(19)日本国特許庁(JP)　(12)特　許　公　報(B2)　(11)特許番号

特許第5767971号
(P5767971)

(45)発行日　平成27年8月26日(2015.8.26)　(24)登録日　平成27年6月26日(2015.6.26)

(51)Int.Cl.		F I		
C08F 290/06	(2006.01)	C08F	290/06	
C08F 2/44	(2006.01)	C08F	2/44	C
C09J 4/00	(2006.01)	C09J	4/00	
C09J 4/02	(2006.01)	C09J	4/02	
C09J 5/00	(2006.01)	C09J	5/00	

請求項の数 20　(全 26 頁)　最終頁に続く

(21)出願番号　特願2011-534250 (P2011-534250)
(86)(22)出願日　平成22年9月28日(2010.9.28)
(86)国際出願番号　PCT/JP2010/066839
(87)国際公開番号　WO2011/040407
(87)国際公開日　平成23年4月7日(2011.4.7)
審査請求日　平成25年9月27日(2013.9.27)
(31)優先権主張番号　特願2009-225646 (P2009-225646)
(32)優先日　平成21年9月29日(2009.9.29)
(33)優先権主張国　日本国(JP)

(73)特許権者　000003296
電気化学工業株式会社
東京都中央区日本橋室町二丁目１番１号
日本橋三井タワー
(74)代理人　110000523
アクシス国際特許業務法人
(72)発明者　比舎　佑基
群馬県渋川市中村１１３５番地　電気化学工業株式会社　電子材料総合研究所内
(72)発明者　渡辺　淳
群馬県渋川市中村１１３５番地　電気化学工業株式会社　電子材料総合研究所内

審査官　佐藤　のぞみ

最終頁に続く

(54)【発明の名称】硬化性樹脂組成物

(57)【特許請求の範囲】
【請求項１】
下記（Ａ）～（Ｄ）成分を含有する硬化性樹脂組成物。
（Ａ）成分は、（ａ－１）分子の末端又は側鎖に１個以上の（メタ）アクリロイル基を有し、かつ、ジエン系又は水素添加されたジエン系の骨格を有する重合体、（ａ－２）エラストマー、及び（ａ－３）ガラス転移温度が０～６０℃であり、数平均分子量が２０００～４００００の共重合ポリエステルからなる群から選ばれる１種以上、
（Ｂ）成分は、フッ素を有する(メタ)アクリレート、
（Ｃ）成分は、重合開始剤
（Ｄ）成分は、フェノキシエチル（メタ）アクリレート、フェノキシジエチレングリコール（メタ）アクリレート、フェノキシテトラエチレングリコール（メタ）アクリレート、フェノキシポリエチレングリコール（メタ）アクリレート、ヘキサヒドロフタルイミドエチル（メタ）アクリレート、及びエチル（メタ）アクリレートからなる群から選ばれる１種以上。
【請求項２】
更に、（Ｅ）成分として、シランカップリング剤を含有することを特徴とする請求項１に記載の硬化性樹脂組成物。
【請求項３】
（Ａ）成分として（ａ－１）が選ばれ、ジエン系又は水素添加されたジエン系の骨格が、ポリブタジエン、ポリイソプレン、ポリブタジエンの水素添加物、及びポリイソプレン

の水素添加物からなる群から選ばれる１種以上の骨格である請求項１又は２に記載の硬化性樹脂組成物。
【請求項４】
（Ａ）成分として（ａ－１）が選ばれ、該重合体の数平均分子量が５００～５００００である請求項１～３のいずれか１項に記載の硬化性樹脂組成物。
【請求項５】
（Ａ）成分として（ａ－２）が選ばれ、該エラストマーがジエン系共重合体である請求項１又は２に記載の硬化性樹脂組成物。
【請求項６】
（Ａ）成分として（ａ－３）が選ばれ、該共重合ポリエステルが１０℃～４０℃のガラス転移温度を有する請求項１又は２に記載の硬化性樹脂組成物。
【請求項７】
（Ｂ）成分が、炭素数２～８個のフルオロアルキル基をエステル残基に持つ（メタ）アクリル酸エステルであることを特徴とする請求項１～６のいずれか１項に記載の硬化性樹脂組成物。
【請求項８】
（Ｅ）成分として、エポキシ基及び／又は（メタ）アクリル基を有するシランカップリング剤を更に含有する請求項１～７のいずれか１項に記載の硬化性樹脂組成物。
【請求項９】
（Ｃ）成分が光重合開始剤である請求項１～８のいずれか１項に記載の硬化性樹脂組成物。
【請求項１０】
（Ｃ）成分が過酸化物である請求項１～８のいずれか１項に記載の硬化性樹脂組成物。
【請求項１１】
更に、（Ｆ）成分として還元剤を含有してなる請求項１０に記載の硬化性樹脂組成物。
【請求項１２】
第一剤が少なくとも（Ｃ）過酸化物を含有してなり、第二剤が少なくとも（Ｆ）還元剤を含有してなる二剤型硬化性樹脂組成物である請求項１１に記載の硬化性樹脂組成物。
【請求項１３】
請求項１～１２のいずれか１項に記載の硬化性樹脂組成物からなる接着剤組成物。
【請求項１４】
請求項１３に記載の接着剤組成物の硬化体。
【請求項１５】
請求項１４に記載の硬化体により被着体が被覆又は接合された複合体。
【請求項１６】
請求項１５に記載の複合体の被着体がフッ素系ポリマー、汎用プラスチック樹脂、ガラス、及び金属からなる群から選ばれる１種以上である複合体。
【請求項１７】
請求項１３に記載の接着剤組成物で各フィルム層が貼り合わされた太陽電池用のバックシート。
【請求項１８】
請求項１３に記載の接着剤組成物で各フィルム層が貼り合わされた太陽電池用のフロントシート。
【請求項１９】
請求項１７に記載のバックシートを用いた太陽電池モジュール。
【請求項２０】
請求項１８に記載のフロントシートを用いた太陽電池モジュール。
【発明の詳細な説明】
【技術分野】
【０００１】

本発明は、硬化性樹脂組成物に関する。例えば、光硬化性或いは常温硬化性の、フッ素ポリマーに対して高い接着力を示し、耐熱性や耐光性の高い硬化性樹脂組成物とそれを用いた接着剤組成物、及びそれにより被覆乃至接合された複合体、更に当該接着剤組成物で各フィルム層が貼り合わされた太陽電池用のバックシート及びフロントシートに関する。

【背景技術】

【０００２】

半導体Ｐ－Ｎ接合ダイオード等の光起電力効果を利用して、太陽光のエネルギーを電気エネルギーに変換する太陽電池は、深刻化する地球環境問題等を背景として、クリーンなエネルギー源として注目されている。

【０００３】

従来の太陽電池モジュールの裏面保護シート（ バックシート） としては、耐久性（屋外使用での劣化耐性）やバリア性（水蒸気やガスバリア）を付与するために、（ａ）フッ素系のフィルムを表面に用いる、（ｂ）アルミニウム箔を中間層に用いる、という構成のものが多い。一方価格や環境に配慮した構成としてポリエチレンテレフタレートフィルムを用いた構成のバックシートもある。

【０００４】

これらの材料を用いてバックシートを製造する際に各種フィルムを貼り合わせるのに、特許文献１に開示されているように、ウレタン系接着剤が用いられる。ウレタン系接着剤を用いて作られたバックシートは接着耐久性（耐加水分解性、耐熱性、耐光性）に問題があり、長時間の使用に適さないものがある。ウレタン系接着剤は、溶剤を使用するものが多く、人体に有害である上、溶剤の揮発に時間がかかり、作業性・生産性に問題が多い。

【先行技術文献】

【特許文献】

【０００５】

【特許文献１】特開２００７－２６６３８２号公報

【０００６】

バックシートで用いられる各種フィルム材料は前述のようにフッ素系ポリマーやポリエチレンテレフタレート等、難接着性材料が多く用いられるため、ウレタン系接着剤の前述の問題を回避するべく他の接着剤でこれを代替しようとしても、十分な接着強さが発現しない等の問題が生じてしまい、代替接着剤を見出すことはこれまで困難であった。

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【０００７】

本発明は、太陽電池モジュールのバックシートに用いられる接着剤に関する以上のような問題に鑑みてなされたものである。

【課題を解決するための手段】

【０００８】

本発明者は、前記の課題を解決するべく鋭意研究を重ねた結果、本発明に至ったものである。

【０００９】

即ち、本発明は一側面において、下記（Ａ）～（Ｃ）成分を含有する硬化性樹脂組成物である。

（Ａ）成分は、（ａ－１）分子の末端又は側鎖に１個以上の（メタ）アクリロイル基を有し、かつ、ジエン系又は水素添加されたジエン系の骨格を有する重合体、（ａ－２）エラストマー、及び（ａ－３）共重合ポリエステルからなる群から選ばれる１種以上、

