

(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
2016年1月28日(28.01.2016)



(10) 国際公開番号
WO 2016/013483 A1

- (51) 国際特許分類:
C09B 69/00 (2006.01) H01L 31/048 (2014.01)
C09B 69/10 (2006.01) H01L 31/055 (2014.01)
C09K 11/06 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2015/070403
- (22) 国際出願日: 2015年7月16日(16.07.2015)
- (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 2014-150614 2014年7月24日(24.07.2014) JP
- (71) 出願人: 日東電工株式会社(NITTO DENKO CORPORATION) [JP/JP]; 〒5678680 大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号 Osaka (JP).
- (72) 発明者: 川満 昇一(KAWAMITSU, Shoichi); 〒5678680 大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号 日東電工株式会社内 Osaka (JP). 中西 貞裕(NAKANISHI, Sadahiro); 〒5678680 大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号 日東電工株式会社内 Osaka (JP). 黒木 美由紀(KUROGI, Miyuki); 〒5678680 大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号 日東電工株

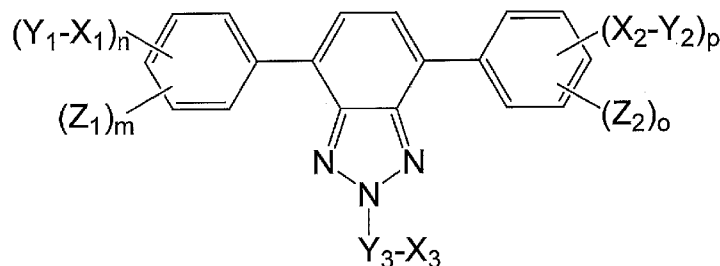
式会社内 Osaka (JP). 尾之内 久成(ONOUCHI, Hisanari); 〒5678680 大阪府茨木市下穂積1丁目1番2号 日東電工株式会社内 Osaka (JP).

- (74) 代理人: 特許業務法人 ユニアス国際特許事務所 (UNIUS PATENT ATTORNEYS OFFICE); 〒5320011 大阪府大阪市淀川区西中島5丁目13-9 新大阪MTビル1号館2階 Osaka (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, BN, 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, IR, IS, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, 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, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨー

[続葉有]

(54) Title: FLUORESCENT DYE COMPOUND HAVING BENZOTRIAZOLE STRUCTURE AND WAVELENGTH CONVERTING SEALING MATERIAL COMPOSITION USING SAME

(54) 発明の名称: ベンゾトリアゾール構造を有する蛍光色素化合物、および、それを用いた波長変換型封止材組成物



(I)

(57) Abstract: The present invention relates to provision of: a fluorescent dye compound having a benzotriazole derivative that is a novel compound having high processability, desired optical characteristics and good photostability, while being suppressed in the formation of a precipitate; and a wavelength converting sealing material composition which uses the fluorescent dye compound. The present invention also relates to provision of: a wavelength converting sealing material layer which is formed using the wavelength converting sealing material composition, and which has desired optical characteristics and good photostability, while being suppressed in the formation of a precipitate; and a photovoltaic module which comprises the wavelength converting sealing material layer. A fluorescent dye compound represented by general formula (I). (In the formula, each of X_1 and X_2 independently represents $-O-$, $-(C=O)O-$, $-O(C=O)-$, $-CH_2O-$, $-CH_2O(CO)-$, $-NH(CO)-$, $-NR-CH_2-$ or a single bond, and R represents an alkyl group having 1-8 carbon atoms; X_3 represents a carbon-carbon double bond-containing group or a hydrogen atom; each of Y_1 and Y_2 independently represents an optionally substituted alkyl group having 1-18 carbon atoms or an alkyl group having 2-18 carbon atoms and a carbon-carbon double bond (wherein a carbon atom that is not adjacent to another carbon atom may be substituted by an oxygen atom); Y_3 represents an optionally substituted alkyl group having 1-18 carbon atoms, an aryl group having 5-18 carbon atoms or an alkyl group having 2-18 carbon atoms and a carbon-carbon double bond (wherein a carbon atom that is not adjacent to another carbon atom may be substituted by an oxygen atom); at least one of the Y_1 , Y_2 , Y_3 and X_3 moieties contains a carbon-carbon double bond; each of Z_1 and Z_2 independently represents an optionally substituted alkyl group having 1-18 carbon atoms, or the like; and each of m, n, o and p independently represents an integer of 0-4 (with (m + n) being 4 or less and (o + p) being 4 or less), and in cases where m, n, o or p is 2 or more, the plurality of respective substituents may be the same as or different from each other.)

(57) 要約:

[続葉有]

WO 2016/013483 A1



ロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, 添付公開書類:

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, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

本発明は、加工性が高く、望ましい光学特性および良好な光安定性を有し、析出物発生を抑制した新規化合物であるベンゾトリアゾール誘導体を有する蛍光色素化合物、および、それを用いた波長変換型封止材組成物を提供することに関する。また、本発明は、上記波長変換型封止材組成物を用いて形成された、望ましい光学特性および良好な光安定性を有し、析出物発生を抑制した波長変換型封止材層、および、それを有する光起電モジュールを提供することに関する。下記一般式 (I) によって表される蛍光色素化合物。(式中、 X_1 および X_2 は、それぞれ独立して、 $-O-$ 、 $-(C=O)O-$ 、 $-O(C=O)-$ 、 $-CH_2O-$ 、 $-CH_2O(CO)-$ 、 $-NH(CO)-$ 、 $-NR-CH_2-$ または単結合を表し、 R は、炭素数1～8のアルキル基を表し、 X_3 は、炭素-炭素二重結合含有基、または、水素を表し、 Y_1 および Y_2 は、それぞれ独立して、場合により置換された、炭素数1～18のアルキル基、または、炭素-炭素二重結合を有する炭素数2～18のアルキル基(アルキル基中の隣接しない炭素原子が酸素原子に置換されていてもよい)を表し、 Y_3 は、場合により置換された、炭素数1～18のアルキル基、炭素数5～18のアリール基、または、炭素-炭素二重結合を有する炭素数2～18のアルキル基(アルキル基中の隣接しない炭素原子が酸素原子に置換されていてもよい)を表し、少なくとも上記 Y_1 、 Y_2 、 Y_3 および X_3 のいずれか1つ以上は、炭素-炭素二重結合を有するものであって、 Z_1 および Z_2 は、それぞれ独立して、場合により置換された炭素数1～18のアルキル基等を表し、 m 、 n 、 o および p は、それぞれ独立して、0～4の整数を表す(ただし、 $m+n$ は4以下、 $o+p$ は4以下である。)。 m 、 n 、 o または p が2以上の場合、複数存在する各置換基は同一でも異なってもよい。)

明 細 書

発明の名称：

ベンゾトリアゾール構造を有する蛍光色素化合物、および、それを用いた
波長変換型封止材組成物

技術分野

[0001] 本発明は、太陽電池セル封止材や蛍光膜形成材料等に用いた場合、好適な吸収波長を有し、光安定性に優れた特徴を有するベンゾトリアゾール構造を有する蛍光色素化合物、それを用いた波長変換型封止材組成物、波長変換型封止材層（波長変換フィルム、波長変換シート等）、ならびに太陽電池モジュールに関する。波長変換型封止材層は、光起電性デバイスまたは太陽電池デバイスの太陽光集光効率を著しく高める可能性を有する。

背景技術

[0002] 太陽エネルギーの利用により、従来の化石燃料に対する有望な代替エネルギー源が提供され、したがって、太陽エネルギーを電気に変換することができるデバイスの開発、たとえば、光起電デバイス（これはまた、太陽電池として知られている）などの開発が近年では大きく注目されている。いくつかの異なるタイプの成熟した光起電デバイスが開発されており、これらには、例をいくつか挙げると、シリコン系デバイス、 $III-V$ および $II-VI$ のPN接合デバイス、銅ーインジウムーガリウムーセレン（CIGS）薄膜デバイス、有機増感剤デバイス、有機薄膜デバイス、ならびに、硫化カドミウム／テルル化カドミウム（CdS/CdTe）薄膜デバイスが含まれる。これらのデバイスに関してのより詳細が、文献などに見出され得る（たとえば、非特許文献1参照）。しかしながら、これらのデバイスの多くの光電変換効率は依然として改善の余地があり、この効率を改善するための技術を開発することが、多くの研究者にとっては進行中の課題である。

[0003] 上記変換効率の向上のため、入射光のうち光電変換に寄与しない波長（たとえば、紫外線領域）を光電変換に寄与する波長に変換する、波長変換機能

を備えた太陽電池が検討されている（たとえば、特許文献2等参照）。上記検討では、蛍光体粉末を樹脂原料と混合して、発光性パネルを形成する方法が提案されている。

[0004] 光起電デバイスおよび太陽電池において使用される波長変換無機媒体がこれまで開示されているが、ホトルミネセンス性有機媒体を光起電デバイスにおいて効率改善のために使用することに関する研究はほとんど報告されていない。無機媒体とは対照的に、有機媒体の使用が、有機材料は典型的にはより安価であり、かつ、使用することがより容易であり、このことから、有機材料がより良好な経済的選択の1つになるという点で注目されている。

[0005] また、上記蛍光体粉末を用いた場合、添加した蛍光体を経時で析出するなどの不具合が生じてしまうことが判明した。特に太陽電池用途では、屋外で20年以上の長期に渡って使用されることが想定されることから、このような経時安定性や長期間の保存安定性の改善は特に重要な課題である。

先行技術文献

特許文献

[0006] 特許文献1：米国特許出願公開第2009/0151785号明細書
特許文献2：特開平7-142752号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

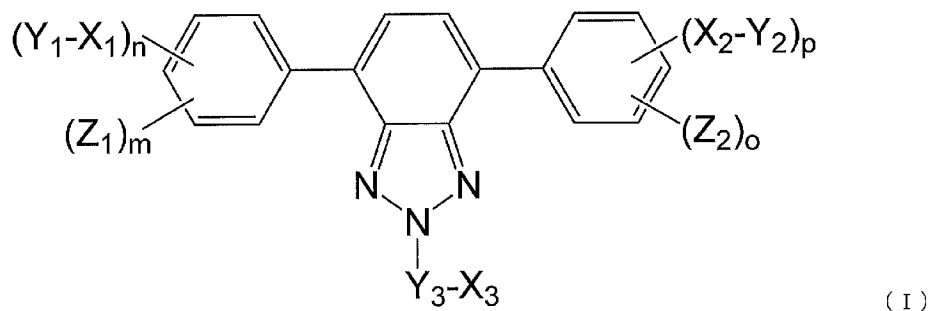
[0007] 本発明は、このような事情に照らし、加工性が高く、望ましい光学特性および良好な光安定性を有し、析出物発生を抑制した新規化合物であるベンゾトリアゾール誘導体である蛍光色素化合物、および、それを用いた波長変換型封止材組成物を提供することを目的とする。

[0008] また、本発明は、上記波長変換型封止材組成物を用いて形成された、望ましい光学特性および良好な光安定性し、析出物発生を抑制した波長変換型封止材層、および、それを有する光起電モジュールを提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

- [0009] 本発明者らは、上記課題を解決するため鋭意検討した結果、以下に示す新規ベンゾトリアゾール構造を有する新規な有機化合物の創製に成功し、上記化合物により上記目的を達成できることを見出して、本発明を完成するに至った。
- [0010] 本発明の光波長変換有機化合物は、ポリマーマトリックスに化学結合により固定化が可能であることを特徴とする。
- [0011] 本発明の光波長変換有機化合物は、ポリマーマトリックスに化学結合により固定化が可能であるため、特に、上記ポリマーマトリックスを用いて封止材やシートとした場合であっても、有機蛍光色素の特性を維持したまま光波長変換が可能であり、短期または経時による上記マトリックス中の移動や系外への排出、析出等を抑制することが可能となる。
- [0012] また、本発明の光波長変換有機化合物において、架橋反応、環化反応、置換反応、または重合反応により固定化が可能であることが好ましい。
- [0013] また、本発明の光波長変換有機化合物において、上記有機化合物がベンゾトリアゾール誘導体であることが好ましい。また、上記光波長変換有機化合物として、本発明の蛍光色素化合物（下記一般式（I））等が好適に用いることが可能である。。
- [0014] また、本発明の光波長変換有機化合物において、上記ポリマーマトリックスが、エチレンー酢酸ビニル共重合体を主成分とすることが好ましい。また、上記ポリマーマトリックスが光学的に透明な樹脂であることが太陽電池などの光学用途に好ましい。さらに、上記主成分をもつポリマーマトリックスの場合、特に共有結合形成による固定化が容易に行いやすくなる。
- [0015] また、本発明の蛍光色素化合物は、下記一般式（I）によって表されることを特徴とする。

[化1]



(式中、 X_1 および X_2 は、それぞれ独立して、 $-O-$ 、 $-(C=O)O-$ 、 $-O(C=O)-$ 、 $-CH_2O-$ 、 $-CH_2O(CO)-$ 、 $-NH(CO)-$ 、 $-NR-CH_2-$ または単結合を表し、 R は、炭素数1～8のアルキル基を表し、

X_3 は、炭素-炭素二重結合含有基、または、水素を表し、

Y_1 および Y_2 は、それぞれ独立して、場合により置換された、炭素数1～18のアルキル基、または、炭素-炭素二重結合を有する炭素数2～18のアルキル基（アルキル基中の隣接しない炭素原子が酸素原子に置換されていてもよい）を表し、

Y_3 は、場合により置換された、炭素数1～18のアルキル基、炭素数5～18のアリール基、または、炭素-炭素二重結合を有する炭素数2～18のアルキル基（アルキル基中の隣接しない炭素原子が酸素原子に置換されていてもよい）を表し、

Z_1 および Z_2 は、それぞれ独立して、場合により置換された炭素数1～18のアルキル基（アルキル基中の隣接しない炭素原子が酸素原子に置換されていてもよい）、場合により置換された炭素数1～18のアルコキシ基（アルコキシ基中の隣接しない炭素原子が酸素原子に置換されていてもよい）、フルオロ基、シアノ基、 $-COOR^1$ 基、 $-NHCOR^2$ 基、または、水酸基を表し、 R^1 および R^2 は、炭素数1～18のアルキル基またはフェニル基を表し、

m 、 n 、 o および p は、それぞれ独立して、0～4の整数を表す（ただし、 $m+n$ は4以下、 $o+p$ は4以下である。）。 m 、 n 、 o または p が2以

上の場合、複数存在する各置換基は同一でも異なってもよい。)

