

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局(43) 国際公開日
2012年6月7日(07.06.2012)(10) 国際公開番号
WO 2012/073971 A1

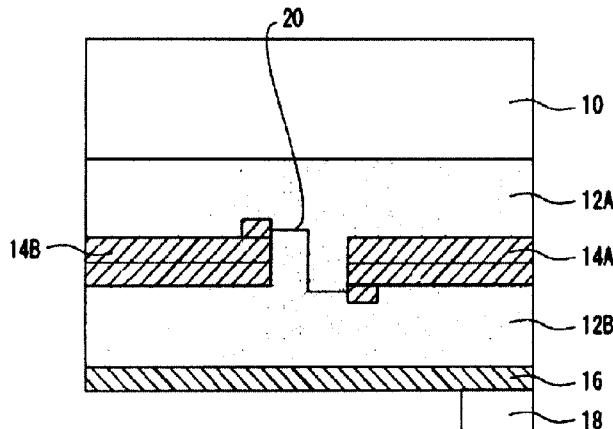
- (51) 国際特許分類:
H01L 31/042 (2006.01) *C08L 23/08* (2006.01)
B32B 27/32 (2006.01) *C08L 53/00* (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2011/077565
- (22) 国際出願日: 2011年11月29日(29.11.2011)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
 特願 2010-267013 2010年11月30日(30.11.2010) JP
 特願 2010-288460 2010年12月24日(24.12.2010) JP
- (71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 三菱樹脂株式会社 (MITSUBISHI PLASTICS, INC.)
 [JP/JP]; 〒1030021 東京都中央区日本橋本石町一
 丁目2番2号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 谷口 浩一郎 (TANIGUCHI, Kouichirou) [JP/JP]; 〒5268660 滋賀県長浜市三ツ矢町5番8号 三菱樹脂株式会社
 長浜工場内 Shiga (JP). 田中 一也 (TANAKA, Kazuya) [JP/JP]; 〒5268660 滋賀県長浜市三ツ矢町
 5番8号 三菱樹脂株式会社 長浜工場内
 Shiga (JP).
- (74) 代理人: 大谷 保, 外 (OHTANI, Tamotsu et al.); 〒1050001 東京都港区虎ノ門三丁目25番2号
 ブリヂストン虎ノ門ビル6階 特許業務法人大
 谷特許事務所 Tokyo (JP).
- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA,
 BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO,
 CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI,
 GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS,
 KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT,
 LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY,
 MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, QA,
 RO, RS, RU, RW, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV,
 SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC,
 VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW,
 MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア
 (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), エー
 ロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE,
 ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC,
 MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR),
 OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML,
 MR, NE, SN, TD, TG).

[続葉有]

(54) Title: LAMINATE FOR SOLAR CELL AND SOLAR CELL MODULE PRODUCED USING SAME

(54) 発明の名称: 太陽電池用多層体及びそれを用いて作製された太陽電池モジュール

[図1]



(57) Abstract: Provided is a laminate for a solar cell module that makes formation of a solar cell module easy, can eliminate cross-linking processes and has superior transparency, moisture-proofing properties, sealing properties, handling properties (rigidity), and the like. Also provided is a solar cell module produced using the same. The laminate for a solar cell has at least one resin layer ((I)-1) or resin layer ((I)-2) and has an ethylene-based polymer (C) satisfying specific conditions and a resin layer (II) containing a crystal nucleating agent (D). Resin layer ((I)-1): resin layer containing an ethylene- α -olefin random copolymer (A) satisfying specific conditions and an ethylene- α -olefin block copolymer (B) satisfying specific conditions. Resin layer ((I)-2): resin layer containing a silane-modified ethylene-based resin (X).

(57) 要約:

[続葉有]



添付公開書類:

- 国際調査報告（条約第 21 条(3)）

太陽電池モジュールの形成が容易で、架橋工程が省略可能かつ透明性、防湿性、封止性およびハンドリング性（剛性）等に優れた太陽電池用多層体及びそれを用いて作製された太陽電池モジュールを提供すること。樹脂層（I）－1 又は樹脂層（I）－2 を最外層の少なくとも一層として有し、かつ、特定の条件を満足するエチレン系重合体（C）と、結晶核剤（D）とを含有する樹脂層（II）を有する太陽電池用多層体。樹脂層（I）－1：特定の条件を満足するエチレン－ α －オレフィンランダム共重合体（A）と、特定の条件を満足するエチレン－ α －オレフィンプロック共重合体（B）を含有する樹脂層 樹脂層（I）－2：シラン変性エチレン系樹脂（X）を含有する樹脂層

明 細 書

発明の名称 :

太陽電池用多層体及びそれを用いて作製された太陽電池モジュール

技術分野

[0001] 本発明は優れた防湿性、透明性、耐熱性を有し、太陽電池モジュール製造時に優れた封止性、ハンドリング性を付与しうる太陽電池用多層体に関する。

背景技術

[0002] 近年、地球温暖化等の環境問題に対する意識が高まる中、特に太陽光発電については、そのクリーン性や無公害性という点から期待が高まっている。太陽電池は太陽光のエネルギーを直接電気に換える太陽光発電システムの中心部を構成するものである。その構造としては一般的に、複数枚の太陽電池素子（セル）を直列、並列に配線し、セルを保護するために種々パッケージングが行われ、ユニット化されている。このパッケージに組み込まれたユニットを太陽電池モジュールと呼び、一般的に太陽光が当たる面を上部保護材としてガラス等の透明基材（フロントシート）で覆い、熱可塑性プラスチック（例えば、エチレン－酢酸ビニル共重合体）からなる樹脂層（封止材）で間隙を埋め、裏面を下部保護材として裏面封止用シート（バックシート）で保護された構成になっている。

これらの太陽電池モジュールは主に屋外で使用されるため、その構成や材質構造等に種々の特性が必要とされる。上記の封止材には、太陽電池素子を保護する為の柔軟性や耐衝撃性、太陽電池モジュールが発熱した際の耐熱性、太陽電池素子へ太陽光が効率的に届く為の透明性（全光線透過率など）、耐久性、寸法安定性、難燃性、防湿性等が主に要求される。

[0003] 現在、太陽電池モジュールにおける太陽電池素子の封止材としては、柔軟性、透明性等の観点から、材料として、エチレン－酢酸ビニル共重合体（以下、EVAと省略することがある）が広く用いられている（例えば、特許文

献 1 参照)。また、EVA に耐熱性を付与することを主な目的として、架橋剤として有機過酸化物を用いた架橋が行われる。そのため、架橋剤(有機過酸化物)や架橋助剤を添加した EVA シートをあらかじめ作製し、得られたシートを用いて太陽電池素子を封止するという工程が採用されている。

しかしながら、EVA シートを用いて太陽電池モジュールを製造する場合、その加熱圧着などの諸条件により、EVA の熱分解による酢酸ガスが発生し、作業環境及び製造装置への悪影響や、太陽電池の回路腐食や、太陽電池素子、フロントシート、バックシートなど各部材界面で発生する剥離等の問題がある。

さらに、EVA は防湿性、具体的には水蒸気バリア性が不十分であり(例えば、厚さ 0.3 mm、温度 40°C、相対湿度 90%における水蒸気透過率が 25~35 g / (m² · 24 時間) 程度)、高湿度などの環境下で用いる場合、水分が太陽電池素子に到達し、太陽電池の劣化や発電効率の低下の要因になるという懸念がある。

[0004] そこで、前記の課題を解決するため、例えば、特許文献 2 には、エチレン- α -オレフィン共重合体を用いた太陽電池封止材が開示されている。また、特許文献 3 には、シラン変性エチレン系樹脂を用いた太陽電池封止材が開示されている。また、EVA よりも防湿性に優れる樹脂の例として、高密度ポリエチレンや分子鎖中に環状オレフィンを導入した環状オレフィン系樹脂が知られており、例えば、特許文献 4 には、環状オレフィン系樹脂としてノルボルネン系開環重合体水素化物を用いた太陽電池封止材が開示されている。さらに、特許文献 5 には、接着・耐熱層と緩衝層とが積層されてなる太陽電池封止材が開示されている。また、特許文献 6 には、防湿性の向上を目的とはしていないものの、EVA に対して C9 系芳香族炭化水素樹脂を添加してなる太陽電池用封止材シートが開示されている。

先行技術文献

特許文献

[0005] 特許文献 1 : 特開昭 58-60579 号公報

特許文献2：特開2000-91611号公報

特許文献3：特開2005-19975号公報

特許文献4：特開2009-79101号公報

特許文献5：国際公開第2006/095762号パンフレット

特許文献6：特開2010-171419号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0006] しかし、特許文献1に代表されるEVAを用いた封止材は常温における弾性率が低く、太陽電池モジュール支持体としての剛性が不足していたり、太陽電池モジュール製造時におけるハンドリング性に問題が生じたりする場合がある。

特許文献2で開示するエチレン- α -オレフィン共重合体を用いた太陽電池封止材は、EVAの熱分解による酢酸ガスの影響は回避可能であるものの、太陽電池封止材として好適なエチレン- α -オレフィン共重合体の使用形態については、何ら具体的な開示はなされていない。これは、特許文献2に開示の技術が従来のEVAと同様に架橋処理を前提として耐熱性や透明性などの諸特性を達成しようとする為であると考えられる。

[0007] 次に、特許文献3で開示するシラン変性エチレン系樹脂を用いた太陽電池封止材は、太陽電池モジュールにおける各種基材との接着性には優れるものの、単層の封止材では、封止性と防湿性および透明性とが同時に優れる封止材を得ることは困難であった。すなわち、封止材の結晶性を低下させ柔軟性を付与すると、封止性や透明性は向上するものの、一方、防湿性は、結晶性の低下に伴って低下するものであった。

[0008] 高密度ポリエチレンは、防湿性が比較的高く、安価で工業的に広く用いられているものの、剛性が高過ぎ、柔軟性が不十分であるため、太陽電池用部材としては、太陽電池素子の封止性や保護性（クッション性）に劣り、また、透明性も不十分であり発電効率も低いものであった。

[0009] 特許文献4で開示する環状オレフィン系樹脂としてノルボルネン系開環重

合体水素化物を用いた太陽電池封止材は、防湿性や透明性には優れるものの、用いる環状オレフィン系樹脂は比較的高価な原料であるため経済性に劣るものであった。また、環状オレフィン系樹脂は、通常、溶融時の粘度が高い為、太陽電池素子を封止する際の封止性に劣ることが懸念されるが、特許文献4には、太陽電池素子を封止する際の封止性に関する記載や示唆はなされていない。例えば、用いる樹脂の流動性（充填性）を高めるために高温、高圧下で封止工程を行った場合、高温による太陽電池素子や配線の変質、あるいは、過圧による太陽電池素子の破損などの問題が生じる可能性がある。また、例えばバッチ式の太陽電池モジュール製造設備において、一般的に封止工程で用いられる真空ラミネーターは真空ポンプを用いた真空度の差圧を用いているため、太陽電池モジュールにかかる圧力はほぼ大気圧（約101.3 MPa）である。これに対し前記特許文献4に記載の封止材を用いようとして太陽電池素子を封止する際の圧力をより高めるためには圧着方式を油圧式等に改造する必要があり、製造コストが高くなる。

[0010] 次に、特許文献5で開示する接着・耐熱層と緩衝層とが積層されてなる太陽電池封止材は、積層構成を採用することにより透明性、柔軟性、耐熱性及び接着性に優れた太陽電池封止材が得られ易いものの、積層構成が（太陽電池素子）／硬質層／軟質層となり、太陽電池素子に密着し保護する層が硬質であるため、封止性や保護性（クッション性）などに劣るものであった。すなわち、本発明が目的とする透明性、防湿性、封止性およびハンドリング性（剛性）が同時に優れる太陽電池封止用多層体や太陽電池封止材を得ることは困難であった。さらに、特許文献6に記載の技術においては、C9系芳香族炭化水素樹脂をEVAに添加することで、C9系芳香族炭化水素樹脂が未添加の場合と比較して防湿性は若干向上するものの、太陽電池素子の水分による劣化を抑制するために十分な防湿性を得ることは困難である。

[0011] そこで本発明の目的は、このような従来技術の課題に鑑み、太陽電池モジュールの形成が容易で、架橋工程が省略可能で、かつ太陽電池素子の保護に十分な防湿性と、優れた透明性、耐熱性、さらには、太陽電池モジュール製

造時において優れた封止性や、常温でのハンドリング性を付与するための剛性を兼ね備えた太陽電池用多層体、及びそれを用いて作製される太陽電池モジュールを提供することにある。

課題を解決するための手段

[0012] 本発明は、樹脂層（I）－1又は樹脂層（I）－2（以下、あわせて樹脂層（I））を最外層の少なくとも一層として有し、かつ、下記（c）の条件を満足するエチレン系重合体（C）と、結晶核剤（D）とを含有する樹脂層（II）を有することを特徴とする太陽電池用多層体、に関する。

樹脂層（I）－1：下記（a）の条件を満足するエチレン- α -オレフィンランダム共重合体（A）と、下記（b）の条件を満足するエチレン- α -オレフィンブロック共重合体（B）を含有する樹脂層

樹脂層（I）－2：シラン変性エチレン系樹脂（X）を含有する樹脂層

（a）：示差走査熱量測定における加熱速度10°C／分で測定される結晶融解熱量が0～70J/g

（b）：示差走査熱量測定における加熱速度10°C／分で測定される結晶融解ピーク温度が100～145°Cであり、かつ、結晶融解熱量が5～70J/g

（c）：示差走査熱量測定における加熱速度10°C／分で測定される結晶融解ピーク温度が100～145°Cであり、かつ、結晶融解熱量が120～190J/g

[0013] また、本発明は、前記太陽電池用多層体を用いて作製された太陽電池モジュールに関する。

発明の効果

[0014] 本発明によれば、太陽電池モジュールの形成が容易であり、架橋工程が省略可能でかつ透明性、防湿性、封止性およびハンドリング性（剛性）等に優れた太陽電池用多層体及びそれを用いて作製された太陽電池モジュールが提供できる。すなわち、本発明の太陽電池用多層体は防湿性に優れるため、太陽電池素子の吸湿による劣化を抑制することができ、高湿度下においても長

期間の使用が可能となる。また、透明性にも優れるため、一般的な太陽電池用封止材を用いた太陽電池モジュールと同等の発電効率を有している。さらに、耐熱性のほか、封止性及びハンドリング性にも優れているため、太陽電池モジュール製造工程における生産性に優れた太陽電池用封止材として広く使用することが可能である。

また、架橋工程が省略可能であるため、太陽電池モジュール製造工程における生産性を向上させることが出来る。更に、製造設備についてもバッチ式の製造設備に加えて、ロール・ツー・ロール式の製造設備にも適用可能であり、結果、太陽電池モジュールの製造コストを大幅に低減させることが期待できる。

図面の簡単な説明

[0015] [図1]本発明の太陽電池モジュールの一例を示す概略断面図である。

発明を実施するための形態

[0016] [樹脂層（Ⅰ）]

[樹脂層（Ⅰ）－1]

樹脂層（Ⅰ）－1は、前記（a）の条件を満足するエチレン－ α －オレフィンランダム共重合体（A）と、前記（b）の条件を満足するエチレン－ α －オレフィンブロック共重合体（B）を含有し、主に太陽電池素子（セル）を保護するための優れた封止性、耐熱性や、太陽電池に十分な発電効率を付与するための優れた透明性を発現する役割を有する。

[0017] （エチレン－ α －オレフィンランダム共重合体（A））

本発明に用いるエチレン－ α －オレフィンランダム共重合体（A）は、前記条件（a）を満足すれば特に限定されるものではないが、通常、エチレンと炭素数3～20の α －オレフィンとのランダム共重合体が好適に用いられる。ここでエチレンと共に重合する α －オレフィンとしては、プロピレン、1－ブテン、1－ペンテン、1－ヘキセン、1－ヘプテン、1－オクテン、1－ノネン、1－デセン、3－メチル－1、4－ブテン－1、4－メチル－1－ペンテン－1等が例示される。本発明においては、工業的な入手し易さや諸特性、経済

性などの観点からエチレンと共に重合する α -オレフィンとしては、プロピレン、1-ブテン、1-ヘキセン、1-オクテンが好適に用いられる。エチレンと共に重合する α -オレフィンは1種のみを単独でまたは2種以上を組み合わせて用いてもかまわない。

- [0018] また、エチレンと共に重合する α -オレフィンの含有量としては、前記条件(a)を満足すれば特に限定されるものではないが、エチレン- α -オレフィンランダム共重合体(A)中の全单量体単位に対して、通常、2モル%以上、好ましくは40モル%以下、より好ましくは3~30モル%、さらに好ましくは5~25モル%である。該範囲内であれば、共重合成分により結晶性が低減されることにより透明性が向上し、また、原料ペレットのブロッキングなどの不具合も起こり難い為好ましい。なお、エチレンと共に重合する α -オレフィンの種類と含有量は、周知の方法、例えば、核磁気共鳴(NMR)測定装置、その他の機器分析装置で定性定量分析することができる。
- [0019] エチレン- α -オレフィンランダム共重合体(A)は、前記条件(a)を満足すれば、 α -オレフィン以外の单量体に基づく单量体単位を含有してもよい。該单量体としては、例えば、環状オレフィン、ビニル芳香族化合物(スチレンなど)、ポリエン化合物等が挙げられる。該单量体単位の含有量は、エチレン- α -オレフィンランダム共重合体(A)中の全单量体単位を100モル%とした場合、20モル%以下であり、15モル%以下であることが好ましい。また、エチレン- α -オレフィンランダム共重合体(A)の立体構造、分岐、分岐度分布や分子量分布は、前記条件(a)を満足すれば特に限定されるものではないが、例えば、長鎖分岐を有する共重合体は、一般に機械物性が良好であり、また、シートを成形する際の溶融張力(メルトテンション)が高くなりカレンダー成形性が向上するなどの利点がある。シングルサイト触媒を用いて重合された分子量分布の狭い共重合体は、低分子量成分が少なく原料ペレットのブロッキングが比較的起こり難いなどの利点がある。
- [0020] 本発明に用いるエチレン- α -オレフィンランダム共重合体(A)のメル