（Ｂ）成分は、フッ素を有する(メタ)アクリレート、

（Ｃ）成分は、重合開始剤。

【００１０】

本発明に係る硬化性樹脂組成物は一実施形態において、更に、（Ｄ）成分として、（Ａ）成分と（Ｂ）成分以外の(メタ)アクリレートを含有する。

【００１１】
本発明に係る硬化性樹脂組成物は一実施形態において、更に、（Ｅ）成分として、シランカップリング剤を含有する。
【００１２】
本発明に係る硬化性樹脂組成物は一実施形態において、（Ａ）成分として（ａ－１）が選ばれ、ジエン系又は水素添加されたジエン系の骨格が、ポリブタジエン、ポリイソプレン、ポリブタジエンの水素添加物、及びポリイソプレンの水素添加物からなる群から選ばれる１種以上の骨格である。
【００１３】
本発明に係る硬化性樹脂組成物は一実施形態において、（Ａ）成分として（ａ－１）が選ばれ、該重合体の数平均分子量が５００～５００００である。
【００１４】
本発明に係る硬化性樹脂組成物は一実施形態において、（Ａ）成分として（ａ－２）が選ばれ、該エラストマーがジエン系共重合体である。
【００１５】
本発明に係る硬化性樹脂組成物は一実施形態において、（Ａ）成分として（ａ－３）が選ばれ、該（ａ－３）共重合ポリエステルが－２０℃～９０℃のガラス転移温度を有する。
【００１６】
本発明に係る硬化性樹脂組成物は一実施形態において、（Ｂ）成分が、炭素数２～８個のフルオロアルキル基をエステル残基に持つ（メタ）アクリル酸エステルである。
【００１７】
本発明に係る硬化性樹脂組成物は一実施形態において、（Ｄ）成分が、フェノキシエチル（メタ）アクリレート、フェノキシジエチレングリコール（メタ）アクリレート、フェノキシテトラエチレングリコール（メタ）アクリレート、フェノキシポリエチレングリコール（メタ）アクリレート、ヘキサヒドロフタルイミドエチル（メタ）アクリレート、及びエチル（メタ）アクリレートからなる群から選ばれる１種以上である。
【００１８】
本発明に係る硬化性樹脂組成物は一実施形態において、（Ｅ）成分が、エポキシ基及び／又は（メタ）アクリル基を有するシランカップリング剤である。
【００１９】
本発明に係る硬化性樹脂組成物は一実施形態において、（Ｃ）成分が光重合開始剤である。
【００２０】
本発明に係る硬化性樹脂組成物は一実施形態において、（Ｃ）成分が過酸化物である。
【００２１】
本発明に係る硬化性樹脂組成物は一実施形態において、更に（Ｆ）成分として還元剤を含有してなる。
【００２２】
本発明に係る硬化性樹脂組成物は一実施形態において、二剤型硬化性樹脂組成物であり、第一剤が少なくとも（Ｃ）過酸化物を含有してなり、第二剤が少なくとも（Ｆ）還元剤を含有してなる。
【００２３】
本発明は別の一側面において、本発明に係る硬化性樹脂組成物からなる接着剤組成物である。
【００２４】
本発明は別の一側面において、本発明に係る接着剤組成物の硬化体である。
【００２５】
本発明は別の一側面において、本発明に係る硬化体により被着体が被覆又は接合された複合体である。

【００２６】
本発明に係る複合体は一実施形態において、該複合体の被着体がフッ素系ポリマー、汎用プラスチック樹脂、ガラス、及び金属からなる群から選ばれる１種以上である。
【００２７】
本発明は一側面において、本発明に係る接着剤組成物で各フィルム層が貼り合わされた太陽電池用のバックシートである。
【００２８】
本発明は一側面において、本発明に係る接着剤組成物で各フィルム層が貼り合わされた太陽電池用のフロントシートである。
【００２９】
本発明は一側面において、本発明に係るバックシートを用いた太陽電池モジュールである。
【００３０】
本発明は一側面において、本発明に係るフロントシートを用いた太陽電池モジュールである。
【発明の効果】
【００３１】
本発明の硬化性樹脂組成物は、高い接着強度を示す。
【図面の簡単な説明】
【００３２】
【図１】本発明のバックシートの層構成の一実施例を示す、断面説明図である。
【図２】本発明のバックシートを用いて作製した太陽電池モジュールの一実施例を示す、断面説明図である。
【発明を実施するための形態】
【００３３】
本発明の（Ａ）成分は、（ａ－１）分子の末端又は側鎖に１個以上の（メタ）アクリロイル基を有し、かつジエン系又は水素添加されたジエン系の骨格を有する重合体、（ａ－２）エラストマー、及び（ａ－３）共重合ポリエステルからなる群から選ばれる１種以上である。
【００３４】
本発明の（ａ－１）成分の重合体の主鎖骨格は、ジエン系又は水素添加されたジエン系の骨格である。ジエン系又は水素添加されたジエン系の骨格としては、ポリブタジエン、ポリイソプレン、ポリブタジエンの水素添加物、及びポリイソプレンの水素添加物からなる群から選ばれる１種以上の骨格が挙げられる。これらの中では、ポリブタジエン及びポリブタジエンの水素添加物からなる群から選ばれる１種以上が好ましく、ポリブタジエンがより好ましい。
【００３５】
（ａ－１）成分の重合体は、上記主鎖骨格の末端又は側鎖に１個以上の（メタ）アクリロイル基を有する。中でも主鎖骨格の両末端に（メタ）アクリロイル基を有するものが好ましい。
【００３６】
（ａ－１）成分の重合体は数平均分子量が５００～５００００が好ましく、８０００～４５０００がより好ましい。数平均分子量が５００以上だと、本発明の硬化性樹脂組成物にエネルギー線を照射して得られる硬化体の硬度が高いので接着剤層を形成しやすくなる。数平均分子量が５００００以下だと、得られる硬化性樹脂組成物の粘度が小さいので、製造過程での混合等における作業性や実用用途において当該硬化性樹脂組成物を用いる際の作業性が良好である。
【００３７】
（ａ－１）成分としては、クラレ社製「ＵＣ－２０３」（イソプレン重合物の無水マレイン酸付加物と２-ヒドロキシエチルメタクリレートとのエステル化物オリゴマー）、日

本曹達社製「ＴＥＡＩ－１０００」（水素添加１，２－ポリブタジエン末端ウレタンメタクリレート）、日本曹達社製「ＴＥ－２０００」（１,２－ポリブタジエン末端ウレタンメタクリレート）等が挙げられる。

【００３８】

本発明の（ａ－２）成分のエラストマーとは、常温でゴム状弾性を有する高分子物質をいい、（メタ）アクリレートに溶解又は分散できるものが好ましい。エラストマーの使用により、硬化樹脂に強靱さを付与することが可能となり、剥離接着強さ、衝撃接着強さの更なる向上が可能となるほか、特に低温時に発生する接着剤の脆性破壊を防止することができる。（ａ－２）成分は、（ａ－１）成分以外の成分や（ａ－３）成分以外の成分をいう。

【００３９】

（ａ－２）成分のエラストマーとしては、アクリロニトリル－ブタジエンゴム、スチレン－ブタジエンゴム、クロロプレンゴム及びブタジエンゴム等の各種合成ゴム、天然ゴム、スチレン－ブタジエン－スチレン系ブロック共重合体といったスチレン系熱可塑性エラストマー、カプロラクトン型、アジペート型及びＰＴＭＧ型といったウレタン系熱可塑性エラストマー、ポリブチレンテレフタレート－ポリテトラメチレングリコールマルチブロックポリマーといったポリエステル系熱可塑性エラストマー、並びにポリアミド系熱可塑性エラストマー、１，２－ポリブタジエン系熱可塑性エラストマー、塩ビ系熱可塑性エラストマー、オレフィン系熱可塑性エラストマー、又、（メタ）アクリル酸エステル系のブロック共重合体からなるエラストマー等が挙げられる。これらのエラストマー成分は相溶性が良ければ、１種又は２種以上を使用してもよい。

【００４０】

これらの中では、（メタ）アクリレートに対する溶解性が良好であり、剥離接着強さ、衝撃接着強を向上させる効果が大きい点で、ジエン系共重合体が好ましく、アクリロニトリル－ブタジエンゴムがより好ましい。

【００４１】

本発明の（ａ－３）成分の共重合ポリエステルは、結晶性でも非晶性でも制限はないが、非晶性の共重合ポリエステルが好ましい。

【００４２】

本発明の（ａ－３）成分の共重合ポリエステルのガラス転移温度（Ｔｇ）は、被着体に対する良好な接着強度を発現する点で、－２０～９０℃が好ましく、０～６０℃がより好ましく、１０～４０℃が最も好ましい。

【００４３】

ガラス転移温度の測定方法としては特に限定はないが、一般に熱重量測定、示差走査熱量測定、示差熱測定、示差熱分析、動的粘弾性測定より算出されたガラス転移温度等が挙げられる。実施例では、示差熱分析によりガラス転移温度を測定した。

【００４４】

本発明の（ａ－３）成分の共重合ポリエステルの数平均分子量は、２０００以上が好ましく、４０００以上がより好ましい。又、本発明の（ａ－３）成分の共重合ポリエステルの数平均分子量は、４００００以下が好ましく、３０，０００以下がより好ましい。数平均分子量が２０００以上だと凝集力が大きくなり、接着強度が大きくなる傾向がある。数平均分子量が４０，０００以下だと硬化性樹脂組成物の粘度が低くなり、基材への塗布が容易になる傾向がある。

【００４５】

本発明の（Ｂ）成分は、フッ素を有する(メタ)アクリレートである。（メタ）アクリレートの分子構造のいずれかの箇所にフッ素原子が存在していれば、フッ素の導入位置について制約はない。例えば、フルオロアルキル基をエステル残基に持つ（メタ）アクリル酸エステル等で構わない。フッ素を有する（メタ）アクリレートとしては、（メタ）アクリロイル基を１個有する単官能（メタ）アクリレート、（メタ）アクリロイル基を２個有する多官能（メタ）アクリレートが挙げられる。なお（メタ）アクリロイル基を２個以上有

する多官能（メタ）アクリレートとしては、例えば特開２００７－２４６６９６公報に記載される（メタ）アクリロイル基を２個以上有する重合型フッ素系界面活性剤などが挙げられ、具体的にはパーフルオロアルキル基・親油性基含有オリゴマー（ＤＩＣ社製「ＲＳ－７５」）等を用いることができる。

【００４６】

フッ素を有する単官能（メタ）アクリレートとしては、２，２，２－トリフルオロエチル（メタ）アクリレート、２，２，３，３－テトラフルオロプロピル（メタ）アクリレート、２，２，２，３，３－ペンタフルオロプロピル（メタ）アクリレート、２－（パーフルオロブチル）エチル（メタ）アクリレート、２－（パーフルオロブチル）２－ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート、２－（パーフルオロヘキシル）エチル（メタ）アクリレート、２－（パーフルオロヘキシル）２－ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート、２－（パーフルオロオクチル）エチル（メタ）アクリレート、１Ｈ,１Ｈ,３Ｈ－パーフルオロプロピル（メタ）アクリレート、２－（パーフルオロブチル）エチル（メタ）アクリレート、１Ｈ,１Ｈ,５Ｈオクタフルオロペンチル（メタ）アクリレート、１Ｈ,１Ｈ,７Ｈドデカフルオロヘプチル（メタ）アクリレート、１Ｈ－１－（トリフルオロメチル）トリフルオロメチル（メタ）アクリレート、１Ｈ,１Ｈ,３Ｈ－ヘキサフルオロブチル（メタ）アクリレート、３－（パーフルオロ－３－メチルブチル）－２－ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート等が挙げられる。これらの中では、２，２，２－トリフルオロエチル（メタ）アクリレート、２，２，３，３－テトラフルオロプロピル（メタ）アクリレート、２，２，２，３，３－ペンタフルオロプロピル（メタ）アクリレート、１Ｈ,１Ｈ,５Ｈオクタフルオロペンチルアクリレート、２－（パーフルオロヘキシル）エチル（メタ）アクリレート、及び２－（パーフルオロオクチル）エチルアクリレート等のような、炭素数２～８のフルオロアルキル基をエステル残基に有する（メタ）アクリル酸エステルが好ましく、２，２，２－トリフルオロエチル（メタ）アクリレート、２，２，３，３－テトラフルオロプロピル（メタ）アクリレート、２－（パーフルオロヘキシル）エチル（メタ）アクリレート、及び２，２，２，３，３－ペンタフルオロプロピル（メタ）アクリレート等のような、炭素数２～３のフルオロアルキル基をエステル残基に有する（メタ）アクリル酸エステルがより好ましく、２，２，２－トリフルオロエチル（メタ）アクリレートが最も好ましい。