[0016] 本発明の蛍光色素化合物は、上記一般式(1)で表される構造を有するため、加工性が高く、望ましい光学特性(高い量子収率等)および良好な光安定性(化学的・物理的安定性)に優れたものとなりうる。特に、マトリックス樹脂中に分散した上記有機色素化合物が長時間保存試験においても析出することなく、安定で均一な封止材組成物(および層)を簡易に得ることができる。上記作用効果の発現について、現時点では下記記載のメカニズムが主に寄与していると推測しているが、下記メカニズムを経由することが必須であると特定するものではない。上記蛍光色素化合物は、マトリックスポリマーと化学的に連結されることによって、マトリックス樹脂内での移動が抑制され、その結果、結晶化等による析出物の発生や層外への排出を抑制することができているものと推測される。

[0017] また、蛍光発光化学構造部位がその他の芳香族部位と連結した場合には、吸収・発光特性が変化してしまうとともに、連結により形成される当該芳香族部位の光安定性の低下も起こる可能性があり、太陽電池向け等の屋外用途では特に吸収・発光特性等の悪化が懸念される。このため、本発明の蛍光色素化合物において、特定のベンゾトリアゾール構造をもつ発色団が、非共役結合によりマトリックスポリマーと連結することが好ましい。この場合、当該発色団の吸収・発光特性がほぼ維持され、ポリマーマトリックスへの導入による吸収・発光特性の予測や調整も容易となる。また、本発明の蛍光色素化合物は、たとえば、上記ベンゾトリアゾール構造の結合部位は、マトリックスポリマーの主機能を発現するモノマー部位にみならず、その他のモノマー部位と結合すること等によって、ガラス転移温度(T_g)や溶解性等の副次的な特性を制御することができる。このことは、加熱混練処理などの加工工程において均一に系内に分散・溶解がより容易とすることに有利である。また、一般に複素環構造の色素化合物はその平面性や結晶性のため溶解性に劣る場合があるが、本発明の蛍光色素化合物は、上記X-Y基によるアモルファス化的作用によって、ベンゾトリアゾール構造による高い結晶性が低下

する作用も影響していると推測される。また、上記蛍光色素化合物を用いることにより、蛍光色素化合物の吸収波長の精密な制御が可能であり、太陽電池用途に特に好適である。

[0018] また、本発明の蛍光色素化合物において、上記 X_3 が、 $-CR' = CH_2$ 、 $-(C=O)O-CR' = CH_2$ 、 $-O(C=O)-CR' = CH_2$ 、 $-CH_2O(CO)-CR' = CH_2$ 、 $-NH(CO)-CR' = CH_2$ 、または、 $-NR-CH_2-CR' = CH_2$ である（ただし、 R および R' は、それぞれ独立して、炭素数 1～8 のアルキル基を表す）ことが好ましい。上記構造を有することにより、 X_3 基によるマトリックス樹脂との化学的結合、とくにラジカルの架橋やラジカル重合反応などによる結合形成が容易になる。

[0019] また、本発明の蛍光色素化合物において、300～410 nm に最大吸収波長を有することが好ましい。上記波長領域に最大吸収波長を有することにより、太陽電池セルが光電変換に利用しにくい（または利用できない）波長領域の入射光を、より効果的に、太陽電池セル等が光電変換しうる波長領域に変換することができる。なお、本発明において、最大吸収波長とは、当該化合物が吸収する光の吸光量が最大値の波長をいい、紫外線吸収スペクトルにおいて最大の吸収ピークを示す波長として測定されうる。

[0020] また、本発明の蛍光色素化合物において、410～600 nm に最大蛍光発光波長を有することが好ましい。上記波長領域に最大蛍光発光波長を有することにより、太陽電池セルが光電変換に利用しにくい（または利用できない）波長領域の入射光を、より効果的に、太陽電池セルが光電変換しうる波長領域に変換することができる。なお、本発明において、最大蛍光発光波長とは、当該化合物が発光する光のうち発光量が最大値の波長をいい、蛍光発光スペクトルにおいて最大の発光ピークを示す波長として測定されうる。

[0021] 一方、本発明の波長変換型封止材組成物は、光学的に透明な樹脂マトリックス、および、上記蛍光色素化合物を含むことを特徴とする。上記蛍光色素化合物を含むことにより、太陽電池セルの吸収波長領域よりもより短波長領域の光を、効果的に太陽電池セルが光発電に利用できる波長領域にレッドシ

フトさせ、その結果、太陽エネルギーのより広い範囲のスペクトルが電気に変換されることが可能となる。また、上記蛍光色素化合物は大きい蛍光量子効率と良好な加工性を有しているため、優れた光変換効果を提供する波長変換型封止材組成物を製造工程上およびコスト的に有利に得ることができる。また、本発明の波長変換型封止材組成物は、第1の波長を有する少なくとも1つの光子を入力として受け入れて、第1の波長よりも長い（大きい）第2の波長を有する少なくとも1つの光子を出力として与え、この過程で波長変換型封止材組成物としての機能を発現する。さらには、上記波長変換型封止材組成物においては、マトリックス樹脂中に分散した上記有機色素化合物が長時間保存試験においても析出することなく、安定で均一な封止材組成物（および層）を簡易に得ることができる。上記波長変換型封止材組成物は、太陽電池用途に特に好適である。

[0022] また、本発明の波長変換型封止材組成物において、上記樹脂マトリックス100重量部に対して、上記蛍光色素化合物が0.01～10重量部で含まれていることが好ましい。

[0023] また、本発明の波長変換型封止材組成物において、上記マトリックス樹脂が、エチレン-酢酸ビニル共重合体を主成分とすることが好ましい。上記マトリックス樹脂としてエチレン-酢酸ビニル共重合体を主成分とすることにより、より確実に、光透過性や耐久性に優れた波長変換型封止材層とすることができる。

[0024] なお、上記主成分とするとは、上記マトリックス樹脂を複数の樹脂の混合物とした場合、重量比で50重量%以上含む場合をいうものとする。上記重量比は、70重量%以上であることがより好ましく、90重量%であることがさらに好ましい。

[0025] さらに、本発明の波長変換型封止材層は、上記波長変換型封止材組成物を用いて形成されたことを特徴とする。上記組成物を用いて形成されることにより、望ましい光学特性（高い量子収率等）および良好な光安定性（化学的・物理的安定性）を有するとともに、析出物発生を抑制した波長変換型封止

材層となる。より詳細には、上記蛍光色素化合物は大きい蛍光量子効率と良好な加工性を有しているため、優れた光変換効果を提供する波長変換型封止材層を製造工程上およびコスト的に有利に得ることができる。また、本発明の波長変換型封止材層は、第1の波長を有する少なくとも1つの光子を入力として受け入れて、第1の波長よりも長い（大きい）第2の波長を有する少なくとも1つの光子を出力として与え、この過程で波長変換型封止材層としての機能を発現する。さらには、上記波長変換型封止材層においては、マトリックス樹脂中に分散した上記有機色素化合物が長時間保存試験においても析出することなく、安定で均一な封止材組成層を簡易に得ることができる。上記波長変換型封止材層は、太陽電池用途に特に好適である。また、本発明の波長変換型封止材層は、上記波長変換型封止材組成物を用いるため、上記波長変換封止材組成物や上記波長変換封止材層のキュア工程時の容易に、また同時に、上記蛍光色素の固定化が可能であり、工業プロセス的にも非常に優れている。

[0026] 他方、本発明の太陽電池モジュールは、上記波長変換型封止材組成物を用いて形成された波長変換型封止材層を含むことを特徴とする。上記太陽電池モジュールは、上記波長変換型封止材層を有するため、望ましい光学特性（高い量子収率等）および良好な光安定性（化学的・物理的安定性）を有する太陽電池モジュールとなる。さらには、上記波長変換型封止材層を有することで、長時間保存試験においても蛍光色素化合物が析出することなく、上記蛍光色素化合物が裏面用封止材層等に移動することも抑制でき、安定で均一な太陽電池モジュールとなる。

[0027] また、本発明の太陽電池モジュールは、入射光が、太陽電池セルへの到達に先だって、上記波長変換型封止材層を通過するように配置されることが好ましい。上記構成とすることで、より確実に、太陽エネルギーのより広い範囲のスペクトルが電気に変換されることが可能となり、光電変換効率を効果的に高めることができる。

[0028] また、本発明の太陽電池モジュールにおいて、上記太陽電池セルが、結晶

シリコン太陽電池であることが好ましい。上記太陽電池モジュールは、上記太陽電池セルを積層する太陽電池モジュールに用いることでより効果的に光電変換効率をより向上させることができる。特に、シリコン太陽電池においては、紫外線領域である最大吸収波長400nm以下領域において光電変換効率が低いという問題があった。上記太陽電池モジュールでは、この波長領域に吸収をもち、さらに430～530nmに蛍光発光しうる上記蛍光色素化合物を適切に用いることにより、より効果的に光利用することが可能となる。一方、上記蛍光色素化合物の吸収波長領域が上記波長領域よりもより長波長領域に及ぶと、もともと太陽電池セル等の光電変換素子が吸収できる波長と蛍光色素化合物の吸収波長が重複してしまい、光電変換効率が上昇できない場合もあり得る。上記太陽電池モジュールでは、上記蛍光色素化合物を用いることにより、上記問題点が生じないように、蛍光色素化合物の吸収波長の精密な制御が可能である。

図面の簡単な説明

[0029] [図1]本発明の太陽電池用封止材層を用いた太陽電池モジュールの例を示す。

[図2]本発明の太陽電池用封止材層を用いた太陽電池モジュールの例を示す。

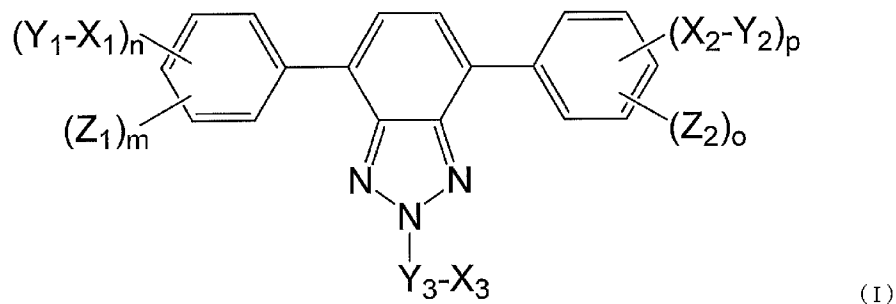
発明を実施するための形態

[0030] 以下、本発明の実施の形態について説明する。

[0031] (蛍光色素化合物)

本発明の蛍光色素化合物は、下記一般式(1)によって表されることを特徴とする。

[化2]



(式中、 X_1 および X_2 は、それぞれ独立して、 $-O-$ 、 $-(C=O)O-$ 、 $-O(C=O)-$ 、 $-CH_2O-$ 、 $-CH_2O(CO)-$ 、 $-NH(CO)-$ 、 $-NR-CH_2-$ または単結合を表し、 R は、炭素数1～8のアルキル基を表し、

X_3 は、炭素-炭素二重結合含有基、または、水素を表し、

Y_1 および Y_2 は、それぞれ独立して、場合により置換された、炭素数1～18のアルキル基、または、炭素-炭素二重結合を有する炭素数2～18のアルキル基（アルキル基中の隣接しない炭素原子が酸素原子に置換されていてもよい）を表し、

Y_3 は、場合により置換された、炭素数1～18のアルキル基、炭素数5～18のアリール基、または、炭素-炭素二重結合を有する炭素数2～18のアルキル基（アルキル基中の隣接しない炭素原子が酸素原子に置換されていてもよい）を表し、

Z_1 および Z_2 は、それぞれ独立して、場合により置換された炭素数1～18のアルキル基（アルキル基中の隣接しない炭素原子が酸素原子に置換されていてもよい）、場合により置換された炭素数1～18のアルコキシ基（アルコキシ基中の隣接しない炭素原子が酸素原子に置換されていてもよい）、フルオロ基、シアノ基、 $-COOR^1$ 基、 $-NHCO R^2$ 基、または、水酸基を表し、 R^1 および R^2 は、炭素数1～18のアルキル基またはフェニル基を表し、

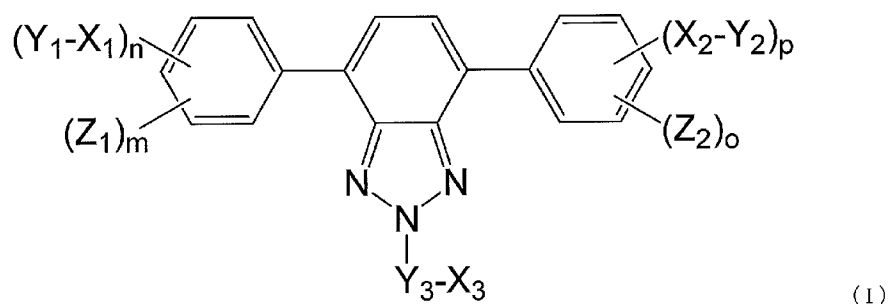
m 、 n 、 o および p は、それぞれ独立して、0～4の整数を表す（ただし、 $m+n$ は4以下、 $o+p$ は4以下である。）。 m 、 n 、 o または p が2以上の場合、複数存在する各置換基は同一でも異なってもよい。）

[0032] 蛍光（またはホトルミネセンス性）色素の有用な性質の1つが、これらの色素は、特定波長の光の光子を吸収し、かつ、当該光子を異なる波長で再放出することができることである。この現象はまた、これらの色素を光起電産業において有用にする。

[0033] 一般式（1）によって表される発色団は、波長変換フィルムを含めて、様

々な適用において蛍光色素（蛍光色素化合物）として有用である。一般式（1）において示されるように、上記色素はベンゾ複素環系、より具体的にはベンゾトリアゾール構造を有する新規な化合物（ベンゾトリアゾール誘導体）である。本発明の範囲を限定することはないが、使用することができる化合物のタイプに関するさらなる詳細および実例が下記に記載される。なお、本発明の作用効果を阻害しない限り、本発明の蛍光色素化合物には、上記ベンゾトリアゾール環上が置換されているものも含む。

[化3]



（式中、 X_1 および X_2 は、それぞれ独立して、 $-O-$ 、 $-(C=O)O-$ 、 $-O(C=O)-$ 、 $-CH_2O-$ 、 $-CH_2O(CO)-$ 、 $-NH(CO)-$ 、 $-NR-CH_2-$ または単結合を表し、 R は、炭素数1～8のアルキル基を表し、

X_3 は、炭素－炭素二重結合含有基、または、水素を表し、

Y_1 および Y_2 は、それぞれ独立して、場合により置換された、炭素数1～18のアルキル基、または、炭素－炭素二重結合を有する炭素数2～18のアルキル基（アルキル基中の隣接しない炭素原子が酸素原子に置換されていてもよい）を表し、

