氧基矽烷的鹽酸鹽等。

具環氧基之矽烷偶合劑係可舉例如：2-(3,4-環氧環己基)乙基三甲氧基矽烷、3-環氧丙氧基丙基甲基二甲氧基矽烷、3-環氧丙氧基丙基三甲氧基矽烷、3-環氧丙氧基丙基甲基二乙氧基矽烷、3-環氧丙氧基丙基三乙氧基矽烷等。

【0047】 改質所使用之聚合起始劑的含量，係從更加提升對玻璃、聚酯樹脂層之接著性的觀點而言，相對於含環氧基之乙烯系共聚合體(B)100質量份，較佳係0.1質量份以上、更佳係0.3質量份以上，又，較佳係5質量份以下、更佳係3質量份以下、特佳係1.0質量份以下、進而更佳係0.6質量份以下。

矽烷偶合劑的含量係從更加提升對玻璃、聚酯樹脂層之接著性的觀點而言，相對於含環氧基之乙烯系共聚合體(B)100質量份，較佳係0.02質量份以上，又，較佳係5質量份以下、更佳係4質量份以下、特佳係3質量份以下。

【0048】 含環氧基之乙烯系共聚合體(B)根據JIS K 7206：1999所規定的域克軟化點，從更加提升對玻璃、聚酯樹脂層之接著性的觀點而言，較佳係65°C以下、更佳係50°C以下、特佳係40°C以下、進而更佳係30°C以下、進而特佳係25°C以下，又，從耐熱性、加工性的觀點而言，較佳係20°C以上。

【0049】 含環氧基之乙烯系共聚合體(B)根據JIS K 7121-1987所測定的熔點，從更加提升對玻璃、聚酯樹脂層之接著性的觀點而言，較佳係90°C以下、更佳係80°C以下、特佳係70°C以下、進而更佳係65°C以下、進而特佳係60°C以下，又，從耐熱性、加工性的觀點而言，較佳係30°C以上、更佳係40°C以上、特佳係45°C以上、進而更佳係52°C以上。

【0050】 含環氧基之乙烯系共聚合體(B)根據JIS K 7210：1999，依190°C、2160g荷重的條件所測定之熔體流動速率(MFR)，從更加提升加工安定性的觀點而言，較佳係0.1g/10分以上、更佳係1g/10分以上、特佳係2g/10分以上、進而更佳係3g/10分以上、進而特佳係4g/10分以上，又，較佳係100g/10分以下、更佳係50g/10分以下、特佳係20g/10分以下、進而更佳係10g/10分以下。

【0051】

<其他成分>

本發明的接著性樹脂組成物中，在不致損及本發明目的之範圍內，尚可含有乙烯·不飽和酯共聚合體(A)、及含環氧基之乙烯系共聚合體(B)以外的成分。其他成分並無特別的限定，係可舉例如：可塑劑、抗氧化劑、紫外線吸收劑、波長轉換劑、抗靜電劑、界面活性劑、著色劑、耐光安定劑、發泡劑、潤滑劑、結晶核劑、結晶化促進劑、結晶化延遲劑、觸媒去活劑、熱線吸收劑、熱線反射劑、散熱劑、熱可塑性樹脂、熱硬化性樹脂、

無機填充劑、有機填充劑、耐衝擊性改良劑、滑動劑、交聯劑、交聯助劑、矽烷偶合劑、賦黏劑、加工助劑、脫模劑、抗水解劑、耐熱安定劑、防黏劑、防霧劑、難燃劑、難燃助劑、光擴散劑、抗菌劑、防黴劑、分散劑、及其他樹脂等。其他成分係可單獨使用一種、亦可組合使用二種以上。

【0052】 本發明的接著性樹脂組成物係從更加提升透明性的觀點而言，依下述方法所測定的霧度，較佳係10%以下、更佳係9%以下、特佳係8.4%以下。

(方法)

將上述接著性樹脂組成物依140℃、9.8MPa之條件施行衝壓後，再依20℃、14.7MPa之條件冷卻，而製作厚度3mm的衝壓片。接著，利用霧度計根據JIS K 7136：2000測定所獲得之上述衝壓片的霧度。

【0053】 本發明的接著性樹脂組成物係從更加提升所獲得之層合玻璃、太陽電池模組的透明性的觀點而言，依照下述方法所測定的霧度較佳係5%以下、更佳係4%以下、特佳係3.0%以下。

(方法)

依序將厚度之3.2mm玻璃、厚度1500 μm 之離子聚合物樹脂層、厚度100 μm 之由上述接著性樹脂組成物構成的片材、以及厚度3.2mm之玻璃進行積層，再依加熱溫度140℃、加熱時壓力1atm、加熱時間20分鐘進行貼合。利用自然冷卻進行徐冷，而製作光學性評價用玻璃積層體。接著，利用霧度計根據JIS K 7136：2000測定所獲得之上述玻璃積層體的霧度。

【0054】 本發明的接著性樹脂組成物係從更加提升對聚酯樹脂層之接著性的觀點而言，依照下述方法所測定之對PET薄膜的接著強度，在初期、經500小時後、及經1000小時後均較佳係15N/15mm以上、更佳係18N/15mm以上、特佳係20N/15mm以上。

(方法)

依序將厚度3.9mm之玻璃(將非錫面設為接著面)、厚度300 μ m之由上述接著性樹脂組成物構成的片材、以及厚度100 μ m之PET薄膜(未施行電暈處理)進行積層，再依加熱溫度140 $^{\circ}$ C、加熱時壓力1atm、加熱時間60分鐘進行貼合，而製作玻璃積層體。然後，將上述玻璃積層體靜置於大氣中，利用自然冷卻進行徐冷。在所獲得上述玻璃積層體的片材部分刻劃寬15mm之狹縫，而形成試驗片，並設置於拉伸試驗機中。依拉伸速度100mm/分、剝離角度180 $^{\circ}$ 撕開PET薄膜，依初期接著強度(N/15mm)求取平均應力。此處，所謂「平均應力」係指在撕開PET薄膜期間所測定之應力的平均值。將上述玻璃積層體依85 $^{\circ}$ C、相對濕度90%之條件進行保管，分別求取經保管500小時後的上述玻璃積層體之接著強度、與經保管1000小時後的上述玻璃積層體之接著強度。

【0055】 本發明的接著性樹脂組成物係從更加提升對聚酯樹脂層之接著性的觀點而言，依照下述方法所測定之經保管1000小時後、對PET薄膜的接著強度較佳係50N/15mm以上、更佳係70N/15mm以上、特佳係85N/15mm以上、進而更佳係89.6N/15mm以上。

(方法)

依序將厚度3.9mm之玻璃(以非錫面設為接著面)、厚度300 μ m之由上述接著性樹脂組成物所構成片材、以及厚度100 μ m之PET薄膜(未施行電暈處理)進行積層，依加熱溫度140 $^{\circ}$ C、加熱時壓力1atm、加熱時間60分鐘進行貼合，而製作玻璃積層體。然後，將上述玻璃積層體靜置於大氣中，利用自然冷卻進行徐冷。接著，將上述玻璃積層體在85 $^{\circ}$ C、相對濕度90%之條件下保管1000小時。在所獲得之上述玻璃積層體的片材部分刻劃寬15mm之狹縫，而形成試驗片，並設置於拉伸試驗機中。依拉伸速度