【００４７】

（Ａ）成分と（Ｂ）成分の割合は、（Ａ）成分と（Ｂ）成分の合計１００質量部中、（Ａ）成分：（Ｂ）成分＝３～９９．９９質量部：０．０１～９７質量部が好ましく、３０～９９質量部：１～７０質量部が更に好ましく、４０～９５質量部：５～６０質量部がより好ましく、４５～９０質量部：１０～５５質量部が最も好ましい。

【００４８】

本発明の（Ｃ）成分は、重合開始剤である。重合開始剤としては、（Ｂ）成分のフッ素を有する(メタ)アクリレートの重合を開始させるものであれば特に制限はない。これらの中では、光重合開始剤及び／又は過酸化物が好ましい。

【００４９】

光重合開始剤としては、紫外線重合開始剤や可視光重合開始剤等が挙げられる。紫外線重合開始剤としては、ベンゾイン系、ベンゾフェノン系、アセトフェノン系等が挙げられる。可視光重合開始剤としては、アシルホスフィンオキサイド系、チオキサントン系、メタロセン系、キノン系、α－アミノアルキルフェノン系等が挙げられる。

【００５０】

光重合開始剤としては、ベンゾフェノン、４－フェニルベンゾフェノン、ベンゾイル安息香酸、２，２－ジエトキシアセトフェノン、ビスジエチルアミノベンゾフェノン、ベンジル，ベンゾイン、ベンゾイルイソプロピルエーテル、ベンジルジメチルケタール、１－ヒドロキシシクロヘキシルフェニルケトン、チオキサントン、２－メチルチオキサントン、２，４－ジメチルチオキサントン、イソプロピルチオキサントン、２，４－ジエ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、１－（４－イソプロピルフェニ

ル）２－ヒドロキシ－２－メチルプロパン－１－オン、１－（４－（２－ヒドロキシエトキシ）－フェニル）－２－ヒドロキシ－２－メチル－１－プロパン－１－オン、２－ヒドロキシ－２－メチル－１－フェニルプロパン－１－オン、カンファーキノン、２，４，６－トリメチルベンゾイルジフェニルホスフィンオキサイド、ビス（２，４，６－トリメチルベンゾイル）－フェニルホスフィンオキサイド、２－メチル－１－（４－（メチルチオ）フェニル）－２－モルフォリノプロパン－１－オン、２－ベンジル－２-ジメチルアミノ－１－（４－モルフォリノフェニル）－１－ブタノン－１、２－ジメチルアミノ－２－（４－メチル－ベンジル）－１－（４－モリフォリン－４－イル－フェニル）－ブタン－１－オン、ビス（２，６－ジメトキシベンゾイル）－２，４，４－トリメチル－ペンチルホスフィンオキサイド等が挙げられる。これらの中では、ベンジルジメチルケタールが好ましい。

【００５１】

本発明の過酸化物としては、有機過酸化物が好ましい。有機過酸化物としては、クメンハイドロパーオキサイド、パラメンタンハイドロパーオキサイド、ターシャリーブチルハイドロパーオキサイド、ジイソプロピルベンゼンジハイドロパーオキサイド、メチルエチルケトンパーオキサイド、ベンゾイルパーオキサイド及びターシャリーブチルパーオキシベンゾエート等が挙げられる。これらの中では、反応性の点で、クメンハイドロパーオキサイドが好ましい。

【００５２】

（Ｃ）成分の使用量は、（Ａ）成分、（Ｂ）成分及び必要に応じて使用する（Ｄ）成分の合計１００質量部に対して、０．０５～１０質量部が好ましく、０．５～７質量部がより好ましい。この使用量により、高い接着強さを有する。

【００５３】

本発明において重合開始剤として過酸化物を用いる場合、後述するように、本発明の硬化性樹脂組成物は、二剤の内の一方に過酸化物を、他方に還元剤を含有させ、その他の成分は適宜二剤に配合することにより、二剤型の硬化性樹脂組成物として使用することができる。この場合、二剤型の一剤中の過酸化物の使用量は、上記質量部の倍量となる。

【００５４】

本発明の硬化性樹脂組成物は、接着性を一層向上させることを目的に、（Ｄ）成分として、（Ａ）成分と（Ｂ）成分以外の(メタ)アクリレートを含有することができる。（Ａ）成分と（Ｂ）成分以外の(メタ)アクリレートとしては、単官能（メタ）アクリレート、二官能以上の多官能（メタ）アクリレート等が挙げられる。これらの中では、単官能（メタ）アクリレートが好ましい。

【００５５】

本発明の（Ｄ）成分として用いられる（メタ）アクリレートの中で、単官能モノマーとしては、メチル（メタ）アクリレート、エチル（メタ）アクリレート、プロピル（メタ）アクリレート、ブチル（メタ）アクリレート、アミル（メタ）アクリレート、ヘキシル（メタ）アクリレート、ヘプチル（メタ）アクリレート、２－エチルヘキシル（メタ）アクリレート、イソオクチル（メタ）アクリレート、イソノニル（メタ）アクリレート、イソデシル（メタ）アクリレート、ドデシル（メタ）アクリレート、ラウリル（メタ）アクリレート、トリデシル（メタ）アクリレート、テトラデシル（メタ）アクリレート、ペンタデシル（メタ）アクリレート、ヘキサデシル（メタ）アクリレート、ヘプタデシル（メタ）アクリレート、オクタデシル（メタ）アクリレート、ノナデシル（メタ）アクリレート、エイコデシル（メタ）アクリレート等の炭素数が１～２０の直鎖又は分岐のアルキル基を有する（メタ）アクリレート、ジシクロペンテニルオキシエチル（メタ）アクリレート、ジシクロペンテニルオキシプロピル（メタ）アクリレート、ジシクロペンテニル（メタ）アクリレート等のジシクロペンテニル基を有する(メタ)アクリレート、ヘキサヒドロフタルイミドエチル（メタ）アクリレート（例えば、製品名：Ｍ－１４０、東亞合成社製）、ヘキサヒドロフタルイミドプロピレン（メタ）アクリレート等のヘキサヒドロフタルイミドアクリル（メタ）アクリレート、テトラヒドロフタルイミドエチル（メタ）アクリレ

ート等のテトラヒドロフタルイミドアルキル（メタ）アクリレートのような環状イミド基を有する（メタ）アクリレートを初めとする（メタ）アクリレート、２－ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート、２－ヒドロキシプロピル（メタ）アクリレート、ラウリル（メタ）アクリレート、ステアリル（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、カプロラクトン変性テトラヒドロフルフリル（メタ）アクリレート、シクロヘキシル（メタ）アクリレート、ジシクロペンタニル（メタ）アクリレート、イソボルニル（メタ）アクリレート、ベンジル（メタ）アクリレート、フェニル（メタ）アクリレート、フェノキシエチル（メタ）アクリレート、フェノキシジエチレングリコール（メタ）アクリレート、フェノキシテトラエチレングリコール（メタ）アクリレート、フェノキシポリエチレングリコール（メタ）アクリレート、ノニルフェノキシエチル（メタ）アクリレート、ノニルフェノキシテトラエチレングリコール（メタ）アクリレート、メトキシジエチレングリコール（メタ）アクリレート、エトキシジエチレングリコール（メタ）アクリレート、ブトキシエチル（メタ）アクリレート、ブトキシトリエチレングリコール（メタ）アクリレート、２－エチルヘキシルポリエチレングリコール（メタ）アクリレート、ノニルフェニルポリプロピレングリコール（メタ）アクリレート、メトキシジプロピレングリコール（メタ）アクリレート、グリシジル（メタ）アクリレート、グリセロール（メタ）アクリレート、ポリエチレングリコール（メタ）アクリレート、ポリプロピレングリコール（メタ）アクリレート、エピクロロヒドリン（以下ＥＣＨと略記）変性ブチル（メタ）アクリレート、ＥＣＨ変性フェノキシ（メタ）アクリレート、エチレンオキサイド（以下ＥＯと略記）変性フタル酸（メタ）アクリレート、ＥＯ変性コハク酸（メタ）アクリレート、カプロラクトン変性２－ヒドロキシエチル（メタ）アクリレート、Ｎ，Ｎ－ジメチルアミノエチル（メタ）アクリレート、Ｎ，Ｎ－ジエチルアミノエチル（メタ）アクリレート、モルホリノ（メタ）アクリレート、ＥＯ変性リン酸（メタ）アクリレート等が挙げられる。

【００５６】

本発明の（Ｄ）成分として用いられる（メタ）アクリレートとしては、（Ａ）成分や（Ｂ）成分との混合特性が優れる点で、及び、ポリエチレンテレフタレート等のポリエステル系基材への密着性を一層向上させることができる点で、単官能（メタ）アクリレートが好ましく、フェノキシエチル（メタ）アクリレート、フェノキシジエチレングリコール（メタ）アクリレート、フェノキシテトラエチレングリコール（メタ）アクリレート、フェノキシポリエチレングリコール（メタ）アクリレート、ヘキサヒドロフタルイミドエチル（メタ）アクリレート、及びエチル（メタ）アクリレートからなる群のうちの１種又は２種以上がより好ましい。

【００５７】

本発明の硬化性樹脂組成物において（Ｄ）成分を含有する場合、（Ｄ）成分の使用量は、（Ａ）成分と（Ｂ）成分と（Ｄ）成分の合計１００質量部中、（Ａ）成分３～６５質量部、（Ｂ）成分０．０１～４５質量部、（Ｄ）成分１～８５質量部が好ましく、（Ａ）成分５～６０質量部、（Ｂ）成分５～４０質量部、（Ｄ）成分３～８０質量部がより好ましく、（Ａ）成分１０～５５質量部、（Ｂ）成分１０～３５質量部、（Ｄ）成分７～７５質量部が最も好ましい。