トフローレート（MFR）は、特に制限されるものではないが、通常、MFR（JIS K 7210、温度：190°C、荷重：21.18N）が、0.5～100g／10分程度、より好ましくは2～50g／10分、さらに好ましくは3～30g／10分であるものが用いられる。ここで、MFRは、シートを成形する際の成形加工性や太陽電池素子（セル）を封止する時の密着性、回り込み具合などを考慮して選択すればよい。例えば、シートをカレンダー成形する場合には、シートを成形ロールから引き剥がす際のハンドリング性からMFRは、比較的低い値、具体的には0.5～5g／10分程度が好ましく、また、Tダイを用いて押出成形する場合には、押出負荷を低減させ押出量をUPさせる観点からMFRは、2～50g／10分が好ましく、さらに好ましくは3～30g／10分であるものを用いればよい。さらに、太陽電池素子（セル）を封止する時の密着性や回り込み易さの観点からは、MFRは、2～50g／10分が好ましく、さらに好ましくは3～30g／10分であるものを用いればよい。

[0021] 本発明に用いるエチレン- α -オレフィンランダム共重合体（A）の製造方法は、特に限定されるものではなく、公知のオレフィン重合用触媒を用いた公知の重合方法が採用できる。例えば、チーグラー・ナッタ型触媒に代表されるマルチサイト触媒やメタロセン系触媒やポストメタロセン系触媒に代表されるシングルサイト触媒を用いた、スラリー重合法、溶液重合法、塊状重合法、気相重合法等、また、ラジカル開始剤を用いた塊状重合法等が挙げられる。本発明においては、エチレン- α -オレフィンランダム共重合体（A）が比較的軟質の樹脂である為、重合後の造粒（ペレタイズ）のし易さや原料ペレットのブロッキング防止などの観点から低分子量成分が少なく分子量分布の狭い原料が重合できるシングルサイト触媒を用いた重合方法が好適である。

[0022] 本発明に用いるエチレン- α -オレフィンランダム共重合体（A）は、前記条件（a）を満足すること、すなわち示差走査熱量測定における加熱速度10°C／分で測定される結晶融解熱量が0～70J／gであることが必要で

あり、好ましくは5～70J/g、さらに好ましくは10～65J/gである。0～70J/gの範囲内であれば、太陽電池用多層体の柔軟性や透明性（全光線透過率）などが確保される為好ましい。特に、結晶融解熱量が5J/g以上であれば、原料ペレットのブロッキングなどの不具合も起こり難い為好ましい。ここで、該結晶融解熱量の参考値としては、汎用の高密度ポリエチレン（H D P E）が170～220J/g程度、低密度ポリエチレン樹脂（L D P E）や直鎖状低密度ポリエチレン（L L D P E）が100～160J/g程度である。当該結晶融解熱量は、示差走査熱量計を用いて、JIS K 7122に準じて加熱速度10°C/分で測定することができる。

[0023] また、本発明に用いるエチレン- α -オレフィンランダム共重合体（A）の結晶融解ピーク温度は、特に限定されるものではないが、通常100°C未満であり、30～90°Cである場合が多い。ここで、該結晶融解ピーク温度の参考値としては、汎用の高密度ポリエチレン（H D P E）が130～145°C程度、低密度ポリエチレン樹脂（L D P E）や直鎖状低密度ポリエチレン（L L D P E）が100～125°C程度である。すなわち、本発明に用いられるエチレン- α -オレフィンランダム共重合体（A）単独では、示差走査熱量測定における加熱速度10°C/分で測定される結晶融解ピーク温度が100°C以上であり、かつ、結晶融解熱量が5～70J/gを達成することは困難である。当該結晶融解ピーク温度は、示差走査熱量計を用いて、JIS K 7121に準じて加熱速度10°C/分で測定することができる。

[0024] 本発明に用いるエチレン- α -オレフィンランダム共重合体（A）の具体例としては、ダウ・ケミカル（株）製の商品名「エンゲージ（E n g a g e）」、「アフィニティー（A f f i n i t y）」、三井化学（株）製の商品名「タフマーA（T A F M E R A）」、「タフマーP（T A F M E R P）」、日本ポリエチレン（株）製の商品名「カーネル（K a r n e l）」等を例示することができる。

[0025] （エチレン- α -オレフィンブロック共重合体（B））
本発明に用いるエチレン- α -オレフィンブロック共重合体（B）は、前

記条件（b）を満足すれば特に限定されるものではないが、通常、エチレンと炭素数3～20の α -オレフィンとのブロック共重合体が好適に用いられる。ここでエチレンと共に重合する α -オレフィンとしては、プロピレン、1-ブテン、1-ペンテン、1-ヘキセン、1-ヘプテン、1-オクテン、1-ノネン、1-デセン、3-メチルブテン-1、4-メチルペンテノン等が例示される。本発明においては、工業的な入手し易さや諸特性、経済性などの観点からエチレンと共に重合する α -オレフィンとしては、プロピレン、1-ブテン、1-ヘキセン、1-オクテンが好適に用いられる。エチレンと共に重合する α -オレフィンは1種のみを単独でまたは2種以上を組み合わせて用いてもかまわない。

[0026] また、エチレン- α -オレフィンブロック共重合体（B）は、前記条件（b）を満足すれば、 α -オレフィン以外の单量体に基づく单量体単位を含有していてもよい。該单量体としては、例えば、環状オレフィン、ビニル芳香族化合物（スチレンなど）、ポリエン化合物等が挙げられる。該单量体単位の含有量は、エチレン- α -オレフィンブロック共重合体（B）中の全单量体単位を100モル%とした場合、20モル%以下であり、15モル%以下であることが好ましい。

[0027] 本発明に用いるエチレン- α -オレフィンブロック共重合体（B）のブロック構造は、前記条件（b）を満足すれば特に限定されるものではないが、柔軟性、耐熱性、透明性等のバランス化の観点から、コモノマー含有率、結晶性、密度、結晶融解ピーク温度（融点T_m）、又はガラス転移温度（T_g）の異なる2つ以上、好ましくは3つ以上のセグメント又はブロックを含有するマルチブロック構造であることが好ましい。具体的には、完全対称ブロック、非対称ブロック、テーパードブロック構造（ブロック構造の比率が主鎖内で漸増する構造）などが挙げられる。該マルチブロック構造を有する共重合体の構造や製造方法については、国際公開第2005/090425号パンフレット（WO2005/090425）、国際公開第2005/090426号パンフレット（WO2005/090426）、および国際公開

第2005／090427号パンフレット (WO 2005／090427)

などで詳細に開示されているものを採用することができる。

[0028] 本発明においては、前記マルチブロック構造を有するエチレン- α -オレフィンブロック共重合体について、以下、詳細に説明する。

該マルチブロック構造を有するエチレン- α -オレフィンブロック共重合体は、本発明において好適に使用でき、 α -オレフィンとして1-オクテンを共重合成分とするエチレン-オクテンマルチブロック共重合体が好ましい。該ブロック共重合体としては、エチレンに対してオクテン成分が多く（約15～20モル%）共重合されたほぼ非晶性のソフトセグメントと、エチレンに対してオクテン成分が少なく（約2モル%未満）共重合された結晶融解ピーク温度が100～145°Cである高結晶性のハードセグメントが、各々2つ以上存在するマルチブロック共重合体が好ましい。これらのソフトセグメントとハードセグメントの連鎖長や比率を制御することにより、柔軟性と耐熱性の両立を達成することができる。該マルチブロック構造を有する共重合体の具体例としては、ダウ・ケミカル（株）製の商品名「インフューズ（Infuse）」が挙げられる。

[0029] 本発明に用いるエチレン- α -オレフィンブロック共重合体（B）のメルトフローレート（MFR）は、特に制限されるものではないが、通常、MFR（JIS K7210、温度：190°C、荷重：21.18N）が、0.5～100g/10分程度、より好ましくは1～50g/10分、さらに好ましくは1～30g/10分、特に好ましくは1～10g/10分であるものが用いられる。

ここで、MFRは、シートを成形する際の成形加工性や太陽電池素子（セル）を封止する時の密着性、回り込み具合などを考慮して選択すればよい。具体的には、シートをカレンダー成形する場合には、シートを成形ロールから引き剥がす際のハンドリング性からMFRは、比較的低い方、具体的には0.5～5g/10分程度が好ましく、また、Tダイを用いて押出成形する場合には、押出負荷を低減させ押出量をUPさせる観点からMFRは、1～

30 g / 10 分であるものが好適に用いられる。さらに、太陽電池素子（セル）を封止する時の密着性や回り込み易さの観点からは、MFRは、3~50 g / 10 分であるものが好適に用いられる。

[0030] 本発明に用いるエチレン- α -オレフィンブロック共重合体（B）は、前記条件（b）を満足すること、すなわち示差走査熱量測定における加熱速度10 °C/分で測定される結晶融解ピーク温度が100~145 °Cであり、かつ、結晶融解熱量が5~70 J/g であることが必要である。結晶融解ピーク温度は、好ましくは105 °C以上、さらに好ましくは、110 °C以上であり、上限は通常145 °Cである。また、結晶融解熱量が、好ましくは10~60 J/g、さらに好ましくは、15~55 J/g である。結晶融解ピーク温度及び結晶融解熱量の測定方法については前述の通りである。

[0031] 一般に、太陽電池モジュールは発電時の発熱や太陽光の輻射熱などで85~90 °C程度まで昇温するが、結晶融解ピーク温度が100 °C以上であれば、本発明の太陽電池用多層体の耐熱性を確保することが出来るため好ましく、一方、その上限が145 °Cであれば、太陽電池素子の封止工程であまり高温にすることなく封止することができる為好ましい。また結晶融解熱量が5~70 J/g の範囲内であれば、本発明の太陽電池用多層体の柔軟性や透明性（全光線透過率）などが確保され、また、原料ペレットのブロッキングなどの不具合も起こり難い為好ましい。

[0032] （樹脂層（I）-1）

樹脂層（I）-1は、前記エチレン- α -オレフィンランダム共重合体（A）と前記エチレン- α -オレフィンブロック共重合体（B）を含有する樹脂層である。ここで、これらの共重合体（A）及び共重合体（B）の各々に用いられる α -オレフィンの種類は、同一であってもよいし、異なっていてもよいが、本発明においては、同一である方が、混合した際の相溶性や太陽電池用多層体の透明性が向上する、すなわち、太陽電池の光電変換効率が向上するため好ましい。

[0033] 次に、樹脂層（I）-1中におけるエチレン- α -オレフィンランダム共

重合体（A）とエチレン- α -オレフィンブロック共重合体（B）の含有量は、柔軟性、耐熱性、透明性等の優れたバランスを有する観点から、それぞれ、好ましくは、50～99質量%、1～50質量%であり、より好ましくは、60～98質量%、2～40質量%であり、更に好ましくは、70～97質量%、3～30質量%である。また、エチレン- α -オレフィンランダム共重合体（A）とエチレン- α -オレフィンブロック共重合体（B）の混合（含有）質量比は、特に制限されるものではないが、好ましくは（A）／（B）=99～50／1～50、より好ましくは、98～60／2～40、より好ましくは、97～70／3～30、より好ましくは、97～80／3～20、更に好ましくは、97～90／3～10である。但し、（A）と（B）の合計を100質量部とする。ここで、混合（含有）質量比が該範囲内であれば、柔軟性、耐熱性、透明性等のバランスに優れた太陽電池用多層体が得られやすいため好ましい。

[0034] [樹脂層（I）-2]

樹脂層（I）-2は、シラン変性エチレン系樹脂（X）を含有する樹脂層である。ここで、樹脂層（I）-2は、シラン変性エチレン系樹脂（X）を主成分とする樹脂層やシラン変性エチレン系樹脂（A）とポリエチレン系樹脂（Y）との混合物を主成分とする樹脂層を包含する。また、樹脂層（I）-2は、本発明の太陽電池用多層体において、主に表面層、封止層や接着層としての機能を発現する役割を有する。このため、本発明の太陽電池用多層体の最外層の少なくとも一層は樹脂層（I）-2である必要がある。

[0035] 本明細書において、「主成分」とは、本発明の太陽電池用多層体の各樹脂層を構成する樹脂の作用・効果を妨げない範囲で、他の成分を含むことを許容する主旨である。さらに、この用語は、具体的な含有率を制限するものではないが、一般に樹脂組成物の構成成分全体を100質量部とした場合、50質量部以上であり、好ましくは65質量部以上、さらに好ましくは80質量部以上であって100質量部以下の範囲を占める成分である。以下同じ。

[0036] <シラン変性エチレン系樹脂（X）>

本発明に用いられるシラン変性エチレン系樹脂（X）は、通常、ポリエチレン系樹脂とビニルシラン化合物及びラジカル発生剤を高温（160℃～220℃程度）で溶融混合し、グラフト重合させることにより得ることができる。

[0037] （ポリエチレン系樹脂）

上記ポリエチレン系樹脂としては、特に限定されるものではないが、具体的には、低密度ポリエチレン、中密度ポリエチレン、高密度ポリエチレン、超低密度ポリエチレン、または直鎖状低密度ポリエチレンが挙げられる。これらは1種のみを単独でまたは2種以上を組み合わせて用いてもかまわない。

[0038] 本発明においては、透明性や柔軟性が良好となることから密度が低いポリエチレン系樹脂が好適に用いられる。具体的には、密度が0.850～0.920 g/cm³のポリエチレン系樹脂が好ましく、特には、密度が0.860～0.880 g/cm³の直鎖状低密度ポリエチレンが好ましい。また、密度が低いポリエチレン系樹脂と密度が高いポリエチレン系樹脂を組み合わせて用いてもかまわない。組み合わせて用いることで、透明性や柔軟性と耐熱性のバランスが比較的容易に調整できるため好ましい。

[0039] 本発明において好適に用いられる密度の低いポリエチレン系樹脂は、通常、エチレンと炭素数3～20のα-オレフィンとのランダム共重合体が挙げられる。ここでエチレンと共に重合するα-オレフィンとしては、プロピレン、1-ブテン、1-ペンテン、1-ヘキセン、1-ヘプテン、1-オクテン、1-ノネン、1-デセン、3-メチルブテン-1、4-メチルペンタン-1等が例示できる。本発明においては、工業的な入手し易さや諸特性、経済性などの観点からエチレンと共に重合するα-オレフィンとしては、プロピレン、1-ブテン、1-ヘキセン、1-オクテンが好適に用いられる。エチレンと共に重合するα-オレフィンは1種のみを単独でまたは2種以上を組み合わせて用いてもかまわない。

[0040] また、エチレンと共に重合するα-オレフィンの含有量としては、エチレン

— α —オレフィンランダム共重合体中の全単量体単位に対して、通常、2モル%以上、好ましくは40モル%以下、より好ましくは3~30モル%、さらに好ましくは5~25モル%である。該範囲内であれば、共重合成分により結晶性が低減されるため透明性が向上し、また、原料ペレットのブロッキングなどの不具合も起こり難いため好ましい。なお、エチレンと共重合する α —オレフィンの種類と含有量は、周知の方法、例えば、核磁気共鳴（NMR）測定装置、その他の機器分析装置で定性定量分析することができる。

- [0041] 該エチレン— α —オレフィンランダム共重合体は、 α —オレフィン以外の単量体に基づく単量体単位を含有していてもよい。該単量体としては、例えば、環状オレフィン、ビニル芳香族化合物（スチレンなど）、ポリエン化合物等が挙げられる。該単量体単位の含有量は、エチレン— α —オレフィンランダム共重合体中の全単量体単位を100モル%とした場合、20モル%以下であり、15モル%以下であることがより好ましい。また、エチレン— α —オレフィンランダム共重合体の立体構造、分岐、分岐度分布や分子量分布は、特に限定されるものではないが、例えば、長鎖分岐を有する共重合体は、一般に機械特性が良好であり、また、シートを成形する際の溶融張力（マルテンション）が高くなりカレンダー成形性が向上するなどの利点がある。シングルサイト触媒を用いて重合された分子量分布の狭い共重合体は、低分子量成分が少なく原料ペレットのブロッキングが比較的起こり難いなどの利点がある。
- [0042] 該エチレン— α —オレフィンランダム共重合体のメルトフローレート（MFR）は、特に制限されるものではないが、通常、MFR（JIS K7210、温度：190°C、荷重：21.18N）が、0.1~100g/10min程度であるもの、成形性や諸特性から0.3~10g/10minであるものが好適に用いられる。
- [0043] 該エチレン— α —オレフィンランダム共重合体の製造方法は、特に限定されるものではなく、公知のオレフィン重合用触媒を用いた公知の重合方法が採用できる。例えば、チーグラー・ナッタ型触媒に代表されるマルチサイト

触媒やメタロセン系触媒やポストメタロセン系触媒に代表されるシングルサイト触媒を用いた、スラリー重合法、溶液重合法、塊状重合法、気相重合法等、また、ラジカル開始剤を用いた塊状重合法等が挙げられる。本発明においては、好適に用いられる密度の低いエチレン- α -オレフィンランダム共重合体が比較的軟質の樹脂である為、重合後の造粒（ペレタイズ）のし易さや原料ペレット同士のブロッキング防止などの観点から低分子量成分が少なく分子量分布の狭い原料が重合できるシングルサイト触媒を用いた重合方法が好適に用いられる。

[0044] (ビニルシラン化合物)