100mm/分、剝離角度180°撕開PET薄膜，依經保管1000小時後之對PET薄膜的接著強度(N/15mm)求取平均應力。

【0056】

2.層合玻璃中間膜

本發明的層合玻璃中間膜係設有含本發明接著性樹脂組成物的接著性樹脂層。

本發明的層合玻璃中間膜係可為單層構成、亦可為2層以上的多層構成。

更具體而言，本發明的層合玻璃中間膜係可為由1層之上述接著性樹脂層構成的單層構成的膜，亦可為由2層以上之上述接著性樹脂層構成的多層構成的膜，亦可為設有至少1層之上述接著性樹脂層、與至少1層之上述接著性樹脂層以外之其他層的多層構成的膜。

【0057】 接著性樹脂層的厚度係從更加提升接著強度與設計性的觀點而言，較佳係5 μm 以上、更佳係10 μm 以上、特佳係20 μm 以上、進而更佳係30 μm 以上、進而特佳係50 μm 以上、最佳係75 μm 以上，又，從使所獲得層合玻璃或太陽電池模組的透明性與耐熱性更良好之觀點而言，較佳係2000 μm 以下、更佳係1500 μm 以下、特佳係1000 μm 以下、進而更佳係500 μm 以下、進而特佳係400 μm 以下。

【0058】 本發明的層合玻璃中間膜係從更加提升透明性、及對玻璃的接著性之觀點而言，最好係具備有：含乙烯·不飽和羧酸系共聚合體之離子聚合物(C)的離子聚合物樹脂層、以及含本發明接著性樹脂組成物之接著性樹脂層的多層構成。

當本發明的層合玻璃中間膜係具備有離子聚合物樹脂層與接著性樹脂層的多層構成之情況，可為含有離子聚合物樹脂層與接著性樹脂層的

雙層構成，亦可為含有：離子聚合物樹脂層、與依夾置該離子聚合物樹脂層之方式形成於其雙面上的2個接著性樹脂層之3層構成。

當本發明的層合玻璃中間膜係具備有離子聚合物樹脂層與接著性樹脂層之多層構成的情況，離子聚合物樹脂層(厚度a)與接著性樹脂層(厚度b)的厚度比(a/b)，從更加提升對玻璃之接著性、及透明性的觀點而言，較佳係3/1以上且80/1以下、更佳係7/1以上且30/1以下。

【0059】 本發明的層合玻璃中間膜，從更加提升對玻璃之接著性、透明性、層間接著性、及設計性的觀點而言，更佳係依序具備有：含乙烯·不飽和羧酸系共聚合體之離子聚合物(C)的離子聚合物樹脂層、含本發明接著性樹脂組成物的接著性樹脂層、以及含聚酯樹脂(D)的聚酯樹脂層之多層構成。

當本發明的層合玻璃中間膜係依序具備有：離子聚合物樹脂層、本發明的接著性樹脂層、以及聚酯樹脂層的多層構成之情況，從更加提升本發明層合玻璃中間膜的層間接著性的觀點而言，最好係離子聚合物樹脂層與本發明接著性樹脂層相鄰接，且聚酯樹脂層係鄰接於本發明接著性樹脂層之與離子聚合物樹脂層相鄰接之面的相反側面之多層構成。

【0060】 當本發明的層合玻璃中間膜係具備有：離子聚合物樹脂層、接著性樹脂層及聚酯樹脂層的多層構成之情況，離子聚合物樹脂層(厚度a)與接著性樹脂層(厚度b)的厚度比(a/b)，從更加提升接著性與透明性的觀點而言，較佳係3/1以上且80/1以下、更佳係7/1以上且30/1以下。

【0061】

<離子聚合物樹脂層>

離子聚合物樹脂層係含有乙烯·不飽和羧酸系共聚合體之離子聚合物(C)(以下亦稱「離子聚合物(C)」)，較佳係含有離子聚合物(C)作為主成分。

此處，所謂「主成分」係指離子聚合物(C)在離子聚合物樹脂層中含有50質量%以上。

離子聚合物樹脂層中的離子聚合物(C)的含量，係將離子聚合物樹脂層全體設為100質量%時，從更加提升對玻璃之接著性的觀點而言，較佳係60質量%以上、更佳係70質量%以上、特佳係80質量%以上、進而更佳係90質量%以上、進而特佳係95質量%以上。離子聚合物樹脂層中的離子聚合物(C)的上限並無特別的限定，例如為100質量%以下。

【0062】 離子聚合物樹脂層的厚度係從使機械強度更良好的觀點而言，較佳係10 μm 以上、更佳係50 μm 以上、特佳係100 μm 以上、進而更佳係250 μm 以上、進而特佳係500 μm 以上、最佳係750 μm 以上、進而最佳係1000 μm 以上，又，從使所獲得層合玻璃或太陽電池模組的透明性更良好之觀點而言，較佳係5000 μm 以下、更佳係3000 μm 以下、特佳係2000 μm 以下。

【0063】 乙烯·不飽和羧酸系共聚合體的離子聚合物(C)，係使乙烯·與至少1種不飽和羧酸進行共聚合的聚合體之離子聚合物，針對乙烯·不飽和羧酸系共聚合體，經利用金屬離子對羧基之至少其中一部分進行中和的樹脂。

屬於乙烯·不飽和羧酸系共聚合體之離子聚合物(C)之基質樹脂的乙烯·不飽和羧酸系共聚合體，係至少以乙烯·與不飽和羧酸為共聚成分進行共聚合的聚合體，視需要亦可由乙烯與不飽和羧酸系以外的單體進行共聚合。

乙烯·不飽和羧酸系共聚合體係可單獨使用一種，亦可併用二種以上的乙烯·不飽和羧酸系共聚合體。

【0064】 乙烯·不飽和羧酸系共聚合體之形態係可為嵌段共聚合體、無規共聚合體、接枝共聚合體中之任一種，若考慮生產性，較佳係使用二元無規共聚合體、三元無規共聚合體、二元無規共聚合體的接枝共聚合體、或三元無規共聚合體的接枝共聚合體，更佳係二元無規共聚合體或三元無規共聚合體。

【0065】 構成乙烯·不飽和羧酸系共聚合體的不飽和羧酸係可舉例如：丙烯酸、甲基丙烯酸、乙基丙烯酸、伊康酸、伊康酸酐、反丁烯二酸、巴豆酸、順丁烯二酸、順丁烯二酸酐、順丁烯二酸單酯(順丁烯二酸單甲酯、順丁烯二酸單乙酯等)、順丁烯二酸酐單酯(順丁烯二酸酐單甲酯、順丁烯二酸酐單乙酯等)等碳數4以上且8以下之不飽和羧酸或半酯。

該等之中，不飽和羧酸係從提升乙烯·不飽和羧酸系共聚合體之生產性的觀點而言，較佳係含有從丙烯酸及甲基丙烯酸中選擇之至少一種。該等不飽和羧酸係可單獨使用1種、亦可組合使用2種以上。

【0066】 乙烯·不飽和羧酸系共聚合體中由乙烯所衍生之構成單位的含量，係將乙烯·不飽和羧酸系共聚合體的總構成單位設為100質量%時，從更加提升耐熱性與加工性的觀點而言，較佳係65質量%以上、更佳係70質量%以上、特佳係75質量%以上，又，較佳係95質量%以下、更佳係90質量%以下、特佳係85質量%以下。