（Ｄ）成分の使用量をこの範囲にすることにより、高い接着強さを有する。

【００５８】

この他に粘度や流動性を調整する目的で、高分子、微粉末シリカ、パラフィン類、重合禁止剤、酸化防止剤、可塑剤、充填剤、着色剤、防錆剤等も使用することができる。

【００５９】

本発明では、更に、（Ｅ）成分としてシランカップリング剤を用いることができる。シランカップリング剤としては、β－（３，４－エポキシシクロヘキシル）エチルトリメトキシシラン、γ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン等のエポキシ基を有するシランカップリング剤、γ－（メタ）アクリロキシプロピルトリメトキシシラン等の（メタ）アクリル基を有するシランカップリング剤、γ－クロロプロピルトリメトキシシラン、ビ

ニルトリメトキシシラン、ビニルトリクロルシラン、ビニルトリエトキシシラン、ビニル－トリス（β－メトキシエトキシ）シラン、γ－メルカプトプロピルトリメトキシシラン、γ－アミノプロピルトリエトキシシラン、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－ユレイドプロピルトリエトキシシラン等が挙げられる。これらの中では、接着耐久性の向上効果の点で、エポキシ基及び／又は（メタ）アクリル基を有するシランカップリング剤が好ましい。

【００６０】

本発明の硬化性樹脂組成物において（Ｅ）成分を含有する場合、（Ｅ）成分の使用量は、（Ａ）成分、（Ｂ）成分及び必要に応じて使用する（Ｄ）成分の合計１００質量部に対して、０．１～１５質量部が好ましく、０．３～５質量部がより好ましい。

【００６１】

本発明の（Ｃ）成分の重合開始剤として過酸化物を用いる場合、（Ｆ）成分として還元剤を併用することが可能である。

【００６２】

本発明の還元剤としては、トリメチルチオ尿素、エチレンチオ尿素等のチオアミド化合物、ナフテン酸コバルト、ナフテン酸銅、バナジルアセチルアセトネート、オクテン酸コバルト、オクチル酸コバルト、銅アセチルアセトネート等の遷移金属塩が挙げられる。又、これらの１種又は２種以上を使用することも可能である。これらの中では、遷移金属塩が好ましく、オクチル酸コバルトがより好ましい。

【００６３】

（Ｆ）成分の還元剤の使用量は、（Ａ）成分、（Ｂ）成分及び必要に応じて使用する（Ｄ）成分の合計１００質量部に対して０．１～１０質量部が好ましく、０．１５～５質量部がより好ましい。０．１質量部以上だと重合反応が充分に進行するため接着強さが大きくなり、１０質量部以下だと副反応を誘起せず、接着強さが大きくなる。尚、上記使用量は、（Ａ）成分、（Ｂ）成分及び（Ｄ）成分に対する使用量であり、二剤型の一剤の使用量とした場合には、上記質量部の倍量となる。

【００６４】

本発明の実施態様として、常温硬化性の二剤型接着剤組成物として本発明の硬化性樹脂組成物を使用する場合、二剤型の硬化性樹脂組成物として使用することが好ましい。即ち、本発明の硬化性樹脂組成物の必須成分は、二剤の内の一方に過酸化物を、他方に還元剤を含有させ、その他の成分は、適宜二剤に配合することができる。そして、接着剤として使用直前に両剤を接触させ、硬化することにより、使用できる。

【００６５】

本発明の硬化性樹脂組成物は、接着剤組成物として使用できる。接着剤組成物の硬化体は、例えば、ポリエチレンテレフタレート、ポリカーボネート、ポリオレフィン等の汎用プラスチック樹脂、フッ素系ポリマー、ガラス、及び金属といった被着体に対して、高い接着強さを示し、フッ素系ポリマーに対して、より高い接着強さを示す。

【００６６】

本発明の被着体としてのフッ素系ポリマーとしては、例えば、ポリテトラフルオロエチレン、ポリフッ化ビニリデン、ポリビニルフルオライド、テトラフルオロエチレン-パーフルオロアルキルビニルエーテル共重合体、テトラフルオロエチレン－ヘキサフルオロプロピレン共重合体、テトラフルオロエチレン－ヘキサフルオロプロピレン－パーフルオロアルキルビニルエーテル共重合体、テトラフルオロエチレン－エチレン共重合体、ポリクロロトリフルオロエチレン、クロロトリフルオロエチレン－エチレン共重合体等のようなフッ素を含有するポリマーが挙げられる。尚、これらのフッ素を含有するポリマーとフッ素を含有しないポリマーとのポリマーブレンドも本発明のフッ素系ポリマーの範疇に入る。例えば、ポリフッ化ビニリデンとポリメチルメタクリレートのポリマーブレンドも本発明のフッ素系ポリマーに該当する。

【００６７】

又、本発明の被着体としてのポリエステルとしては、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート等が挙げられる。本発明の被着体としてのポリカーボネートとしては、ビスフェノールＡ－ポリカーボネート等が挙げられる。

【００６８】

尚、本発明の被着体はそのまま用いても構わないし、必要に応じて、コロナ放電処理、プラズマ処理、各種薬品による湿式処理、サンドブラスト処理等の表面処理を施しても構わない。表面処理をした方が、接着性が良好になる場合が多い点で、好ましい。表面処理の方法としては、コロナ放電処理が好ましい。

【実施例】

【００６９】

以下に、実験例をあげて、本発明を更に詳細に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。尚、実験例に記載の硬化性樹脂組成物中の各成分としては、以下の化合物を選択した。

【００７０】

（実験例１～１５）

表１に示す種類の原材料を表１に示す組成で混合して硬化性樹脂組成物を調製した。得られた組成物について、各種物性の測定を実施した。それらの結果を表１に示す。

【００７１】

（使用材料）

（Ａ）成分の

分子の末端又は側鎖に１個以上の（メタ）アクリロイル基を有し、かつ、ジエン系又は水素添加されたジエン系の骨格を有する重合体として、

（Ａ－１）１，２－ポリブタジエン末端ウレタンメタクリレート（日本曹達社製「ＴＥ－２０００」）(ＧＰＣによるポリスチレン換算の数平均分子量２０００)

エラストマーとして、

（Ａ－２）アクリロニトリルブタジエンゴム（ＮＢＲ）（日本ゼオン社製「Ｎ－２２０ＳＨ」）(ムーニー粘度４１)

及び共重合ポリエステルとして、

（Ａ－３）ガラス転移温度１５℃の非晶性の共重合ポリエステル（東洋紡績製「バイロンＧＫ－５９０」）（ＧＰＣによるポリスチレン換算の数平均分子量７０００、ガラス転移温度は示差熱分析により測定）

（Ｂ）成分の、フッ素を含有する（メタ）アクリレートとして、

（Ｂ－１）２，２，２－トリフルオロエチルメタクリレート(大阪有機化学工業社製「Ｖ－３ＦＭ」)

（Ｂ－２）２－(パーフルオロブチル)エチルアクリレート（ユニマテック株式会社「ＣＨＥＭＮＯＸ　ＦＡＡＣ－４」）

（Ｂ－３）パーフルオロアルキル基・親油性基含有オリゴマー（ＤＩＣ社製「ＲＳ－７５」）

（Ｂ－４）２－（パーフルオロヘキシル）エチルメタクリレート(ダイキン化成品販売社製「Ｍ－１６２０」)

（Ｃ）成分の光重合開始剤として、

（Ｃ－１）ベンジルジメチルケタール

（Ｄ）成分の（メタ）アクリレートとして、

（Ｄ－１）フェノキシエチルメタクリレート（共栄社化学社製「ＰＯ」）

（Ｄ－２）フェノキシエチルアクリレート（共栄社化学社製「ＰＯ－Ａ」）

（Ｄ－３）フェノキシポリエチレングリコールアクリレート（共栄社化学社製「Ｐ－２００Ａ」）

（Ｄ－４）ヘキサヒドロフタルイミドエチルアクリレート（東亞合成社製「Ｍ－１４０」）

（Ｄ－５）エチルメタクリレート（共栄社化学社製「ライトエステルＥ」）

（Ｅ）成分のシランカップリング剤として、
（Ｅ－１）γ－メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン
（Ｅ－２）γ－グリシドキシプロピルトリメトキシシラン
【００７２】
各種物性は、次のように測定した。
【００７３】
〔光硬化性〕温度２３℃で測定した。光硬化性に関しては、ポリフッ化ビニリデン樹脂とポリメチルメタクリレート樹脂の８：２混合物（比は質量比）のフッ素系樹脂フィルム（デンカＤＸフィルム、平均厚さ５０μｍ、電気化学工業社製）（縦５０ｍｍ×横１０ｍｍ×厚さ０．０５ｍｍ）の表面に硬化性樹脂組成物を厚さ０．０３ｍｍになるように塗布した。その後、無電極放電ランプを使用したフュージョン社製硬化装置を用い、波長３６５ｎｍのＵＶ光を積算光量２０００ｍＪ／ｃｍ^{2}の条件にて１５秒間照射し、硬化させた。尚、光硬化性の評価は次の通り。これはＦＩ－ＩＲ(ＳＨＩＭＡＺＵ社製「ＦＴＩＲ８２００ＰＣ」)を使用して、前記硬化フィルムを表面分析し、Ｃ＝Ｃ二重結合の消失率から、反応率（硬化率）を算出した。
【００７４】
〔フッ素系ポリマー接着性評価（フッ素系ポリマー試験片間の剥離接着強さ）〕ポリフッ化ビニリデン樹脂とポリメチルメタクリレート樹脂の８：２混合物（比は質量比）のフッ素系樹脂フィルム（デンカＤＸフィルム、平均厚さ５０μｍ、電気化学工業社製）の試験片（縦５０ｍｍ×横１０ｍｍ×厚さ０．０５ｍｍ）同士を、硬化性樹脂組成物を接着剤として用いて、接着層の厚さ３０μｍで接着面積を縦４０ｍｍ×横１０ｍｍとして接着させた。光照射による硬化後、接着剤で接着した該試験片の、密着されていない２箇所のフィルム端部を引っ張ることで、フィルム同士が密着された部分を剥離させて、初期の１８０°剥離接着強さを測定した。光照射条件は〔光硬化性〕に記載の方法に従った。尚、剥離接着強さ（単位：Ｎ／ｃｍ）は、引張試験器を用いて温度２３℃、湿度５０％の環境下で引張速度１０ｍｍ／分で測定した。
【００７５】
〔ポリエチレンテレフタレート（ＰＥＴ）接着性評価（ポリエチレンテレフタレート試験片間の剥離接着強さ）〕２軸延伸ＰＥＴフィルム（ルミラーＴ６０、平均厚さ１９０μｍ、東レ社製）の試験片（縦５０ｍｍ×横１０ｍｍ×厚さ０．０５ｍｍ）同士を、硬化性樹脂組成物を接着剤として用いて、接着層の厚さ３０μｍで接着面積を縦４０ｍｍ×横１０ｍｍとして接着させた。光照射による硬化後、接着剤で接着した該試験片の、密着されていない２箇所のフィルム端部を引っ張ることで、フィルム同士が密着された部分を剥離させて、初期の１８０°剥離接着強さを測定した。光照射条件は〔光硬化性〕に記載の方法に従った。尚、剥離接着強さ（単位：Ｎ／ｃｍ）は、引張試験器を用いて温度２３℃、湿度５０％の環境下で引張速度１０ｍｍ／分で測定した。
【００７６】
〔ガラス接着性評価（耐熱ガラス試験片間の引張接着強さ）〕耐熱ガラス試験片（２５ｍｍ×２５ｍｍ×２．０ｍｍ）同士を、厚さ８０μｍ×幅１１．５ｍｍ×長さ２５ｍｍのテフロン（登録商標）テープをスペーサーとして用い、硬化性樹脂組成物で接着させた（接着面積３．１２５ｃｍ^2）。光照射条件は〔光硬化性〕に記載の方法に従った。上記条件にて接着剤を硬化させた後、更に、試験片の両面に電気化学工業社製接着剤「Ｇ－５５」を使用し、亜鉛メッキ鋼板（縦１００ｍｍ×横２５ｍｍ×厚さ２．０ｍｍ、エンジニアリングテストサービス社製）を接着させた。硬化後、接着剤で接着した該試験片を用いて、亜鉛メッキ鋼板をチャックして、初期の引張剪断接着強さを測定した。尚、引っ張り剪断接着強さ（単位：ＭＰａ）は、引張試験器を用いて温度２３℃、湿度５０％の環境下で引張速度１０ｍｍ／分で測定した。
【００７７】
〔耐光性評価〕ポリフッ化ビニリデン樹脂とポリメチルメタクリレート樹脂の８：２混合物（比は質量比）のフッ素系樹脂フィルム（デンカＤＸフィルム、平均厚さ５０μｍ、電