Y_3 は、場合により置換された、炭素数1～18のアルキル基、炭素数5～18のアリール基、または、炭素－炭素二重結合を有する炭素数2～18のアルキル基（アルキル基中の隣接しない炭素原子が酸素原子に置換されていてもよい）を表し、

少なくとも上記 Y_1 、 Y_2 、 Y_3 および X_3 のいずれか1つ以上は、炭素－炭素二重結合を有するものであって、

Z_1 および Z_2 は、それぞれ独立して、場合により置換された炭素数1～18のアルキル基（アルキル基中の隣接しない炭素原子が酸素原子に置換されていてもよい）、場合により置換された炭素数1～18のアルコキシ基（アルコキシ基中の隣接しない炭素原子が酸素原子に置換されていてもよい）、フルオロ基、シアノ基、 $-COOR^1$ 基、 $-NHCO R^2$ 基、または、水酸基を表し、 R^1 および R^2 は、炭素数1～18のアルキル基またはフェニル基を表し、

m 、 n 、 o および p は、それぞれ独立して、0～4の整数を表す（ただし、 $m+n$ は4以下、 $o+p$ は4以下である。）。 m 、 n 、 o または p が2以上の場合、複数存在する各置換基は同一でも異なってもよい。）

[0034] 上記ベンゾトリアゾール誘導体は、上記一般式（I）で表される構造を有するため、加工性が高く、望ましい光学特性（高い量子収率等）および良好な光安定性（化学的・物理的安定性）に優れた蛍光色素化合物となりうる。特に、少なくとも上記 Y_1 、 Y_2 、 Y_3 および X_3 のいずれか1つ以上の基によるマトリックス樹脂との化学的結合を形成（ラジカル的架橋、求核置換反応、付加反応、ラジカル重合等）することで、マトリックス樹脂中に分散した上記有機色素化合物が長時間保存試験においても析出することなく、安定で均一な封止材組成物（および層）を簡易に得ることができる。また、上記ベンゾトリアゾール誘導体は、上記一般式（I）で表される構造を有するため、上記蛍光色素化合物の単量体として好適に用いることが可能である。

[0035] 上記ベンゾトリアゾール誘導体において、上記 X_1 および X_2 は、それぞれ独立して、 $-O-$ 、 $-(C=O)O-$ 、 $-O(C=O)-$ 、 $-CH_2O-$ 、 $-CH_2O(CO)-$ 、 $-NH(CO)-$ 、 $-NR-CH_2-$ または単結合を表す。なお、 R は、炭素数1～8のアルキル基を表す。なかでも、上記 X_1 または X_2 の少なくとも1つが、 $-(C=O)O-$ 、または、 $-O(CO)-$ であることが好ましい。なお、上記 X_1 または X_2 が単結合の場合とは、各 Y 基がベンゼン環に直接結合していることを意味する。

[0036] 上記ベンゾトリアゾール誘導体において、上記 Y_1 および Y_2 は、それぞれ

独立して、場合により置換された、炭素数 1 ～ 18 のアルキル基、炭素－炭素二重結合を有する炭素数 2 ～ 18 のアルキル基（アルキル基中の隣接しない炭素原子が酸素原子に置換されていてもよい）、または、炭素－炭素三重結合を有する炭素数 2 ～ 18 のアルキル基（アルキル基中の隣接しない炭素原子が酸素原子に置換されていてもよい）を表す。上記アルキル基の炭素数は、1 ～ 18 であることが好ましく、2 ～ 8 であることがより好ましい。

[0037] 上記 Y_1 および Y_2 として、たとえば、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル、イソブチル、ペンチル、ヘキシル、ヘプチル、2－エチルヘキシル、オクチル、エテニル、プロペニル、イソプロペニル、ブテニル、イソブテニル、ペンテニル、ヘキセニル、ヘプテニル、2－エチルヘキセニル、オクテニル、および、3－アリルオキシ－2－ヒドロキシプロピル、および、3－アリルオキシ－2－アセトキシプロピルなどが含まれるが、これらに限定されない。これらは単独で使用してもよく、また 2 種以上を混合して使用してもよい。

[0038] また、上記 Y_1 および Y_2 として、たとえば、 Y_1 および Y_2 としての少なくとも 1 つが、アリル基、オレイル基からカルボニル基を除いた基、リノール基からカルボニル基を除いた基、または、リノレン基からカルボニル基を除いた基であることが好ましい。なお、たとえば、オレイル基からカルボニル基を除いた基とは、オレイル基の化学構造から、末端のカルボニル基（ $-(C=O)-$ ）を除いた部分の化学構造をいう。言い換えると、たとえば、オレイル基の化学構造が $R-CO-$ 構造であるとした場合、オレイル基からカルボニル基を除いた基とは、 $R-$ 基を意味する。また、同様に、たとえば、オレイン酸の化学構造が $R-COOH$ 構造であるとした場合、オレイル基からカルボニル基を除いた基とは、オレイン酸からカルボン酸残基を除いた構造（つまり、 $R-$ 基）と同じものでもある。

[0039] 上記ベンゾトリアゾール誘導体において、上記 Y_3 は、場合により置換された、炭素数 1 ～ 18 のアルキル基、炭素数 5 ～ 18 のアリール基、炭素－炭素二重結合を有する炭素数 2 ～ 18 のアルキル基（アルキル基中の隣接しない

い炭素原子が酸素原子に置換されていてもよい)、または、炭素-炭素三重結合を有する炭素数2~18のアルキル基(アルキル基中の隣接しない炭素原子が酸素原子に置換されていてもよい)を表す。上記アルキル基の炭素数は、1~18であることが好ましく、2~8であることがより好ましい。上記アリール基の炭素数は、6~12であることが好ましく、8~10であってもよい。

[0040] 上記 Y_3 として、たとえば、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル、イソブチル、ペンチル、ヘキシル、ヘプチル、2-エチルヘキシル、オクチル、フェニル、メチルフェニル、ジメチルフェニル、トリメチルフェニル、テトラメチルフェニル、エチルフェニル、ジエチルフェニル、*n*-プロピルフェニル、ジ*n*-プロピルフェニル、イソプロピルフェニル、ジイソプロピルフェニル、*n*-ブチルフェニル、ジ*n*-ブチルフェニル、イソプロピルフェニル、*sec*-ブチルフェニル、ジ*sec*-ブチルフェニル、*t*-ブチルフェニル、ジ*t*-ブチルフェニル、ジイソプロピルフェニル、ナフチル、ビフェニル、フェナンスリル、ピロリル基、フラニル基、チオフェニル基、イミダゾリル基、ピラゾリル基、オキサゾリル基、チアゾリル基、ピラジニル基、エテニル、プロペニル、イソプロペニル、ブテニル、イソブテニル、ペンテニル、ヘキセニル、ヘプテニル、2-エチルヘキセニル、オクテニル、および、3-アリルオキシ-2-ヒドロキシプロピル、および、3-アリルオキシ-2-アセトキシプロピルなどが含まれるが、これらに限定されない。これらは単独で使用してもよく、また2種以上を混合して使用してもよい。

[0041] また、上記 Y_3 として、たとえば、ビニル基、アリル基、オレイル基からカルボニル基を除いた基、リノール基からカルボニル基を除いた基、または、リノレン基からカルボニル基を除いた基あることが好ましい。なお、たとえば、オレイル基からカルボニル基を除いた基とは、オレイル基の化学構造から、末端のカルボニル基($-(C=O)$)を除いた部分の化学構造をいう。言い換えると、たとえば、オレイル基の化学構造が $R-CO-$ 構造であるとした場合、オレイル基からカルボニル基を除いた基とは、 $R-$ 基を意味する

。また、同様に、たとえば、オレイン酸の化学構造が $R-COOH$ 構造であるとした場合、オレイル基からカルボニル基を除いた基とは、オレイン酸からカルボン酸残基を除いた構造（つまり、 R -基）と同じものでもある。また、たとえば、 X_3 が水素の場合、 $-Y_3-X_3$ がビニル基、アリル基等となる。

[0042] 上記ベンゾトリアゾール誘導体において、上記 X_3 が、 $-CR' = CH_2$ 、 $-(C=O)O-CR' = CH_2$ 、 $-O(C=O)-CR' = CH_2$ 、 $-CH_2O(CO)-CR' = CH_2$ 、 $-NH(CO)-CR' = CH_2$ 、または、 $-NR-CH_2-CR' = CH_2$ である（ただし、 R および R' は、それぞれ独立して、炭素数 1～8 のアルキル基を表す）ことが好ましい。上記構造のような反応性を有するビニル基含有基を有することにより、 X_3 基によるマトリックス樹脂との化学的結合、とくにラジカルの架橋やラジカル重合反応などによる結合形成が容易になる。

[0043] 上記 X_3 として、たとえば、エテニル基、プロペニル基、イソプロペニル基、ブテニル基、イソブテニル基、ペンテニル基、ヘキセニル基、ヘプテニル基、2-エチルヘキセニル基、オクテニル基、3-アリルオキシ-2-ヒドロキシプロピル基、3-アリルオキシ-2-アセトキシプロピル基、アクリロイル基、および、メタクリロイル基などがあげられるが、これらに限定されない。

[0044] 上記ベンゾトリアゾール誘導体において、 Z_1 および Z_2 は、場合により置換された炭素数 1～18 のアルキル基（アルキル基中の隣接しない炭素原子が酸素原子に置換されていてもよい）、場合により置換された炭素数 1～18 のアルコキシ基（アルコキシ基中の隣接しない炭素原子が酸素原子に置換されていてもよい）、フルオロ基、シアノ基、 $-COOR^1$ 基、 $-NHCO R^2$ 基、または、水酸基を表し、 R^1 および R^2 は、炭素数 1～18 のアルキル基またはフェニル基を表し、 m 、 n 、 o 、および、 p は、それぞれ独立して、0～4 の整数を表す（ただし、 $m+n$ は 4 以下、 $o+p$ は 4 以下である。）。

。 m 、 n 、 o 、および、 p は、それぞれ独立して、0～4 の整数を表す。上

記アルキル基の炭素数は、1～18であることが好ましく、1～12であることがより好ましく、1～8であることがさらに好ましい。上記アルコキシ基の炭素数は、1～18であることが好ましく、1～12であることがより好ましく、1～8であることがさらに好ましい。また、m、n、oまたはpが2以上の場合、複数存在する各置換基は同一でも異なってもよい。

[0045] 上記Z₁およびZ₂のアルキル基として、たとえば、メチル、エチル、プロピル、イソプロピル、ブチル、イソブチル、セカンダリーブチル、第三級ブチル、ペンチル、ヘキシル、ヘプチル、2-エチルヘキシル、およびオクチルなどが含まれるが、これらに限定されない。また、アルキル基中の隣接しない炭素原子が酸素原子に置換されていてもよい。

[0046] 上記Z₁およびZ₂のアルコキシ基として、親分子に-O-連結を介して共有結合で結合する直鎖または分岐鎖のアルキル基あげることができる。上記Z₁およびZ₂のアルコキシ基として、たとえば、メトキシ、エトキシ、プロポキシ、イソプロポキシ、ブトキシ、n-ブトキシ、sec-ブトキシ、t-ブトキシ、ペンチルオキシ、ヘキシルオキシ、ヘプチルオキシ、2-エチルヘキシルオキシ、オクチルオキシ、1-プロペニルオキシ、2-プロペニルオキシ、ブテニルオキシ、ペンテニルオキシ、ヘキセニルオキシ、ヘプテニルオキシ、オクテニルオキシ、および、3-アリルオキシ-2-ヒドロキシプロピルオキシ、3-アリルオキシ-2-アセトキシプロピルオキシなどが含まれるが、これらに限定されない。また、アルコキシ基中の隣接しない炭素原子が酸素原子に置換されていてもよい。

[0047] 上記Z₁およびZ₂のフルオロ基として、アルキル基の一部または全部の水素原子がフッ素原子に置換されているものをあげることができる。上記Z₁およびZ₂のフルオロ基として、たとえば、トリフルオロメチル基、ペンタフルオロエチル基などが含まれるが、これらに限定されない。

[0048] 上記Z₁およびZ₂の-COOR¹基として、アルキルエステル構造のものをあげることができる。上記Z₁およびZ₂の-COOR¹基として、たとえば、メチルエステル基、エチルエステル基、1-プロピルエステル基、2-プロ

ピルエステル基、フェニルエステル基などが含まれるが、これらに限定されない。

[0049] 上記 Z_1 および Z_2 の $-NHCOR^2$ 基として、アシルアミド構造のものをあげることができる。上記 Z_1 および Z_2 の $-NHCOR^2$ 基として、たとえば、アセチルアミド基、プロピオン酸アミドなどが含まれるが、これらに限定されない。

[0050] 上記 m 、 n 、 o 、および、 p は、それぞれ独立して、0～4の整数を表す。具体的には、上記 m 、 n 、 o 、および、 p は、0、1、2、3、4の値をとり得る。ただし、 $m+n$ は4以下、 $o+p$ は4以下である。

[0051] 本明細書中使用される場合、置換された基は、1つまたは複数の水素原子が別の原子または基に交換されていることを有する置換されていない親構造に由来する。置換されるとき、当該置換基（1つまたは複数）は、たとえば、 $C_1 \sim C_6$ アルキル、 $C_1 \sim C_6$ アルケニル、 $C_1 \sim C_6$ アルキニル、 $C_3 \sim C_7$ シクロアルキル（これは、ハロ、アルキル、アルコキシ、カルボキシル、ハロアルキル、CN、 $-SO_2$ -アルキル、 $-CF_3$ および $-OCF_3$ により場合により置換される）、ジェミナル結合するシクロアルキル（*cycloalkyl geminally attached*）、 $C_1 \sim C_6$ ヘテロアルキル、 $C_3 \sim C_{10}$ ヘテロシクロアルキル（たとえば、テトラヒドロフリル）（これは、ハロ、アルキル、アルコキシ、カルボキシル、CN、 $-SO_2$ -アルキル、 $-CF_3$ および $-OCF_3$ により場合により置換される）、アリール（これは、ハロ、アルキル、 $C_1 \sim C_6$ アルキルにより場合により置換されるアリール、アリールアルキル、アルコキシ、アリールオキシ、カルボキシル、アミノ、イミド、アミド（カルバモイル）、場合により置換された環状イミド、環状アミド、CN、 $-NH-C(=O)$ -アルキル、 $-CF_3$ および $-OCF_3$ により場合により置換される）、アリールアルキル（これは、ハロ、アルキル、アルコキシ、アリール、カルボキシル、CN、 $-SO_2$ -アルキル、 $-CF_3$ および $-OCF_3$ により場合により置換される）、ヘテロアリール（これは、ハロ、アルキル、アルコキシ、アリール、ヘテロアリール、アラル