乙烯·不飽和羧酸系共聚合體中由不飽和羧酸所衍生之構成單位的含量，係將乙烯·不飽和羧酸系共聚合體的總構成單位設為100質量%時，從更加提升透明性與接著性的觀點而言，較佳係5質量%以上、更佳係10質量%以上、特佳係15質量%以上、進而更佳係18質量%以上、進而特佳

係19質量%以上，又，較佳係35質量%以下、更佳係30質量%以下、特佳係25質量%以下、進而更佳係22質量%以下、進而特佳係21質量%以下。

此處，乙烯·不飽和羧酸系共聚合體中的不飽和羧酸含量，係例如利用傅立葉轉換紅外吸收分光法(FT-IR)便可測定。

【0067】 乙烯·不飽和羧酸系共聚合體係至少由乙烯與不飽和羧酸進行共聚合的共聚合體，亦可更進一步為經第3共聚合成分進行共聚合的三元以上之多元共聚合體。

第3共聚合成分係可舉例如：不飽和羧酸酯(例如：丙烯酸甲酯、丙烯酸乙酯、丙烯酸異丁酯、丙烯酸正丁酯、丙烯酸異辛酯、丙烯酸-2-乙基己酯；以及甲基丙烯酸甲酯、甲基丙烯酸乙酯、甲基丙烯酸異丁酯、甲基丙烯酸正丁酯、甲基丙烯酸異辛酯、甲基丙烯酸-2-乙基己酯、順丁烯二酸二甲酯、順丁烯二酸二乙酯等(甲基)丙烯酸烷基酯)、乙烯酯(例如：醋酸乙烯酯、丙酸乙烯酯等)、不飽和烴(例如：丙烯、丁烯、1,3-丁二烯、戊烯、1,3-戊二烯、1-己烯等)、乙烯硫酸、乙烯硝酸等的氧化物、鹵化合物(例如氯乙烯、氟乙烯等)、含乙烯基之一、二級胺化合物、一氧化碳、二氧化硫等。

該等之中，第3共聚合成分較佳係不飽和羧酸酯，更佳係(甲基)丙烯酸烷基酯(烷基部位較佳碳數係1以上且4以下)。

【0068】 源自第3共聚合成分的構成單位於乙烯·(甲基)丙烯酸系共聚合體中的含有比率，從生產·混合的觀點而言，較佳係在25質量%以下範圍內。

【0069】 構成乙烯·不飽和羧酸系共聚合體的離子聚合物(C)之金屬離子，係可舉例如：鋰離子、鉀離子、鈉離子等鹼金屬離子；鈣離子、

鎂離子、鋅離子、鋁離子、鉍離子等多價金屬離子等等。該等金屬離子係可單獨使用1種、亦可組合使用2種以上。

該等之中，較佳係含有從鈉離子、鋅離子及鎂離子中選擇之至少一種，更佳係含有鎂離子。

【0070】 乙烯·不飽和羧酸系共聚合體的離子聚合物(C)之中和度，從更加提升透明性的觀點而言，較佳係5莫耳%以上、更佳係10莫耳%以上、特佳係20莫耳%以上、進而更佳係30莫耳%以上、進而特佳係40莫耳%以上，又，從更加提升接著性、加工性及成形性的觀點而言，較佳係95莫耳%以下、更佳係90莫耳%以下、特佳係80莫耳%以下、進而更佳係70莫耳%以下、進而特佳係60莫耳%以下、最佳係50莫耳%以下、進而最佳係45莫耳%以下。

此處，乙烯·不飽和羧酸系共聚合體的離子聚合物(C)之中和度，係例如利用焚燒殘渣分析法便可測定。

【0071】 乙烯·不飽和羧酸系共聚合體的離子聚合物(C)之製造方法並無特別的限定，可利用公知方法進行製造。又，乙烯·不飽和羧酸系共聚合體的離子聚合物(C)亦可使用市售物。

【0072】 乙烯·不飽和羧酸系共聚合體的離子聚合物(C)根據JIS K 7210：1999，依190°C、2160g荷重條件所測定的熔體流動速率(MFR)，從更加提升層合玻璃中間膜的層間接著性與成形性之觀點而言，較佳係0.1g/10分以上、更佳係0.5g/10分以上、特佳係1.0g/10分以上、進而更佳係1.5g/10分以上、進而特佳係2.0g/10分以上，又，較佳係30g/10分以下、更佳係15g/10分以下、特佳係10g/10分以下、進而更佳係5g/10分以下、進而特佳係3.0g/10分以下。

【0073】離子聚合物樹脂層中，在不致損及本發明目的之範圍內，亦可含有乙烯·不飽和羧酸系共聚合體的離子聚合物(C)以外之成分。該其他成分並無特別的限定，可舉例如：可塑劑、抗氧化劑、紫外線吸收劑、抗靜電劑、界面活性劑、著色劑、光安定劑、發泡劑、潤滑劑、結晶核劑、結晶化促進劑、結晶化延遲劑、觸媒去活劑、離子聚合物(C)以外的熱可塑性樹脂、熱硬化性樹脂、無機填充劑、有機填充劑、耐衝擊性改良劑、滑動劑、交聯劑、交聯助劑、賦黏劑、矽烷偶合劑、加工助劑、脫模劑、抗水解劑、耐熱安定劑、防黏劑、防霧劑、難燃劑、難燃助劑、光擴散劑、抗菌劑、防黴劑、分散劑、以及其他樹脂等。該其他成分係可單獨使用1種、亦可組合使用2種以上。但，離子聚合物樹脂層最好未含有含環氧基之乙烯系共聚合體。

【0074】

< 聚酯樹脂層 >

聚酯樹脂層係含有聚酯樹脂(D)較佳係含有聚酯樹脂(D)作為主成分。此處所謂「主成分」係指聚酯樹脂(D)在聚酯樹脂層中含有50質量%以上。

聚酯樹脂層中的聚酯樹脂(D)含量，係將聚酯樹脂層全體設為100質量%時，較佳係60質量%以上、更佳係70質量%以上、特佳係80質量%以上、進而更佳係90質量%以上、進而特佳係95質量%以上。聚酯樹脂層中的聚酯樹脂(D)的上限並無特別的限定，例如100質量%以下。

【0075】聚酯樹脂層的厚度係從更加提升機械強度與設計性的觀點而言，較佳係5 μm 以上、更佳係10 μm 以上、特佳係20 μm 以上、進而更佳係30 μm 以上、進而特佳係50 μm 以上、最佳係75 μm 以上，又，從使所獲得層合玻璃或太陽電池模組的透明性與層間接著性更良好的觀點而

言，較佳係2000 μm 以下、更佳係1000 μm 以下、特佳係500 μm 以下、進而更佳係200 μm 以下、進而特佳係150 μm 以下。

【0076】 聚酯樹脂(D)係可舉例如：聚對苯二甲酸乙二酯(PET)、聚對苯二甲酸丙二酯(PTT)、聚對苯二甲酸丁二酯(PBT)、聚對萘二甲酸乙二酯(PEN)等。對上述聚酯樹脂層的表面亦可施行塗佈等易接著處理等等。又，上述聚酯樹脂層亦可由上述複數種聚酯樹脂層構成的多層構成薄膜。