ビニルシラン化合物としては、上記ポリエチレン系樹脂とグラフト重合するものであれば特に限定されるものではないが、例えばビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、ビニルトリプロポキシシラン、ビニルトリイソプロポキシシラン、ビニルトリブトキシシラン、ビニルトリペンチロキシシラン、ビニルトリフェノキシシラン、ビニルトリベンジルオキシシラン、ビニルトリメチレンジオキシシラン、ビニルトリエチレンジオキシシラン、ビニルプロピオニルオキシシラン、ビニルトリアセトキシシラン、および、ビニルトリカルボキシシランからなる群より選ばれる少なくとも1種類のものを用いることができる。本発明においては、反応性、接着性や色調などの観点からビニルトリメトキシシランが好適に用いられる。

[0045] また、該ビニルシラン化合物の添加量は、特に限定されるものではないが、用いるポリエチレン系樹脂100質量部に対し、通常、0.01～10.0質量部程度であり、0.3～8.0質量部添加することがより好ましく、1.0～5.0質量部添加することがさらに好ましい。

[0046] (ラジカル発生剤)

ラジカル発生剤としては、特に限定されるものではないが、例えば、ジイソプロピルベンゼンヒドロパーオキサイド、2,5-ジメチル-2,5-ジ(ヒドロパーオキシ)ヘキサン等のヒドロパーオキサイド類；ジ-*t*-ブチルパーオキサイド、*t*-ブチルクミルパーオキサイド、ジクミルパーオキサ

イド、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(*t*-ブチルパーオキシ)ヘキサン、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(*t*-パーオキシ)ヘキシン-3等のジアルキルパーオキサイド類；ビス-3, 5, 5-トリメチルヘキサノイルパーオキサイド、オクタノイルパーオキサイド、ベンゾイルパーオキサイド、 *o*-メチルベンゾイルパーオキサイド、2, 4-ジクロロベンゾイルパーオキサイド等のジアシルパーオキサイド類； *t*-ブチルパーオキシアセテート、 *t*-ブチルパーオキシ-2-エチルヘキサノエート、 *t*-ブチルパーオキシピバレート、 *t*-ブチルパーオキシオクトエート、 *t*-ブチルパーオキシソプロピルカーボネート、 *t*-ブチルパーオキシベンゾエート、ジ- *t*-ブチルパーオキシフタレート、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(ベンゾイルパーオキシ)ヘキサン、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(ベンゾイルパーオキシ)ヘキシン-3等のパーオキシエステル類；メチルエチルケトンパーオキサイド、シクロヘキサンンパーオキサイド等のケトンパーオキサイド類等の有機過酸化物、または、アゾビスイソブチロニトリル、アゾビス(2, 4-ジメチルバレロニトリル)等のアゾ化合物等が挙げられる。

[0047] また、該ラジカル発生剤の添加量は、特に限定されるものではないが、用いるポリエチレン系樹脂100質量部に対し、通常、0.01～5.0質量部程度であり、0.02～1.0質量部添加することがより好ましく、0.03～0.5質量部添加することがさらに好ましい。さらに、該ラジカル発生剤の残存量は、本発明の太陽電池用多層体を構成する各樹脂層中に0.01質量%以下であり、ゲル分率が30%以下であることが好ましい。

[0048] 本発明で用いるシラン変性エチレン系樹脂(X)や各樹脂層中には、シラノール間の縮合反応を促進するシラノール縮合触媒を実質的に含有していないことが好ましい。該シラノール縮合触媒の具体例としては、例えば、ジブチル錫ジアセテート、ジブチル錫ジラウテート、ジブチル錫ジオクテート、ジオクチル錫ジラウテートなどが挙げられる。ここで、実質的に含有していないとは、樹脂100質量部に対して、0.05質量部以下、好ましくは0.03質量部以下である。

[0049] ここで、シラノール縮合触媒を実質的に含有していないことが好ましい理由は、本発明においては、シラノール架橋反応を積極的に進行させず、用いるポリエチレン系樹脂にグラフトされたシラノール基などの極性基と被着体（ガラス、各種プラスチックシート（コロナ処理などの表面処理を適宜施し、濡れ指数が 50 mN/m 以上のものが好適に用いられる）、金属など）との水素結合や共有結合などの相互作用により接着性を発現させることを目的としている為である。

[0050] （シラン変性エチレン系樹脂（X））

本発明に用いるシラン変性エチレン系樹脂（A）は、前述の通り、通常は上記ポリエチレン系樹脂をビニルシラン化合物及びラジカル発生剤を高温（160°C～220°C 程度）で溶融混合し、グラフト重合させて得られるものである。よって、本発明に用いるシラン変性エチレン系樹脂（X）の密度、及び MFR の好適な範囲については、上記ポリエチレン系樹脂の密度、及び MFR の好適な範囲と同様となる。

[0051] 本発明に用いるシラン変性エチレン系樹脂（X）の具体例としては、三菱化学（株）製の商品名「リンクロン（LINKRON）」を例示することができる。

[0052] 樹脂層（1）-2 は、シラン変性エチレン系樹脂（X）を主成分とする樹脂層やシラン変性エチレン系樹脂（X）とポリエチレン系樹脂（Y）との混合物を主成分とする樹脂層であってもかまわない。シラン変性エチレン系樹脂（X）は、前記したように、通常、ポリエチレン系樹脂とビニルシラン化合物及びラジカル発生剤を高温で溶融混合し、グラフト重合させることにより得ることができるが、該工程においては、ラジカル発生剤を用いる為用いるポリエチレン系樹脂が部分的に架橋することによりゲルやフィッシュアイが混入したり、用いるビニルシラン化合物やラジカル発生剤が反応せずに残留してしまうことがある。その為、本発明においては、シラン変性エチレン系樹脂（X）とポリエチレン系樹脂（Y）との混合物を主成分とする樹脂層であることがより好ましい。該混合物とすることにより、経済性が向上する

とともに、柔軟性、透明性や耐熱性などの諸特性の調整も比較的容易にできるため好ましい。

[0053] ここで、ポリエチレン系樹脂（Y）としては、特に限定されるものではないが、シラン変性エチレン系樹脂（X）と混合し、樹脂層（I）－2中のシラン変性エチレン系樹脂（X）の含有量を調整するとともに、樹脂層（I）－2の柔軟性、透明性、封止性や耐熱性などの諸特性を調整するものである。具体的には、前記シラン変性エチレン系樹脂（X）を得る際に用いるポリエチレン系樹脂と同様の樹脂、すなわち、低密度ポリエチレン、中密度ポリエチレン、高密度ポリエチレン、超低密度ポリエチレン、または直鎖状低密度ポリエチレンが挙げられる。これらは1種のみを単独でまたは2種以上を組み合わせて用いてもかまわない。

[0054] 本発明に用いるポリエチレン系樹脂（Y）のメルトフローレート（MFR）は、特に制限されるものではないが、通常、MFR（JIS K 7210、温度：190°C、荷重：21.18N）が、0.5～100g/10min程度、より好ましくは2～50g/10min、さらに好ましくは3～30g/10minであるものが用いられる。ここで、MFRは、シートを成形する際の成形加工性や太陽電池素子（セル）を封止する時の密着性、回り込み具合などを考慮して選択すればよい。例えば、シートをカレンダー成形する場合には、シートを成形ロールから引き剥がす際のハンドリング性からMFRは、比較的低い方、具体的には0.5～5g/10min程度が好ましく、また、Tダイを用いて押出成形する場合には、押出負荷を低減させ押出量をUPさせる観点からMFRは、2～50g/10minが好ましく、さらに好ましくは3～30g/10minであるものを用いればよい。さらに、太陽電池素子（セル）を封止する時の密着性や回り込み易さの観点からは、MFRは、2～50g/10minが好ましく、さらに好ましくは3～30g/10minであるものを用いればよい。

[0055] 該ポリエチレン系樹脂（Y）は、本発明においては、前記シラン変性エチレン系樹脂（X）を得る際に用いるポリエチレン系樹脂と同一の樹脂を用い

ても、異なる樹脂を用いてもかまわないが、混合した際の相溶性や透明性などの観点から同一の樹脂であることが好ましい。また、本発明においては、透明性や柔軟性が良好となることから密度が低いポリエチレン系樹脂が好適に用いられる。具体的には、密度が0.850～0.920 g/cm³のポリエチレン系樹脂が好ましく、密度が0.860～0.880 g/cm³の直鎖状低密度ポリエチレンがより好ましい。さらに、該直鎖状低密度ポリエチレンにおいて、共重合成分であるα-オレフィンの種類がシラン変性エチレン系樹脂(X)を得る際に用いるポリエチレン系樹脂と同一であることが特に好ましい。

[0056] 本発明において、好適に用いられる密度が低いポリエチレン系樹脂の具体例としては、ダウ・ケミカル(株)製の商品名「エンゲージ(Engage)」、「アフィニティー(Affinity)」、「インフューズ(Infuse)」、三井化学(株)製の商品名「タフマーA(TAFMER A)」、「タフマーP(TAFMER P)」、日本ポリエチレン(株)製の商品名「カーネル(Karneel)」等を例示することができる。

[0057] 樹脂層(I)-2をシラン変性エチレン系樹脂(X)とポリエチレン系樹脂(Y)との混合物を主成分とする樹脂層とする場合の混合質量比は、特に限定されるものではないが、シラン変性エチレン系樹脂(X)／ポリエチレン系樹脂(Y)比で、1～99/99～1であり、好ましくは、2～70/98～30、より好ましくは、3～40/97～60である。該範囲内であれば、樹脂層(I)-2中のシラン変性エチレン系樹脂(X)の含有量、すなわち、シラン変性基濃度が調整し易く、樹脂層(I)-2の主な役割である接着層としての機能を保持しつつ、表面層、封止層としての柔軟性、透明性、封止性や耐熱性などの諸特性の調整が比較的容易にできるため好ましい。

[0058] 樹脂層(I)-2は、本発明の太陽電池用多層体において、主に表面層、封止層や接着層としての機能を発現する役割を有する。このため、樹脂層(I)-2に用いる樹脂は、柔軟性を有するものであることが好ましい。一方

、樹脂層（Ⅰ）－2は表面層として、軟化によるブロッキングを防止することも要求される。本発明においては、特に限定されるものではないが、樹脂層（Ⅰ）－2のビカット軟化温度が60°C以下であることが好ましく、30°C以上、60°C未満であることがより好ましく、35°C以上、55°C以下であることがさらに好ましい。該範囲内であれば、樹脂層（Ⅰ）－2の柔軟性が十分確保されるとともに、通常の保管環境（温度30°C、湿度50%程度）においてブロッキングし難いため好ましい。なお、ビカット軟化温度は、JIS K 7206に準拠して測定することができる。具体的には、加熱浴槽中の試験片に垂直に置いた先端断面積1mm²の針状圧子を通じて10N（A法）の総荷重を加えながら、50°C／時間の速度で伝熱媒体を昇温させ、圧子先端が試験片中に1mm侵入した時の温度である。

[0059] 樹脂層（Ⅰ）－2にシラン変性エチレン系樹脂（X）とポリエチレン系樹脂（Y）との混合物を用いる場合の混合方法は、特に限定されるものではないが、予め樹脂とともにドライブレンドしてからホッパーに供給しても良いし、予め全ての材料を溶融混合してペレットを作製してから供給しても良い。また、本発明においては、前記したようにシラン変性エチレン系樹脂（X）を得る際に添加したビニルシラン化合物及びラジカル発生剤が反応せずに残存してしまうことがあるため、シラン変性エチレン系樹脂（X）とポリエチレン系樹脂（Y）とを混合する際には、真空ベントで揮発分を除去することが好ましい。

[0060] 樹脂層（Ⅰ）の厚みは、特に制限されるものではないが、太陽電池素子（セル）の封止性や経済性などの観点から、0.02～0.7mmであることが好ましく、0.05～0.6mmであることがより好ましい。

[0061] [樹脂層（Ⅱ）]

樹脂層（Ⅱ）は、樹脂層（Ⅰ）の少なくとも一方の側に設けられ、示差走査熱量測定における加熱速度10°C／分で測定される結晶融解ピーク温度が100～145°C、結晶融解熱量が120～190J/gである（条件（c））エチレン系重合体（C）と、結晶核剤（D）とを含有する樹脂層であ

る。また、樹脂層（II）は、本発明の太陽電池用多層体において、主に太陽電池素子（セル）や配線等の水分による劣化を抑制するための優れた防湿性（水蒸気バリア性）、太陽電池モジュール製造時におけるハンドリング性（剛性）、フレキシブルタイプの太陽電池モジュールに剛性（腰）や、太陽電池に十分な発電効率を発現するための優れた透明性を付与する役割を有する。

[0062] （エチレン系重合体（C））

本発明の太陽電池用多層体に用いるエチレン系重合体（C）としては、前記条件（c）の熱特性を満足すれば特に限定されるものではないが、エチレン単独重合体やエチレンと炭素数3～20の α -オレフィンとの共重合体、あるいは、これらの混合物が好適に用いられる。ここでエチレンと共に重合する α -オレフィンとしては、プロピレン、1-ブテン、1-ペンテン、1-ヘキセン、1-ヘプテン、1-オクテン、1-ノネン、1-デセン、3-メチル-1-ブテン-1、4-メチル-1-ペンテン-1等が例示される。本発明においては、工業的な入手し易さや諸特性、経済性などの観点からエチレンと共に重合する α -オレフィンとしては、プロピレン、1-ブテン、1-ヘキセン、1-オクテンが好適に用いられる。エチレンと共に重合する α -オレフィンは1種のみを単独でまたは2種以上を組み合わせて用いてもかまわない。本発明においては、前記熱特性を満足するエチレン単独重合体、或いは、エチレンと、1-ブテン、1-ヘキセン及び1-オクテンから選ばれる少なくとも1種、好ましくは2種以上の α -オレフィンとの共重合体が結晶核剤（D）との組合せにおいて、太陽電池素子（セル）や配線等の水分による劣化を抑制するための優れた防湿性（水蒸気バリア性）、太陽電池モジュール製造時におけるハンドリング性（剛性）、フレキシブルタイプの太陽電池モジュールに剛性（腰）や、太陽電池に十分な発電効率を発現するための優れた透明性など樹脂層（II）としての諸特性が効率的に付与できるため好ましい。

[0063] 該エチレンと α -オレフィンとの共重合体を用いる場合、 α -オレフィン

の含有量としては、エチレン- α -オレフィン共重合体中の全単量体単位に対して、0.1～3.0質量%であることが好ましく、0.3質量%以上或いは2.8質量%以下であることがより好ましく、0.5質量%以上或いは2.6質量%以下であることがさらに好ましい。特に、前記共重合体中に占めるブテン-1、ヘキセン-1、及び、オクテン-1の割合の合計が上記範囲内であることが好ましい。 α -オレフィンが該範囲内であれば、防湿性と透明性および耐熱性や剛性とのバランスに優れた太陽電池用多層体を提供することができるため好ましい。

[0064] また、前記エチレン系重合体（C）の重合に用いる触媒は、特に限定されるものではないが、例えば、塩化チタンと有機アルミニウム化合物からなるチーグラー・ナッタ型触媒や酸化クロムなどのクロム化合物からなるフィリップス型触媒に代表されるマルチサイト触媒と、メタロセン系触媒やポストメタロセン系触媒に代表されるシングルサイト触媒等が挙げられる。本発明においては、後記する理由からシングルサイト触媒を用いることが好ましい。

[0065] ここで、シングルサイト触媒を用いて重合されるエチレン単独重合体やエチレン- α -オレフィン共重合体は、分子量分布指数（M_w／M_n）が小さく、分子の長さが比較的均一であるため、結晶核剤（D）を添加した場合に、微細な結晶を形成することが可能となるため、透明性、防湿性を効率的に向上させることができる。これらのことから、前記エチレン系重合体（C）の分子量分布指数（M_w／M_n）は2.5～5.0であることが好ましく、2.6以上或いは4.8以下であることがより好ましく、2.8以上或いは4.5以下、特に3.0以上或いは4.0以下であることがさらに好ましい。なお、該分子量分布指数（M_w／M_n）は、周知の方法、例えば、高温GPCシステムを用いて重量平均分子量（M_w）と数平均分子量（M_n）の比から求めることができる。

[0066] 該シングルサイト触媒の例としては、メタロセン化合物とメチルアルミニノオキサンとを組み合わせたメタロセン触媒が挙げられる。シングルサイト触

媒を用いて重合されるエチレン単独重合体やエチレン- α -オレフィン共重合体の特徴としては、前記した分子量分布が狭いことに加えて、同じ密度で比較すれば、マルチサイト触媒を用いて重合された樹脂よりも結晶融解熱量が低い点なども挙げることができる。

- [0067] また、該エチレン系重合体（C）の密度が、0.910～0.948 g/cm³であることが好ましく、0.915 g/cm³以上或いは0.947 g/cm³以下であることがより好ましく、0.920 g/cm³以上或いは0.942 g/cm³以下であることがさらに好ましい。ここで、密度が該範囲内であれば、本発明の太陽電池用多層体に優れた防湿性と透明性および耐熱性や剛性をバランス良く付与することができるため好ましい。
- [0068] 本発明に用いるエチレン系重合体（C）は、特定の熱特性（c）、すなわち示差走査熱量測定における加熱速度10°C/分で測定される結晶融解ピーク温度が100～145°C、結晶融解熱量が120～190 J/gであることが必要である。より好ましくは結晶融解ピーク温度が105°C以上、さらに好ましくは110°C以上であり、上限は145°Cである。また、より好ましくは結晶融解熱量が130～185 J/g、さらに好ましくは140～183 J/gである。ここで、結晶融解ピーク温度及び結晶融解熱量が該範囲内であれば、結晶核剤（D）との組合せにおいて、本発明の太陽電池用多層体に優れた防湿性、透明性および剛性を付与することができるため好ましい。なお、該結晶融解ピーク温度および結晶融解熱量は、示差走査熱量計を用いて、各々JIS K7121、JIS K7122に準拠して測定することができる。
- [0069] また、該エチレン系重合体（C）のメルトフローレート（MFR）は、特に制限されるものではないが、通常、MFR（JIS K7210、温度：190°C、荷重：21.18 N）が、0.1～100 g/10 min程度であるもの、成形性や諸特性から0.3～10 g/10 minであるものが好適に用いられる。
- [0070] 該エチレン系重合体（C）の具体例としては、シングルサイト触媒で重合