キル、カルボキシル、CN、 $-\text{SO}_2$ -アルキル、 $-\text{CF}_3$ および $-\text{OCF}_3$ により場合により置換される)、ハロ(たとえば、クロロ、ブロモ、ヨードおよびフルオロ)、シアノ、ヒドロキシ、場合により置換された環状イミド、アミノ、イミド、アミド、 $-\text{CF}_3$ 、 $\text{C}_1\sim\text{C}_6$ アルコキシ、アリールオキシ、アシルオキシ、スルフヒドリル(メルカプト)、ハロ($\text{C}_1\sim\text{C}_6$)アルキル、 $\text{C}_1\sim\text{C}_6$ アルキルチオ、アリールチオ、モノ($\text{C}_1\sim\text{C}_6$)アルキルアミノおよびジ($\text{C}_1\sim\text{C}_6$)アルキルアミノ、第四級アンモニウム塩、アミノ($\text{C}_1\sim\text{C}_6$)アルコキシ、ヒドロキシ($\text{C}_1\sim\text{C}_6$)アルキルアミノ、アミノ($\text{C}_1\sim\text{C}_6$)アルキルチオ、シアノアミノ、ニトロ、カルバモイル、ケト(オキシ)、カルボニル、カルボキシ、グリコリル、グリシル、ヒドラジノ、グアニル、スルファミル、スルホニル、スルフィニル、チオカルボニル、チオカルボキシ、スルホンアミド、エステル、C-アミド、N-アミド、N-カルバマート、O-カルバマート、ウレア、ならびに、それらの組合せから個々に、かつ、独立して選択される1つまたは複数の基である。置換基が、「場合により置換された」として記載される場合は常に、その置換基は上記置換基により置換され得る。

[0052] 本発明における蛍光色素は、単に、特定の波長領域において光を吸収しそれより長波長に波長変換して発光すればよい、というだけにとどまるものではない。本願の蛍光色素において、可能であれば、最大吸収波長よりもより長波長において、吸収を持たない(またはより少ない)ことが好ましい。たとえば、その指標として、最大吸収波長よりも60nm長波長の波長における吸光度が、最大吸収波長における吸光度と比較して小さいことが望ましい。

[0053] 上記蛍光色素化合物の合成方法は、適宜公知の方法を用いることができる。上記合成方法として、たとえば、4,7-ジブロモベンゾトリアゾールなどの脱離基を置換した2置換ベンゾトリアゾール(ハロゲン化ベンゾトリアゾールなど)とX-Y側鎖(Y_1-X_1 、 Y_2-X_2)含有フェニルボロン酸をカップリング反応させる手法、上記2置換ベンゾトリアゾールに、X-Y側

鎖含有フェニル基前駆体にあたる化合物を求核置換反応などで結合形成させる方法、上記2置換ベンゾトリアゾールにヒドロキシフェニルボロン酸を結合させた後に、上記水酸基をアルコキシ基やエステル基等に変換してX-Y基を導入する方法、金属触媒を利用してカップリングさせる方法、側鎖のアルコキシ基の一部を炭素-炭素二重結合に変換する手法、上記X-Y側鎖の導入前、後もしくは同時にY₃-X₃基（またはその前駆体となる基）を導入する方法などをあげることができる。

[0054] なかでも、たとえば、ベンゾトリアゾール骨格に隣接するベンゼン環上にフェノール性水酸基を有するヒドロキシフェニルベンゾトリアゾール誘導体に対して、オレイン酸等の不飽和脂肪酸をエステル化により縮合する方法（適宜縮合剤を用いてもよい）、ベンゾトリアゾール骨格に隣接するベンゼン環上にカルボキシル基を有するカルボキシフェニルベンゾトリアゾール誘導体に対して、不飽和脂肪族アルコールをエステル化により縮合する方法（適宜縮合剤を用いてもよい）、ベンゾトリアゾール骨格に隣接するベンゼン環上にフェノール性水酸基を有するヒドロキシフェニルベンゾトリアゾール誘導体に対して、不飽和結合を有する、ハロゲン化物またはグリシジル化合物をアルキル化反応により連結する方法などが簡便で好ましいものとしてあげられる。

[0055] （光波長変換有機化合物）

本発明の光波長変換有機化合物は、ポリマーマトリックスに化学結合により固定化が可能であることを特徴とする。

[0056] 上記光波長変換有機化合物において、上記化学結合による固定化には、蛍光色素のマトリックス中の移動を妨げうる程度の固定化がなされていればよい。また、上記化学結合による固定化には、適宜公知の技術を用いてよいが、結合安定性、経時安定性の観点から、共有結合による固定化が好ましい。

[0057] また、上記光波長変換有機化合物において、架橋反応、環化反応、置換反応、または重合反応により固定化が可能であることが好ましい。上記反応を用いた固定化により、上記化学結合、特に共有結合の形成が可能となる。

[0058] また、上記光波長変換有機化合物において、上記有機化合物がベンゾトリアゾール誘導体であることが好ましい。なかでも、本発明の一般式（Ⅰ）によって表される上記蛍光色素化合物は、本発明の光波長変換有機化合物として好適に用いることができ、好ましい。

[0059] また、上記光波長変換有機化合物において、上記ポリマーマトリックスが、エチレン-酢酸ビニル共重合体を主成分とすることが好ましい。

[0060] （波長変換型封止材組成物）

本発明の波長変換型封止材組成物は、波長変換機能を有するものである。上記波長変換型封止材組成物は、入射光の波長をより長波長に変換するものが好ましい。上記波長変換型封止材組成物は、光学的に透明なマトリックス樹脂中に、波長変換機能を有する蛍光色素化合物等を分散させること等により形成することができる。

[0061] また、上記蛍光色素化合物の分散方法（および／または固定化）として、マトリックス樹脂を形成するモノマー成分とともに上記蛍光色素化合物を一部、または全部を重合する方法（共重合反応する方法）、すでに形成されているまたは部分的に形成されているマトリックスポリマーに対して適宜共有結合を形成して導入する方法（付加的導入方法）などをあげることができる。いずれも、一般式（Ⅰ）における炭素-炭素二重結合部位を主として用いた結合形成によりなしうる。

[0062] 上記共重合反応を行う際には、公知の高分子合成の手法を適宜用いることができる。たとえば、本発明の上記一般式（Ⅰ）の単量体およびその他の単量体をランダム共重合、グラフト重合、交差重合、またはブロック共重合する方法等をあげることができる。また、上記共重合反応では、ラジカル重合（カチオン、アニオン、各リビング等）、イオン重合、付加重合（重付加）、縮合重合（重縮合）、環化重合、開環重合等をあげることができる。また、上記共重合反応では、有機溶媒系、水溶液系、乳化状態、懸濁状態などの合成手法を適宜用いることができる。

[0063] 上記その他のモノマーとして、たとえば、アクリル酸、メタクリル酸、ア

クリル酸メチル、メタクリル酸メチル、アクリル酸エチル、メタクリル酸エチル、アクリル酸ブチル、メタクリル酸ブチル、アクリル酸2-エチルヘキシル、メタクリル酸2-エチルヘキシル等の(メタ)アクリル酸アルキルエステル、アクリル酸シクロヘキシル、メタクリル酸シクロヘキシル、アクリル酸フェニル、メタクリル酸フェニル、アクリル酸ベンジル、メタクリル酸ベンジル、スチレン、 α -メチルスチレン、ビニルトルエン、アクリルアミド、ジアセトンアクリルアミド、アクリロニトリル、メタクリロニトリル、無水マレイン酸、フェニルマレイミド、シクロヘキシルマレイミドなどをあげることができる。さらには、上記アルキル基が水酸基、エポキシ基、ハロゲン基などで置換された(メタ)アクリル酸アルキルエステルなどをあげることができる。また、上記(メタ)アクリル酸エステルにおいて、エステル部位のアルキル基の炭素数が1~18であることが好ましく、炭素数1~8であることがより好ましい。これらの化合物は単独で使用してもよく、また2種以上を混合して使用してもよい。

[0064] また、共重合反応を行う場合、上記蛍光色素化合物において、全単量体成分100重量部に対して、上記一般式(111)の単量体などのベンゾトリアゾール構造を有するモノマーを0.01~10重量部用いることが好ましく、0.02~5重量部用いてもよく、0.05~3重量部用いてもよい。

[0065] また、共重合反応を行う場合、たとえば、単量体成分(モノマー成分)に熱重合開始剤または光重合開始剤を加えて、加熱または光照射によって重合することができる。

[0066] 上記熱重合開始剤として、公知の過酸化物を適宜用いることができる。上記重合開始剤としては、たとえば、2,5-ジメチルヘキサノ-2,5-ジヒドロパーオキシド、2,5-ジメチル-2,5-ジ(t-ブチルパーオキシ)ヘキサノ-3、ジ-t-ブチルパーオキシド、ジクミルパーオキシド、2,5-ジメチル-2,5-ジ(t-ブチルパーオキシ)ヘキサノ-3、ジクミルパーオキシド、 α, α' -ビス(t-ブチルパーオキシイソプロピル)ベンゼン、n-ブチル-4,4-ビス(t-ブチルパーオキシ)ブ

タン、2, 2-ビス(t-ブチルパーオキシ)ブタン、1, 1-ビス(t-ブチルパーオキシ)シクロヘキサン、1, 1-ビス(t-ブチルパーオキシ)3, 3, 5-トリメチルシクロヘキサン、t-ブチルパーオキシベンズエート、ベンゾイルパーオキサイドなどをあげることができる。これらの化合物は単独で使用してもよく、また2種以上を混合して使用してもよい。

[0067] 上記熱重合開始剤の配合量は、たとえば、上記単量体成分100重量部に対して、0.1～5重量部用いることができる。

[0068] 上記光重合開始剤としては、紫外線または可視光線により遊離ラジカルを生成する公知の光開始剤を適宜用いることができる。上記光重合開始剤として、たとえば、ベンゾインメチルエーテル、ベンゾインエチルエーテル、ベンゾインプロピルエーテル、ベンゾインイソブチルエーテル、ベンゾインフェニルエーテルなどのベンゾインエーテル類、ベンゾフェノン、N, N'-テトラメチル-4, 4'-ジアミノベンゾフェノン(ミヒラーケトン)、N, N'-テトラエチル-4, 4'-ジアミノベンゾフェノンなどのベンゾフェノン類、ベンジルジメチルケタール(チバ・ジャパン・ケミカルズ社製、イルガキュア651)、ベンジルジエチルケタールなどのベンジルケタール類、2, 2-ジメトキシ-2-フェニルアセトフェノン、p-tert-ブチルジクロロアセトフェノン、p-ジメチルアミノアセトフェノンなどのアセトフェノン類、2, 4-ジメチルチオキサントン、2, 4-ジイソプロピルチオキサントンなどのキサントン類、あるいはヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン(チバ・スペシャルティ・ケミカルズ社製、イルガキュア184)、1-(4-イソプロピルフェニル)-2-ビトロキシ-2-メチルプロパン-1-オン(チバ・ジャパン・ケミカルズ社製、ダロキュア1116)、2-ヒドロキシ-2-メチル-1-フェニルプロパン-1-オン(メルク社製、ダロキュア1173)などをあげることができる。これらは単独で使用してもよく、また2種以上を混合して使用してもよい。

[0069] また、上記光重合開始剤として、たとえば、2, 4, 5-トリアリルイミダゾール二量体と2-メルカプトベンゾオキサゾール、ロイコクリスタルバ

イオレット、トリス（４－ジエチルアミノ－２－メチルフェニル）メタン等との組み合わせなどをあげることができる。また、たとえば、ベンゾフェノンに対するトリエタノールアミン等の三級アミンのように、適宜公知の添加剤を用いてもよい。

[0070] 上記光重合開始剤の配合量は、たとえば、上記単量体成分１００重量部に対して、０．１～５重量部用いることができる。

[0071] また、上記付加的導入方法を行う際には、公知の有機合成の手法を適宜用いることができる。たとえば、本発明の上記一般式（１）の蛍光色素化合物を縮合反応、付加反応、置換反応等により共有結合形成する方法等をあげることができる。また、すでに形成されているポリマー（またはオリゴマー）に対して、上記蛍光色素化合物を、ポリマーの主鎖骨格にいわゆるペンダント型になるように導入する方法や、ポリマーの主鎖骨格末端などにエンドキャッピングのように導入する方法等をあげることができる。

[0072] 上記付加的導入方法として、いずれも、一般式（１）における炭素炭素二重結合部位を主として用いた結合形成によりなしうる。

[0073] 上記付加的導入方法において、すでにポリマー構造が形成されているポリマーとして、光学的に透明なマトリックス樹脂を用いることが好ましい。

[0074] より具体的には、上記マトリックス樹脂として、透光性、加工性、耐候性、耐光性等の観点から選択され、ＥＶＡに代表されるエチレンービニルエステル共重合体の他、エチレンー（メタ）アクリル酸共重合体等のエチレンー不飽和カルボン酸共重合体、エチレンー（メタ）アクリル酸エステル等のエチレンー不飽和カルボン酸エステル共重合体、ポリメタクリル酸メチル等の不飽和カルボン酸エステル系重合体等であってもよい。あるいは、上記マトリックス樹脂は、フッ化ビニリデン樹脂、ポリエチレンテトラフルオロエチレン等のフッ素樹脂；低密度ポリエチレン（ＬＤＰＥ）、直鎖状低密度ポリエチレン（ＬＬＤＰＥ。典型的にはチーグラ－触媒、バナジウム触媒、メタロセン触媒等を用いて製造され得るＬＬＤＰＥ）等のポリエチレン（ＰＥ）、ポリプロピレン（ＰＰ。たとえば、チーグラ－触媒、フィリップス触媒、

メタロセン触媒等を用いて製造され得るPP)、ポリビニルアルコール(たとえば、クラレ社製、ポバール等)、エチレン-ビニルアルコール共重合体(たとえば、クラレ社製、エバール等)、チーグラ触媒、バナジウム触媒、メタロセン触媒等を用いて製造することができるエチレン・ α -オレフィン共重合体、それらの変性物(変性ポリオレフィン)等のポリオレフィン類; ポリブタジエン類; ポリビニルホルマール、ポリビニルブチラール(PVB樹脂)、変性PVB等のポリビニルアセテート; ポリエチレンテレフタレート(PET); ポリイミド; 非晶質ポリカーボネート; シロキサンゾルゲル; ポリウレタン; ポリスチレン; ポリエーテルサルホン; ポリアリレート; エポキシ樹脂; シリコン樹脂; アイオノマー; 等であってもよい。これらは単独で使用してもよく、また2種以上を混合して使用してもよい。より詳細には以下に例示する。