【0077】 聚酯樹脂層係可利用公知T型模頭澆鑄膜法工業性製造由上述聚酯構成的單層薄膜，或者亦可利用共擠出式T型模頭澆鑄膜法工業性製造使用2種以上聚酯、與聚酯以外之其他樹脂的共擠出薄膜。該等係可為無延伸，但從更加提升薄膜的強韌性、透明性、耐熱性、阻氣性等觀點而言，較佳係延伸薄膜。

【0078】 本發明層合玻璃中間膜的全體厚度，從更加提升機械強度的觀點而言，較佳係0.1mm以上、更佳係0.2mm以上、特佳係0.3mm以上，又，從使所獲得層合玻璃的透明性、與層間接著性更良好的觀點而言，較佳係10mm以下、更佳係5mm以下、特佳係3mm以下。

【0079】 本發明之層合玻璃中間膜的製造方法並無特別的限定，可採用習知公知製造方法。

本發明之層合玻璃中間膜的製造方法係可採用例如：衝壓成形法、擠出成形法、T型模頭成形法、射出成形法、壓縮成形法、澆鑄成形法、軋延成形法、充氣成形法等。

【0080】

3.層合玻璃

本發明的層合玻璃係具備有：本發明的層合玻璃中間膜、與設置於層合玻璃中間膜之雙面上的透明板狀構件。此處，本說明書中，亦將「透明板狀構件」稱為「玻璃」。

本發明的層合玻璃係藉由具備有本發明的層合玻璃中間膜，便可提升透明性與層間接著性。

層合玻璃中間膜係可使用2層以上，又亦可將由其他樹脂構成的層夾置於2片層合玻璃中間膜之間形成為3層以上。

【0081】 本發明之層合玻璃的層構成係可舉例如以下例1~3的構成：

例1：透明板狀構件/離子聚合物樹脂層/接著性樹脂層/透明板狀構件

例2：透明板狀構件/離子聚合物樹脂層/接著性樹脂層/聚酯樹脂層/接著性樹脂層/透明板狀構件

例3：透明板狀構件/離子聚合物樹脂層/接著性樹脂層/聚酯樹脂層/接著性樹脂層/離子聚合物樹脂層/透明板狀構件

本發明之層合玻璃的層構成最好含有至少1個由透明板狀構件與離子聚合物樹脂層相鄰接的構成。藉由在透明板狀構件與接著性樹脂層之間設置離子聚合物樹脂層，可更加提升層合玻璃的耐久性。

【0082】 透明板狀構件並無特別的限定，例如可使用一般所用的透明板玻璃，例如：浮法玻璃、磨光平板玻璃(polished plate glass)、壓花玻璃、網板玻璃、夾絲板玻璃、經著色的板玻璃、熱射線吸收板玻璃、熱線反射板玻璃、綠玻璃等無機玻璃。又，亦可使用例如：聚碳酸酯板、聚(甲基)丙烯酸酯板、聚(甲基)丙烯酸甲酯板、聚苯乙烯板、環式聚烯烴板、聚對苯二甲酸乙二酯板、聚對萘二甲酸乙二酯板、聚丁酸乙烯酯板等有機塑膠板。該等之中，較佳係透明板玻璃、更佳係無機玻璃。

又，透明板狀構件亦可適當施行電暈處理、電漿處理、火焰處理等表面處理。

【0083】透明板狀構件的厚度較佳係0.1mm以上、更佳係0.5mm以上、特佳係1mm以上，又，較佳係20mm以下、更佳係10mm以下、特佳係5mm以下。本發明的層合玻璃中，在層合玻璃中間膜之雙面所設置的各透明板狀構件，係分別可使用相同物、亦可組合使用不同的板狀構件。

【0084】本發明之層合玻璃的製造方法並無特別的限定，可採用例如：夾輓法、熱壓鍋法、真空袋法、真空層壓法等習知公知製造方法。該等手法係可使用1種進行製造、亦可組合2種以上製造方法進行製造。

本發明之層合玻璃的製造方法係可採用例如將本發明的層合玻璃中間膜夾置於2片透明板狀構件間之後，再施行加熱加壓的方法等。

該等之中，本發明之層合玻璃的製造方法較佳係組合夾輓法與熱壓鍋法的方法、或者組合真空袋法與熱壓鍋法的方法。

組合夾輓法與熱壓鍋法的方法係例如：將使本發明層合玻璃中間膜夾置於2片透明板狀構件間而獲得的積層體，利用夾輓暫時壓接，接著使用熱壓鍋將上述積層體施行加熱・加壓處理而進行熱壓接，獲得層合玻璃的方法。

組合真空袋法與熱壓鍋法的方法係例如：將使本發明層合玻璃中間膜夾置於2片透明板狀構件間而獲得的積層體，裝入真空袋內，接著將真空袋內減壓而將上述積層體暫時壓接，接著使用熱壓鍋將上述積層體施行加熱・加壓處理而進行熱壓接，獲得層合玻璃的方法。

【0085】本發明的層合玻璃係可使用於各種用途，例如可使用於建築用層合玻璃、汽車用層合玻璃、一般建築物、農用建築物、鐵路車窗等，惟並不僅侷限於該等用途。

【0086】

4. 太陽電池密封材

本發明的太陽電池密封材係設有含本發明接著性樹脂組成物的接著性樹脂層。

本發明太陽電池密封材的層構成及各層的較佳態樣，係與本發明的層合玻璃中間膜相同，故在此不再贅述。

再者，本發明的太陽電池密封材係可依照與本發明層合玻璃中間膜同樣的製造方法進行製造。

【0087】

5. 太陽電池模組

本發明的太陽電池模組係具備有：太陽電池元件、以及用於密封上述太陽電池元件之由本發明太陽電池密封材構成的密封樹脂層。本發明的太陽電池模組係藉由設有由本發明太陽電池密封材所構成的密封樹脂層，便可提升透明性與層間接著性。

本發明的太陽電池模組係視需要亦可更進一步具備太陽光能入射的基板、保護材等。另外，太陽光能入射的基板亦簡稱為「基板」。

本發明的太陽電池模組係例如利用太陽電池密封材夾置太陽電池元件，再將該等利用基板與保護材夾置，而製作積層體。接著，將積層體施行加熱・加壓，使各構件間接著便可製作。

【0088】 此種太陽電池模組係可例示各種形式。例如依照基板/密封材/太陽電池元件/密封材/保護材的順序積層，再利用密封材從太陽電池元件二側包夾的構成；將預先在玻璃等基板表面上形成的太陽電池元件，構成為依序積層基板/太陽電池元件/密封材/保護材的構成；在基板內

周面上所形成的太陽電池元件(例如利用濺鍍等在氟樹脂系片材上製作的非晶太陽電池元件)上，形成密封材與保護材的構成等。

另外，保護材係將太陽光能入射的基板設為太陽電池模組的上部時，由於設置於太陽電池模組之基板側的相反側、亦即下部，因而亦稱為「下部保護材」或「背面保護材」。

【0089】 太陽電池元件係可使用例如：單晶矽、多晶矽、及非晶矽等矽系；鎘-碲、銅-銦-硒、銅-銦-鎘-硒、及鎘-碲等III-V族或II-VI族化合物半導體系；非晶矽與單晶矽的異質接合式等各種太陽電池元件。