されたものとして、旭化成ケミカルズ（株）の商品名「クレオレックス（C R E O L E X）」、TOTAL PETROCHEMICALS社の商品名「Lumicene」、宇部丸善ポリエチレン（株）製の商品名「ユメリット（UMERIT）」やマルチサイト触媒で重合されたものとして、旭化成ケミカルズ（株）の商品名「サンテックHD（Suntec HD）」、日本ポリエチレン（株）製の商品名「ノバテックHD（Novatec HD）」等が挙げられる。

[0071] (結晶核剤 (D))

本発明に用いる結晶核剤 (D) は、主に前記エチレン系重合体 (C) の球晶サイズの微細化による透明性向上や、結晶融解熱量の増大、剛性向上効果を有するものであれば、その種類は特に制限されるものではない。例えば、ジベンジリデンソルビトール (DBS) 化合物、1, 3-O-ビス (3, 4-ジメチルベンジリデン) ソルビトール、ジアルキルベンジリデンソルビトール、少なくとも一つの塩素または臭素置換基を有するソルビトールのジアセタール、ジ (メチルまたはエチル置換ベンジリデン) ソルビトール、炭素環を形成する置換基を有するビス (3, 4-ジアルキルベンジリデン) ソルビトール、脂肪族、脂環族、および芳香族のカルボン酸、ジカルボン酸または多塩基性ポリカルボン酸、相当する無水物および金属塩などの有機酸の金属塩化合物、環式ビスフェノールホスフェート、2ナトリウムビシクロ [2. 2. 1] ヘプテンジカルボン酸などの二環式ジカルボン酸及び塩化合物、ビシクロ [2. 2. 1] ヘプタンジカルボキシレートなどの二環式ジカルボキシレートの飽和の金属または有機の塩化合物、1, 3: 2, 4-O-ジベンジリデン-D-ソルビトール、1, 3: 2, 4-ビス-O-(m-メチルベンジリデン)-D-ソルビトール、1, 3: 2, 4-ビス-O-(m-エチルベンジリデン)-D-ソルビトール、1, 3: 2, 4-ビス-O-(m-イソプロピルベンジリデン)-D-ソルビトール、1, 3: 2, 4-ビス-O-(m-n-プロピルベンジリデン)-D-ソルビトール、1, 3: 2, 4-ビス-O-(m-n-ブチルベンジリデン)-D-ソルビトール、

1, 3 : 2, 4-ビス-O-(p-メチルベンジリデン)-D-ソルビトル、1, 3 : 2, 4-ビス-O-(p-エチルベンジリデン)-D-ソルビトル、1, 3 : 2, 4-ビス-O-(p-イソプロピルベンジリデン)-D-ソルビトル、1, 3 : 2, 4-ビス-O-(p-n-プロピルベンジリデン)-D-ソルビトル、1, 3 : 2, 4-ビス-O-(p-n-ブチルベンジリデン)-D-ソルビトル、1, 3 : 2, 4-ビス-O-(2, 3-ジメチルベンジリデン)-D-ソルビトル、1, 3 : 2, 4-ビス-O-(2, 4-ジメチルベンジリデン)-D-ソルビトル、1, 3 : 2, 4-ビス-O-(2, 5-ジメチルベンジリデン)-D-ソルビトル、1, 3 : 2, 4-ビス-O-(3, 4-ジメチルベンジリデン)-D-ソルビトル、1, 3 : 2, 4-ビス-O-(3, 5-ジメチルベンジリデン)-D-ソルビトル、1, 3 : 2, 4-ビス-O-(2, 3-ジエチルベンジリデン)-D-ソルビトル、1, 3 : 2, 4-ビス-O-(2, 4-ジエチルベンジリデン)-D-ソルビトル、1, 3 : 2, 4-ビス-O-(2, 5-ジエチルベンジリデン)-D-ソルビトル、1, 3 : 2, 4-ビス-O-(3, 4-ジエチルベンジリデン)-D-ソルビトル、1, 3 : 2, 4-ビス-O-(3, 5-ジエチルベンジリデン)-D-ソルビトル、1, 3 : 2, 4-ビス-O-(2, 4, 5-トリメチルベンジリデン)-D-ソルビトル、1, 3 : 2, 4-ビス-O-(3, 4, 5-トリメチルベンジリデン)-D-ソルビトル、1, 3 : 2, 4-ビス-O-(2, 4, 5-トリエチルベンジリデン)-D-ソルビトル、1, 3 : 2, 4-ビス-O-(3, 4, 5-トリエチルベンジリデン)-D-ソルビトル、1, 3 : 2, 4-ビス-O-(p-メチルオキシカルボニルベンジリデン)-D-ソルビトル、1, 3 : 2, 4-ビス-O-(p-エチルオキシカルボニルベンジリデン)-D-ソルビトル、1, 3 : 2, 4-ビス-O-(p-イソプロピルオキシカルボニルベンジリデン)-D-ソルビトル、1, 3 : 2, 4-ビス-O-(o-n-プロピルオキシカルボニルベンジリデン)-D-ソルビトル、1, 3 : 2, 4-ビス-O-(o-n-ブチルベンジ

リデン) -D-ソルビトール、1, 3:2, 4-ビス-O-(o-クロロベ
ンジリデン) -D-ソルビトール、1, 3:2, 4-ビス-O-(p-クロ
ロベンジリデン) -D-ソルビトール、1, 3:2, 4-ビス-O-[(5
, 6, 7, 8,-テトラヒドロ-1-ナフタレン)-1-メチレン] -D-ソ
ルビトール、1, 3:2, 4-ビス-O-[(5, 6, 7, 8,-テトラヒド
ロ-2-ナフタレン)-1-メチレン] -D-ソルビトール、1, 3-O-
ベンジリデン-2, 4-O-p-メチルベンジリデン-D-ソルビトール、
1, 3-O-p-メチルベンジリデン-2, 4-O-ベンジリデン-D-ソ
ルビトール、1, 3-O-ベンジリデン-2, 4-O-p-エチルベンジリ
デン-D-ソルビトール、1, 3-O-p-エチルベンジリデン-2, 4-
O-ベンジリデン-D-ソルビトール、1, 3-O-ベンジリデン-2, 4-
-O-p-クロルベンジリデン-D-ソルビトール、1, 3-O-p-クロ
ルベンジリデン-2, 4-O-ベンジリデン-D-ソルビトール、1, 3-
O-ベンジリデン-2, 4-O-(2, 4-ジメチルベンジリデン) -D-
ソルビトール、1, 3-O-(2, 4-ジメチルベンジリデン) -2, 4-
O-ベンジリデン-D-ソルビトール、1, 3-O-ベンジリデン-2, 4-
-O-(3, 4-ジメチルベンジリデン) -D-ソルビトール、1, 3-O-
(3, 4-ジメチルベンジリデン) -2, 4-O-ベンジリデン-D-ソ
ルビトール、1, 3-O-p-メチル-ベンジリデン-2, 4-O-p-エ
チルベンジリデンソルビトール、1, 3-p-エチル-ベンジリデン-2,
4-p-メチルベンジリデン-D-ソルビトール、1, 3-O-p-メチル
-ベンジリデン-2, 4-O-p-クロルベンジリデン-D-ソルビトール
、1, 3-O-p-クロル-ベンジリデン-2, 4-O-p-メチルベンジ
リデン-D-ソルビトールなどのジアセタール化合物、ナトリウム2, 2'
-メチレン-ビス-(4, 6-ジ-tert-ブチルフェニル) ホスフェー
ト、アルミニウムビス[2, 2'-メチレン-ビス-(4-6-ジ-tert
-ブチルフェニル) ホスフェート]、磷酸2, 2-メチレンビス(4, 6
-ジ-tert-ブチルフェニル) ナトリウムや、カプロン酸、エナント酸

、カプリル酸、ペラルゴン酸、カプリン酸、ウンデカン酸、ラウリン酸、トリデカン酸、ミリスチン酸、ペントデカン酸、パルミチン酸、マーガリン酸、ステアリン酸、ノナデカン酸、アラキン酸、ベヘニン酸、モンタン酸等の脂肪酸、オレイン酸アミド、エルカ酸アミド、ステアリン酸アミド、ヘベニン酸アミドなどの脂肪酸アミド、ステアリン酸マグネシウム、ステアリン酸亜鉛、ステアリン酸カルシウム等の脂肪酸金属塩、シリカ、タルク、カオリン、炭化カルシウム等の無機粒子、グリセロール、グリセリンモノエステルなどの高級脂肪酸エステル、及び類似物が挙げられる。

[0072] 本発明においては、透明性や剛性の向上効果から、オレイン酸アミド、エルカ酸アミド、ステアリン酸アミド、ヘベニン酸アミドなどの脂肪酸アミド、ステアリン酸マグネシウム、ステアリン酸亜鉛、ステアリン酸カルシウム等の脂肪酸金属塩が特に好ましい。

[0073] 結晶核剤（D）の具体例としては、新日本理化（株）の商品名「ゲルオールD」シリーズ、旭電化工業（株）の商品名「アデカスタブ」、ミリケンケミカル（株）の商品名「M ill ad」、「Hyperform」、BASF（株）の商品名「IRGACLEAR」等が挙げられ、また結晶核剤のマスターbatchとしては理研ビタミン（株）の商品名「リケマスターCN」、ミリケンケミカル（株）の商品名「Hyperform Concentrate」等が挙げられる。この中でも特に透明性を向上する効果が高いものとして、ミリケンケミカル（株）の商品名「Hyperform HPN-20E」、「Hyperform Concentrate HL3-4」、理研ビタミン（株）の商品名「リケマスターCN-001」、「リケマスターCN-002」が挙げられる。

[0074] （オレフィン相溶樹脂（E））

前記樹脂層（II）は、更に、オレフィン相溶樹脂（E）を含有させることが、本発明の太陽電池用多層体の防湿性や透明性をさらに向上できるため好ましい。

ここで、該オレフィン相溶樹脂（E）としては、例えば石油樹脂、テルペ

ン樹脂、クマロン－インデン樹脂、ロジン系樹脂、及びこれらの水素添加誘導体からなる群から選ばれる1種類の樹脂又は2種類以上の樹脂が挙げられる。本発明においては、後記する理由から石油樹脂またはテルペン樹脂が好適に用いられる。

[0075] 前記石油樹脂としては、例えばシクロペンタジエンもしくはその二量体からの脂環式石油樹脂、C9成分からの芳香族石油樹脂等が挙げられる。

前記テルペン樹脂としては、例えば β －ピネンからのテルペノーフェノール樹脂などが挙げられる。

前記クマロン－インデン樹脂としては、例えば、クマロン－インデン共重合体や、クマロン－インデン－スチレン共重合体などが挙げられる。

前記ロジン系樹脂としては、例えばガムロジン、ウッドロジン等のロジン樹脂、グリセリン、ペントエリスリトールなどで変性したエステル化ロジン樹脂等が挙げられる。

[0076] 該オレフィン相溶樹脂(E)は、前記エチレン系重合体(C)と混合した場合の相溶性、色調、熱安定性、耐湿熱性などの観点から、水素添加物誘導体、特に水素添加率(以下「水添率」と略することがある、 $^1\text{H-NMR}$ スペクトルからフェニル基を基準とした共役ジエンの不飽和二重結合の割合から求められる)が95%以上であり、また水酸基、カルボキシル基、ハロゲンなどの極性基、あるいは二重結合などの不飽和結合を実質上含有しない、水添石油樹脂または水添テルペン樹脂を用いることが好ましい。

[0077] 本発明の太陽電池用多層体においては、オレフィン相溶樹脂(E)のJIS K 2207に準拠して測定した軟化温度T_s(E)は、[前記エチレン系重合体(C)のJIS K 7121に準拠して測定した示差走査熱量測定における冷却速度10°C/分で測定される結晶化ピーク温度T_c(C)+5°C]以下であることが好ましく、より好ましくは[該T_c(C)+3°C]以下であり、より好ましくは、[該T_c(C)+2°C]以下であり、より好ましくは該T_c(C)以下であり、更に好ましくは該T_c(C)-5°C以下である。なお、該T_s(E)の下限は80°Cである。ここで、軟化温度T_s(

E) の上限が該条件を満たすことで、エチレン系重合体（C）の結晶化過程においては、オレフィン相溶樹脂（E）の分子鎖の自由度が高いため、エチレン系重合体（C）の結晶化が阻害されにくく、微細な結晶が形成され、防湿性や透明性などに優れた太陽電池用多層体が得られるため好ましい。また、オレフィン相溶樹脂（E）の軟化温度T_s（E）の下限が80°C以上、好ましくは90°C以上であれば、成形時における原料のブロッキングや、二次加工時、あるいは、輸送時、使用時において太陽電池用多層体の表面へのブリードアウトが生じにくいため好ましい。

該オレフィン相溶樹脂（E）の軟化温度T_s（E）は、主に、分子量を選択することにより、所望の軟化温度のものを得ることができる。

[0078] 該オレフィン相溶樹脂（E）の具体例としては、三井化学（株）の商品名「ハイレツ（Hirez）」、「ペトロジン（PETROGIN）」、荒川化学工業（株）の商品名「アルコン（Arkon）」、ヤスハラケミカル（株）の商品名「クリアロン（Clearon）」、出光興産（株）の商品名「アイマーブ（I-MARV）」、トーネックス（株）の商品名「エスコレツ（Esco rez）」等が挙げられる。

[0079] (環状オレフィン系樹脂(F))

前記樹脂層(II)には、更に、環状オレフィン系樹脂(F)を含有させることが透明性をさらに向上できるため好ましい。

本発明に用いる環状オレフィン系樹脂(F)としては、(i) 環状オレフィンの開環(共)重合体を必要に応じ水素添加した重合体、(ii) 環状オレフィンの付加(共)重合体、(iii) 環状オレフィンとエチレン、プロピレン等のα-オレフィンとのランダム共重合体、(iv) 前記(i)～(iii)を無水マレイン酸、マレイン酸、無水イタコン酸、イタコン酸、(メタ)アクリル酸等の不飽和カルボン酸あるいはその無水物の変性剤で変性したグラフト共重合体等が例示できる。これらは1種のみを単独でまたは2種以上を組み合わせて用いてもかまわない。

[0080] 該環状オレフィン系樹脂(F)のガラス転移温度(T_g)は、好ましくは

50～110℃であり、より好ましくは50～105℃であり、より好ましくは55～90℃、さらに好ましくは60～90℃、さらに好ましくは65～85℃である。ここで、ガラス転移温度（T_g）が該範囲内であれば耐熱性、加工性を大幅に低下させることなく、本発明の太陽電池用多層体の透明性を向上させることができると好ましい。

[0081] 該環状オレフィン系樹脂（F）は、樹脂層（II）を構成する前記エチレン系重合体（C）との相溶性が低いため、透明性を考慮すると、常温における平均屈折率が1.51～1.54であることが好ましく、より好ましくは、1.515～1.535であり、また、用いるエチレン系重合体（C）の平均屈折率との差の絶対値が0.01以下であることが好ましく、より好ましくは、0.005以下であり、さらに好ましくは、0.003以下である。ここで、平均屈折率差の絶対値が該範囲内であれば、樹脂層（II）中ににおける環状オレフィン系樹脂（F）の分散径に大きく影響されることなく、透明性が向上できるため好ましい。なお、平均屈折率は、周知の方法、例えば、アッベ屈折計を用いて測定することができる。

[0082] 環状オレフィン系樹脂（F）の具体例としては、日本ゼオン（株）の商品名「ゼオノア（Z E O N O R）」、三井化学（株）の商品名「アペル（A P E L）」、ポリプラスチックス（株）の商品名「トパス（T O P A S）」が挙げられる。なお、環状オレフィン系樹脂（F）は、例えば、特開昭60-168708号公報、特開昭61-115916号公報、特開昭61-271308号公報、特開昭61-252407号公報などに記載されている公知の方法に準拠して製造することもできる。

[0083] （樹脂層（II））

本発明の太陽電池用多層体における樹脂層（II）は、前記エチレン系重合体（C）と前記結晶核剤（D）を含有する樹脂層である。

[0084] 前記樹脂層（II）におけるエチレン系重合体（C）の含有量は、通常、30質量%以上であり、30～99.9質量%であるのが好ましく、より好ましくは30～90質量%、より好ましくは40～85質量%、更に好まし

くは40～80質量%である。ここで、エチレン系重合体（C）の含有量が該範囲内とすることにより、優れた剛性、防湿性及び透明性を付与することができるため好ましい。

[0085] 次に、前記樹脂層（II）における結晶核剤（D）の含有量は、透明性、防湿性が良好となる範囲で適宜決定することが可能であるが、0.01～3.0質量%であることが好ましく、0.03質量%以上或いは2.0質量%以下であることがより好ましく、0.05質量%以上或いは1.0質量%以下であるのがさらに好ましい。ここで、結晶核剤（D）の含有量が該範囲内であれば、過剰な添加による界面散乱による透明性の大幅な低下がなく、本発明の太陽電池用多層体の剛性、透明性及び防湿性を向上させることができるとため好ましい。