気化学工業社製）の試験片（縦５０ｍｍ×横１０ｍｍ×厚さ０．０５ｍｍ）同士を、硬化性樹脂組成物を接着剤として用いて、接着層の厚さ３０μｍで接着面積を縦４０ｍｍ×横１０ｍｍとして接着させ硬化させた。光照射条件は〔光硬化性〕に記載の方法に従った。硬化後、接着剤で接着した該試験片を、紫外線劣化促進試験機（アイスーパーＵＶテスター　ＳＵＶ－Ｗ１３１、岩崎電気株式会社）で、ＵＶ照射量１００ｍＷ／ｃｍ^{2}で６０℃×５０％ＲＨ環境下で３０日間照射した。照射後の試験片を用いて、密着されていない２箇所のフィルム端部を引っ張ることで、フィルム同士が密着された部分を剥離させて、１８０°剥離接着強さを測定した。又、接着部位の外観を目視で観察し、黄変しているか否かを調べた。尚、剥離接着強さ（単位：Ｎ／ｃｍ）は、引張試験器を用いて温度２３℃、湿度５０％の環境下で引張速度１０ｍｍ／分で測定した。

【００７８】

〔耐熱性評価〕ポリフッ化ビニリデン樹脂とポリメチルメタクリレート樹脂の８：２混合物（比は質量比）のフッ素系樹脂フィルム（デンカＤＸフィルム、平均厚さ５０μｍ、電気化学工業社製）の試験片（縦５０ｍｍ×横１０ｍｍ×厚さ０．０５ｍｍ）同士を、硬化性樹脂組成物を接着剤として用いて、接着層の厚さ３０μｍで接着面積を縦４０ｍｍ×横１０ｍｍとして接着させ硬化させた。光照射条件は〔光硬化性〕に記載の方法に従った。硬化後、接着剤で接着した該試験片を、恒温恒湿槽を用いて、温度８５℃、湿度５％ＲＨの環境下に１０００時間暴露した。暴露後の試験片を用いて、密着されていない２箇所のフィルム端部を引っ張ることで、フィルム同士が密着された部分を剥離させて、１８０°剥離接着強さを測定した。又、接着部位の外観を目視で観察し、黄変しているか否かを調べた。尚、剥離接着強さ（単位：Ｎ／ｃｍ）は、引張試験器を用いて温度２３℃、湿度５０％の環境下で引張速度１０ｍｍ／分で測定した。

【００７９】

〔耐湿熱性評価〕ポリフッ化ビニリデン樹脂とポリメチルメタクリレート樹脂の８：２混合物（比は質量比）のフッ素系樹脂フィルム（デンカＤＸフィルム、平均厚さ５０μｍ、電気化学工業社製）の試験片（縦５０ｍｍ×横１０ｍｍ×厚さ０．０５ｍｍ）同士を、硬化性樹脂組成物を接着剤として用いて、接着層の厚さ３０μｍで接着面積を縦４０ｍｍ×横１０ｍｍとして接着させ硬化させた。光照射条件は〔光硬化性〕に記載の方法に従った。硬化後、接着剤で接着した該試験片を、恒温恒湿槽を用いて、温度８５℃、相対湿度８５％の環境下に１０００時間暴露した。暴露後の試験片を用いて、密着されていない２箇所のフィルム端部を引っ張ることで、フィルム同士が密着された部分を剥離させて、１８０°剥離接着強さを測定した。又、接着部位の外観を目視で観察し、黄変しているか否かを調べた。尚、剥離接着強さ（単位：Ｎ／ｃｍ）は、引張試験器を用いて温度２３℃、湿度５０％の環境下で引張速度１０ｍｍ／分で測定した。

〔外観観察（黄変度）〕テンパックスガラス（２５ｍｍ×２５ｍｍ×２ｍｍ）同士を、硬化性樹脂組成物を接着剤組成物として用いて、接着層の厚み１００μｍで接着面積を１．０ｍｍ^{2}として接着させ硬化させた。光照射条件は〔光硬化性〕に記載の方法に従った。硬化後、耐光性、耐熱性、又は耐湿熱性試験に暴露後の該試験片をカラー測定装置（ＳＨＩＭＡＤＺＵ社製「ＵＶ－ＶＩＳＩＢＬＥ　ＳＰＥＣＴＲＯＰＯＨＯＴＯＭＥＴＥＲ」にてΔｂ値を黄変度とした。

【００８０】

【表１－１】

			実験例1	実験例2	実験例3	実験例4	実験例5	実験例6	実験例7	実験例8	実験例9	実験例10
組成	質量部	A－1	97.0	97.0	97.0	97.0	50.0	50.0	50.0	50.0	50.0	15.0
		A－2										
		A－3										
		B－1	3.0	3.0			45.0	30.0	30.0	30.0	30.0	15.0
		B－2										
		B－3			3.0							
		B－4				3.0						
		C－1	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0
		D－1					5.0	20.0				70.0
		D－2							20.0			
		D－3								20.0		
		D－4									20.0	
		D－5										
		E－1		0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5
		E－2										
硬化特性		光硬化性	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
初期特性		硬化率(%)	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
	フッ素系ポリマー試験片間の剥離接着強さ	N/cm	3.4	3.5	3.5	3.5	2.5	2.0	2.2	2.5	2.4	2.3
	ポリエチレンテレフタレート試験片間の剥離接着強さ	N/cm	4.0	4.0	4.0	4.0	3.5	3.5	3.6	3.6	3.4	3.2
	耐熱ガラス試験片間の引張接着強さ	MPa	10.0	9.8	9.8	9.8	15.0	18.0	15.0	17.0	16.0	20.0
耐光性	紫外線暴露後の剥離接着強さ	N/cm	3.4	3.3	3.3	3.3	2.8	2.2	2.2	2.3	2.5	2.4
	黄変度	%	0.1	0.1	0.1	0.1	0.2	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1
	外観観察		黄変無し	黄変無し	黄変無し	黄変無し	黄変無し	黄変無し	黄変無し	黄変無し	黄変無し	黄変無し
耐熱性	高温暴露後のフッ素系ポリマー試験片間の剥離接着強さ	N/cm	3.0	3.2	3.2	3.2	3.0	2.5	2.1	2.4	2.4	2.4
	黄変度	%	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
	外観観察		黄変無し	黄変無し	黄変無し	黄変無し	黄変無し	黄変無し	黄変無し	黄変無し	黄変無し	黄変無し
耐湿熱性	高温高湿暴露後のフッ素系ポリマー試験片間の剥離接着強さ	N/cm	3.2	3.2	3.2	3.2	3.2	2.6	2.2	2.2	2.3	2.5
	黄変度	%	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0
	外観観察		黄変無し	黄変無し	黄変無し	黄変無し	黄変無し	黄変無し	黄変無し	黄変無し	黄変無し	黄変無し
備考			実施例	実施例	実施例	実施例	実施例	実施例	実施例	実施例	実施例	実施例

【表１－２】

			実験例11	実験例12	実験例13	実験例14	実験例15
組成	質量部	A－1		50.0	50.0	50.0	
		A－2					
		A－3	20.0				100.0
		B－1	30.0				
		B－2		50.0			
		B－3					
		B－4					
		C－1	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0
		D－1	50.0				
		D－2					
		D－3					
		D－4			50.0	50.0	
		D－5				0.5	0.5
		E－1	0.5				
		E－2					
硬化特性	光硬化性	硬化率(%)	100	100	70	70	70
初期特性	フッ素系ポリマー試験片間の剥離接着強さ	N/cm	2.5	3.5	0.1	0.1	0.1
	ポリエチレンテレフタレート試験片間の剥離接着強さ	N/cm	4.5	4.0	0.1	0.1	0.1
	耐熱ガラス試験片間の引張接着強さ	MPa	18.0	9.8	5.0	9.0	9.0
耐光性	紫外線暴露後の剥離接着強さ	N/cm	2.5	3.3	0	0	0
	黄変度	%	0.1	0.1	20	20	0.1
	外観観察		黄変無し	黄変無し	黄変	黄変	黄変無し
耐熱性	高温暴露後のフッ素系ポリマー試験片間の剥離接着強さ	N/cm	2.5	3.2	0	0	0
	黄変度	%	0.0	0.0	40	30	0.1
	外観観察		黄変無し	黄変無し	黄変	黄変	黄変無し
耐湿熱性	高温高湿暴露後のフッ素系ポリマー試験片間の剥離接着強さ	N/cm	2.5	2.3	0	0	0
	黄変度	%	0.0	0.0	40	30	0.1
	外観観察		黄変無し	黄変無し	黄変	黄変	黄変無し
備考			実施例	実施例	比較例	比較例	比較例