太陽電池模組中，複數太陽電池元件係例如經由互連器呈電氣式串聯連接。

【0090】 本發明的太陽電池模組係例如具備有鄰接密封樹脂層設置的金屬材。此種金屬材係例如：配線、電極等。

金屬材係可例示如：匯流排電極、互連器、指狀電極等。

匯流排電極、互連器及指狀電極係為了將太陽電池元件間予以接合、或收集所發電的電氣，而使用於模組中。

金屬材係含有例如從銅、錫、鉛、銑、鋁及銀中選擇之至少一種金屬。

【0091】 構成本發明太陽電池模組的基板，係可例示如：玻璃基板、丙烯酸樹脂基板、聚碳酸酯基板、聚酯基板、含氟樹脂基板等。

保護材(下部保護材)係金屬、各種無機材料、各種熱可塑性樹脂薄膜等單體或多層的片材，可例示如由錫、鋁、不鏽鋼等金屬；玻璃等無機材料；聚酯、無機物蒸鍍聚酯、含氟樹脂、及聚烯烴等熱可塑性樹脂薄膜構成的1層或多層之片材。本發明的太陽電池密封材係對該等基板或保護材呈良好的接著性。

【0092】 本發明太陽電池模組的製造方法並無特別的限定，可採用例如：夾輓法、熱壓鍋法、真空袋法、真空層壓法等習知公知製造方法。該等手法係可使用1種進行製造、亦可組合2種以上製造方法進行製造。

該等之中，本發明太陽電池模組的製造方法最好係使用真空層壓機的製造方法。

使用真空層壓機的方法係例如將使本發明太陽電池密封材與太陽電池元件夾置於基板或保護材間而獲得的積層體，在雙層真空裝置中實施加熱、真空脫氣後，再利用加壓步驟將橡膠隔膜片從雙層真空上部，對上述積層體施行加熱・加壓處理而進行熱壓接，獲得太陽電池模組的方法。

【0093】 以上，針對本發明實施形態進行了敘述，惟該等僅止於本發明例示而已，亦可採用上述以外的各種構成。

再者，本發明並不侷限於前述實施形態，舉凡在能達成本發明目的之範圍內的變化、改良等均涵蓋於本發明內。

[實施例]

【0094】 以下，針對本實施形態參照實施例等進行詳細說明。另外，本實施形態並不受該等實施例記載的任何限定。

【0095】

[材料]

各成分係使用以下物。其中，熔體流動速率(MFR)係根據JIS K 7210:1999，依190°C、2160g荷重的條件測定。域克軟化點係根據JIS K 7206:1999測定。

【0096】

< 乙烯・不飽和酯共聚合體(A) >

- EVA1：乙烯・醋酸乙烯酯共聚合體(源自乙烯的構成單位含量67質量%、源自醋酸乙烯酯的構成單位含量33質量%、MFR(190°C、2160g荷重)14g/10分)

- EVA2：乙烯・醋酸乙烯酯共聚合體(源自乙烯的構成單位含量72質量%、源自醋酸乙烯酯的構成單位含量28質量%、MFR(190°C、2160g荷重)15g/10分)

- EVA3：乙烯・醋酸乙烯酯共聚合體(源自乙烯的構成單位含量81質量%、源自醋酸乙烯酯的構成單位含量19質量%、MFR(190°C、2160g荷重)15g/10分)

- EVA4：乙烯・醋酸乙烯酯共聚合體(源自乙烯的構成單位含量81質量%、源自醋酸乙烯酯的構成單位含量19質量%、MFR(190°C、2160g荷重)150g/10分)

源自醋酸乙烯酯的構成單位含量係根據JIS K 7192：1999測定。源自乙烯的構成單位含量係將源自乙烯與醋酸乙烯酯的構成單位的合計含量設為100質量%，從100質量%中減掉源自醋酸乙烯酯的構成單位含量而求得。

【0097】

<含環氧基之乙烯系共聚合體(B)>

- EMAGMA1：乙烯・丙烯酸甲酯・甲基丙烯酸環氧丙酯共聚合體(源自乙烯的構成單位含量67質量%、源自丙烯酸甲酯的構成單位含量27質量%、源自甲基丙烯酸環氧丙酯的構成單位含量6質量%、住友化學公司製、BONDFAST 7M(商品名)、MFR(190°C、2160g荷重)：7g/10分、熔點：52°C、域克軟化點：未滿25°C)

・EMAGMA2：乙烯・丙烯酸甲酯・甲基丙烯酸環氧丙酯共聚合體(源自乙烯的構成單位含量70質量%、源自丙烯酸甲酯的構成單位含量27質量%、源自甲基丙烯酸環氧丙酯的構成單位含量3質量%、住友化學公司製、BONDFAST 7L(商品名)、MFR(190°C、2160g荷重)：7g/10分、熔點：60°C、域克軟化點：未滿25°C)

・EVAGMA1：乙烯・醋酸乙烯酯・甲基丙烯酸環氧丙酯共聚合體(源自乙烯的構成單位含量83質量%、源自醋酸乙烯酯的構成單位含量5質量%、源自甲基丙烯酸環氧丙酯的構成單位含量12質量%、住友化學公司製、BONDFAST 7B(商品名)、MFR(190°C、2160g荷重)：7g/10分、熔點：95°C、域克軟化點：66°C)

再者，含環氧基之乙烯系共聚合體(B)的熔點係根據JIS K7121-1987測定。

【0098】

<矽烷偶合劑>

・矽烷偶合劑1：3-甲基丙烯醯氧丙基三甲氧基矽烷(信越化學工業公司製、KBM503(商品名))

【0099】

<有機過氧化物>

・有機過氧化物1：2,5-二甲基-2,5-二(過氧化第三丁基)己烷(ARKEMA Yoshitomi公司製、Luperox 101(商品名))

【0100】

<離子聚合物(C)>

· 離子聚合物1：乙烯·甲基丙烯酸共聚合體之Mg離子聚合物(源自乙烯的構成單位含量80質量%、源自甲基丙烯酸的構成單位含量20質量%、中和度：44%、MFR(190°C、2160g荷重)：2.5g/10分)

【0101】

[實施例1~2及比較例1~3]

預先依表1所示調配比例進行混合，送料於具備造粒機的30mm ϕ 單軸擠出機(THERMO-PLASTIC公司製、機型：53-103)中，依下述擠出條件與熔融混練條件施行熔融混練，經造粒獲得接著性樹脂組成物的顆粒。上述單軸擠出機的擠出條件係如下：

L/D：28

料管溫度(°C)：C1(80)、C2(115)、C3(135)、C4(135)、C5(135)、D(130)

螺桿轉數：45rpm

擠出量：3.5kg/h

篩網篩目：60/120/60

【0102】

[實施例3~4]

預先依表1所示調配比例進行混合，送料於具備造粒機的40mm ϕ 單軸擠出機(中谷機械公司製、機型：VSK40)中，依下述擠出條件與熔融混練條件施行熔融混練，經造粒獲得接著性樹脂組成物的顆粒。其中，實施例4的矽烷偶合劑與有機過氧化物之摻含量(質量份)，係將乙烯·不飽和酯共聚合體(A)與含環氧基之乙烯系共聚合體(B)合計量設為100質量份時的值。使矽烷偶合劑與有機過氧化物含潤於乙烯·不飽和酯共聚合體