[0086] 次に、前記樹脂層（II）におけるオレフィン相溶樹脂（E）の含有量は、0～40質量%であることが好ましく、より好ましくは5～30質量%、更に好ましくは10～25質量%である。ここで、オレフィン相溶樹脂（E）が該範囲内であれば、表面へのブリードや機械物性の大幅な低下がなく、本発明の太陽電池用多層体の透明性と防湿性をさらに向上させることができるとため好ましい。

[0087] 次に、前記樹脂層（II）における環状オレフィン系樹脂（F）の含有量は、0～45質量%であることが好ましく、より好ましくは10～50質量%、より好ましくは15～40質量%で、より好ましくは20～35質量%、さらに好ましくは25～30質量%である。ここで、環状オレフィン系樹脂（F）が該範囲内であれば、防湿性を大幅に低下させることなく、透明性をさらに向上させることができるため好ましい。

[0088] 本発明においては、樹脂層（II）の厚みは、特に制限されるものではないが、防湿性と透明性及び剛性のバランスの観点から、0.01～0.30mmであることが好ましく、0.03～0.25mmであることがより好ましく、0.03～0.20mmであることがより好ましく、0.05～0.15mmであることがさらに好ましい。

[0089] [その他の樹脂]

また、本発明の太陽電池用多層体を構成する樹脂層（Ⅰ）、及び樹脂層（Ⅱ）には、本発明の主旨を逸脱しない範囲で、諸特性（柔軟性、剛性、耐熱性、透明性、接着性など）や成形加工性あるいは経済性などをさらに向上させる目的で、樹脂層（Ⅰ）であれば前記エチレン- α -オレフィンランダム共重合体（A）、及び前記エチレン- α -オレフィンブロック共重合体（B）、前記シラン変性エチレン系樹脂（X）やポリエチレン系樹脂（Y）以外、樹脂層（Ⅱ）であれば前記エチレン系重合体（C）、前記オレフィン相溶樹脂（E）、及び前記環状オレフィン系樹脂（F）以外のその他の樹脂を混合することができる。ここで、その他の樹脂としては、例えば、他のポリオレフィン系樹脂や各種エラストマー（オレフィン系、スチレン系など）、カルボキシル基、アミノ基、イミド基、水酸基、エポキシ基、オキサゾリン基、チオール基、シラノール基などの極性基で変性された樹脂などが挙げられる。

[0090] [添加剤]

また、本発明の太陽電池用多層体を構成する樹脂層（Ⅰ）、及び／又は樹脂層（Ⅱ）には、必要に応じて、種々の添加剤を添加することができる。該添加剤としては、例えば、シランカップリング剤、酸化防止剤、紫外線吸収剤、耐候安定剤、光拡散剤、造核剤、顔料（例えば白色顔料）、難燃剤、変色防止剤などが挙げられる。本発明においては、樹脂層（Ⅰ）-1に添加される添加剤としては、シランカップリング剤、酸化防止剤、紫外線吸収剤、耐候安定剤から選ばれる少なくとも一種の添加剤が添加されていることが後記する理由等から好ましい。また、樹脂層（Ⅰ）-2及び／又は樹脂層（Ⅱ）に添加される添加剤としては、酸化防止剤、紫外線吸収剤、耐候安定剤から選ばれる少なくとも一種の添加剤が添加されていることが後記する理由等から好ましい。

[0091] （シランカップリング剤）

シランカップリング剤は、封止材の保護材（ガラス、樹脂製のフロントシ

ート、バックシートなど) や太陽電池素子等に対する接着性を向上させるのに有用であり、例えば、ビニル基、アクリロキシ基、メタクリロキシ基のような不飽和基、アミノ基、エポキシ基などとともに、アルコキシ基のような加水分解可能な基を有する化合物が挙げられる。シランカップリング剤の具体例としては、N-(β -アミノエチル)- γ -アミノプロピルトリメトキシシラン、N-(β -アミノエチル)- γ -アミノプロピルメチルジメトキシシラン、 γ -アミノプロピルトリエトキシシラン、 γ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、 γ -メタクリロキシプロピルトリメトキシシランなどを例示することができる。添加する場合には、接着性が良好であり、黄変などの変色が少ないと等から γ -グリシドキシプロピルトリメトキシシランや γ -メタクリロキシプロピルトリメトキシシランが好ましく用いられる。該シランカップリング剤の添加量は、各樹脂層を構成する樹脂組成物100質量部に対し、通常、0.0～5.0質量部程度、好ましくは、0.1～5質量部、より好ましくは0.2～3質量部であり、また、シランカップリング剤と同様に、有機チタネート化合物などのカップリング剤も有効に活用できるが、本発明においては添加しないことが好ましい。

[0092] (酸化防止剤)

酸化防止剤としては、種々の市販品が適用でき、モノフェノール系、ビスフェノール系、高分子型フェノール系、硫黄系、ホスファイト系など各種タイプのものが挙げられる。モノフェノール系としては、例えば、2,6-ジ-*tert*-ブチル-*p*-クレゾール、ブチル化ヒドロキシアニゾール、2,6-ジ-*tert*-ブチル-4-エチルフェノールなどが挙げられる。ビスフェノール系としては、2,2'-メチレン-ビス-(4-メチル-6-*tert*-ブチルフェノール)、2,2'-メチレン-ビス-(4-エチル-6-*tert*-ブチルフェノール)、4,4'-チオビス-(3-メチル-6-*tert*-ブチルフェノール)、4,4'-ブチリデン-ビス-(3-メチル-6-*tert*-ブチルフェノール)、3,9-ビス[({1,1-ジメチル-2-(3-*tert*-ブチル-4-ヒドロキシ-5-メチ

ルフェニル) プロピオニルオキシ} エチル} 2, 4, 9, 10-テトラオキ
サスピロ] 5, 5-ウンデカンなどが挙げられる。

[0093] 高分子フェノール系としては、1, 1, 3-トリス-(2-メチル-4-
ヒドロキシ-5-tert-ブチルフェニル) ブタン、1, 3, 5-トリメ
チル-2, 4, 6-トリス(3, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキ
シベンジル) ベンゼン、テトラキス-{メチレン-3-(3', 5'
-ジ-tert-ブチル-4'-ヒドロキスフェニル) プロピオネート} メタン、
ビス{(3, 3'-ビス-4'-ヒドロキシ-3'-tert-ブチルフェ
ニル) ブチリックアシッド} グルコールエステル、1, 3, 5-トリス(3'
, 5'-ジ-tert-ブチル-4'-ヒドロキシベンジル)-s-トリ
アジン-2, 4, 6-(1H, 3H, 5H) トリアン、トリフェノール(ビ
タミンE) などが挙げられる。

[0094] 硫黄系としては、ジラウリルチオジプロピオネート、ジミリスチルチオジ
プロピオネート、ジステアリルチオプロピオネートなどが挙げられる。

[0095] ホスファイト系としては、トリフェニルホスファイト、ジフェニルイソデ
シルホスファイト、フェニルジイソデシルホスファイト、4, 4'-ブチリ
デン-ビス(3-メチル-6-tert-ブチルフェニル-ジ-トリデシル
) ホスファイト、サイクリックネオペンタンテトライルビス(オクタデシル
ホスファイト)、トリス(モノおよび/またはジ) フェニルホスファイト、
ジイソデシルペンタエリスリトールジホスファイト、9, 10-ジヒドロー
9-オキサ-10-ホスファフェナスレン-10-オキサイド、10-(3
, 5-ジ-tert-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)-9, 10-ジヒ
ドロー9-オキサ-10-ホスファフェナスレン-10-オキサイド、1
0-デシロキシ-9, 10-ジヒドロー9-オキサ-10-ホスファフェナ
スレン、サイクリックネオペンタンテトライルビス(2, 4-ジ-tert
-ブチルフェニル) ホスファイト、サイクリックネオペンタンテトライル
ビス(2, 6-ジ-tert-メチルフェニル) ホスファイト、2, 2-メ
チレンビス(4, 6-tert-ブチルフェニル) オクチルホスファイトな

どが挙げられる。

[0096] 本発明においては、酸化防止剤の効果、熱安定性、経済性等からフェノール系およびホスファイト系の酸化防止剤が好ましく用いられ、両者を組み合わせて用いることがさらに好ましい。該酸化防止剤の添加量は、各樹脂層を構成する樹脂組成物100質量部に対し、通常、0.1～1.0質量部程度であり、0.2～0.5質量部添加することが好ましい。

[0097] (紫外線吸収剤)

紫外線吸収剤としては、ベンゾフェノン系、ベンゾトリアゾール系、トリアジン系、サリチル酸エステル系など各種タイプのものを挙げることができ、種々の市販品が適用できる。ベンゾフェノン系紫外線吸収剤としては、例えば、2-ヒドロキシ-4-メトキシベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-4-メトキシ-2'カルボキシベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-4-オクトキシベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-4-n-ドデシルオキシベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-4-n-オクタデシルオキシベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-4-メトキシ-5-スルホベンゾフェノン、2-ヒドロキシ-5-クロロベンゾフェノン、2,4-ジヒドロキシベンゾフェノン、2,2'-ジヒドロキシ-4-メトキシベンゾフェノン、2,2',4,4'-ジヒドロキシ-4,4'-ジメトキシベンゾフェノン、2,2',4,4'-テトラヒドロキシベンゾフェノンなどが挙げられる。

[0098] ベンゾトリアゾール系紫外線吸収剤としては、ヒドロキシフェニル置換ベンゾトリアゾール化合物であって、例えば、2-(2-ヒドロキシ-5-メチルフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(2-ヒドロキシ-5-t-ブチルフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(2-ヒドロキシ-3,5-ジメチルフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(2-メチル-4-ヒドロキシフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(2-ヒドロキシ-3-メチル-5-t-ブチルフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(2-ヒドロキシ-3,5-ジ-t-アミルフェニル)ベンゾトリアゾール、2-(2-ヒドロキシ-3,

5-ジ-*t*-ブチルフェニル)ベンゾトリアゾールなどが挙げられる。またトリアジン系紫外線吸収剤としては、2-[4, 6-ビス(2, 4-ジメチルフェニル)-1, 3, 5-トリアジン-2-イル]-5-(オクチルオキシ)フェノール、2-(4, 6-ジフェニル-1, 3, 5-トリアジン-2-イル)-5-(ヘキシリオキシ)フェノールなどが挙げられる。サリチル酸エステル系としては、フェニルサリチレート、*p*-オクチルフェニルサリチレートなどが挙げられる。

[0099] 該紫外線吸収剤の添加量は、各樹脂層を構成する樹脂組成物100質量部に対し、通常、0.01~2.0質量部程度であり、0.05~0.5質量部添加することが好ましい。

[0100] (光安定剤)

上記の紫外線吸収剤以外に耐候性を付与する耐候安定剤としては、ヒンダードアミン系光安定化剤が好適に用いられる。ヒンダードアミン系光安定化剤は、紫外線吸収剤のようには紫外線を吸収しないが、紫外線吸収剤と併用することによって著しい相乗効果を示す。ヒンダードアミン系以外にも光安定化剤として機能するものはあるが、着色している場合が多く本発明の太陽電池用多層体には好ましくない。

[0101] ヒンダードアミン系光安定化剤としては、コハク酸ジメチル-1-(2-ヒドロキシエチル)-4-ヒドロキシ-2, 2, 6, 6-テトラメチルピペリジン重縮合物、ポリ[{6-(1, 1, 3, 3-テトラメチルブチル)アミノ-1, 3, 5-トリアジン-2, 4-ジイル} { (2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペリジル)イミノ} ヘキサメチレン { {2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペリジル}イミノ}]、N, N'-ビス(3-アミノプロピル)エチレンジアミン-2, 4-ビス[N-ブチル-N-(1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチル-4-ピペリジル)アミノ]-6-クロロ-1, 3, 5-トリアジン縮合物、ビス(2, 2, 6, 6-テトラメチル-4-ピペリジル)セバケート、2-(3, 5-ジ-*t*-エリ-4-ヒドロキシベンジル)-2-*n*-ブチルマロン酸ビス(1, 2, 2, 6, 6-ペンタメチ

ルー4-ヒペリジル)などが挙げられる。

[0102] 該ヒンダードアミン系光安定化剤の添加量は、各樹脂層を構成する樹脂組成物100質量部に対し、通常、0.01～0.5質量部程度であり、0.05～0.3質量部添加することが好ましい。

[0103] [太陽電池用多層体]

本発明の太陽電池用多層体は、前記樹脂層(Ⅰ)の少なくとも一方の側に前記樹脂層(Ⅱ)を有してなる。

本発明の太陽電池用多層体は、防湿性に優れるものであり、総厚み0.3mm、温度40°C、相対湿度90%で測定した水蒸気透過率が3.0g/(m²・24時間)以下であることが好ましい。本発明においては、太陽電池用多層体を用いて作製された太陽電池モジュールの耐久性や長期信頼性などの観点から2.0g/(m²・24時間)以下であることがより好ましく、1.0g/(m²・24時間)以下であることが更に好ましく、0.5g/(m²・24時間)以下であることが特に好ましい。本発明におけるこのような優れた防湿性は、主として、前記エチレン系重合体(C)と結晶核剤(D)との組合せ、更には、オレフィン相溶樹脂(E)及び/または、環状オレフィン系樹脂(F)の添加により達成することができる。なお、該水蒸気透過率は、公知の種々の方法で測定することが可能であるが、本発明においては、JIS K7129Bに準拠して、MOCON社製PERMATRAN W 3/31を用いて、温度40°C、相対湿度90%の条件下において、総厚み0.3mmの多層シートの水蒸気透過率を測定したものである。

[0104] 本発明の太陽電池用多層体は、適用される太陽電池の形状や厚み、設置場所などを考慮して、その柔軟性や剛性を適宜調整することができる。例えば、シート形状で本発明の太陽電池用多層体を採取した場合のハンドリング性やシート表面同士のブロッキング防止、あるいは、太陽電池モジュールにおける軽量化(通常3mm程度に対して、薄膜ガラス(1.1mm程度)が適用可能、あるいはガラスレスの構成が適用可能)などを考慮すると、動的粘弾性測定における振動周波数10Hz、温度20°Cの貯蔵弹性率(E')が

100～1000 MPaであることが好ましく、150～900 MPa、250～900 MPaであることがより好ましく、300～700 MPaであることがさらに好ましく、400～600 MPaであることが特に好ましい。なお、該貯蔵弾性率（E'）は、動的粘弾性測定装置を用いて、振動周波数10 Hzで所定温度範囲を測定し、温度20°Cにおける値を求めることが得られる。

- [0105] 本発明の太陽電池用多層体は、最外層の少なくとも一層として有する樹脂層（I）と樹脂層（II）とを有する多層構成であるため、接着性や柔軟性などの表面層に求められる特性と防湿性やハンドリング性（剛性）などの多層体全体に求められる特性とをバランス良く両立することが可能となる。
- [0106] 例えば、柔軟性とハンドリング性（剛性）を例に説明すると、本発明の太陽電池用多層体は、樹脂層（I）として軟質層、樹脂層（II）として硬質層を採用し、これらの厚み比を適宜調整することにより、柔軟性とハンドリング性（剛性）をバランス良く両立することが可能となる。本発明の太陽電池用多層体は、樹脂層（I）と樹脂層（II）の2層以上の積層構成であればかまわないが、多層体としてのカール防止（平面性の保持）や製膜性などの観点から、樹脂層（I）／樹脂層（II）／樹脂層（I）、言い換えれば、軟質層／硬質層／軟質層の2種3層構成などの対称構成が好ましい。
- [0107] 上記軟質層とは、特に限定はされないが、動的粘弾性測定における振動周波数10 Hz、温度20°Cの貯蔵弾性率（E'）が好ましくは100 MPa以下、より好ましくは、5～50 MPaの層であり、硬質層とは、貯蔵弾性率（E'）が好ましくは100 MPaを越え、より好ましくは、200～300 MPa、さらに好ましくは500～2000 MPaの層である。このような積層構成を採用することにより、本発明の太陽電池用多層体を例えれば、太陽電池材として用いる場合、太陽電池素子の保護性（クッション性）と封止材全体としてのハンドリング性（常温での弾性率など）の両立が比較的容易に実現することが出来るため好ましい。
- [0108] 本発明の太陽電池用多層体の総厚み0.3 mmにおける全光線透過率は、

適用する太陽電池の種類、例えばアモルファスの薄膜系シリコン型などや太陽電子素子に届く太陽光を遮らない部位に適用する場合には、あまり重視されないこともあるが、太陽電池の光電変換効率や各種部材を重ね合わせる時の作業性などを考慮し、85%以上であることが好ましく、88%以上であることがより好ましく、90%以上であることがさらに好ましい。なお、該全光線透過率は、公知の種々の方法で測定することが可能であるが、本発明においては、JIS K 7105に準拠して、村上色彩技術研究所（株）製「反射・透過率計」を用いて、総厚み0.3mmの多層シートの全光線透過率を測定したものである。

[0109] 本発明の太陽電池用多層体は、太陽電池モジュールの形成が容易であり、架橋工程が省略可能かつ透明性、防湿性、封止性およびハンドリング性（剛性）等に優れた太陽電池材として好適に用いられる。これらの特性を同時に満足させる為、総厚み0.3mmの太陽電池用多層体を測定した場合、動的粘弾性測定における振動周波数10Hz、温度20°Cの貯蔵弾性率（E'）が300～700MPa、温度40°C、相対湿度90%で測定した水蒸気透過率が3.0g/（m²・24時間）以下、かつ全光線透過率が85%以上であることが好ましい。より好ましくは、動的粘弾性測定における振動周波数10Hz、温度20°Cの貯蔵弾性率（E'）が400～600MPa、温度40°C、相対湿度90%で測定した水蒸気透過率が2.0g/（m²・24時間）以下、かつ全光線透過率が87%以上であり、さらに好ましくは、動的粘弾性測定における振動周波数10Hz、温度20°Cの貯蔵弾性率（E'）が400～600MPa、温度40°C、相対湿度90%で測定した水蒸気透過率が1.0g/（m²・24時間）以下、かつ全光線透過率が88%以上である。