[0075] 上記ポリ(メタ)アクリレートとして、ポリアクリレートおよびポリメタクリレートを含み、たとえば、(メタ)アクリル酸エステル樹脂などをあげることができる。ポリオレフィン樹脂としては、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリブタジエンなどをあげることができる。ポリビニルアセテートとしては、ポリビニルホルマール、ポリビニルブチラール(PVB樹脂)、変性PVBなどをあげることができる。

[0076] 上記(メタ)アクリル酸エステル樹脂の構成モノマーとして、たとえば、アクリル酸メチル、メタクリル酸メチル、アクリル酸エチル、メタクリル酸エチル、アクリル酸ブチル、メタクリル酸ブチル、アクリル酸2-エチルヘキシル、メタクリル酸2-エチルヘキシル等の(メタ)アクリル酸アルキルエステル、アクリル酸シクロヘキシル、メタクリル酸シクロヘキシル、アクリル酸フェニル、メタクリル酸フェニル、アクリル酸ベンジル、メタクリル酸ベンジルなどをあげることができる。さらには、上記アルキル基が水酸基、エポキシ基、ハロゲン基などで置換された(メタ)アクリル酸アルキルエステルなどをあげることができる。これらの化合物は単独で使用してもよく、また2種以上を混合して使用してもよい。

- [0077] 上記（メタ）アクリル酸エステルにおいて、エステル部位のアルキル基の炭素数が1～18であることが好ましく、炭素数1～8であることがより好ましい。
- [0078] 上記（メタ）アクリル酸エステル樹脂として、（メタ）アクリル酸エステルのほかに、これらと共重合可能な不飽和モノマーを用いて共重合体としてもよい。
- [0079] 上記不飽和モノマーとして、たとえば、メタクリル酸、アクリル酸などの不飽和有機酸、スチレン、 α -メチルスチレン、アクリルアミド、ジアセトンアクリルアミド、アクリロニトリル、メタクリロニトリル、無水マレイン酸、フェニルマレイミド、シクロヘキシルマレイミドなどをあげることができる。これらの不飽和モノマーは単独で使用してもよく、また2種以上を混合して使用してもよい。
- [0080] 上記（メタ）アクリル酸エステルにおいて、なかでも、アクリル酸メチル、アクリル酸エチル、アクリル酸イソブチル、アクリル酸n-ブチル、アクリル酸2-エチルヘキシル、メタクリル酸メチル、メタクリル酸イソブチル、メタクリル酸n-ブチル、メタクリル酸2-エチルヘキシルおよびその官能基置換した（メタ）アクリル酸アルキルエステルなどを用いることが好ましく、耐久性や汎用性の観点からは、メタクリル酸メチルがより好ましい例としてあげることができる。
- [0081] 上記（メタ）アクリル酸エステルと上記不飽和モノマーの共重合体として、たとえば、（メタ）アクリル酸エステルスチレン共重合体、エチレン-酢酸ビニル共重合体などをあげることができる。なかでも、耐湿性や汎用性、コスト面の観点からは、エチレン-酢酸ビニル共重合体が好ましく、また耐久性と表面硬度の点からは、（メタ）アクリル酸エステルが好ましい。また、エチレン-酢酸ビニル共重合体と（メタ）アクリル酸エステルとの併用が、上記各観点から好ましい。
- [0082] 上記エチレン-酢酸ビニル共重合体として、エチレン-酢酸ビニル共重合体100重量部に対して、酢酸ビニル単量体単位の含有率が10～35重量

部であることが好ましく、20～30重量部であることがより好ましく、上記含有率の場合には希土類錯体などのマトリックス樹脂中への均一分散性の観点から好ましい。

[0083] 光学的に透明なマトリックス樹脂として上記エチレン-酢酸ビニル共重合体を用いる場合には、市販品を適宜使用することができる。上記エチレン-酢酸ビニル共重合体の市販品として、たとえば、ウルトラセン（東ソー株式会社製）、エバフレックス（三井・デュポンポリケミカル株式会社製）、サンテックEVA（旭化成ケミカルズ社製）、UBE EVAコポリマー（宇部丸善ポリエチレン社製）、エバテート（住友化学社製）、ノバテックEVA（日本ポリエチレン社製）、スミテート（住友化学社製）、ニポフレックス（東ソー社製）などをあげることができる。

[0084] 上記マトリックス樹脂において、架橋性モノマーを加えて、架橋構造を有する樹脂としてもよい。

[0085] 上記架橋性モノマーとして、たとえば、ジシクロペンテニル（メタ）アクリレート、テトラヒドロフルフリル（メタ）アクリレート、ベンジル（メタ）アクリレート、多価アルコールに α 、 β -不飽和カルボン酸を反応させて得られる化合物（たとえば、ポリエチレングリコールジ（メタ）アクリレート（エチレン基の数が2～14のもの）、トリメチロールプロパンジ（メタ）アクリレート、トリメチロールプロパントリ（メタ）アクリレート、トリメチロールプロパンエトキシトリ（メタ）アクリレート、トリメチロールプロパンプロポキシトリ（メタ）アクリレート、テトラメチロールメタントリ（メタ）アクリレート、テトラメチロールメタンテトラ（メタ）アクリレート、ポリプロピレングリコールジ（メタ）アクリレート（プロピレン基の数が2～14のもの）、ジペンタエリスリトールペンタ（メタ）アクリレート、ジペンタエリスリトールヘキサ（メタ）アクリレート、ビスフェノールAポリオキシエチレンジ（メタ）アクリレート、ビスフェノールAジオキシエチレンジ（メタ）アクリレート、ビスフェノールAトリオキシエチレンジ（メタ）アクリレート、ビスフェノールAデカオキシエチレンジ（メタ）アクリレート、

リレート等)、グリシジル基含有化合物に α , β -不飽和カルボン酸を付加して得られる化合物(たとえば、トリメチロールプロパントリグリシジルエーテルトリアクリレート、ビスフェノールAジグリシジルエーテルジアクリレート等)、多価カルボン酸(たとえば、無水フタル酸)と水酸基およびエチレン性不飽和基を有する物質(たとえば、 β -ヒドロキシエチル(メタ)アクリレート)とのエステル化物、アクリル酸若しくはメタクリル酸のアルキルエステル(たとえば、(メタ)アクリル酸メチルエステル、(メタ)アクリル酸エチルエステル、(メタ)アクリル酸ブチルエステル、(メタ)アクリル酸2-エチルヘキシルエステル)、ウレタン(メタ)アクリレート(たとえば、トリレンジイソシアネートと2-ヒドロキシエチル(メタ)アクリル酸エステルとの反応物、トリメチルヘキサメチレンジイソシアネートとシクロヘキサンジメタノールと2-ヒドロキシエチル(メタ)アクリル酸エステルとの反応物等)などをあげることができる。これらの架橋性モノマーは単独で使用してもよく、また2種以上を混合して使用してもよい。なかでも、上記架橋性モノマーにおいて、トリメチロールプロパントリ(メタ)アクリレート、ジペンタエリスリトールテトラ(メタ)アクリレート、ジペンタエリスリトールヘキサ(メタ)アクリレート、ビスフェノールAポリオキシエチレンジメタクリレートが好ましいものとしてあげられる。

[0086] 上記架橋性モノマーを含むマトリックス樹脂を用いる場合、たとえば、上記架橋モノマーに熱重合開始剤または光重合開始剤を加えて、加熱または光照射によって重合・架橋させ架橋構造を形成することができる。また、上記重合開始剤は、上記蛍光色素化合物の炭素-炭素二重結合、三重結合を介したマトリックス樹脂との架橋構造形成にも場合によって寄与する。

[0087] 上記熱重合開始剤として、公知の過酸化物を適宜用いることができる。上記熱重合開始剤としては、たとえば、2, 5-ジメチルヘキサン-2, 5-ジヒドロパーオキシド、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(t-ブチルパーオキシ)ヘキサン-3, ジ-t-ブチルパーオキシド、ジクミルパーオキシド、2, 5-ジメチル-2, 5-ジ(t-ブチルパーオキシ)ヘキサ

ン、ジクミルパーオキサイド、 α 、 α' －ビス（ t －ブチルパーオキシイソプロピル）ベンゼン、 n －ブチル－4，4－ビス（ t －ブチルパーオキシ）ブタン、2，2－ビス（ t －ブチルパーオキシ）ブタン、1，1－ビス（ t －ブチルパーオキシ）シクロヘキサン、1，1－ビス（ t －ブチルパーオキシ）3，3，5－トリメチルシクロヘキサン、 t －ブチルパーオキシベンズエート、ベンゾイルパーオキサイドなどをあげることができる。これらの化合物は単独で使用してもよく、また2種以上を混合して使用してもよい。

[0088] 上記熱重合開始剤の配合量は、たとえば、上記マトリックス樹脂100重量部に対して、0.1～5重量部用いることができる。

[0089] 上記光重合開始剤としては、紫外線または可視光線により遊離ラジカルを生成する公知の光開始剤を適宜用いることができる。上記光重合開始剤として、たとえば、ベンゾインメチルエーテル、ベンゾインエチルエーテル、ベンゾインプロピルエーテル、ベンゾインイソブチルエーテル、ベンゾインフェニルエーテルなどのベンゾインエーテル類、ベンゾフェノン、 N ， N' －テトラメチル－4，4'－ジアミノベンゾフェノン（ミヒラーケトン）、 N ， N' －テトラエチル－4，4'－ジアミノベンゾフェノンなどのベンゾフェノン類、ベンジルジメチルケタール（チバ・ジャパン・ケミカルズ社製、イルガキュア651）、ベンジルジエチルケタールなどのベンジルケタール類、2，2－ジメトキシ－2－フェニルアセトフェノン、 p － t －ブチルジクロロアセトフェノン、 p －ジメチルアミノアセトフェノンなどのアセトフェノン類、2，4－ジメチルチオキサントン、2，4－ジイソプロピルチオキサントンなどのキサントン類、あるいはヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン（チバ・スペシャルティ・ケミカルズ社製、イルガキュア184）、1－（4－イソプロピルフェニル）－2－ビトロキシ－2－メチルプロパン－1－オン（チバ・ジャパン・ケミカルズ社製、ダロキュア1116）、2－ヒドロキシ－2－メチル－1－フェニルプロパン－1－オン（メルク社製、ダロキュア1173）などをあげることができる。これらは単独で使用してもよく、また2種以上を混合して使用してもよい。

- [0090] また、上記光重合開始剤として、たとえば、2，4，5－トリアリルイミダゾール二量体と2－メルカプトベンゾオキサゾール、ロイコクリスタルバイオレット、トリス（4－ジエチルアミノ－2－メチルフェニル）メタン等との組み合わせなどをあげることができる。また、たとえば、ベンゾフェノンに対するトリエタノールアミン等の三級アミンのように、適宜公知の添加剤を用いてもよい。
- [0091] 上記光重合開始剤の配合量は、たとえば、上記マトリックス樹脂100重量部に対して、0.1～5重量部用いることができる。
- [0092] 上記マトリックス樹脂の屈折率として、たとえば、1.4～1.7の範囲、1.45～1.65の範囲、または、1.45～1.55の範囲である。いくつかの実施形態において、ポリマーマトリックス材の屈折率が1.5である。
- [0093] 上記波長変換型封止材組成物は、たとえば、上記マトリックス樹脂中に、波長変換機能を有する上記蛍光色素化合物を分散させること等により形成することができる。
- [0094] 上記蛍光色素化合物として、波長領域340～410nmの光を、410nmを超える波長領域の光よりも多く吸収するものであることが好ましい。410nm以下の波長領域の光を吸収していても、410nmを超える波長領域に光をより多く吸収する場合には、光電変換層で利用できる光の総量が減少してしまうためである。340～410nmの波長領域の光を、410nmを超える波長領域の光よりも多く吸収することにより、光電変換層で利用可能な光（直接光）を減少させることなく、波長変換された光も利用可能となり、その結果、光電変換層で利用できる光の総量を増加させることができる。
- [0095] 上記波長変換型封止材組成物は、たとえば、上記マトリックス樹脂中に、波長変換機能を有する上記蛍光色素化合物を上記のように分散させること等により形成することができる。
- [0096] また、本発明の波長変換型封止材組成物において、上記樹脂マトリックス

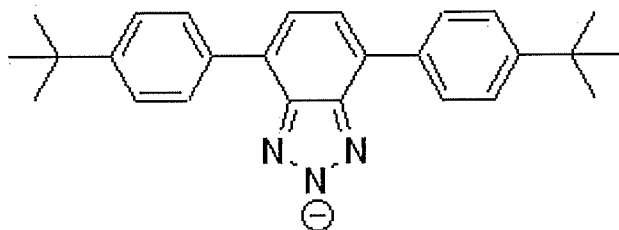
100重量部に対して、上記蛍光色素化合物が0.01～10重量部で含まれていることが好ましく、0.02～5重量部であることがより好ましく、0.05～2重量部であることがさらに好ましい。

[0097] 上記波長変換型封止材組成物において、所望の性能を損なわない範囲で、適宜公知の添加剤を含むことができる。上記添加剤として、たとえば、熱可塑性ポリマー、酸化防止剤、紫外線防止剤、光安定剤、有機過酸化物、充填剤、可塑剤、シランカップリング剤、受酸剤、クレイ等があげられる。これらは単独で使用してもよく、また2種以上を混合して使用してもよい。

[0098] 上記波長変換型封止材組成物を製造するには、公知の方法に準じて行えばよい。たとえば、上記の各材料を加熱混練、スーパーミキサー（高速流動混合機）、ロールミル、プラストミル等を用いて公知の方法で混合して得る方法などをあげることができる。また、上記波長変換型封止材層の製造まで連続して行ってもよい。

[0099] また、上記蛍光色素化合物において、ベンゾトリアゾール構造の存在および含有比率等は、上記蛍光色素化合物、上記波長変換型封止材組成物、上記波長変換型封止材層および上記太陽電池モジュールのいずれの段階であっても、二次イオンの検出、解析を行うことで推測または確認が可能である。たとえば、上記蛍光色素化合物では、一般式（1）中のN-Y₃間の結合が開裂したベンゾトリアゾール構造由来のピークである382.2の負の二次イオンの検出をなしうる。

[化4]