(A)及含環氧基之乙烯系共聚合體(B)中之後，施行熔融混練。上述單軸擠出機的擠出條件係如下：

螺桿：前端爾麥基式螺紋螺桿

L/D：28

料管溫度(°C)：C1(120)、C2(160)、C3(180)、C4(200)、D(160)

螺桿轉數：45rpm

擠出量：10kg/h

篩網篩目：60/120/60

【0103】

<接著性樹脂組成物的光學性評價>

(1)片材製作

將所獲得接著性樹脂組成物使用油壓式熱壓合機(東邦機械工業公司製、機型：TBDM50-2)，依140°C、9.8MPa之條件施行衝壓後，再依20°C、14.7MPa之條件施行冷卻，而製作厚度3mm的衝壓片。

【0104】

(2)霧度之測定

使用所獲得衝壓片，根據JIS K 7136：2000，利用霧度計(SUGA TEST INSTRUMENTS公司製、製品名：HZ-V3型)測定霧度。霧度係依照以下基準施行評價。評價結果如表1所示。

(霧度之評價基準)

A(優)：霧度在10%以下

B(佳)：霧度超過10%且在20%以下

C(不佳)：霧度超過20%

【0105】

(3)全光線穿透率之測定

使用所獲得衝壓片，根據JIS K 7361-1：1997，利用霧度計(SUGA TEST INSTRUMENTS公司製、製品名：HZ-V3型)測全光線穿透率。全光線穿透率分別依照以下基準施行評價。評價結果如表1所示。

(全光線穿透率之評價基準)

依照上述方法製作的厚3mm衝壓片之評價，

A(優)：全光線穿透率達90%以上

B(佳)：全光線穿透率達70%以上且未滿90%

C(不佳)：全光線穿透率未滿70%

【0106】

(3)黃變指數(YI)之測定

使用所獲得衝壓片，根據JIS K 7373：2006，利用色度計(SUGA TEST INSTRUMENTS公司製、CC-iS)測定YI(穿透法)。YI係依照以下基準施行評價。評價結果如表1所示。

(YI之評價基準)

A(優)：YI在3以下

B(佳)：YI超過3且在5以下

C(不佳)：YI超過5

【0107】 [表1]

表1

		實施例1	實施例2	實施例3	實施例4	比較例1	比較例2	比較例3
乙烯·不飽和酯 共聚合體(A)	EVA1[質量%]	90	90	50	50	90		
	EVA2[質量%]						90	
	EVA3[質量%]							90
含環氧基之乙烯 系共聚合體(B)	EMAGMA1[質量%]	10		50	50			
	EMAGMA2[質量%]		10					
	EVAGMA1[質量%]					10	10	10
矽烷偶合劑[質量份]					1.5			
有機過氧化物[質量份]					0.3			
共聚合體(A)中源自不飽和酯的單位 含量[質量%]		33	33	33	33	33	28	19
共聚合體(A)中源自乙烯的單位含量 (X ₁)[質量%]		67	67	67	67	67	72	81
共聚合體(B)中源自乙烯的單位含量 (X ₂)[質量%]		67	70	67	67	83	83	83
乙烯含量差(X ₁ -X ₂)之絕對值[質量%]		0	3	0	0	16	11	2
評價結果	霧度[%]	4.1	4.1	8.4	8.2	90.5	26.6	19.7
		A	A	A	A	C	C	B
	全光線穿透率[%]	91.1	90.9	90.4	90.3	68.0	76.2	79.8
		A	A	A	A	C	B	B
	YI	1.1	1.2	2.2	2.3	9.8	9.8	8.8
		A	A	A	A	C	C	C

【0108】 由表1得知，使用實施例1~4的接著性樹脂組成物所製作之衝壓片，係霧度、全光線穿透率、及YI均優異，透明性亦優異。相對於此，使用乙烯含量差為16質量%的比較例1之接著性樹脂組成物所製作衝壓片，係霧度、全光線穿透率、及YI均不佳，且透明性亦差。使用乙烯含量差為11質量%的比較例2之接著性樹脂組成物所製作衝壓片，係霧度與YI不佳，且透明性差。使用乙烯·不飽和酯共聚合體之不飽和酯含量未滿20質量%的比較例3之接著性樹脂組成物所製作衝壓片，係YI不佳，且透明性差。

由此可確認到，根據本發明的接著性樹脂組成物將可提升透明性。

【0109】

[實施例5~6及比較例4~5]

將實施例3所獲得接著性樹脂組成物設為接著性樹脂組成物1。

將實施例4所獲得接著性樹脂組成物設為接著性樹脂組成物2。

【0110】 預先將EVA3：25質量%、EVA4：25質量%、EVAGMA1：50質量%、矽烷偶合劑：1.5質量份、及有機過氧化物：0.3質量份進行混合，送料於具備造粒機的40mm ϕ 單軸擠出機(中谷機械公司製)中，依下述擠出條件與熔融混練條件施行熔融混練，經造粒獲得接著性樹脂組成物的顆粒。其中，矽烷偶合劑與有機过氧化物的摻含量(質量份)係將乙烯·不飽和酯共聚合體(A)與含環氧基之乙烯系共聚合體(B)合計量設為100質量份時的值。上述單軸擠出機的擠出條件係如下。所獲得接著性樹脂組成物設為接著性樹脂組成物3。

螺桿：前端爾麥基式螺紋螺桿

L/D：28

料管溫度(°C)：C1(120)、C2(160)、C3(180)、C4(200)、D(160)

螺桿轉數：45rpm

擠出量：10kg/h

篩網篩目：60/120/60

【0111】 預先依表2所示調配比例進行混合，送料於40mm ϕ T型模頭片材成形機(中谷機械公司製、機型：VSK40)中，依下述擠出條件與熔融混練條件施行熔融混練，經擠出片材成形，分別製得厚度100 μ m與300 μ m之由接著性樹脂組成物所構成的片材。上述T型模頭片材成形機的擠出條件係如下：

螺桿：前端爾麥基式雙螺紋螺桿(double flight screw)

L/D：26

料管溫度(°C)：C1(80)、C2(100)、C3(120)、A(120)、D1(120)、
D2(120)、D3(120)

螺桿轉數：45rpm

篩網篩目：60

【0112】

<玻璃積層體的光學性評價>

(1)玻璃積層體之製作

使用真空加熱貼合機(雙層真空槽貼合機、NPC公司製、製品名：LM-50×50S)，依序積層：玻璃、離子聚合物1、厚度100 μ m之由上述接著性樹脂組成物所構成片材、以及玻璃，並依加熱溫度140°C、加熱時壓力1atm、加熱時間20分鐘使其貼合。然後，暴露於周遭大氣中靜置，經自然冷卻進行徐冷，製得光學性評價用玻璃積層體。

玻璃積層體的構成：玻璃(厚3.2mm)/離子聚合物1(厚1500 μ m)/由接著性樹脂組成物所構成片材(厚100 μ m)/玻璃(厚3.2mm)

【0113】

(2)霧度之測定

使用所獲得玻璃積層體，根據JIS K 7136：2000，利用霧度計(SUGA TEST INSTRUMENTS公司製、製品名：HZ-V3型)測定霧度。霧度係依照以下基準施行評價。評價結果如表2所示。

(霧度之評價基準)