【００８１】

（実験例１６）

表２に示す種類の原材料を表２に示す組成で混合して二剤型の常温硬化性の硬化性樹脂組成物を調製した。尚、クメンハイドロパーオキサイドを配合した剤をＡ剤、オクチル酸コバルトを配合した剤をＢ剤とした。Ａ剤とＢ剤を質量で等量を採取して混合し、混合後直ちに各種試験片に塗布して、各種物性の測定を実施した。それらの結果を表２に示す。尚、各種物性は、次のように測定した。

【００８２】

（使用材料）

（Ｃ）成分の過酸化物として、

（Ｃ－２）クメンハイドロパーオキサイド（製品名：ＰＨ－８０、日本油脂製）

（Ｆ）成分の還元剤として、

（Ｆ－１）オクチル酸コバルト（製品名：Ｏｃｔ．Ｃｏ、神東塗料社製）

【００８３】

〔フッ素系ポリマー接着性評価（フッ素系ポリマー試験片間の剥離接着強さ）〕ポリフッ

化ビニリデン樹脂とポリメチルメタクリレート樹脂の８：２混合物（比は質量比）のフッ素系樹脂フィルム（デンカＤＸフィルム、平均厚さ５０μｍ、電気化学工業社製）の試験片（縦５０ｍｍ×横１０ｍｍ×厚さ０．０５ｍｍ）同士を、二剤型の常温硬化性の硬化性樹脂組成物を接着剤として用いて、接着層の厚さ３０μｍで接着面積を縦４０ｍｍ×横１０ｍｍとして貼り合わせた。接着剤はＡ剤とＢ剤を等質量採取して混合した剤を用い、温度２３℃で貼り合わせた試験片を２４時間放置することで硬化させた。その後、接着剤で接着した該試験片の、密着されていない２箇所のフィルム端部を引っ張ることで、フィルム同士が密着された部分を剥離させて、初期の１８０°剥離接着強さを測定した。尚、剥離接着強さ（単位：Ｎ／ｃｍ）は、引張試験器を用いて温度２３℃、湿度５０％の環境下で引張速度１０ｍｍ／分で測定した。

【００８４】

〔ポリエチレンテレフタレート（ＰＥＴ）接着性評価（ポリエチレンテレフタレート試験片間の剥離接着強さ）〕２軸延伸ＰＥＴフィルム（ルミラーＴ６０、平均厚さ１９０μｍ、東レ社製）の試験片（縦５０ｍｍ×横１０ｍｍ×厚さ０．０５ｍｍ）同士を、二剤型の常温硬化性の硬化性樹脂組成物を接着剤として用いて、接着層の厚さ３０μｍで接着面積を縦４０ｍｍ×横１０ｍｍとして貼り合わせた。接着剤はＡ剤とＢ剤を等質量、採取して混合した剤を用い、温度２３℃で貼り合わせた試験片を２４時間放置することで硬化させた。その後、接着剤で接着した該試験片の、密着されていない２箇所のフィルム端部を引っ張ることで、フィルム同士が密着された部分を剥離させて、初期の１８０°剥離接着強さを測定した。尚、剥離接着強さ（単位：Ｎ／ｃｍ）は、引張試験器を用いて温度２３℃、湿度５０％の環境下で引張速度１０ｍｍ／分で測定した。

【００８５】

〔ガラス接着性評価（耐熱ガラス試験片間の引張接着強さ）〕耐熱ガラス試験片（縦２５ｍｍ×横２５ｍｍ×厚さ２．０ｍｍ）同士を、厚さ８０μｍ×幅１１．５ｍｍ×長さ２５ｍｍのテフロン（登録商標）テープをスペーサーとして用い、二剤型の常温硬化性の硬化性樹脂組成物で接着させた（接着面積３．１２５ｃｍ^2）。接着剤はＡ剤とＢ剤を等質量採取して混合した剤を用い、温度２３℃で貼り合わせた試験片を２４時間放置することで硬化させた。その後、更に、試験片の両面に電気化学工業社製接着剤「Ｇ－５５」を使用し、亜鉛メッキ鋼板（縦１００ｍｍ×横２５ｍｍ×厚さ２．０ｍｍ、エンジニアリングテストサービス社製）を接着させた。硬化後、接着剤で接着した該試験片を用いて、亜鉛メッキ鋼板をチャックして、初期の引張剪断接着強さを測定した。尚、引っ張り剪断接着強さ（単位：ＭＰａ）は、引張試験器を用いて温度２３℃、湿度５０％の環境下で引張速度１０ｍｍ／分で測定した。

【００８６】

〔耐光性評価〕ポリフッ化ビニリデン樹脂とポリメチルメタクリレート樹脂の８：２混合物（比は質量比）のフッ素系樹脂フィルム（デンカＤＸフィルム、平均厚さ５０μｍ、電気化学工業社製）の試験片（縦５０ｍｍ×横１０ｍｍ×厚さ０．０５ｍｍ）同士を、二剤型の常温硬化性の硬化性樹脂組成物を接着剤として用いて、接着層の厚さ３０μｍで接着面積を縦４０ｍｍ×横１０ｍｍとして接着させ硬化させた。接着剤はＡ剤とＢ剤を等質量採取して混合した剤を用い、温度２３℃で貼り合わせた試験片を２４時間放置することで硬化させた。その後、接着剤で接着した該試験片を、紫外線劣化促進試験機（アイスーパーＵＶテスター　ＳＵＶ－Ｗ１３１、岩崎電気株式会社）で、ＵＶ照射量１００ｍＷ／ｃｍ^{2}で６０℃×５０％ＲＨ環境下で３０日間照射した。照射後の試験片を用いて、密着されていない２箇所のフィルム端部を引っ張ることで、フィルム同士が密着された部分を剥離させて、１８０°剥離接着強さを測定した。又、接着部位の外観を目視で観察し、黄変しているか否かを調べた。尚、剥離接着強さ（単位：Ｎ／ｃｍ）は、引張試験器を用いて温度２３℃、湿度５０％の環境下で引張速度１０ｍｍ／分で測定した。

【００８７】

〔耐熱性評価〕ポリフッ化ビニリデン樹脂とポリメチルメタクリレート樹脂の８：２混合物（比は質量比）のフッ素系樹脂フィルム（デンカＤＸフィルム、平均厚さ５０μｍ、電

気化学工業社製）の試験片（縦５０ｍｍ×横１０ｍｍ×厚さ０．０５ｍｍ）同士を、二剤型の常温硬化性の硬化性樹脂組成物を接着剤として用いて、接着層の厚さ３０μｍで接着面積を縦４０ｍｍ×横１０ｍｍとして接着させ硬化させた。接着剤はＡ剤とＢ剤を等質量採取して混合した剤を用い、温度２３℃で貼り合わせた試験片を２４時間放置することで硬化させた。その後、接着剤で接着した該試験片を、恒温恒湿槽を用いて、温度８５℃、湿度５％ＲＨの環境下に１０００時間暴露した。暴露後の試験片を用いて、密着されていない２箇所のフィルム端部を引っ張ることで、フィルム同士が密着された部分を剥離させて、１８０°剥離接着強さを測定した。又、接着部位の外観を目視で観察し、黄変しているか否かを調べた。尚、剥離接着強さ（単位：Ｎ／ｃｍ）は、引張試験器を用いて温度２３℃、湿度５０％の環境下で引張速度１０ｍｍ／分で測定した。

【００８８】

〔耐湿熱性評価〕ポリフッ化ビニリデン樹脂とポリメチルメタクリレート樹脂の８：２混合物（比は質量比）のフッ素系樹脂フィルム（デンカＤＸフィルム、平均厚さ５０μｍ、電気化学工業社製）の試験片（縦５０ｍｍ×横１０ｍｍ×厚さ０．０５ｍｍ）同士を、二剤型の常温硬化性の硬化性樹脂組成物を接着剤として用いて、接着層の厚さ３０μｍで接着面積を縦４０ｍｍ×横１０ｍｍとして接着させ硬化させた。接着剤はＡ剤とＢ剤を等質量採取して混合した剤を用い、温度２３℃で貼り合わせた試験片を２４時間放置することで硬化させた。その後、接着剤で接着した該試験片を、恒温恒湿槽を用いて、温度８５℃、相対湿度８５％の環境下に１０００時間暴露した。暴露後の試験片を用いて、密着されていない２箇所のフィルム端部を引っ張ることで、フィルム同士が密着された部分を剥離させて、１８０°剥離接着強さを測定した。又、接着部位の外観を目視で観察し、黄変しているか否かを調べた。尚、剥離接着強さ（単位：Ｎ／ｃｍ）は、引張試験器を用いて温度２３℃、湿度５０％の環境下で引張速度１０ｍｍ／分で測定した。

〔外観観察（黄変度）〕テンパックスガラス（２５×２５×２ｍｍ）同士を、硬化性樹脂組成物を接着剤組成物として用いて、接着層の厚み１００μｍで接着面積を１．０mm^2として接着させ硬化させた。硬化条件並びに使用方法は実験例１６の〔ガラス接着性評価（耐熱ガラス試験片間の引張接着強さ）〕に記載の方法に従った。硬化後、耐光性、耐熱性、又は耐湿熱性試験後の該試験片をカラー測定装置（ＳＨＩＭＡＤＺＵ社製「ＵＶ－ＶＩＳＩＢＬＥ　ＳＰＥＣＴＲＯＰＯＨＯＴＯＭＥＴＥＲ」にてΔｂ値を黄変度とした。

【００８９】

【表２】

			実験例16	
			A液	B液
組成	A－1	質量部	97.0	97.0
	B－1		3.0	3.0
	C－2		3.0	
	D－1		20.0	20.0
	E－1		0.5	0.5
	F－1			0.5
初期特性	フッ素系ポリマー 試験片間の剥離接着強さ	N/cm	3.4	
	ポリエチレンテレフタレート 試験片間の剥離接着強さ	N/cm	4.0	
	耐熱ガラス 試験片間の引張接着強さ	MPa	18.0	
耐光性	紫外線暴露後の剥離接着強さ	N/cm	3.4	
	黄変度	%	0.2	
	外観観察		黄変無し	
耐熱性	高温暴露後のフッ素系ポリマー 試験片間の剥離接着強さ	N/cm	3.5	
	黄変度	%	0.2	
	外観観察		黄変無し	
耐湿熱性	高温高湿暴露後のフッ素系ポリマー 試験片間の剥離接着強さ	N/cm	3.6	
	黄変度	%	0.2	
	外観観察		黄変無し	
備考			実施例	