[0100] （波長変換型封止材層）

一方、本発明の波長変換型封止材層は、上記波長変換型封止材組成物を用いて形成されたことを特徴とする。

[0101] 上記波長変換型封止材層は、上記反応部位（マトリックスへの固定化部位）を有する蛍光色素化合物を含む上記波長変換型封止材組成物を用いるため、上記波長変換封止材組成物や上記波長変換封止材層のキュア工程時の容易に、また同時に、上記蛍光色素の固定化が可能であり、工業プロセス的にも非常に優れている。また、マトリックスポリマーへの固定化は、一般には上記波長変換型封止材層の形成時もしくは形成後、または、モジュール実装時もしくは実装後に、他の加熱処理、光照射処理または固定化のための加熱処理、光照射処理等によって行うことができるが、上記波長変換型封止材組成物の段階で適宜一部または全部の固定化を行ってもよい。

[0102] 上記波長変換型封止材層を製造するには、公知の方法に準じて行えばよい。たとえば、上記の各材料を加熱混練、スーパーミキサー（高速流動混合機）、ロールミル、プラストミル等を用いて公知の方法で混合した組成物を、通常の押出成形、カレンダー成形（カレンダーリング）、真空熱加圧等により成形してシート状物を得る方法により適宜製造することができる。また、PETフィルム等の上に上記層を形成した後、表面保護層に転写する方法により製造することができる。また、ホットメルトアPLICエーターにより、混練溶融と塗布を同時に行う方法を用いることができる。

[0103] より具体的には、たとえば、上記マトリックス樹脂および蛍光色素化合物等を含む上記波長変換型封止材組成物を、表面保護層またはセパレーターなどにそのまま塗布してもよし、上記材料を他の材料と混合組成物として塗布してもよい。また、上記波長変換型封止材組成物を蒸着、スパッタリング、エアロゾルデポジション法等で形成してもよい。

[0104] 上記混合組成物として塗布する場合、上記マトリックス樹脂は、加工性を考慮して、融点が50～250℃であることが好ましく、50～200℃であることがより好ましく、50～180℃であることがさらに好ましい。また、たとえば、上記波長変換型封止材組成物の融点が50～250℃の場合

、上記組成物の混練溶融および塗布温度は、上記融点に30～100℃加えた温度で行うことが好ましい。

[0105] また、いくつかの実施形態において、波長変換型封止材層が下記の工程によって薄膜構造体に製造される：(i) ポリマー（マトリックス樹脂）粉末が所定の比率で溶媒（たとえば、テトラクロロエチレン（TCE）、シクロペンタノン、ジオキサンなど）に溶解されたポリマー溶液を調製する工程、(ii) ポリマー混合物を含有する発光色素（蛍光色素化合物等）を、ポリマー溶液を所定の重量比で発光色素と混合して、色素含有ポリマー溶液を得ることによって調製する工程、(iii) 色素／ポリマー薄膜を、色素含有ポリマー溶液をガラス基板の上に直接に流し込み、その後、基板を2時間で室温から最高で100℃まで熱処理し、残留溶媒を130℃での一晩のさらなる真空加熱によって完全に除くことによって形成する工程、および、(iv) 使用前に、色素／ポリマー薄膜を水の中で剥がし、その後、自立型ポリマーフィルムを完全に乾燥する工程；(v) フィルムの厚さを、色素／ポリマー溶液の濃度および蒸発速度を変化させることによって制御することができる。

[0106] 上記波長変換型封止材層の厚みは、20～2000 μm であることが好ましく、50～1000 μm であることがより好ましく、100～800 μm であることがさらに好ましい。5 μm よりも薄くなると、波長変換機能が発現しにくくなってしまう。一方、400 μm より厚くなると、他層との密着性が低下し、コスト的にも不利益である。また、波長変換型封止材層を用いることにより、上記波長変換型封止材層をたとえば600 μm の薄層レイヤーにした場合であっても、色素化合物のブリードアウトがしないまたはブリードアウトを大きく低減できうる。

[0107] 上記波長変換型封止材層の光学的厚み（吸光度）は、0.5～6であることが好ましく、1～4であることがより好ましく、1～3であることがさらに好ましい。上記吸光度が低いと、波長変換機能が発現しにくくなってしまふ。一方、上記吸光度が大きすぎると、コスト的にも不利益である。なお、

上記吸光度は、ランベルト・ベールの法則に従って算出される値である。

[0108] (太陽電池モジュール)

本発明の太陽電池モジュール 1 は、表面保護層 10、上記太陽電池用封止材層 20 および太陽電池セル 30 を含むことを特徴とする。一例として図 1、2 に簡易な模式図を示すが、本発明がこれらに限定されるものではない。また、太陽電池セルの背面側にさらに封止材層 40、バックシート 50 を適宜備えることもできる。また、これらの各層間に、上記太陽電池用封止材層の上記機能を損なわない限り、接着材層、粘着剤層などの他の層を適宜介在してもよい。また、上記背面用の封止材層として、適宜、本発明の波長変換型封止材層を用いてもよい。

[0109] 上記太陽電池モジュールは、上記波長変換型封止材層を備えるため、通常は光電変換に寄与しない波長を光電変換に寄与しうる波長に変換することができる。具体的には、ある波長をそれよりもより長波長へ、たとえば、380 nm より短い波長を 380 nm 以上の波長に変換することができる。特に、紫外線領域の波長 (200 nm ~ 365 nm) を可視光領域の波長 (400 ~ 800 nm) へ変換するものである。また、光電変換に寄与する波長の範囲は、太陽電池の種類によって変化し、たとえば、シリコン系太陽電池であっても、使用されるシリコンの結晶形態によって変化する。たとえば、アモルファスシリコン太陽電池の場合、400 nm ~ 700 nm、多結晶シリコン太陽電池の場合、約 600 nm ~ 1100 nm と考えられる。このため、光電変換に寄与する波長は、必ずしも可視光領域の波長にかぎられない。さらには、上記波長変換型封止材層を有することで、長時間保存試験においても蛍光色素化合物が析出することなく、上記蛍光色素化合物が裏面用封止材層 40 等に移動することも抑制でき、安定で均一な太陽電池モジュールとなる。

[0110] 上記太陽電池セルとして、たとえば、硫化カドミウム／テルル化カドミウム太陽電池、銅インジウムガリウムニセレン化物太陽電池、非晶質、微結晶シリコン太陽電池または結晶シリコン太陽電池を用いることができる。より

詳細には、アモルファスシリコン、多結晶シリコン等を用いたシリコン系太陽電池、GaAs、CIS、CIGS等を用いた化合物半導体系太陽電池、有機薄膜型太陽電池、色素増感型太陽電池、量子ドット型太陽電池等の有機系太陽電池に適用可能である。上記いずれの場合であっても、通常の使用では、紫外線領域の波長は光電変換に寄与しにくい。上記太陽電池セルとして、結晶シリコン太陽電池であることが好ましい。

[0111] 上記太陽電池モジュールの製造において、上記太陽電池用封止材層を上記太陽電池セル等に転写してもよく、直接上記太陽電池セル上に塗布形成してもよい。また、上記太陽電池用封止材層と他の層を同時に形成してもよい。

[0112] また、本発明の太陽電池モジュールは、入射光が、太陽電池セルへの到達に先だって、上記波長変換型封止材層を通過するように配置されることが好ましい。上記構成とすることで、より確実に、太陽エネルギーのより広い範囲のスペクトルが電気に変換されることが可能となり、光電変換効率を効果的に高めることができる。

[0113] 上記表面保護層として、太陽電池用途の表面保護層として用いられている公知のものを用いることができる。上記表面保護層として、たとえば、フロントシートやガラスなどをあげることができる。上記ガラスとして、たとえば、白板、エンボスの有無等、適宜種々のものを用いることができる。

実施例

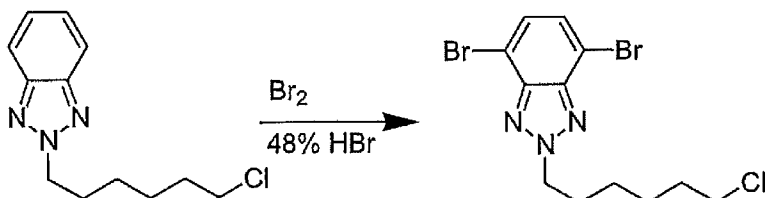
[0114] 以下、本発明の構成と効果を具体的に示す実施例等について説明する。

[0115] 〔実施例1〕

2-(6-クロロヘキシル)-2H-ベンゾトリアゾール(71.3g、300mmol)にHBr水溶液(32%、350ml)を加えて110℃で加熱した。さらに、臭素(130.0g、820mmol)を少しずつ滴下し、さらに135℃で3時間加熱攪拌した。反応終了後、この水溶液に冷水およびトルエンを注入し、有機相を取り出した。その後、飽和水酸化カリウム水溶液、飽和チオ硫酸ナトリウム水溶液で順次洗浄後、無水硫酸ナトリウムを用いて乾燥、ろ過し、減圧下で濃縮した。得られた粗組成物をエタノ

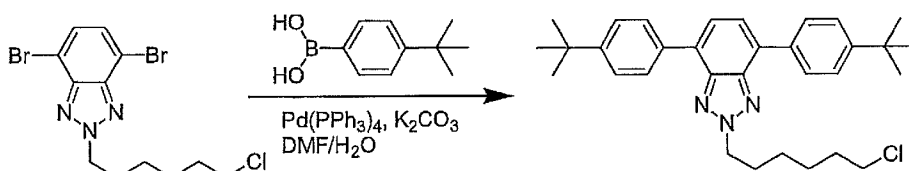
ールを用いて再結晶して、4, 7-ジブロモ-2-(6-クロロヘキシル)-2H-ベンゾトリアゾール (87.0 g、220 mmol、73% yield) を得た。

[化5]



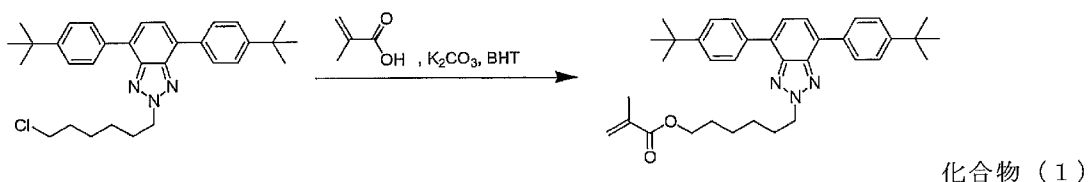
[0116] 4, 7-ジブロモ-2-(6-クロロヘキシル)-2H-ベンゾトリアゾール (3.33 g、10 mmol)、4-tert-ブチルフェニルボロン酸 (3.92 g、22 mmol)、 $\text{Pd}(\text{PPh}_3)_4$ (92 mg、0.08 mmol)、および炭酸カリウム (4.15 g、30 mmol) を3つ口フラスコ (200 ml) に投入し、窒素置換した後、DMF (40 ml) を加えた。その後、窒素バブリング処理を施した蒸留水 (20 ml) を加え、100℃で2時間攪拌した。得られた反応溶液を水 (200 ml) を加え、析出した沈澱をろ別した。得られた沈澱物を酢酸エチル (50 ml) で溶解し、さらにヘキサン (10 ml) を加えた。ヘキサンを加えたことで析出した黒色沈澱をろ別し、ろ液を減圧下で濃縮した。得られた残渣をイソプロパノール (100 ml) を用いて加熱溶解した後、冷却 (再結晶) して、4, 7-ビス-(4-tert-ブチルフェニル)-2-(6-クロロヘキシル)-2H-ベンゾトリアゾール (4.61 g、7.9 mmol、79% yield) を得た。

[化6]



[0117] 4, 7-ビス-(4-tert-ブチルフェニル)-2-(6-クロロヘキシル)-2H-ベンゾトリアゾール(2.80g、5.57mmol)、炭酸カリウム(2.31g、16.7mmol)、BHT(1.0g)、および、メタクリル酸(0.96g、11.2mmol)を3つ口フラスコ(100ml)に投入し、窒素置換した後、DMF(20ml)を加えた。その後、120℃で6時間撹拌した。得られた反応溶液を水(200ml)を加え、析出した沈澱をろ別した。得られた沈澱物を酢酸エチル(50ml)で溶解し、蒸留水で洗浄した後、有機相を減圧下で濃縮した。得られた残渣をイソプロパノール(100ml)を用いて加熱溶解した後、冷却(再結晶)して、4, 7-ビス-(4-tert-ブチルフェニル)-2-(6-メタクリルヘキシル)-2H-ベンゾトリアゾール(化合物(1)、2.18g、3.95mmol、71%yield)を得た。

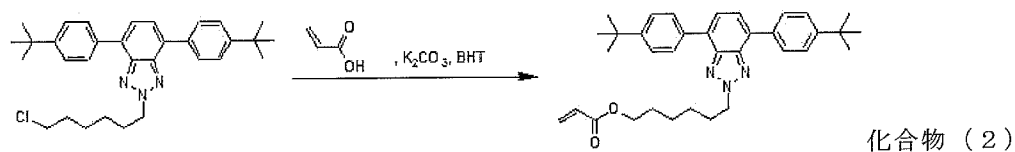
[化7]



[0118] [実施例2]

実施例1におけるメタクリル酸の代わりにアクリル酸を用いることで、4, 7-ビス-(4-tert-ブチルフェニル)-2-(6-アクリルヘキシル)-2H-ベンゾトリアゾール(化合物(2)、2.04g、3.80mmol、68%yield)を得た。

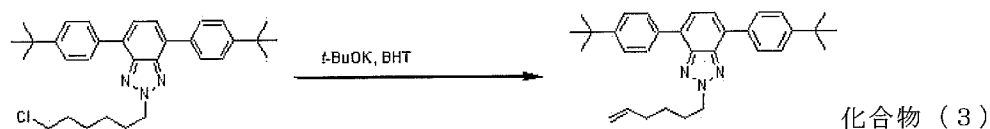
[化8]



[0119] [実施例3]

4, 7-ビス-(4-tert-ブチルフェニル)-2-(6-クロロヘキシル)-2H-ベンゾトリアゾール (2.80 g, 5.57 mmol)、カリウム-tert-ブトキシド (6.25 g, 55.7 mmol)、BHT (1.0 g) を3つ口フラスコ (100 mL) に用意し、窒素置換した、氷浴で撹拌しながら THF (30 mL) を添加し、室温で 2 h 撹拌した。空冷したのち、この反応溶液に希塩酸を加え中和し、水/酢酸エチルで抽出した。蒸留水で洗浄したのち、有機層を減圧下で濃縮した。得られた残渣をイソプロパノール (100 mL) を用いて加熱溶解した後、冷却 (再結晶) することで、4, 7-ビス-(4-tert-ブチルフェニル)-2-(6-ヘキセニル)-2H-ベンゾトリアゾール (化合物 (3), 1.85 g, 3.98 mmol, 71% yield) を得た。