A(優)：霧度在5%以下

B(佳)：霧度超過5%且在10%以下

C(不佳)：霧度超過10%

【0114】

(3)全光線穿透率之測定

使用所獲得玻璃積層體，根據JIS K 7361-1：1997，利用霧度計(SUGA TEST INSTRUMENTS公司製、製品名：HZ-V3型)測定全光線穿透率。全光線穿透率係分別依照以下基準施行評價。評價結果如表2所示。

(全光線穿透率之評價基準)

A(優)：全光線穿透率達85%以上

B(佳)：全光線穿透率達80%以上且未滿85%

C(不佳)：全光線穿透率未滿80%

【0115】

(4)黃變指數(YI)之測定

使用所獲得玻璃積層體，根據JIS K 7373：2006，利用色度計(SUGA TEST INSTRUMENTS公司製、CC-iS)測定YI(穿透法)。YI係依照以下基準施行評價。評價結果如表2所示。

(YI之評價基準)

A(優)：YI在3以下

B(佳)：YI超過3且在5以下

C(不佳)：YI超過5

【0116】

<對PET薄膜的接著性評價>

使用真空加熱貼合機(雙層真空槽貼合機、NPC公司製、製品名：LM-50×50S)，依序積層：玻璃(以非錫面設為接著面)、厚度300 μm 之由上述接著性樹脂組成物所構成片材、以及厚度100 μm 之PET薄膜(未施行電暈處理)，依加熱溫度140 $^{\circ}\text{C}$ 、加熱時壓力1atm、加熱時間60分鐘使其貼合

而製得玻璃積層體。然後，將上述積層體靜置於大氣中，利用自然冷卻進行徐冷。

玻璃積層體之構成：玻璃(厚3.9mm)/由接著性樹脂組成物所構成片材(厚300 μ m)/PET薄膜(厚100 μ m)

在所獲得上述玻璃積層體的片材部分割割寬15mm之狹縫，設為試驗片，設置於拉伸試驗機中。依拉伸速度100mm/分、剝離角度180°撕開PET薄膜，依初期的接著強度(N/15mm)求取平均應力。

【0117】 將上述玻璃積層體依85°C、相對濕度90%之條件保管，分別求取經保管500小時後的上述玻璃積層體之接著強度、以及經保管1000小時後的上述玻璃積層體之接著強度。將所獲得接著強度設為各玻璃積層體對PET薄膜的接著強度。對PET薄膜的接著性係依照以下基準施行評價。評價結果如表2所示。

(對PET薄膜的接著性之評價基準)

A(優)：對PET薄膜的接著強度係初期、500小時後、1000小時後均達15N/15mm以上

B(不佳)：對PET薄膜的接著強度係初期、500小時後、1000小時後中有任一者以上未滿15N/15mm

【0118】

<對玻璃的接著性評價>

使用真空加熱貼合機(雙層真空槽貼合機、NPC公司製、製品名：LM-50×50S)，依序積層：玻璃(以非錫面設為接著面)、與厚度300 μ m之由上述接著性樹脂組成物所構成片材，依加熱溫度140°C、加熱時壓力1atm、加熱時間60分鐘使其貼合而製得玻璃積層體。然後，將上述玻璃積層體靜置於大氣中，利用自然冷卻進行徐冷。

玻璃積層體之構成：玻璃(厚3.9mm)/由接著性樹脂組成物所構成片材(厚300 μ m)

在所獲得上述玻璃積層體的片材部分劃割寬15mm之狹縫，設為試驗片，設置於拉伸試驗機中。依拉伸速度100mm/分、剝離角度180°將由玻璃(厚3.9mm)與接著性樹脂組成物所構成片材(厚300 μ m)撕開，依初期的接著強度(N/15mm)求取平均應力。

【0119】 將上述玻璃積層體依85°C、相對濕度90%之條件保管，分別求取經保管500小時後的上述玻璃積層體之接著強度、以及經保管1000小時後的上述玻璃積層體之接著強度。將所獲得接著強度設為各玻璃積層體對玻璃的接著強度。對玻璃的接著性係依照以下基準施行評價。評價結果如表2所示。

(對玻璃的接著性之評價基準)

A(優)：對玻璃的接著強度係初期、500小時後、1000小時後均達20N/15mm以上

B(不佳)：對玻璃的接著強度係初期、500小時後、1000小時後中有任一者以上未滿20N/15mm

【0120】 [表2]

表2

		實施例5	實施例6	比較例4	比較例5
乙烯·不飽和酯共聚合體(A)	EVA1[質量%]	90	90	90	100
接著性樹脂組成物	接著性樹脂組成物1	10			
	接著性樹脂組成物2		10		
	接著性樹脂組成物3			10	
共聚合體(A)中源自不飽和酯的單位含量[質量%]		33	33	32.3	33
共聚合體(A)中源自乙烯的單位含量(X ₁)[質量%]		67	67	67.7	67
共聚合體(B)中源自乙烯的單位含量(X ₂)[質量%]		67	67	83	—
乙烯含量差(X ₁ -X ₂)之絕對值[質量%]		0	0	15.3	—
評價結果	霧度[%]	2.9	3.0	23.9	2.9
		A	A	C	A
	全光線穿透率[%]	89.8	89.2	91.9	89.7
		A	A	A	A
	YI	1.7	1.7	1.6	1.6
		A	A	A	A
對PET薄膜的接著強度 [N/15mm] (未施行電暈處理面)	初期	20.4	22.0	20.3	9.3
	500小時後	49.5(材料破裂)	148.5(材料破裂)	59.7	12.6
	1000小時後	89.6(材料破裂)	144.4(材料破裂)	47.5	10.3
		A	A	A	B
對玻璃的接著強度 [N/15mm] (非錫面)	初期	74.6(材料破裂)	106.3(材料破裂)	38.7	0.5
	500小時後	97.9(材料破裂)	116.2(材料破裂)	27.5	未接著
	1000小時後	25.4	94.5(材料破裂)	48.9	未接著
		A	A	A	B

【0121】 由表2得知，使用實施例5與6之接著性樹脂組成物所製作的層合玻璃積層體，係霧度、全光線穿透率及YI均優異，且透明性亦優異。又，對PET薄膜的接著性與對玻璃的接著性亦均優異。相對於此，使用乙烯含量差為15.3質量%之比較例4的接著性樹脂組成物所製作的玻璃積層體，係霧度不佳，且透明性差。使用未含有含環氧基之乙烯系共聚合體(B)的比較例5之接著性樹脂組成物所製作的玻璃積層體，係對PET薄膜的接著性與對玻璃的接著性均呈不佳，且接著性差。

由上述可確認到根據本發明的接著性樹脂組成物，可提升透明性、以及對聚酯樹脂層之接著性。

此種玻璃積層體係可使用於例如層合玻璃、太陽電池模組。

【0122】 本申請案係以2022年3月15日所提出申請的日本專利申請案2022-040794號為基礎主張優先權，援引其所揭示全部內容並融入本案中。

【發明申請專利範圍】

【請求項1】 一種接著性樹脂組成物，係含有：乙烯·不飽和酯共聚合體(A)、與含環氧基之乙烯系共聚合體(B)(其中，上述乙烯·不飽和酯共聚合體(A)除外)；其中，

上述乙烯·不飽和酯共聚合體(A)中，源自不飽和酯的構成單位之含量，相對於構成上述乙烯·不飽和酯共聚合體(A)的總構成單位，為超過20質量%；

源自乙烯的構成單位相對於構成上述乙烯·不飽和酯共聚合體(A)的總構成單位的含量(X_1)、與源自乙烯的構成單位相對於構成上述含環氧基之乙烯系共聚合體(B)的總構成單位的含量(X_2)的差($X_1 - X_2$)之絕對值，為10質量%以下。