[0110] 本発明の太陽電池用多層体の耐熱性は、樹脂層（I）と樹脂層（II）に用いる樹脂の諸特性（結晶融解ピーク温度、結晶融解熱量、MFR、分子量など）に影響される。一般に、太陽電池モジュールは発電時の発熱や太陽光の輻射熱などで85～90°C程度まで昇温するが、結晶融解ピーク温度が1

00°C以上であれば、本発明の太陽電池用多層体の耐熱性が確保できるため好ましい。

[0111] 本発明の太陽電池用多層体の総厚みは、特に限定されるものではないが、通常、0.03～1.0mm程度であり、透明性、防湿性、及び、ハンドリング性等の点から、好ましくは0.10～0.75mm、より好ましくは0.10～0.70mmのシート状で用いられる。

[0112] [太陽電池用多層体の製造方法]

次に、本発明の太陽電池用多層体の製造方法について説明する。

シート状の太陽電池用多層体の製膜方法としては、公知の方法、例えば単軸押出機、多軸押出機、バンバリーミキサー、ニーダーなどの溶融混合設備を有し、Tダイを用いる押出キャスト法、カレンダー法やインフレーション法等を採用することができ、特に限定されるものではないが、本発明においては、ハンドリング性や生産性等の観点からTダイを用いる押出キャスト法が好適に用いられる。Tダイを用いる押出キャスト法での成形温度は、各樹脂層を構成する樹脂組成物の流動特性や製膜性等によって適宜調整されるが、概ね130～300°C、好ましくは、150～250°Cである。また、多層化の方法についても公知の方法、例えば、共押出法、押出ラミネート法、熱ラミネート法、ドライラミネート法等の方法を用いることができるが、本発明においては、ハンドリング性や生産性等の観点から共押出法が好適に用いられる。該共押出法においては、種々の多層口金が選択できるが、例えば、フィードブロック法、マルチマニホールド法が挙げられる。また、各樹脂層のトリミング効率や再生添加の際の透明性の低下を防止するなどの目的で、ダンベル口金やカプセレーション口金なども適宜用いることができる。

[0113] 前記製造方法にて作製した本発明の太陽電池用多層体において、樹脂層（11）の総厚みに対する厚み比率は、10%以上、90%以下であることが好ましく、20%以上、70%以下であることが好ましく、20%以上、60%以下であることがより好ましく、30%以上、60%以下であることがより好ましく、35%以上、55%以下であることが更に好ましい。ここで

、樹脂層（Ⅱ）の厚み比率が該範囲内であれば、防湿性と剛性および透明性とのバランスに優れた太陽電池用多層体が得られるため好ましい。また、本発明の太陽電池用多層体は常温での剛性に優れるため、例えば、フレキシブルタイプの太陽電池モジュールに用いると剛性（腰）を付与することができ、また、リジットタイプの太陽電池モジュールに用いると薄肉ガラス（例えば、1. 1 mmなど）が適用、あるいはガラスレスなどの構成が適用出来るようになり軽量化なども期待出来る。

[0114] また、本発明の太陽電池用多層体の構成としては、樹脂層（Ⅰ）が多層体の最外層の少なくとも1層として設けられていれば良く、例えば、樹脂層（Ⅰ）／樹脂層（Ⅱ）の2種2層構成、樹脂層（Ⅰ）／樹脂層（Ⅱ）／樹脂層（Ⅰ）の2種3層構成などが好適に用いられるが、太陽電池モジュールとしての特性向上や外観調整（ソリやカールの改良など）等の目的で他の積層構成を採用することも可能である。例えば、樹脂層（Ⅰ）（添加剤含む）／樹脂層（Ⅰ）（添加剤含まず）／樹脂層（Ⅱ）、樹脂層（Ⅰ）（添加剤Aを含む）／樹脂層（Ⅰ）（添加剤Bを含む）（添加剤AとBは添加剤处方が異なる）／樹脂層（Ⅱ）、樹脂層（Ⅰ）'／樹脂層（Ⅰ）''（樹脂層（Ⅰ）' と（Ⅰ）''は貯蔵弾性率（E'）や添加剤の混合比が異なる）／樹脂層（Ⅱ）、樹脂層（Ⅰ）／樹脂層（Ⅱ）'／樹脂層（Ⅱ）''（樹脂層（Ⅱ）' と（Ⅱ）''は貯蔵弾性率（E'）や添加剤の混合比が異なる）の3種3層構成、樹脂層（Ⅰ）／接着層／樹脂層（Ⅱ）／接着層／樹脂層（Ⅱ）（接着層は、樹脂層（Ⅰ）と樹脂層（Ⅱ）の接着層）、樹脂層（Ⅰ）／再生層／樹脂層（Ⅱ）／再生層／樹脂層（Ⅰ）、および、樹脂層（Ⅰ）／再生層／樹脂層（Ⅱ）／再生層／樹脂層（Ⅰ）の3種5層構成などが挙げられる。ここで、再生層には、本発明の太陽電池用多層体を製膜する際に生じる耳のトリミングや製品の幅調整で発生する巻物などを添加することができる。本発明においては、樹脂層（Ⅱ）の主な機能である防湿性、透明性や剛性などを低下させないために、樹脂層（Ⅱ）には、製膜する際に生じる耳のトリミングや製品の幅調整（スリット）で発生する

巻物などをできるだけ添加せず、再生層を設定して添加することが好ましい。
。

- [0115] 本発明の太陽電池用多層体に用いる酸化防止剤、紫外線吸収剤、耐候安定剤等の各種添加剤の混合方法は、予め樹脂とともにドライブレンドしてからホッパーに供給しても良いし、予め全ての材料を溶融混合してペレットを作製してから供給しても良いし、添加剤のみを予め樹脂に濃縮したマスター バッチを作製し供給してもかまわない。また、シート状で得られた本発明の太陽電池用多層体の表面及び／または裏面には、必要に応じて、シートを巻物とした場合のシート同士のブロッキング防止や太陽電池素子の封止工程でのハンドリング性やエア抜きのし易さ向上などの目的のためエンボス加工や種々の凹凸（円錐や角錐形状や半球形状など）加工を行ってもかまわない。
- [0116] さらに、本発明の太陽電池用多層体を作製する際に、別の基材フィルム（例えば、延伸ポリエチルフィルム（O P E T）、延伸ポリプロピレンフィルム（O P P）やE T F E（四フッ化エチレン・エチレン共重合体）、P V F（ポリビニルフロライド）、P V D F（ポリビニリデンフロライド）およびアクリル系などの各種耐候性フィルムなど）と押出ラミ、共押出やサンドラミなどの方法で積層してもかまわない。本発明の太陽電池用多層体と各種基材フィルムを積層することによりハンドリング性の向上や積層比に応じて必要な特性や経済性などを比較的容易に調整することが出来る。

[0117] [太陽電池モジュール]

本発明の太陽電池用多層体は、太陽電池用部材として用いられるものであり、その部位は特に限定されるものではないが、主に太陽電池素子に密着し保護する太陽電池封止材としての部位に太陽電池封止用多層体として、また、太陽電池モジュール全体としての柔軟性、剛性、カール、厚みや絶縁破壊電圧の調整などの目的で太陽電池素子に密着しない部位にも使用される。ここで、太陽電池素子に密着しない部位の具体例としては、例えば、上部保護材／封止材／太陽電池素子／封止材／下部保護材のような太陽電池モジュールの上部保護材の構成層として、最表面層／本発明の太陽電池用多層体／バ

リア層、最表面層／バリア層／本発明の太陽電池用多層体、最表面層／本発明の太陽電池用多層体や、最表面層／本発明の太陽電池用多層体／バリア層／本発明の太陽電池用多層体などが挙げられ、また、下部保護材の構成層として、本発明の太陽電池用多層体／バリア層／最裏面層、他のポリオレフィン層（CPPなど）／本発明の太陽電池用多層体／バリア層／最裏面層、他のポリオレフィン層（CPPなど）／バリア層／本発明の太陽電池用多層体／最裏面層や他のポリオレフィン層（CPPなど）／本発明の太陽電池用多層体／最裏面層などが挙げられる。また、本発明の太陽電池用多層体を太陽電池素子に密着しない部位に用いた場合には、太陽電池素子に密着し保護する太陽電池材には、本発明の太陽電池用多層体、あるいは、市販のEVAやアイオノマー系の太陽電池材を用いることができる。ここでは、本発明の太陽電池用多層体を太陽電池素子に密着し保護する太陽電池材として用いて作製された太陽電池モジュールについて説明する。

[0118] 本発明の太陽電池用多層体を用い、太陽電池素子を上下の保護材であるフロントシートおよびバックシートで固定することにより太陽電池モジュールを製作することができる。このような太陽電池モジュールとしては、種々のタイプのものを例示することができ、好ましくは、本発明の太陽電池用多層体を封止材、すなわち太陽電池封止用多層体として用い、上部保護材と、太陽電池素子と、下部保護材とを用いて作製された太陽電池モジュールが挙げられ、具体的には、上部保護材／封止材／太陽電池素子／封止材／下部保護材のように太陽電池素子の両面から本発明の太陽電池用多層体で挟むような構成のもの（図1参照）、下部保護材の内周面上に形成させた太陽電池素子上に封止材と上部保護材を形成させるような構成のもの、上部保護材の内周面上に形成させた太陽電池素子、例えばフッ素樹脂系透明保護材上にアモルファス太陽電池素子をスパッタリング等で作製したものの上に封止材と下部保護材を形成させるような構成のものなどが挙げられる。なお、本発明の太陽電池用多層体を用いた太陽電池モジュールにおいて、封止材が2箇所以上の部位に使用される場合、全ての部位に本発明の太陽電池用多層体を用いて

もかまわないし、1箇所のみの部位に本発明の太陽電池用多層体を用いてもかまわない。また、封止材が2箇所以上の部位に使用される場合、各々の部位に使用される本発明の太陽電池用多層体を構成する樹脂層(Ⅰ)、及び、樹脂層(Ⅱ)を構成する樹脂組成物の組成や、多層体に占める樹脂層(Ⅰ)、及び、樹脂層(Ⅱ)の厚み比率は同一であってもよいし、異なっていてもよい。なお、いずれの場合においても、太陽電池素子側に本発明の太陽電池用多層体の樹脂層(Ⅰ)側が接触するように太陽電池モジュールを作製することで、太陽電池素子を封止する際に十分な接着性や封止性を得ることができると好ましい。

[0119] 封止材間に配置され配線される前記太陽電池素子としては、例えば、単結晶シリコン型、多結晶シリコン型、アモルファスシリコン型、ガリウム-砒素、銅-インジウム-セレン、カドミウム-テルルなどのⅢ-V族やⅣ-VI族化合物半導体型、色素増感型、有機薄膜型等が挙げられる。

[0120] 本発明の太陽電池用多層体を用いて作製された太陽電池モジュールを構成する各部材については、特に限定されるものではないが、上部保護材としては、例えば、ガラス、アクリル樹脂、ポリカーボネート、ポリエステル、フッ素含有樹脂などの板材やフィルムの单層もしくは多層の保護材が挙げられる。下部保護材としては、金属や各種熱可塑性樹脂フィルムなどの单層もしくは多層のシートであり、例えば、錫、アルミ、ステンレスなどの金属、ガラス等の無機材料、ポリエステル、無機物蒸着ポリエステル、フッ素含有樹脂、ポリオレフィンなどの单層もしくは多層の保護材が挙げられる。これらの上部および/又は下部の保護材の表面には、本発明の太陽電池用多層体や他の部材との接着性を向上させるためにプライマー処理やコロナ処理など公知の表面処理を施すことができる。

[0121] 本発明の太陽電池用多層体を用いて作製された太陽電池モジュールを前記した上部保護材/封止材(樹脂層(Ⅰ)/樹脂層(Ⅱ)/樹脂層(Ⅰ))/太陽電池素子/封止材(樹脂層(Ⅰ)/樹脂層(Ⅱ)/樹脂層(Ⅰ))/下部保護材のように太陽電池素子の両側から封止材で挟むような構成のも

のを例として説明する。図1に示すように、太陽光受光側から順に、透明基板10、本発明の太陽電池用多層体（樹脂層（I）／樹脂層（II）／樹脂層（I））を用いた封止材12A、太陽電池素子14A、14B、本発明の太陽電池用多層体（樹脂層（I）／樹脂層（II）／樹脂層（I））を用いた封止材12B、バックシート16が積層されてなり、さらに、バックシート16の下面にジャンクションボックス18（太陽電池素子から発電した電気を外部へ取り出すための配線を接続する端子ボックス）が接着されてなる。太陽電池素子14A及び14Bは、発電電流を外部へ電導するために配線20により連結されている。配線20は、バックシート16に設けられた貫通孔（不図示）を通じて外部へ取り出され、ジャンクションボックス18に接続されている。

[0122] 太陽電池モジュールの製造方法としては、公知の製造方法が適用でき、特に限定されるものではないが、一般的には、上部保護材、封止材、太陽電池素子、封止材、下部保護材の順に積層する工程と、それらを真空吸引し加熱圧着する工程を有する。また、バッチ式の製造設備やロール・ツー・ロール式の製造設備なども適用することができる。

[0123] 本発明の太陽電池用多層体を用いて作製された太陽電池モジュールは、適用される太陽電池のタイプとモジュール形状により、モバイル機器に代表される小型太陽電池、屋根や屋上に設置される大型太陽電池など屋内、屋外に関わらず各種用途に適用することができる。

実施例

[0124] 以下に実施例でさらに詳しく説明するが、これらにより本発明は何ら制限を受けるものではない。なお、本明細書中に表示されるシートについての種々の測定値および評価は次のようにして行った。ここで、シートの押出機からの流れ方向を縦方向、その直交方向を横方向とよぶ。

[0125] (1) 結晶融解ピーク温度 (T_m)

(株)パーキンエルマー製の示差走査熱量計、商品名「Pyris 1 DSC」を用いて、JIS K7121に準じて、試料約10mgを加熱速度

10°C／分で-40°Cから200°Cまで昇温し、200°Cで1分間保持した後、冷却速度10°C／分で-40°Cまで降温し、再度、加熱速度10°C／分で200°Cまで昇温した時に測定されたサーモグラムから結晶融解ピーク温度（T_m）（°C）を求めた。

[0126] (2) 結晶化ピーク温度（T_c）

(株)パーキンエルマー製の示差走査熱量計、商品名「Pyris 1 DSC」を用いて、JIS K7121に準じて、試料約10mgを加熱速度10°C／分で-40°Cから200°Cまで昇温し、200°Cで1分間保持した後、冷却速度10°C／分で-40°Cまで降温した時に測定されたサーモグラムから結晶化ピーク温度（°C）を求めた。

[0127] (3) 結晶融解熱量（ΔH_m）

(株)パーキンエルマー製の示差走査熱量計、商品名「Pyris 1 DSC」を用いて、JIS K7122に準じて、試料約10mgを加熱速度10°C／分で-40°Cから200°Cまで昇温し、200°Cで1分間保持した後、冷却速度10°C／分で-40°Cまで降温し、再度、加熱速度10°C／分で200°Cまで昇温した時に測定されたサーモグラムから結晶融解熱量（ΔH_m）（J/g）を求めた。

[0128] (4) 軟化温度（T_s）

JIS K2207に準じてオレフィン相溶樹脂（E）の軟化温度を求めた。

[0129] (5) 分子量分布指数（M_w/M_n）

日本ウォーター（株）製高温GPCシステムを用いて重量平均分子量（M_w）、及び、数平均分子量（M_n）を測定し、分子量分布指数（M_w/M_n）を算出した。

[0130] (6) 透明性（全光線透過率）

村上色彩技術研究所（株）製「反射・透過率計」を用いて、JIS K7105に準じて、厚み0.3mmのサンプルについて全光線透過率の測定を行った。その結果を記載するとともに、下記の基準で評価した結果も併記し

た。

(○) 全光線透過率が 85 %以上である

(×) 全光線透過率が 85 %未満である

[0131] (7) 防湿性（水蒸気透過率）

J I S K 7 1 2 9 B に基づき、MOCON社製 P E R M A T R A N W 3 / 3 1 を用いて、40°C、90%RHの雰囲気下において厚み0.3mmのサンプルについて水蒸気透過率を測定した。その結果を記載するとともに、下記の基準で評価した結果も併記した。

(◎) 水蒸気透過率が $1.0 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ 時間})$ 以下である

(○) 水蒸気透過率が $1.0 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ 時間})$ を超え、 $3.0 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ 時間})$ 以下である

(×) 水蒸気透過率が $3.0 \text{ g} / (\text{m}^2 \cdot 24 \text{ 時間})$ を超える

[0132] (8) 剛性（貯蔵弾性率（E'））

(実施例1～9、比較例1～4、参考例1)

動的粘弾性測定機（アイティ計測（株）製、商品名：粘弾性スペクトロメーター DVA-200）を用いて、振動周波数：10Hz、昇温速度：3°C／分、歪0.1%の条件で、貯蔵弾性率（E'）を-100°Cから測定し、得られたデータから、20°Cにおける貯蔵弾性率（E'）を読み取った。20°Cにおける貯蔵弾性率（E'）が100MPa以上、1000MPa以下であるものを合格（○）とし、それ以外を（×）とした。

(実施例11～19、比較例5～7)