[化9]

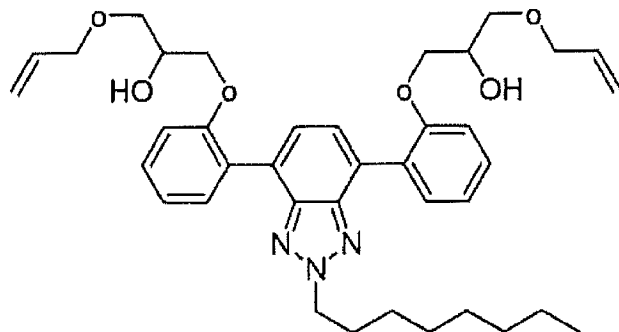


[0120] [実施例4]

4, 7-ジブromo-2-オクチル-2H-ベンゾトリアゾール (3.89 g, 10 mmol)、2-ヒドロキシフェニルボロン酸 (3.03 g, 22 mmol)、Pd(PPh₃)₄ (92 mg, 0.08 mmol)、および、炭酸カリウム (4.15 g, 30 mmol) を3つ口フラスコ (200 mL) に投入し、窒素置換した後、DMF (40 mL) を加えた。その後、窒素バブリング処理を施した蒸留水 (20 mL) を加え、100℃で2時間撹拌した。得られた反応溶液を80℃にしてアリルグリシジルエーテル (11.41 g, 100 mmol) を加え、さらに80℃で3時間撹拌した。得られた反応溶液を酢酸エチルで抽出し、水で洗浄し、得られた有機相の溶媒を減圧留去した。得られた残渣をカラムクロマトグラム処理 (展開溶媒: トルエン/酢酸エチル = 16/1) で精製し、4, 7-ビス(2-(3-アリロキシ

シー２－ヒドロキシプロピオキシ）フェニル）－２－オクチル－２Ｈ－ベンゾトリアゾール（化合物（４）、７．６４ｇ、８．１０ｍｍｏｌ、８３％ｙｉｅｌｄ）を得た。

[化10]

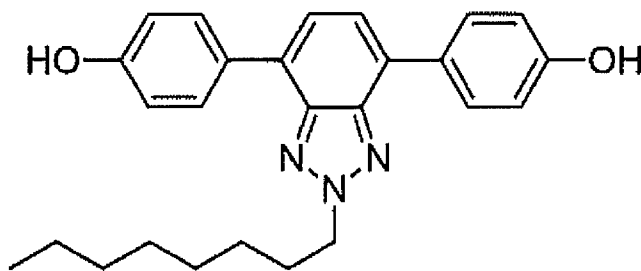


化合物（４）

[0121] 〔実施例５〕

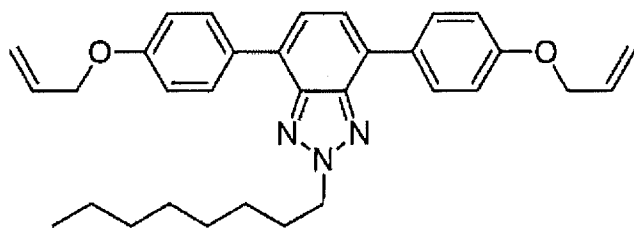
４，７－ジブロモ－２－オクチル－２Ｈ－ベンゾトリアゾール（３．８９ｇ、１０ｍｍｏｌ）、４－ヒドロキシフェニルボロン酸（３．０３ｇ、２２ｍｍｏｌ）、 $\text{Pd}(\text{PPh}_3)_4$ （９２ｍｇ、０．０８ｍｍｏｌ）、および、炭酸カリウム（４．１５ｇ、３０ｍｍｏｌ）を３つ口フラスコ（２００ｍｌ）に投入し、窒素置換した後、DMF（４０ｍｌ）を加えた。その後、窒素バブリング処理を施した蒸留水（２０ｍｌ）を加え、１００℃で２時間攪拌した。得られた反応溶液を水（２００ｍｌ）を加え、析出した沈澱をろ別した。得られた沈澱物をアセトンとイソプロパノールを用いて溶解し、不溶物を熱時ろ過した。得られた残渣をイソプロパノール（１００ｍｌ）を用いて加熱溶解した後、冷却（再結晶）して、４，７－ビス－（４－ヒドロキシフェニル）－２－オクチル－２Ｈ－ベンゾトリアゾール（３．４９ｇ、８．４０ｍｍｏｌ、８４％ｙｉｅｌｄ）を得た。

[化11]



[0122] 4, 7-ビス- (4-ヒドロキシフェニル) -2-オクチル-2H-ベンゾトリアゾール (0.39 g、0.936 mmol)、炭酸カリウム (0.65 g、4.689 mmol)、および、アリルブロマイド (0.56 g、4.689 mmol) を3つ口フラスコ (100 ml) に投入し、窒素置換した後、DMF (10 ml) を加えた。その後、100℃で3時間撹拌した。得られた反応溶液を水 (200 ml) を加え、析出した沈澱をろ別した。得られた沈澱物を酢酸エチル (50 ml) で溶解し、さらにヘキサン (10 ml) を加えた。ヘキサンを加えたことで析出した黒色沈澱をろ別し、ろ液を減圧下で濃縮した。得られた残渣をイソプロパノール (100 ml) を用いて加熱溶解した後、冷却 (再結晶) して、4, 7-ビス- (4-アリロキシ) -2-オクチル-2H-ベンゾトリアゾール (化合物 (5)、0.29 g、0.66 mmol、71% yield) を得た。

[化12]



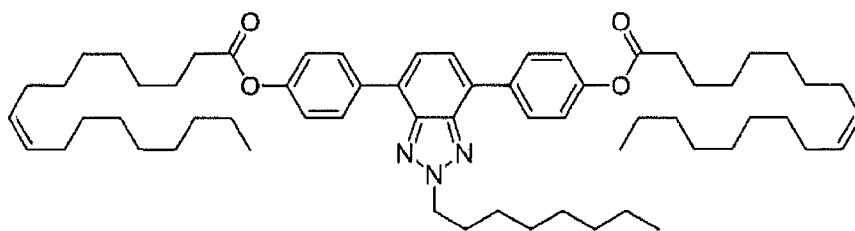
化合物 (5)

[0123] [実施例6]

4, 7-ビス- (4-ヒドロキシフェニル) -2-オクチル-2H-ベン

ゾトリアゾール（0.39 g、0.936 mmol）、オレイン酸（0.794 g、2.81 mmol）および、ジメチルアミノピリジン（触媒量）を3つ口フラスコ（100 ml）に投入し、窒素置換した後、塩化メチレン（10 ml）に懸濁させ、さらに3-ジメチルアミノプロピルエチルカルボジイミド ハイドロクロライド（0.39 g、2.81 mmol）を加えた。その後、室温で40時間攪拌した。得られた反応溶液を酢酸エチルで抽出し、水で洗浄し、得られた有機相の溶媒を減圧留去した。得られた残渣をカラムクロマトグラム処理（展開溶媒：トルエン）で精製し、4,7-ビス（4-オレイロキシフェニル）-2-オクチル-2H-ベンゾトリアゾール（化合物（6））、0.459 g、0.487 mmol、52% yield）を得た

[化13]

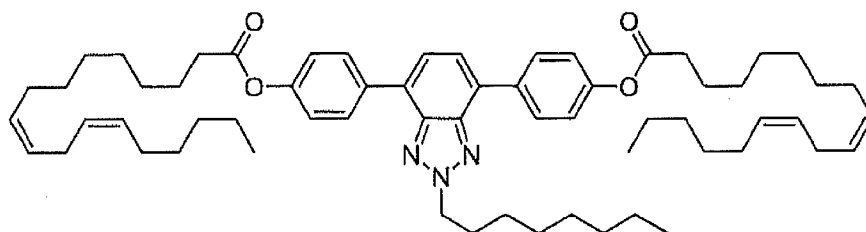


化合物（6）

[0124] [実施例7]

実施例6におけるオレイン酸に代えて、リノレン酸を用いたこと以外は、実施例5と同様の方法で、下記化合物（化合物（7））、0.487 g、0.523 mmol、58% yield）を得た。

[化14]

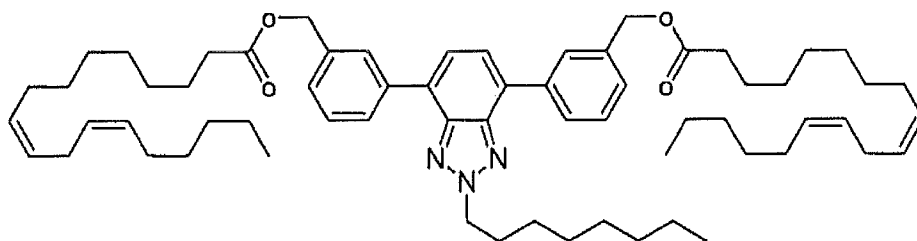


化合物（7）

[0125] [実施例8]

実施例 6 における 4-ヒドロキシフェニルボロン酸に代えて、3-ヒドロキシメチルフェニルボロン酸を用いたこと以外は、実施例 5 と同様の方法で、下記化合物（化合物（8））、0.5 g、0.601 mmol、60% yield）を得た。

[化15]

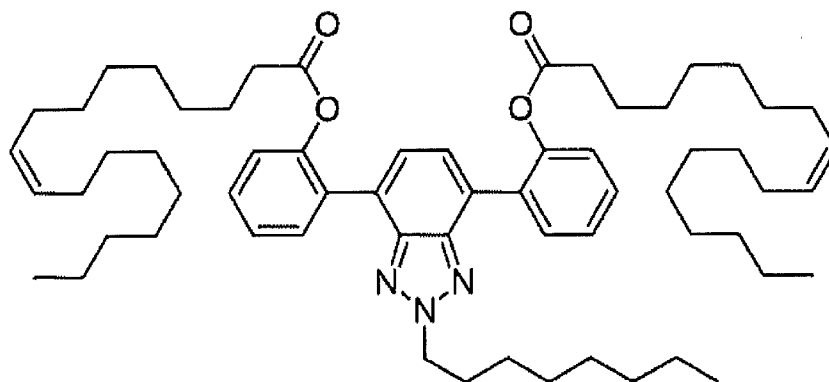


化合物（8）

[0126] [実施例 9]

実施例 4 における 4-ヒドロキシフェニルボロン酸に代えて、2-ヒドロキシメチルフェニルボロン酸を用いたこと以外は、実施例 4 と同様の方法で、下記化合物（化合物（9））、0.6 g、0.632 mmol、63% yield）を得た。

[化16]



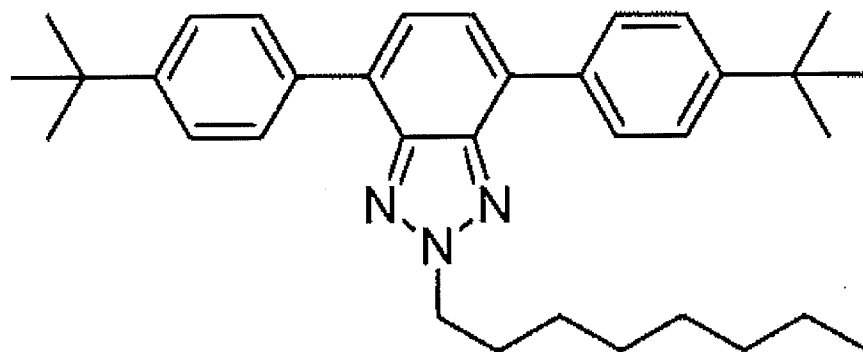
化合物（9）

[0127] [比較例 1]

オクチル-2H-ベンゾトリアゾール（3.33 g、10 mmol）、4-tert-ブチルフェニルボロン酸（3.92 g、22 mmol）、Pd(PPh₃)₄（92 mg、0.08 mmol）、および炭酸カリウム（4.

15 g、30 mmol) を3つ口フラスコ (200 ml) に投入し、窒素置換した後、DMF (40 ml) を加えた。その後、窒素バブリング処理を施した蒸留水 (20 ml) を加え、100℃で2時間攪拌した。得られた反応溶液を水 (200 ml) を加え、析出した沈澱をろ別した。得られた沈澱物を酢酸エチル (50 ml) で溶解し、さらにヘキサン (10 ml) を加えた。ヘキサンを加えたことで析出した黒色沈澱をろ別し、ろ液を減圧下で濃縮した。得られた残渣をイソプロパノール (100 ml) を用いて加熱溶解した後、冷却 (再結晶) して、4, 7-ビス-(4-tert-ブチルフェニル)-2-オクチル-2H-ベンゾトリアゾール (4.61 g、7.9 mmol、79% yield) を得た。

[化17]



[0128] 〔比較例2〕

実施例における蛍光色素化合物に代えて、汎用の紫外線吸収剤である2-ヒドロキシ-4-(オクチル)ベンゾフェノンを用いた。

[0129] (最大吸収波長・蛍光発光波長の測定)

実施例および比較例に用いられた蛍光発光化合物の最大吸収波長および蛍光発光波長を測定した。最大吸収波長の測定は、紫外可視分光光度計 (日本分光株式会社製、V-560) を用いて行い、Abs測定において最大値を示す波長を測定した。

[0130] 蛍光発光波長の測定は、日立ハイテクノロジーズ社製のF-4500を用いて行い、(励起-発光) 3次元測定における最大発光強度を示す波長を測

定した。

[0131] (封止樹脂組成物の作製)

透明分散媒樹脂としてエチレンビニルアセテート (EVA) (住友化学社製: KA-30) 100質量部、パーブチルE (1時間半減期温度119℃、日油社製) 0.3重量部、TAIC (日本化成製) 1.0重量部、および、実施例・比較例の各化合物0.2質量部はかりとり、ラボプラスミル (東洋精機社製: 10C100) にて80℃で混練して、封止樹脂組成物を得た。

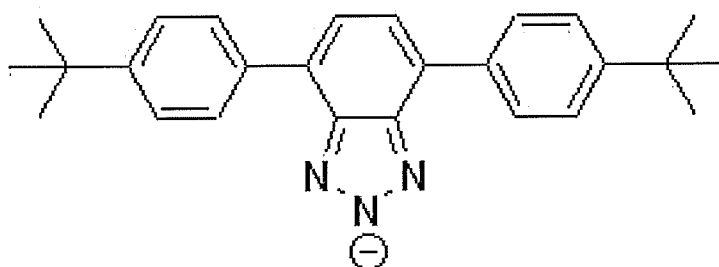
[0132] (封止シートの作製)

上記で得られた封止樹脂組成物を離型シートに挟み、真空熱加圧装置 (ミカドテクノス社製: VS20-3430) を用いて150℃でプレスし、150℃で20分キュアすることで、約500μm厚の封止シートを作製した。上記工程で色素の固定化を行っている。