【請求項2】 如請求項1之接著性樹脂組成物，其中，上述乙烯·不飽和酯共聚合體(A)根據JIS K 7210：1999，依190°C、2160g荷重條件所測定的熔體流動速率為1g/10分以上且100g/10分以下。

【請求項3】 如請求項1或2之接著性樹脂組成物，其中，上述乙烯·不飽和酯共聚合體(A)係含有乙烯·醋酸乙烯酯共聚合體。

【請求項4】 如請求項1或2之接著性樹脂組成物，其中，上述含環氧基之乙烯系共聚合體(B)係含有從乙烯·(甲基)丙烯酸環氧丙酯共聚合體、乙烯·(甲基)丙烯酸環氧丙酯·醋酸乙烯酯共聚合體、及乙烯·(甲基)丙烯酸環氧丙酯·(甲基)丙烯酸酯共聚合體所構成群組中選擇之至少一種。

【請求項5】 如請求項1或2之接著性樹脂組成物，其中，上述含環氧基之乙烯系共聚合體(B)中，源自乙烯的構成單位的含量相對於構成上述含環氧基之乙烯系共聚合體(B)的總構成單位為82質量%以下。

【請求項6】 如請求項1或2之接著性樹脂組成物，其中，上述含環氧基之乙烯系共聚合體(B)依JIS K 7206：1999所規定的域克軟化點為65°C以下。

【請求項7】 如請求項1或2之接著性樹脂組成物，其中，上述含環氧基之乙烯系共聚合體(B)根據JIS K 7121-1987所測定的熔點為90°C以下。

【請求項8】 如請求項1或2之接著性樹脂組成物，其中，依下述方法所測定的霧度為10%以下；

(方法)

將上述接著性樹脂組成物依140°C、9.8MPa之條件施行衝壓後，再依20°C、14.7MPa之條件冷卻，而製作厚度3mm的衝壓片，接著，利用霧度計根據JIS K 7136：2000測定所獲得之上述衝壓片的霧度。

【請求項9】 如請求項1或2之接著性樹脂組成物，其中，將上述乙烯·不飽和酯共聚合體(A)、與上述含環氧基之乙烯系共聚合體(B)的合計含量設為100質量%時，上述乙烯·不飽和酯共聚合體(A)的含量係40質量%以上且99質量%以下。

【請求項10】 如請求項1或2之接著性樹脂組成物，其中，將上述接著性樹脂組成物全體設為100質量%時，上述乙烯·不飽和酯共聚合體(A)、與上述含環氧基之乙烯系共聚合體(B)的合計含量為70質量%以上且100質量%以下。

【請求項11】 如請求項1或2之接著性樹脂組成物，其中，依下述方法所測定之霧度為5%以下；

(方法)

依序將厚度3.2mm之玻璃、厚度1500 μm 之離子聚合物樹脂層、厚度100 μm 之由上述接著性樹脂組成物構成的片材、以及厚度3.2mm之玻璃進行積層，再依加熱溫度140°C、加熱時壓力1atm、加熱時間20分鐘進行貼合；利用自然冷卻進行徐冷，而製作光學性評價用玻璃積層體；接著，利用霧度計根據JIS K 7136:2000測定所獲得之上述玻璃積層體的霧度。

【請求項12】 如請求項1或2之接著性樹脂組成物，其中，依照下述方法所測定之對PET薄膜的接著強度，於初期、經500小時後、及經1000小時後均為15N/15mm以上；

(方法)

依序將厚度3.9mm之玻璃(以非錫面設為接著面)、厚度300 μm 之由上述接著性樹脂組成物構成的片材、以及厚度100 μm 之PET薄膜(未施行電暈處理)進行積層，再依加熱溫度140°C、加熱時壓力1atm、加熱時間60分鐘進行貼合，而製作玻璃積層體；然後，將上述玻璃積層體靜置於大氣中，利用自然冷卻進行徐冷；在所獲得之上述玻璃積層體的片材部分處刻劃寬15mm之狹縫，而形成試驗片，並設置於拉伸試驗機中；依拉伸速度100mm/分、剝離角度180°撕開PET薄膜，求取平均應力作為初期接著強度(N/15mm)；將上述玻璃積層體依85°C、相對濕度90%之條件進行保管，分別求取經保管500小時後的上述玻璃積層體的接著強度、與經保管1000小時後的上述玻璃積層體的接著強度。

【請求項13】 如請求項1或2之接著性樹脂組成物，其中，依下述方法所測定之經保管1000小時後對PET薄膜的接著強度係50N/15mm以上；

(方法)

依序將厚度3.9mm之玻璃(以非錫面設為接著面)、厚度300 μm 之由上述接著性樹脂組成物構成的片材、以及厚度100 μm 之PET薄膜(未施行電暈處理)進行積層，依加熱溫度140 $^{\circ}\text{C}$ 、加熱時壓力1atm、加熱時間60分鐘進行貼合，而製作玻璃積層體；然後，將上述玻璃積層體靜置於大氣中，利用自然冷卻進行徐冷；接著，將上述玻璃積層體在85 $^{\circ}\text{C}$ 、相對濕度90%之條件下保管1000小時；在所獲得之上述玻璃積層體的片材部分刻劃寬15mm之狹縫，而形成試驗片，並設置於拉伸試驗機中；依拉伸速度100mm/分、剝離角度180 $^{\circ}$ 撕開PET薄膜，求取平均應力作為經保管1000小時後對PET薄膜的接著強度(N/15mm)。

【請求項14】 一種層合玻璃中間膜，係設有含請求項1至13中任一項之接著性樹脂組成物的接著性樹脂層。

【請求項15】 一種層合玻璃中間膜，係依序具備有：

離子聚合物樹脂層，其係含有乙烯·不飽和羧酸系共聚合體之離子聚合物(C)；

接著性樹脂層，其係含有請求項1至13中任一項之接著性樹脂組成物；以及

聚酯樹脂層，其係含有聚酯樹脂(D)。

【請求項16】 如請求項15之層合玻璃中間膜，其中，上述離子聚合物樹脂層與上述接著性樹脂層係相鄰接；

上述聚酯樹脂層係鄰接於上述接著性樹脂層之與上述離子聚合物樹脂層相鄰接面的相反側面。

【請求項17】 一種層合玻璃，係具備有：

請求項14至16中任一項之層合玻璃中間膜；以及

設置於上述層合玻璃中間膜之雙面的透明板狀構件。

第4頁，共5頁(發明申請專利範圍)

【請求項18】 如請求項17之層合玻璃，其中，含有至少1個之上述透明板狀構件與離子聚合物樹脂層相鄰接的構成。

【請求項19】 一種太陽電池密封材，係設有含請求項1至13中任一項之接著性樹脂組成物的接著性樹脂層。

【請求項20】 一種太陽電池模組，係具備有：

太陽電池元件；以及

密封樹脂層，其係用於密封上述太陽電池元件，由請求項19之太陽電池密封材所構成。