【００９０】

（実験例１７）

ウレタン樹脂系接着剤（三井武田ケミカル株式会社製　主剤タケラックＡ５１１／硬化剤Ａ５０＝１０／１）を塗布量５ｇ／m^2になるように各種基材フィルムに塗布し接着することで、物性評価用試験片を作成し、各種物性の測定を実施した。それらの結果を表３に示す。尚、各種試験片の作成及び各種物性測定の方法は、次のように実施した。

【００９１】

〔フッ素系ポリマー接着性評価（フッ素系ポリマー試験片間の剥離接着強さ）〕ポリフッ化ビニリデン樹脂とポリメチルメタクリレート樹脂の８：２混合物（比は質量比）のフッ素系樹脂フィルム（デンカＤＸフィルム、平均厚さ５０μｍ、電気化学工業社製）の試験片（縦５０ｍｍ×横１０ｍｍ×厚さ０．０５ｍｍ）同士を、ウレタン樹脂系接着剤を用いて、接着層の厚さ３０μｍで接着面積を縦４０ｍｍ×横１０ｍｍとして貼り合わせた。接着剤は主剤と硬化剤を１０／１（質量比）で混合した液を用いた。その後、接着剤で接着した該試験片の、密着されていない２箇所のフィルム端部を引っ張ることで、フィルム同士が密着された部分を剥離させて、初期の１８０°剥離接着強さを測定した。尚、剥離接着強さ（単位：Ｎ／ｃｍ）は、引張試験器を用いて温度２３℃、湿度５０％の環境下で引張速度１０ｍｍ／分で測定した。

【００９２】

〔ポリエチレンテレフタレート（ＰＥＴ）接着性評価（ポリエチレンテレフタレート試験片間の剥離接着強さ）〕２軸延伸ＰＥＴフィルム（ルミラーＴ６０、平均厚さ１９０μｍ、東レ社製）の試験片（縦５０ｍｍ×横１０ｍｍ×厚さ０．０５ｍｍ）同士を、ウレタン

樹脂系接着剤を用いて、接着層の厚さ３０μｍで接着面積を縦４０ｍｍ×横１０ｍｍとして貼り合わせた。接着剤は主剤と硬化剤を１０／１（質量比）で混合した液を用いた。その後、接着剤で接着した該試験片の、密着されていない２箇所のフィルム端部を引っ張ることで、フィルム同士が密着された部分を剥離させて、初期の１８０°剥離接着強さを測定した。光照射条件は〔光硬化性〕に記載の方法に従った。尚、剥離接着強さ（単位：Ｎ／ｃｍ）は、引張試験器を用いて温度２３℃、湿度５０％の環境下で引張速度１０ｍｍ／分で測定した。

【００９３】

〔ガラス接着性評価（耐熱ガラス試験片間の引張接着強さ）〕耐熱ガラス試験片（２５×２５×２．０ｍｍ）同士を、厚さ８０μｍ×幅１１．５ｍｍ×長さ２５ｍｍのテフロン（登録商標）テープをスペーサーとして用い、ウレタン樹脂系接着剤で接着させた（接着面積３．１２５ｃｍ^2）。接着剤は主剤と硬化剤を１０／１（質量比）で混合した液を用いた。その後、更に、試験片の両面に電気化学工業社製接着剤「Ｇ－５５」を使用し、亜鉛メッキ鋼板（縦１００ｍｍ×横２５ｍｍ×厚さ２．０ｍｍ、エンジニアリングテストサービス社製）を接着させた。硬化後、接着剤で接着した該試験片を用いて、亜鉛メッキ鋼板をチャックして、初期の引張剪断接着強さを測定した。尚、引っ張り剪断接着強さ（単位：ＭＰａ）は、引張試験器を用いて温度２３℃、湿度５０％の環境下で引張速度１０ｍｍ／分で測定した。

【００９４】

〔耐光性評価〕ポリフッ化ビニリデン樹脂とポリメチルメタクリレート樹脂の８：２混合物（比は質量比）のフッ素系樹脂フィルム（デンカＤＸフィルム、平均厚さ５０μｍ、電気化学工業社製）の試験片（縦５０ｍｍ×横１０ｍｍ×厚さ０．０５ｍｍ）同士を、ウレタン樹脂系接着剤を用いて、接着層の厚さ３０μｍで接着面積を縦４０ｍｍ×横１０ｍｍとして接着させ硬化させた。接着剤は主剤と硬化剤を１０／１（質量比）で混合した液を用いた。その後、接着剤で接着した該試験片を、紫外線劣化促進試験機（アイスーパーＵＶテスター　ＳＵＶ－Ｗ１３１、岩崎電気株式会社）で、ＵＶ照射量１００ｍＷ／ｃｍ^{2}で６０℃×５０％ＲＨ環境下で３０日間照射した。照射後の試験片を用いて、密着されていない２箇所のフィルム端部を引っ張ることで、フィルム同士が密着された部分を剥離させて、１８０°剥離接着強さを測定した。又、接着部位の外観を目視で観察し、黄変しているか否かを調べた。尚、剥離接着強さ（単位：Ｎ／ｃｍ）は、引張試験器を用いて温度２３℃、湿度５０％の環境下で引張速度１０ｍｍ／分で測定した。

【００９５】

〔耐熱性評価〕ポリフッ化ビニリデン樹脂とポリメチルメタクリレート樹脂の８：２混合物（比は質量比）のフッ素系樹脂フィルム（デンカＤＸフィルム、平均厚さ５０μｍ、電気化学工業社製）の試験片（縦５０ｍｍ×横１０ｍｍ×厚さ０．０５ｍｍ）同士を、ウレタン樹脂系接着剤を用いて、接着層の厚さ３０μｍで接着面積を縦４０ｍｍ×横１０ｍｍとして接着させ硬化させた。接着剤は主剤と硬化剤を１０／１（質量比）で混合した液を用いた。その後、接着剤で接着した該試験片を、恒温恒湿槽を用いて、温度８５℃、湿度５％ＲＨの環境下に１０００時間暴露した。暴露後の試験片を用いて、密着されていない２箇所のフィルム端部を引っ張ることで、フィルム同士が密着された部分を剥離させて、１８０°剥離接着強さを測定した。又、接着部位の外観を目視で観察し、黄変しているか否かを調べた。尚、剥離接着強さ（単位：Ｎ／ｃｍ）は、引張試験器を用いて温度２３℃、湿度５０％の環境下で引張速度１０ｍｍ／分で測定した。

【００９６】

〔耐湿熱性評価〕ポリフッ化ビニリデン樹脂とポリメチルメタクリレート樹脂の８：２混合物（比は質量比）のフッ素系樹脂フィルム（デンカＤＸフィルム、平均厚さ５０μｍ、電気化学工業社製）の試験片（縦５０ｍｍ×横１０ｍｍ×厚さ０．０５ｍｍ）同士を、ウレタン樹脂系接着剤を用いて、接着層の厚さ３０μｍで接着面積を縦４０ｍｍ×横１０ｍｍとして接着させ硬化させた。接着剤は主剤と硬化剤を１０／１（質量比）で混合した液を用いた。その後、接着剤で接着した該試験片を、恒温恒湿槽を用いて、温度８５℃、相

対湿度８５％の環境下に１０００時間暴露した。暴露後の試験片を用いて、密着されていない２箇所のフィルム端部を引っ張ることで、フィルム同士が密着された部分を剥離させて、１８０°剥離接着強さを測定した。又、接着部位の外観を目視で観察し、黄変しているか否かを調べた。尚、剥離接着強さ（単位：Ｎ／ｃｍ）は、引張試験器を用いて温度２３℃、湿度５０％の環境下で引張速度１０ｍｍ／分で測定した。

【００９７】

【表３】

			実験例17
初期特性	フッ素系ポリマー 試験片間の剥離接着強さ	N/cm	1.0
	ポリエチレンテレフタレート 試験片間の剥離接着強さ	N/cm	1.5
	耐熱ガラス 試験片間の引張接着強さ	MPa	3.0
耐光性	紫外線暴露後の剥離接着強さ	N/cm	0
	黄変度	%	10
	外観観察		黄変
耐熱性	高温暴露後のフッ素系ポリマー 試験片間の剥離接着強さ	N/cm	0.2
	黄変度	%	10.0
	外観観察		黄変
耐湿熱性	高温高湿暴露後のフッ素系ポリマー 試験片間の剥離接着強さ	N/cm	0.2
	黄変度	%	10.0
	外観観察		黄変
備考			比較例

【００９８】

（実験例１８）

厚さ３８μｍのフッ素樹脂フィルム（デュポン株式会社製、テドラー）に実験例２で使用した硬化性樹脂組成物を接着剤として接着厚さ２０μｍになるように塗布し、続いて厚さ２０μｍのアルミニウム箔と貼り合わせ、同様にアルミニウム箔に当該硬化性樹脂組成物を接着剤として塗布して、フッ素樹脂フィルムと貼り合わせた。図１のように、〔外面〕フッ素樹脂フィルム１１（３８μｍ）／接着剤層１２（２０μｍ）／アルミニウム箔１３（２０μｍ）／接着剤層１４（２０μｍ）／フッ素樹脂フィルム１５（３８μｍ）

〔太陽電池素子側〕の層構成からなる実施例となる実験例１８のバックシート１０を作製した。尚、光硬化は、無電極放電ランプを使用したフュージョン社製硬化装置を用い、波長３６５ｎｍのＵＶ光を積算光量２０００ｍＪ／ｃｍ^{2}の条件にてフッ素樹脂フィルム側からＵＶ光を１５秒間照射した。作製したバックシートを８５℃×８５％ＲＨ環境下で３０００時間保存した後、外観を観察したところ、シートの各層の剥離は発生せず、黄変も無かった。

同様に、この実験例１８のバックシート１０を用い、図２の如く、ガラス板４０、ＥＶＡ２０、太陽電池素子３０、ＥＶＡ２０、バックシート１０を重ね合わせ、１５０℃－１０分－１気圧の真空加熱によりラミネートして実験例１８の太陽電池モジュール１を作製