[0133] (封止シートの飛行時間型二次イオン質量分析)

封止材試料を専用のホルダーに固定し、飛行時間型二次イオン質量分析装置 [TOF-SIMS] (アルバック・ファイ製TRIFTV) を用いて観察した。Bi²⁺イオンを30kVの加速電圧で試料片に照射したところ、実施例1の波長変換封止材を用いた場合、下記のMn=382.2の2次イオンを観測することができた。

[化18]



[0134] (太陽電池モジュールの効率測定)

上記で得られた封止シートを20×20cmに裁断し、保護ガラスとして

の強化ガラス（旭硝子社製：ソライト）、封止シート、太陽電池セル（Qセル社製：Q6LTT3-G2-200/1700-A、結晶シリコン型）、裏面用封止シート（400 μ m厚EVAシート）、バックシートとしてPETフィルムを載せ、真空ラミネーター（株式会社エヌ・ピー・シー：LM-50 $\times$ 50-S）を用いて、150℃、真空5分、加圧20分の条件でラミネートし、太陽電池モジュールを作製した。

[0135] （太陽電池モジュールのJsc測定）

上記で得られた太陽電池モジュールの分光感度を分光感度測定装置（分光計器社製、CEP-25RR）を用いて測定し、分光感度測定から算出されたJsc値を得た。なお、Jsc値とは、分光感度測定装置によるサンプル測定から得られる分光感度スペクトルと基準太陽光の演算により算出される短絡電流密度をいう。

[0136] 実施例1および比較例2の各封止シートを用いて作製した太陽電池モジュールにおいてそれぞれのJsc値を測定したところ、実施例1の太陽電池モジュールのJsc値は、比較例2の太陽電池モジュールのJsc値よりも1.5%大きく、光電変換効率の向上が見られた。

[0137] （色素化合物の固定化度の検証）

実施例および比較例で合成された蛍光発光化合物あるいは紫外線吸収剤を用いてEVA封止シートを作製した。作製したシートにおいて、波長変換色素は理想的にはポリマーマトリクスに取り込まれているものであり、シートを溶剤に含浸させても溶出しない。作製したEVA封止シートを溶剤に含浸させ、溶出した色素量を分光光度計により測定し比較を行った。

[0138] （封止樹脂組成物の作製）

透明分散媒樹脂としてエチレンビニルアセテート（EVA）（住友化学社製：KA-30）を100質量部、パーブチルE（1時間半減期温度119℃）（日油製）を0.3質量部、TAIC（日本化成製）を1.0質量部、および、実施例1～7または比較例1～2の化合物を0.2質量部はかりとり、ラボプラストミル（東洋精機社製：10C100）にて80℃で混練して、

封止樹脂組成物を得た。

[0139] (封止シートの作製、および波長変換材のポリマーマトリックスへの固定化工程)

上記で得られた封止樹脂組成物を離型シートに挟み、真空熱加圧装置（ミカドテクノス社製：VS20-3430）を用いて150℃でプレスし150℃で20分キュアすることで、約500μm厚の封止シートを作製及び色素の固定化をおこなった。

[0140] 得られたそれぞれの封止シート300mgをイソプロピルアルコール50mlに40℃で4時間静置し色素が溶出しうるかの評価を行った。その後、得られた封止シートを乾燥後、封止シートの最大吸収波長における吸光度を測定した。それぞれ溶出実験前後の最大吸収波長における吸光度を比較することで、樹脂に固定化された色素の割合を算出、評価した。なお、色素固定化度として、下式で算出した値を用いた。

$$\text{固定化度 (\%)} = \{ (\text{溶出試験後の吸光度}) / (\text{溶出試験前の吸光度}) \} \times 100$$

[0141] 得られた結果を下記表1に示す。

[表1]

	最大発光吸収波長	最大発光波長	最大吸収波長 (キュア前)	最大吸収波長 (キュア後)	固定化度 (%)
実施例1	345nm	425nm	345nm	425nm	100
実施例2	345nm	425nm	345nm	425nm	98
実施例3	345nm	425nm	345nm	425nm	95
実施例4	325nm	400nm	325nm	400nm	62
実施例5	355nm	430nm	355nm	430nm	60
実施例6	330nm	410nm	330nm	410nm	65
実施例7	330nm	410nm	330nm	410nm	57
実施例8	330nm	410nm	330nm	410nm	57
実施例9	325nm	415nm	325nm	415nm	58
比較例1	345nm	425nm	345nm	425nm	8.6
比較例2	330nm	—	353nm	—	5.8

[0142] 上記のように、本願実施例における化合物を用いた封止シートでは、色素化合物がポリマーフィルムに固定化されることがわかった。本願化合物では、当該発色団の吸収・発光特性が維持されるとともに、非析出性にも優れて

いることがわかった。

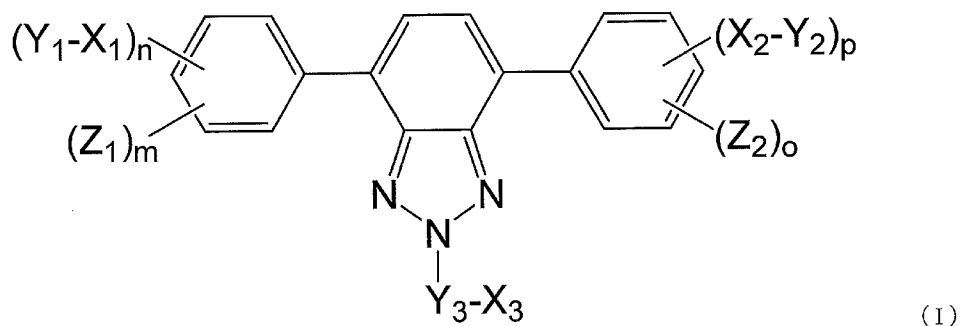
符号の説明

- [0143] 1 太陽電池モジュール
- 1 0 表面保護層
- 2 0 太陽電池用封止材層
- 3 0 太陽電池セル
- 4 0 裏面用封止材層
- 5 0 バックシート

請求の範囲

- [請求項1] ポリマーマトリックスに化学結合により固定化が可能である光波長変換有機化合物。
- [請求項2] 架橋反応、環化反応、置換反応、または重合反応により固定化が可能である、請求項1に記載の光波長変換有機化合物。
- [請求項3] 前記有機化合物がベンゾトリアゾール誘導体である、請求項1または2に記載の光波長変換有機化合物。
- [請求項4] 前記ポリマーマトリックスが、エチレン-酢酸ビニル共重合体を主成分とする、請求項1～3のいずれかに記載の光波長変換有機化合物。
- [請求項5] 下記一般式（1）によって表される蛍光色素化合物。

[化1]



（式中、 X_1 および X_2 は、それぞれ独立して、 $-O-$ 、 $-(C=O)O-$ 、 $-O(C=O)-$ 、 $-CH_2O-$ 、 $-CH_2O(CO)-$ 、 $-NH(CO)-$ 、 $-NR-CH_2-$ または単結合を表し、 R は、炭素数1～8のアルキル基を表し、

X_3 は、炭素-炭素二重結合含有基、または、水素を表し、

Y_1 および Y_2 は、それぞれ独立して、場合により置換された、炭素数1～18のアルキル基、または、炭素-炭素二重結合を有する炭素数2～18のアルキル基（アルキル基中の隣接しない炭素原子が酸素原子に置換されていてもよい）を表し、

Y_3 は、場合により置換された、炭素数1～18のアルキル基、炭

炭素数 5 ～ 18 のアリール基、または、炭素－炭素二重結合を有する炭素数 2 ～ 18 のアルキル基（アルキル基中の隣接しない炭素原子が酸素原子に置換されていてもよい）を表し、

少なくとも上記 Y_1 、 Y_2 、 Y_3 および X_3 のいずれか 1 つ以上は、炭素－炭素二重結合を有するものであって、

Z_1 および Z_2 は、それぞれ独立して、場合により置換された炭素数 1 ～ 18 のアルキル基（アルキル基中の隣接しない炭素原子が酸素原子に置換されていてもよい）、場合により置換された炭素数 1 ～ 18 のアルコキシ基（アルコキシ基中の隣接しない炭素原子が酸素原子に置換されていてもよい）、フルオロ基、シアノ基、 $-COOR^1$ 基、 $-NHCO R^2$ 基、または、水酸基を表し、 R^1 および R^2 は、炭素数 1 ～ 18 のアルキル基またはフェニル基を表し、

m 、 n 、 o および p は、それぞれ独立して、0 ～ 4 の整数を表す（ただし、 $m + n$ は 4 以下、 $o + p$ は 4 以下である。）。 m 、 n 、 o または p が 2 以上の場合、複数存在する各置換基は同一でも異なってもよい。）

[請求項6] 前記 X_3 が、 $-CR' = CH_2$ 、 $-(C=O)O-CR' = CH_2$ 、 $-O(C=O)-CR' = CH_2$ 、 $-CH_2O(CO)-CR' = CH_2$ 、 $-NH(CO)-CR' = CH_2$ 、または、 $-NR-CH_2-CR' = CH_2$ である（ただし、 R および R' は、それぞれ独立して、炭素数 1 ～ 8 のアルキル基を表す）、請求項 5 に記載の蛍光色素化合物。

[請求項7] 340 ～ 410 nm に最大吸収波長を有する、請求項 5 または 6 に記載の蛍光色素化合物。

[請求項8] 440 ～ 560 nm に最大蛍光発光波長を有する、請求項 5 ～ 7 のいずれかに記載の蛍光色素化合物。

[請求項9] 光学的に透明な樹脂マトリックス、および、請求項 5 ～ 8 のいずれかに記載の蛍光色素化合物を含む、波長変換型封止材組成物。

- [請求項10] 前記樹脂マトリックス100重量部に対して、前記蛍光色素化合物が0.01～10重量部で含まれている、請求項9に記載の波長変換型封止材組成物。
- [請求項11] 前記マトリックス樹脂が、エチレン-酢酸ビニル共重合体を主成分とする、請求項9または10に記載の波長変換型封止材組成物。
- [請求項12] 請求項9～11のいずれかに記載の波長変換型封止材組成物を用いて形成された波長変換型封止材層。
- [請求項13] 請求項9～11のいずれかに記載の波長変換型封止材組成物を用いて形成された波長変換型封止材層を含む太陽電池モジュール。
- [請求項14] 入射光が、太陽電池セルへの到達に先だって、前記波長変換型封止材層を通過するように配置される、請求項13に記載の太陽電池モジュール。
- [請求項15] 前記太陽電池セルが、結晶シリコン太陽電池である、請求項13または14に記載の太陽電池モジュール。

[図1]

1 太陽電池モジュール

10 表面保護層
20 波長変換型封止材層
30 太陽電池セル

[図2]

1 太陽電池モジュール

10 表面保護層
20 波長変換型封止材層
30 太陽電池セル
40 裏面用封止材層
50 バックシート

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2015/070403

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C09B69/00(2006.01)i, C09B69/10(2006.01)i, C09K11/06(2006.01)i, H01L31/048(2014.01)i, H01L31/055(2014.01)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)

C09B, C09K, H01L31/048, H01L31/055

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

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2015
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2015	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2015

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2013-072087 A (Nitto Denko Corp.), 22 April 2013 (22.04.2013), claims 14, 22; examples & US 2013/0074927 A1 claims 14, 22; examples & WO 2013/049062 A2 & EP 2760941 A1 & TW 201323476 A & CN 103562323 A & KR 10-2014-0074257 A	1-15
X	JP 2013-123037 A (Nitto Denko Corp.), 20 June 2013 (20.06.2013), claims 4, 9; examples & US 2013/0139868 A1 claims 4, 9; examples & WO 2013/085607 A1 & EP 2788450 A1 & TW 201323577 A & CN 103339221 A & KR 10-2014-0100886 A	1-15

☒ 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
30 September 2015 (30.09.15)

Date of mailing of the international search report
13 October 2015 (13.10.15)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2015/070403

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2013-084952 A (Nitto Denko Corp.), 09 May 2013 (09.05.2013), claims 5, 15; examples & US 2013/0089946 A1 claims 5, 15; examples & WO 2013/052381 A2 & TW 201317327 A & CN 103415589 A	1-15
P,X	JP 2014-185286 A (Nitto Denko Corp.), 02 October 2014 (02.10.2014), example 4 (Family: none)	1-15
P,X	DATABASE REGISTRY [Online]: Chemical Abstracts Service, Columbus, Ohio, USA. Retrieved from STN, Registry No. 1643535-57-2 (Entered STN: 1 Jan 2015)	1-8

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. C09B69/00(2006.01)i, C09B69/10(2006.01)i, C09K11/06(2006.01)i, H01L31/048(2014.01)i, H01L31/055(2014.01)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（I P C））

Int.Cl. C09B, C09K, H01L31/048, H01L31/055

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	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 5 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 5 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 5 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）

CAplus/REGISTRY (STN)

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
X	JP 2013-072087 A（日東電工株式会社）2013.04.22, 請求項 14, 22, 実施例 & US 2013/0074927 A1 請求項 14, 22, 実施例 & WO 2013/049062 A2 & EP 2760941 A1 & TW 201323476 A & CN 103562323 A & KR 10-2014-0074257 A	1 - 1 5
X	JP 2013-123037 A（日東電工株式会社）2013.06.20, 請求項 4, 9, 実施例 & US 2013/0139868 A1 請求項 4, 9, 実施例 & WO 2013/085607 A1 & EP 2788450 A1 & TW 201323577 A & CN 103339221 A & KR 10-2014-0100886 A	1 - 1 5

☒ 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

3 0 . 0 9 . 2 0 1 5

国際調査報告の発送日

1 3 . 1 0 . 2 0 1 5

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（I S A / J P）
郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5
東京都千代田区霞が関三丁目 4 番 3 号

特許庁審査官（権限のある職員）

吉田 直裕

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 4 3

4 H

3 0 2 8

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
X	JP 2013-084952 A (日東電工株式会社) 2013.05.09, 請求項 5, 15, 実施例 & US 2013/0089946 A1 Claim5, 15, 実施例 & WO 2013/052381 A2 & TW 201317327 A & CN 103415589 A	1 - 1 5
P, X	JP 2014-185286 A (日東電工株式会社) 2014.10.02, 実施例 4 (ファミリーなし)	1 - 1 5
P, X	DATABASE REGISTRY [Online]: Chemical Abstracts Service, Columbus, Ohio, USA. Retrieved from STN, Registry No. 1643535-57-2 (Entered STN: 1 Jan 2015)	1 - 8