アイティ計測（株）製の動的粘弾性測定機、商品名「粘弾性スペクトロメーター DVA-200」を用いて、試料（縦4mm、横60mm）を振動周波数10Hz、ひずみ0.1%、昇温速度3°C／分、チャック間25mmで横方向について、-150°Cから150°Cまで測定し、得られたデータから、20°Cにおける貯蔵弾性率（E'）を求めた。その結果を記載するとともに、下記の基準で評価した結果も併記した。

(◎) 20°Cにおける貯蔵弾性率（E'）が300MPa以上、700

MPa 以下である

(○) 20°Cにおける貯蔵弾性率 (E') が 100 MPa 以上、300 MPa 未満、あるいは、700 MPa を超え、1000 MPa 以下である

(×) 20°Cにおける貯蔵弾性率 (E') が 1000 MPa を超える

[0133] (9) 封止性

真空ラミネーター ((株) エヌ・ピー・シー製、商品名: LM30×30) を用いて、熱板温度: 150°C、加工時間: 20分 (内訳、真空引き: 5分、プレス: 5分、圧力保持: 10分)、圧着速度: 急速の条件で、熱板側から順に、3mm厚白板ガラス (旭硝子 (株) 製、商品名: ソライト)、0.3mm厚封止材、0.4mm厚太陽電池セル (フランスフォトワット社製、商品名: 101×101MM)、0.3mm厚封止材、0.125mm厚耐候性 PET フィルム (東レ (株) 製、商品名: ルミラーX10S) の5層を真空プレスして作製した太陽電池モジュール (サイズ: 150mm×150mm) の外観を目視し、その結果を下記の基準で評価した。

(○) 封止材が太陽電池素子周囲に隙間なく十分に回り込んでいる。

(×) 封止材が太陽電池素子周囲に対し十分に回り込まず、気泡や浮きが発生している。

[0134] (10) 耐熱性

厚み 3mm の白板ガラス (サイズ; 縦 75mm、横 25mm) と厚み 5mm のアルミ板 (サイズ; 縦 120mm、横 60mm) の間に厚みが 0.3mm のシート状の封止材を重ね、真空プレス機を用いて、150°C、15 分の条件で積層プレスした試料を作製し、該試料を 85°C、85%RH の恒温恒湿槽内で 60 度に傾斜して設置し 2000 時間経過後の状態を観察し、下記の基準で評価した。

(○) ガラスが初期の基準位置からずれなかったもの

(×) ガラスが初期の基準位置からずれたもの、あるいは、シートが溶融したもの

[0135] (11) 平均屈折率

(株) アタゴ製アッペ屈折計を用いて、JIS K 7142に準拠して、ナトリウムD線(589 nm)を光源として測定した。

[0136] (12) ビカット軟化温度

JIS K 7206に準拠して測定した。すなわち、加熱浴槽中の試験片に垂直に置いた先端断面積1 mm²の針状圧子を通じて10N(A法)の総荷重を加えながら、50°C/時間の速度で伝熱媒体を昇温させ、圧子先端が試験片中に1 mm侵入した時の温度を測定した。

[0137] <使用した材料>

[エチレン- α -オレフィンランダム共重合体 (A)]

(A)-1: エチレン-オクテンランダム共重合体 (ダウ・ケミカル(株) 製、商品名: エンゲージ8200、エチレン/オクテン=76/24質量% (93/7モル%)、結晶融解ピーク温度=65°C、結晶融解熱量=53 J/g)

(A)-2: エチレン-プロピレン-ヘキセンランダム共重合体 (日本ポリエチレン(株) 製、商品名: カーネルKJ640T、エチレン/プロピレン/ヘキセン=80/10/10質量% (89/7/4モル%)、結晶融解ピーク温度=53°C、結晶融解熱量=58 J/g)

[0138] [エチレン- α -オレフィンブロック共重合体 (B)]

(B)-1: エチレン-オクテンブロック共重合体 (ダウ・ケミカル(株) 製、商品名: インフューズ9000、エチレン/オクテン=65/35質量% (88/12モル%)、結晶融解ピーク温度=122°C、結晶融解熱量=44 J/g)

[0139] [エチレン系重合体 (C)]

(C)-1: エチレン-ブテン-オクテンランダム共重合体 (旭化成(株) 製、商品名: クレオレックスK4125、エチレン/1-ブテン/1-オクテン=97.7/1.1/1.2質量% (99.1/0.6/0.3モル%)、密度: 0.941 g/cm³、結晶融解ピーク温度: 130°C、結晶融解熱量: 183 J/g、結晶化ピーク温度 (Tc(B)): 114°C、Mw

$\text{Mw}/\text{Mn} : 3.12$ 、 20°C における貯蔵弾性率 (E') : 1100 MPa 、平均屈折率 : 1.5274 、MFR (温度 : 190°C 、荷重 : 21.18 N) : $2.5 \text{ g}/10 \text{ min}$)

(C) - 2 : エチレン-ブテン-オクテンランダム共重合体 (旭化成 (株) 製、商品名 : クレオレックス K 4750、エチレン/1-ブテン/1-オクテン = $97.9/0.8/1.3$ 質量% ($99.3/0.4/0.3$ モル%)、密度 : $0.947 \text{ g}/\text{cm}^3$ 、結晶融解ピーク温度 : 131°C 、結晶融解熱量 : 181 J/g 、結晶化ピーク温度 ($T_c(B)$) : 113°C 、 $\text{Mw}/\text{Mn} : 2.87$ 、 20°C における貯蔵弾性率 (E') : 1478 MPa 、平均屈折率 : 1.5300 、MFR (温度 : 190°C 、荷重 : 21.18 N) : $5 \text{ g}/10 \text{ min}$)

(C) - 3 : エチレン単独重合体 (旭化成 (株) 製、商品名 : サンテック HD F 371、エチレン : 100 質量% (100 モル%)、密度 : $0.944 \text{ g}/\text{cm}^3$ 、結晶融解ピーク温度 : 131°C 、結晶融解熱量 : 167 J/g 、結晶化ピーク温度 ($T_c(B)$) : 114°C 、 $\text{Mw}/\text{Mn} : 4.72$ 、 20°C における貯蔵弾性率 (E') : 1218 MPa 、MFR (温度 : 190°C 、荷重 : 21.18 N) : $0.45 \text{ g}/10 \text{ min}$)

(C) - 4 : エチレン-ヘキセンランダム共重合体 (宇部丸善ポリエチレン (株) 製、商品名 : ユメリット 2040 FC、密度 : $0.918 \text{ g}/\text{cm}^3$ 、結晶融解ピーク温度 : 121°C 、結晶融解熱量 : 134 J/g 、結晶化ピーク温度 ($T_c(B)$) : 105°C 、 $\text{Mw}/\text{Mn} : 2.80$ 、 20°C における貯蔵弾性率 (E') : 451 MPa 、平均屈折率 : 1.5120 、MFR (温度 : 190°C 、荷重 : 21.18 N) : $5 \text{ g}/10 \text{ min}$)

[0140] [結晶核剤 (D)]

(D) - 1 : 脂肪酸金属塩 (ステアリン酸亜鉛 / 1, 2-シクロヘキサンジカルボン酸カルシウム塩 = $34/66$ 質量%)

[0141] [オレフィン相溶樹脂 (E)]

(E) - 1 : 水素添加石油樹脂 (荒川化学工業 (株) 製、商品名 : アルコ

ン P 115、軟化温度 T_s (E) = 115 °C)

(E) - 2 : 水素添加石油樹脂 (荒川化学工業 (株) 製、商品名 : アルコン P 140、軟化温度 T_s (E) = 140 °C)

[0142] [環状オレフィン系樹脂 (F)]

(F) - 1 : 環状オレフィン系樹脂 (ポリプラスチックス (株) 製、商品名 : TOPAS 9506 F - 04、ガラス転移温度 = 68 °C、非晶性 (結晶融解熱量 = 0 J/g)、平均屈折率 : 1.5287)

[0143] [添加剤 (G)]

(G) - 1 : シランカップリング剤 (信越化学 (株) 製、商品名 : KBM 503、γ-メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン)

[シラン変性エチレン系樹脂 (X)]

(X) - 1 ; シラン変性エチレン-オクテンランダム共重合体 (三菱化学 (株) 製、商品名 : リンクロン SL 800N、密度 : 0.868 g/cm³、結晶融解ピーク温度 : 54 °C と 116 °C、結晶融解熱量 : 22 J/g と 4 J/g、20 °Cにおける貯蔵弾性率 (E') : 15 MPa、平均屈折率 : 1.4857、MFR (温度 : 190 °C、荷重 : 21.18 N) : 1.7 g/10 min)

(X) - 2 ; シラン変性エチレン-ヘキセンランダム共重合体 (三菱化学 (株) 製、商品名 : リンクロン XLE 815N、密度 : 0.915 g/cm³、結晶融解ピーク温度 : 121 °C、結晶融解熱量 : 127 J/g、20 °Cにおける貯蔵弾性率 (E') : 398 MPa、平均屈折率 : 1.5056、MFR (温度 : 190 °C、荷重 : 21.18 N) : 0.5 g/10 min)

[0144] [ポリエチレン系樹脂 (Y)]

(Y) - 1 ; エチレン-オクテンランダム共重合体 (ダウ・ケミカル (株) 製、商品名 : アフィニティー EG 8200G、密度 : 0.870 g/cm³、エチレン/1-オクテン = 68/32 質量% (89/11 モル%)、結晶融解ピーク温度 : 59 °C、結晶融解熱量 : 49 J/g、ビカット軟化温度 : 45 °C、20 °Cにおける貯蔵弾性率 (E') : 14 MPa、平均屈折率 : 1

. 4856、MFR（温度：190°C、荷重：21.18N）：5g/10min）

(Y)-2；エチレンーオクテンブロック共重合体（ダウ・ケミカル（株）製、商品名：インフューズ9000、密度：0.875g/cm³、エチレン／1-オクテン=65/35質量%（88/12モル%）、結晶融解ピーク温度：122°C、結晶融解熱量：44J/g、20°Cにおける貯蔵弾性率（E'）：27MPa、平均屈折率：1.4899、MFR（温度：190°C、荷重：21.18N）：0.5g/10min）

[0145]（実施例1）

(A)-1、(B)-1、及び、(G)-1を混合質量比94.5:5:0.5の割合でドライブレンドした後、Φ40mm同方向二軸押出機を用いて2種3層のマルチマニホールド式の口金より両外層となる樹脂層(I)として設定温度190~200°Cで押出した。また、同時に(C)-1、及び、(D)-1を混合質量比99.9:0.1の割合でドライブレンドした後、Φ40mm同方向二軸押出機を用いて同口金より中間層となる樹脂層(II)として設定温度200~220°Cで押出した。この時、それぞれの層の厚みは樹脂層(I)/樹脂層(II)/樹脂層(I)が0.1/0.1/0.1(mm)となるように溶融樹脂の吐出量を調整した。次いで、この共押出シートを約20°Cのキャストロールにて急冷し、厚み0.3mmの多層シートを得た。得られた多層シートについて、透明性、水蒸気透過率、耐熱性の評価を行った。結果を表1に示す。

[0146]（実施例2）

実施例1において、樹脂層(II)を構成する樹脂組成物を(C)-1、(D)-1、及び、(E)-1を混合質量比79.9:0.1:20の割合で混合したものに変更した以外は実施例1と同様の方法、厚み構成で多層シートの作製、評価を行った。結果を表1に示す。

[0147]（実施例3）

実施例1において、樹脂層(II)を構成する樹脂組成物を(C)-1、

(D) - 1、(E) - 1、及び、(F) - 1を混合質量比49.9:0.1:20:30の割合で混合したものに変更した以外は実施例1と同様の方法、厚み構成で多層シートの作製、評価を行った。結果を表1に示す。

[0148] (実施例4)

実施例3において、樹脂層(II)を構成する樹脂組成物中の(C) - 1を(C) - 2に変更した以外は実施例1と同様の方法、厚み構成で多層シートの作製、評価を行った。結果を表1に示す。

[0149] (実施例5)

実施例3において、樹脂層(II)を構成する樹脂組成物中の(C) - 1を(C) - 3に変更した以外は実施例1と同様の方法、厚み構成で多層シートの作製、評価を行った。結果を表1に示す。

[0150] (実施例6)

実施例3において、樹脂層(I)を構成する樹脂組成物中の(A) - 1を(A) - 2に変更した以外は実施例1と同様の方法、厚み構成で多層シートの作製、評価を行った。結果を表1に示す。

[0151] (実施例7)

実施例1において、樹脂層(II)を構成する樹脂組成物中の(C) - 1を、(C) - 4に変更した以外は実施例1と同様の方法、厚み構成で多層シートの作製、評価を行った。結果を表1に示す。

[0152] (実施例8)

実施例3において、樹脂層(II)を構成する樹脂組成物中の(E) - 1を、(E) - 2に変更した以外は実施例3と同様の方法、厚み構成で多層シートの作製、評価を行った。結果を表1に示す。

[0153] (実施例9)

(A) - 1、(B) - 1、及び、(G) - 1を混合質量比94.5:5:0.5の割合でドライブレンドした後、Φ40mm同方向二軸押出機を用いて2種2層のマルチマニホールド式の口金より樹脂層(I)として設定温度190~200°Cで押出した。また、同時に(C) - 1、(D) - 1、(E)

) - 1、及び、(F) - 1を混合質量比49.9 : 0.1 : 20 : 30の割合でドライブレンドした後、 $\phi 40\text{ mm}$ 同方向二軸押出機を用いて同口金より樹脂層(II)として設定温度200~220°Cで押出した。この時、それぞれの層の厚みは樹脂層(I)/樹脂層(II)が0.15/0.15(mm)となるように溶融樹脂の吐出量を調整した。次いで、この共押出シートを約20°Cのキャストロールにて急冷し、厚み0.3mmの多層シートを得た。得られた多層シートについて実施例1と同様の評価を行った。結果を表1に示す。

[0154] (比較例1)

実施例1において、樹脂層(II)を構成する樹脂組成物として(C) - 1を単独で用いた以外は実施例1と同様の方法、厚み構成で多層シートの作製、評価を行った。結果を表1に示す。

[0155] (比較例2)

実施例1において、樹脂層(II)を構成する樹脂組成物中の(C) - 1を、プライムポリマー(株)製、商品名：ハイゼックス3600F(高密度ポリエチレン、エチレン=100質量%(100モル%)、密度=0.958g/cm³、結晶融解ピーク温度=134°C、結晶融解熱量=195J/g、結晶化ピーク温度=116°C、M_w/M_n=4.72、以下(N) - 1と略する)に変更した以外は実施例1と同様の方法、厚み構成で多層シートの作製、評価を行った。結果を表1に示す。

[0156] (比較例3)

実施例1において、樹脂層(I)を構成する樹脂組成物を(A) - 1、及び、(G) - 1を混合質量比99.5 : 0.5で混合したものに変更した以外は実施例1と同様の方法、厚み構成で多層シートの作製、評価を行った。結果を表1に示す。

[0157] (比較例4)

実施例1において樹脂層(I)を無くし、樹脂層(II)のみからなる厚み0.3mmの单層シートを得た。得られたシートについて実施例1と同様

の評価を行った結果を表1に示す。

[0158] (参考例1)

実施例1において樹脂層(Ⅲ)を無くし、樹脂層(Ⅰ)のみからなる厚み0.3mmの単層シートを得た。得られたシートについて実施例1と同様の評価を行った結果を表1に示す。

[0159]

[表1]

[0160] 表1から明らかである通り、実施例1～9に示された本発明の太陽電池用多層体は、防湿性、透明性、封止性、ハンドリング性、さらには耐熱性のいずれにも優れていた。一方、本発明とは組成や構成が異なる比較例1～4のシートは、防湿性、透明性、封止性、ハンドリング性、及び耐熱性のうち、少なくとも1つが劣っていた。

[0161] (実施例10)

エヌ・ピー・シー社製真空ラミネーターLM30×30を用いて、熱板温度：150°C、加工時間：20分（内訳、真空引き：5分、プレス：5分、圧力保持：10分）、圧着速度：急速の条件で、熱板側から順に、上部保護材として厚みが3mmの白板ガラス（旭硝子（株）製、商品名：ソライト）、実施例3で採取した厚みが0.3mmの多層シート（封止材、樹脂層（I）が太陽電池素子側）、厚みが0.4mmの太陽電池素子（セル）（フォトワット社製、型式：101×101MM）、実施例3採取した厚みが0.3mmの多層シート（封止材、樹脂層（I）が太陽電池素子側）、下部保護材として厚みが0.125mmの耐候性PETフィルム（東レ（株）製、商品名：ルミラーX10S）の5層を真空プレスして太陽電池モジュール（サイズ：150mm×150mm）を作製した。得られた太陽電池モジュールは透明性や外観などに優れるものであった。

[0162] (実施例11)

(X)−1と(Y)−1とを混合質量比30:70の割合でφ40mm同方向二軸押出機を用いて2種3層のマルチマニホールド式の口金より両外層となる樹脂層（I）として設定温度180～200°Cで押出した。また、同時に(C)−1と(D)−1とを混合質量比99.9:0.1の割合でφ40mm同方向二軸押出機を用いて同口金より中間層となる樹脂層（II）として設定温度200～230°Cで押出した。次いで、溶融樹脂の吐出量を調整し、この共押出シートを約20°Cのキャストロールにて急冷することにより、各層の厚みが樹脂層（I）／樹脂層（II）／樹脂層（I）=0.1/0.1/0.1（mm）で総厚み0.3mmの多層シートを得た。得られた

多層シートを用いて、透明性、防湿性、耐熱性などの評価を行った。結果を表2に示す。

[0163] (実施例12)

実施例11において、樹脂層(II)を構成する樹脂組成物中の(C)-1を(C)-4に変更した以外は実施例11と同様の方法、厚み構成で多層シートを得た。得られた多層シートを用いて、透明性、防湿性、耐熱性などの評価を行った。結果を表2に示す。

[0164] (実施例13)

実施例12において、樹脂層(I)を構成する樹脂組成物を(X)-2と(Y)-1とを混合質量比5:95の割合に変更した以外は実施例12と同様の方法、厚み構成で多層シートを得た。得られた多層シートを用いて、透明性、防湿性、耐熱性などの評価を行った。結果を表2に示す。

[0165] (実施例14)

実施例12において、樹脂層(I)を構成する樹脂組成物を(X)-1と(Y)-1及び(Y)-2とを混合質量比10:85:5の割合に変更した以外は実施例12と同様の方法、厚み構成で多層シートを得た。得られた多層シートを用いて、透明性、防湿性、耐熱性などの評価を行った。結果を表2に示す。

[0166] (実施例15)

実施例11において、樹脂層(II)を構成する樹脂組成物を(C)-1と(D)-1及び(E)-1とを混合質量比79.9:0.1:20の割合に変更した以外は実施例11と同様の方法、厚み構成で多層シートを得た。得られた多層シートを用いて、透明性、防湿性、耐熱性などの評価を行った。結果を表2に示す。

[0167] (実施例16)

実施例15において、樹脂層(II)を構成する樹脂組成物中の(E)-1を(E)-2に変更した以外は実施例11と同様の方法、厚み構成で多層シートを得た。得られた多層シートを用いて、透明性、防湿性、耐熱性など

の評価を行った。結果を表2に示す。

[0168] (実施例17)

実施例11において、樹脂層(II)を構成する樹脂組成物を(C)-1と(D)-1と(E)-1及び(F)-1とを混合質量比49.9:0.1:20:30の割合に変更した以外は実施例11と同様の方法、厚み構成で多層シートを得た。得られた多層シートを用いて、透明性、防湿性、耐熱性などの評価を行った。結果を表2に示す。

[0169] (実施例18)

実施例17において、樹脂層(II)を構成する樹脂組成物中の(C)-1を、(C)-2に変更した以外は実施例17と同様の方法、厚み構成で多層シートを得た。得られた多層シートを用いて、透明性、防湿性、耐熱性などの評価を行った。結果を表2に示す。

[0170] (実施例19)

実施例17において、樹脂層(II)を構成する樹脂組成物中の(C)-1を、(C)-3に変更した以外は実施例17と同様の方法、厚み構成で多層シートを得た。得られた多層シートを用いて、透明性、防湿性、耐熱性などの評価を行った。結果を表2に示す。

[0171] (比較例5)

実施例11において、樹脂層(II)を構成する樹脂組成物を(C)-1を単独で用いた以外は実施例11と同様の方法、厚み構成で多層シートを得た。得られた多層シートを用いて、透明性、防湿性、耐熱性などの評価を行った。結果を表2に示す。

[0172] (比較例6)

実施例11において、樹脂層(II)を構成する樹脂組成物中の(C)-1を、プライムポリマー(株)製、商品名:ハイゼックス3600F(高密度ポリエチレン、エチレン=100質量%(100モル%)、密度:0.958g/cm³、結晶融解ピーク温度:134°C、結晶融解熱量:195J/g、結晶化ピーク温度:116°C、M_w/M_n:4.72、20°Cにおける

貯蔵弾性率 (E') : 1581 MPa、MFR (温度: 190°C、荷重: 21.18 N) : 1 g / 10 min、以下 (P) - 1 と略する) に変更した以外は実施例 11 と同様の方法、厚み構成で多層シートを得た。得られた多層シートを用いて、透明性、防湿性、耐熱性などの評価を行った。結果を表 2 に示す。

[0173] (比較例 7)

実施例 11において樹脂層 (I) を構成する樹脂組成物を樹脂層 (II) と同じ樹脂組成物とし、実質的に樹脂層 (II) のみからなる総厚みが 0.3 mm の単層シートを得た。得られた多層シートを用いて、透明性、防湿性、耐熱性などの評価を行った。結果を表 2 に示す。

[0174]

[表2]

		実施例11	実施例12	実施例13	実施例14	実施例15	実施例16	実施例17	実施例18	実施例19	比較例6	比較例7
樹脂層(1)	(X)	(X)-1	30	30	5	10	30	30	30	30	30	30
(質量部)	(Y)	(Y)-1	70	70	95	85	70	70	70	70	70	70
		(C)-1	99.9		5		79.9	79.9	49.9		100	
樹脂層(1)	(C)	(C)-4	99.9	99.9	99.9							99.9
(質量部)	(D)	(D)-1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	
(E)	(E)-1					20	20	20	20	20	20	
(F)	(F)-1						20					
-	(P)-1							30	30	30		99.9
層構成		(1)/(1)	(1)/(1)	(1)/(1)	(1)/(1)	(1)/(1)	(1)/(1)	(1)/(1)	(1)/(1)	(1)/(1)	(1)/(1)	(1)
全層厚み(mm)	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3
樹脂層(1)の厚み比率(%)	33	33	33	33	33	33	33	33	33	33	33	100
全光線透過率(%)	87	90	88	90	89	90	90	89	89	89	83	83
水蒸気透過率(g/m ² ・24時間)	0.9	2.2	2.1	2.2	0.7	1.7	0.6	0.5	0.5	1.3	0.9	0.6
貯蔵弾性率(E') (MPa)	453	190	196	191	503	537	600	624	498	371	569	1400
封止性	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	(x)
耐熱性	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○	○

[0175] 表2より、本発明の太陽電池用多層体は、透明性、防湿性および耐熱性など評価した全ての項目が評価基準を満足していることが確認できる（実施例

11～19）。また、樹脂層（II）のエチレン系樹脂（C）と結晶核剤（D）の必須成分に、更にオレフィン相溶樹脂（E）を含有させた場合には、透明性や防湿性がさらに向上していることが確認できる（実施例15）。また、樹脂層（II）のエチレン系樹脂（C）と結晶核剤（D）の必須成分に、更にオレフィン相溶樹脂（E）と環状オレフィン系樹脂（F）を含有させた場合には、評価した全ての項目が高い基準で優れていることが確認できる（実施例17～19）。

一方、結晶核剤（D）が含まれていない場合（比較例5）や樹脂層（II）に用いるエチレン系重合体（C）の結晶融解熱量が本発明の規定を超える場合（比較例6）には、透明性に劣り、最外層の少なくとも一層を構成する樹脂層（I）を有さない場合（比較例7）には、封止性や透明性などが劣ることが確認できる。

[0176] （実施例20）

（株）エヌ・ピー・シー社製の真空ラミネーター、商品名「LM30×30」を用いて、熱板温度：150℃、加工時間：20分（内訳、真空引き：5分、プレス：5分、圧力保持：10分）、圧着速度：急速の条件で、熱板側から順に、上部保護材として厚み3mmの白板ガラス（旭硝子（株）製、商品名：ソライト）、各実施例で得た総厚みが0.3mmの多層シート（封止材）、厚みが0.4mmの太陽電池素子（セル）（フォトワット社製、商品名：101×101MM）、実施例で得た総厚みが0.3mmの多層シート（封止材）、下部保護材として厚みが0.125mmの耐候性PETフィルム（東レ（株）製、商品名：ルミラーX10S）の5層を真空プレスして太陽電池モジュール（サイズ：150mm×150mm）を作製した。得られた太陽電池モジュールは、それぞれ透明性や外観などに優れるものであった。

符号の説明

[0177] 10…透明基板

12A, 12B…封止樹脂層

14A, 14B . . . 太陽電池素子

16 . . . バックシート

18 . . . ジャンクションボックス

20 . . . 配線

請求の範囲

- [請求項1] 下記樹脂層（I）－1又は下記樹脂層（I）－2を最外層の少なくとも一層として有し、かつ、下記（c）の条件を満足するエチレン系重合体（C）と、結晶核剤（D）とを含有する樹脂層（II）を有することを特徴とする太陽電池用多層体。
- 樹脂層（I）－1：下記（a）の条件を満足するエチレン- α -オレフィンランダム共重合体（A）と、下記（b）の条件を満足するエチレン- α -オレフィンブロック共重合体（B）を含有する樹脂層
樹脂層（I）－2：シラン変性エチレン系樹脂（X）を含有する樹脂層
- （a）：示差走査熱量測定における加熱速度10°C／分で測定される結晶融解熱量が0～70J／g
- （b）：示差走査熱量測定における加熱速度10°C／分で測定される結晶融解ピーク温度が100～145°Cであり、かつ、結晶融解熱量が5～70J／g
- （c）：示差走査熱量測定における加熱速度10°C／分で測定される結晶融解ピーク温度が100～145°Cであり、かつ、結晶融解熱量が120～190J／g
- [請求項2] 前記樹脂層（II）中の結晶核剤（D）の含有量が0.01質量%以上、3質量%以下であることを特徴とする請求項1に記載の太陽電池用多層体。
- [請求項3] 前記樹脂層（II）が、石油樹脂、テルペン樹脂、クマロン-インデン樹脂、ロジン系樹脂、及びそれらの水素添加誘導体からなる群より選ばれる少なくとも1種のオレフィン相溶樹脂（E）を更に含有することを特徴とする請求項1または2に記載の太陽電池用多層体。
- [請求項4] 前記オレフィン相溶樹脂（E）の軟化温度T_s（E）が、80°C以上、[前記エチレン系樹脂（C）の示差走査熱量測定における冷却速度10°C／分で測定される結晶化ピーク温度T_c（C）+5°C]以下

であることを特徴とする請求項3に記載の太陽電池用多層体。

[請求項5]

前記エチレン系重合体(C)が、エチレン以外の成分として、ブテンー1、ヘキセンー1、及びオクテンー1から選ばれる少なくとも1種の α -オレフィンを含有し、且つ、前記エチレン系重合体(C)中に含まれる該 α -オレフィンの合計が0.1~3.0質量%であることを特徴とする請求項1~4のいずれか1項に記載の太陽電池用多層体。

[請求項6]

前記樹脂層(II)が、環状オレフィン系樹脂(F)を更に含有することを特徴とする請求項1~5のいずれか1項に記載の太陽電池用多層体。

[請求項7]

前記樹脂層(I)及び樹脂層(II)が、それぞれ動的粘弾性測定における振動周波数10Hz、温度20°Cの貯蔵弾性率(E')の値が異なる層であって、樹脂層(I)の貯蔵弾性率(E')が樹脂層(II)の貯蔵弾性率(E')より小さい請求項1~6のいずれか1項に記載の太陽電池用多層体。

[請求項8]

樹脂層(I)の貯蔵弾性率(E')が100MPa以下であり、且つ、樹脂層(II)の貯蔵弾性率(E')が100MPa超である請求項7に記載の太陽電池用多層体。

[請求項9]

総厚み0.3mm、温度40°C、相対湿度90%で測定した水蒸気透過率が3.0g/(m²・24時間)以下であることを特徴とする請求項1~8のいずれか1項に記載の太陽電池用多層体。

[請求項10]

動的粘弾性測定における振動周波数10Hz、温度20°Cの貯蔵弾性率(E')が100~1000MPaであることを特徴とする請求項1~9のいずれか1項に記載の太陽電池用多層体。

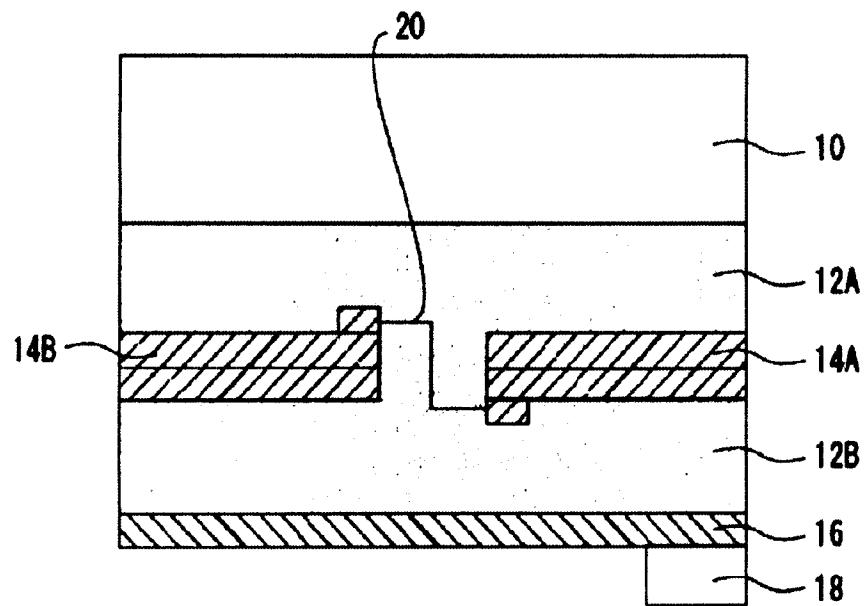
[請求項11]

総厚み0.3mmで測定した場合、動的粘弾性測定における振動周波数10Hz、温度20°Cの貯蔵弾性率(E')が300~700MPa、温度40°C、相対湿度90%で測定した水蒸気透過率が3.0g/(m²・24時間)以下、かつ全光線透過率が85%以上である

ことを特徴とする請求項 1～10 のいずれか 1 項に記載の太陽電池用多層体。

- [請求項12] 前記太陽電池用多層体を厚み 0.3 mm に成形したときの JIS K 7105 に基づき測定した全光線透過率が 85% 以上であることを特徴とする請求項 1～11 のいずれか 1 項に記載の太陽電池用多層体。
- [請求項13] 前記樹脂層 (I) 及び／又は樹脂層 (II) に、シランカップリング剤、酸化防止剤、紫外線吸収剤及び耐候安定剤から選ばれる少なくとも一種の添加剤を添加してなることを特徴とする請求項 1～12 のいずれか 1 項に記載の太陽電池用多層体。
- [請求項14] 前記太陽電池用多層体に占める前記樹脂層 (II) の厚み比率が 20% 以上、70% 以下であることを特徴とする請求項 1～13 のいずれか 1 項に記載の太陽電池用多層体。
- [請求項15] 樹脂層 (I) ／樹脂層 (II) ／樹脂層 (I) の 2 種 3 層構成を有する請求項 1～14 のいずれか 1 項に記載の太陽電池用多層体。
- [請求項16] 太陽電池素子に密着し保護する太陽電池封止材であることを特徴とする請求項 1～15 のいずれか 1 項に記載の太陽電池用多層体。
- [請求項17] 請求項 1～16 のいずれか 1 項に記載の太陽電池用多層体を用いて作製された太陽電池モジュール。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/077565

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H01L31/042 (2006.01) i, B32B27/32 (2006.01) i, C08L23/08 (2006.01) i, C08L53/00 (2006.01) i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

H01L31/042, B32B27/32, C08L23/08, C08L53/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

<i>Jitsuyo Shinan Koho</i>	1922-1996	<i>Jitsuyo Shinan Toroku Koho</i>	1996-2012
<i>Kokai Jitsuyo Shinan Koho</i>	1971-2012	<i>Toroku Jitsuyo Shinan Koho</i>	1994-2012

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2010-504646 A (Dow Global Technologies Inc.), 12 February 2010 (12.02.2010), entire text; all drawings & US 2008/0115825 A1 & EP 2070127 A2 & WO 2008/036707 A2 & NO 20091127 A & CA 2663058 A & CN 101517750 A & AT 469440 T & ES 2344966 T	1-17
A	WO 2010/042335 A1 (DOW GLOBAL TECHNOLOGIES INC.), 15 April 2010 (15.04.2010), paragraph [0038] (Family: none)	1-17

Further documents are listed in the continuation of Box C.

See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
05 January, 2012 (05.01.12)

Date of mailing of the international search report
17 January, 2012 (17.01.12)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/077565

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
P,A	WO 2011/007871 A1 (Mitsubishi Plastics, Inc.), 20 January 2011 (20.01.2011), entire text; all drawings & JP 2011-040735 A	1-17
P,A	WO 2011/108600 A1 (Mitsubishi Plastics, Inc.), 09 September 2011 (09.09.2011), entire text; all drawings (Family: none)	1-17
P,A	JP 2011-018889 A (Japan Polyethylene Corp.), 27 January 2011 (27.01.2011), entire text; all drawings (Family: none)	1-17

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. H01L31/042 (2006.01)i, B32B27/32 (2006.01)i, C08L23/08 (2006.01)i, C08L53/00 (2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））

Int.Cl. H01L31/042, B32B27/32, C08L23/08, C08L53/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2012年
日本国実用新案登録公報	1996-2012年
日本国登録実用新案公報	1994-2012年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 2010-504646 A (ダウ グローバル テクノロジーズ インコーポレイティド) 2010.02.12, 全文, 全図 & US 2008/0115825 A1 & EP 2070127 A2 & WO 2008/036707 A2 & NO 20091127 A & CA 2663058 A & CN 101517750 A & AT 469440 T & ES 2344966 T	1-17
A	WO 2010/042335 A1 (DOW GLOBAL TECHNOLOGIES INC.) 2010.04.15, 段落 [0038] (ファミリーなし)	1-17

 C欄の続きにも文献が列挙されている。 パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

- 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
- 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
- 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
- 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
- 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

- 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
- 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
- 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
- 「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日 05.01.2012	国際調査報告の発送日 17.01.2012
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁（ISA/JP） 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号	特許序審査官（権限のある職員） 和田 将彦 電話番号 03-3581-1101 内線 3255 2K 3313

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
P, A	WO 2011/007871 A1 (三菱樹脂株式会社) 2011. 01. 20, 全文, 全図 & JP 2011-040735 A	1-17
P, A	WO 2011/108600 A1 (三菱樹脂株式会社) 2011. 09. 09, 全文, 全図 (ファミリーなし)	1-17
P, A	JP 2011-018889 A (日本ポリエチレン株式会社) 2011. 01. 27, 全文, 全図 (ファミリーなし)	1-17