することができた。
作製した太陽電池モジュールについて、８５℃－９０％ＲＨ環境下で５００時間保存後の電池の出力試験を測定・評価したところ、出力の低下は５％以内であり、良好であった。

【００９９】
（実験例１９）
２軸延伸ＰＥＴフィルム（ルミラーＴ６０、平均厚さ１９０μｍ、東レ社製）を用い、これに実験例３の硬化性樹脂組成物を接着剤として接着厚さ２０μｍになるように塗布し、実験例１８で用いた厚さ３８μｍのフッ素樹脂フィルム（ デュポン株式会社製、テドラー）と貼り合わせ、実験例１９ のフロントシート（表面保護シート）とした。尚、光硬化は、無電極放電ランプを使用したフュージョン社製硬化装置を用い、波長３６５ｎｍのＵＶ光を積算光量２０００ｍＪ／ｃｍ^{2}の条件にてＰＥＴフィルム側からＵＶ光を１５秒間照射した。
作製したフロントシートを８５℃×８５％ＲＨ環境下で３０００時間保存した後、外観を観察したところ、シートの各層の剥離は発生せず、黄変も無かった。
この表面保護シートと実験例１８のバックシートを用いて、図２のようにフロントシート４０、ＥＶＡ２０ 、太陽電池素子３０、ＥＶＡ２０、バックシート１０を重ね合わせ、１５０℃－１０分－１気圧の真空加熱によりラミネートして実験例１９の太陽電池モジュール１を作製することができた。
作製した太陽電池モジュールについて、８５℃－９０％ＲＨ環境下で５００時間保存後の電池の出力試験を測定・評価したところ、出力の低下は５％以内であり、良好であった。

【０１００】
（実験例２０～３０）
表４に示す種類の原材料を表４に示す組成で混合して硬化性樹脂組成物を調製した。得られた組成物について、各種物性の測定を実施した。それらの結果を表４に示す。尚、各種物性は、次のように測定した。

【０１０１】
〔フッ素系ポリマー接着性評価（フッ素系ポリマー試験片間の剥離接着強さ）〕ポリフッ化ビニリデン樹脂とポリメチルメタクリレート樹脂の８：２混合物（比は質量比）のフッ素系樹脂フィルム（デンカＤＸフィルム、平均厚さ５０μｍ、電気化学工業社製）の試験片（縦５０ｍｍ×横１０ｍｍ×厚さ０．０５ｍｍ）を、ＫＡＳＵＧＡ社製コロナ放電器ＣＧ－１０２Ａを用いて、電流設定３．８Ａ、処理速度：１０ｍ／ｍｉｎで運転して、コロナ放電処理した。このコロナ放電処理済みの試験片同士を、硬化性樹脂組成物を接着剤として用いて、接着層の厚さ３０μｍで接着面積を縦４０ｍｍ×横１０ｍｍとして貼り合わせた。次に、前述の〔光硬化性〕に記載の方法に従って光照射することにより接着部位を硬化させた後、接着剤で接着した該試験片の、密着されていない２箇所のフィルム端部を引っ張ることで、フィルム同士が密着された部分を剥離させて、初期の１８０°剥離接着強さを測定した。尚、剥離接着強さ（単位：Ｎ／ｃｍ）は、引張試験器を用いて温度２３℃、湿度５０％の環境下で引張速度１０ｍｍ／分で測定した。

【０１０２】
〔ポリエチレンテレフタレート（ＰＥＴ）接着性評価（ポリエチレンテレフタレート試験片間の剥離接着強さ）〕２軸延伸ＰＥＴフィルム（ルミラーＴ６０、平均厚さ１９０μｍ、東レ社製）の試験片（縦５０ｍｍ×横１０ｍｍ×厚さ０．０５ｍｍ）を、ＫＡＳＵＧＡ社製コロナ放電器ＣＧ－１０２Ａを用いて、電流設定３．８Ａ、処理速度：１０ｍ／ｍｉｎで運転して、コロナ放電処理した。このコロナ放電処理済みの試験片同士を、硬化性樹脂組成物を接着剤として用いて、接着層の厚さ３０μｍで接着面積を縦４０ｍｍ×横１０ｍｍとして貼り合わせた。次に、前述の〔光硬化性〕に記載の方法に従って光照射することにより接着部位を硬化させた後、接着剤で接着した該試験片の、密着されていない２箇所のフィルム端部を引っ張ることで、フィルム同士が密着された部分を剥離させて、初期

の１８０°剥離接着強さを測定した。光照射条件は〔光硬化性〕に記載の方法に従った。尚、剥離接着強さ（単位：Ｎ／ｃｍ）は、引張試験器を用いて温度２３℃、湿度５０％の環境下で引張速度１０ｍｍ／分で測定した。

【０１０３】

〔耐光性評価〕上述と同じ方法でコロナ放電処理したポリフッ化ビニリデン樹脂とポリメチルメタクリレート樹脂の８：２混合物（比は質量比）のフッ素系樹脂フィルム（デンカＤＸフィルム、平均厚さ５０μｍ、電気化学工業社製）の試験片（縦５０ｍｍ×横１０ｍｍ×厚さ０．０５ｍｍ）同士を、硬化性樹脂組成物を接着剤として用いて、接着層の厚さ３０μｍで接着面積を縦４０ｍｍ×横１０ｍｍとして貼り合わせた。次に、前述の〔光硬化性〕に記載の方法に従って光照射することにより接着部位を硬化させた後、接着剤で接着した該試験片を、紫外線劣化促進試験機（アイスーパーＵＶテスター　ＳＵＶ－Ｗ１３１、岩崎電気株式会社）で、ＵＶ照射量１００ｍＷ／ｃｍ^{2}で６０℃×５０％ＲＨ環境下で３０日間照射した。照射後の試験片を用いて、密着されていない２箇所のフィルム端部を引っ張ることで、フィルム同士が密着された部分を剥離させて、１８０°剥離接着強さを測定した。又、接着部位の外観を目視で観察し、黄変しているか否かを調べた。尚、剥離接着強さ（単位：Ｎ／ｃｍ）は、引張試験器を用いて温度２３℃、湿度５０％の環境下で引張速度１０ｍｍ／分で測定した。

【０１０４】

〔耐熱性評価〕上述と同じ方法でコロナ放電処理したポリフッ化ビニリデン樹脂とポリメチルメタクリレート樹脂の８：２混合物（比は質量比）のフッ素系樹脂フィルム（デンカＤＸフィルム、平均厚さ５０μｍ、電気化学工業社製）の試験片（縦５０ｍｍ×横１０ｍｍ×厚さ０．０５ｍｍ）同士を、硬化性樹脂組成物を接着剤として用いて、接着層の厚さ３０μｍで接着面積を縦４０ｍｍ×横１０ｍｍとして貼り合わせた。次に、前述の〔光硬化性〕に記載の方法に従って光照射することにより接着部位を硬化させた後、接着剤で接着した該試験片を、恒温恒湿槽を用いて、温度８５℃、湿度５％ＲＨの環境下に１０００時間暴露した。暴露後の試験片を用いて、密着されていない２箇所のフィルム端部を引っ張ることで、フィルム同士が密着された部分を剥離させて、１８０°剥離接着強さを測定した。又、接着部位の外観を目視で観察し、黄変しているか否かを調べた。尚、剥離接着強さ（単位：Ｎ／ｃｍ）は、引張試験器を用いて温度２３℃、湿度５０％の環境下で引張速度１０ｍｍ／分で測定した。

【０１０５】

〔耐湿熱性評価〕上述と同じ方法でコロナ放電処理したポリフッ化ビニリデン樹脂とポリメチルメタクリレート樹脂の８：２混合物（比は質量比）のフッ素系樹脂フィルム（デンカＤＸフィルム、平均厚さ５０μｍ、電気化学工業社製）の試験片（縦５０ｍｍ×横１０ｍｍ×厚さ０．０５ｍｍ）同士を、硬化性樹脂組成物を接着剤として用いて、接着層の厚さ３０μｍで接着面積を縦４０ｍｍ×横１０ｍｍとして貼り合わせた。次に、前述の〔光硬化性〕に記載の方法に従って光照射することにより接着部位を硬化させた後、接着剤で接着した該試験片を、恒温恒湿槽を用いて、温度８５℃、相対湿度８５％の環境下に１０００時間暴露した。暴露後の試験片を用いて、密着されていない２箇所のフィルム端部を引っ張ることで、フィルム同士が密着された部分を剥離させて、１８０°剥離接着強さを測定した。又、接着部位の外観を目視で観察し、黄変しているか否かを調べた。尚、剥離接着強さ（単位：Ｎ／ｃｍ）は、引張試験器を用いて温度２３℃、湿度５０％の環境下で引張速度１０ｍｍ／分で測定した。

【０１０６】

【表４】

			実験例20	実験例21	実験例22	実験例23	実験例24	実験例25	実験例26	実験例27	実験例28	実験例29	実験例30
組成	A－1	質量部	50.0	50.0	50.0	50.0	50.0	50.0	50.0	15.0		50.0	50.0
	A－2										20.0		
	A－3												
	B－1		50.0	50.0	45.0	30.0	30.0	30.0	30.0	15.0	30.0		
	C－1		5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0	5.0
	D－1				5.0	20.0				70.0	50.0		
	D－2						20.0						
	D－3							20.0					
	D－4								20.0				
	D－5											50.0	50.0
	E－1			0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5	0.5		0.5
	E－2												
初期特性	フッ素系ポリマー 試験片間の剥離接着強さ	N/cm	4.0	4.1	3.0	2.5	2.7	3.1	2.9	2.8	2.9	0.1	0.1
	ポリエチレンテレフタレート 試験片間の剥離接着強さ	N/cm	4.6	4.5	4.1	4.2	4.2	4.1	4.0	3.8	5.1	0.1	0.1
耐光性	紫外線暴露後の剥離接着強さ	N/cm	3.9	3.9	3.3	2.7	2.7	2.3	2.9	2.9	3.0	0	0
	黄変度	%	0.1	0.1	0.2	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	10	12
	外観観察		黄変無し	黄変無し	黄変無し	黄変無し	黄変無し	黄変無し	黄変無し	黄変無し	黄変無し	黄変	黄変
耐熱性	高温暴露後のフッ素系ポリマー 試験片間の剥離接着強さ	N/cm	3.6	3.7	3.5	3.0	2.7	2.9	2.9	2.8	2.9	0	0
	黄変度	%	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	12	10
	外観観察		黄変無し	黄変無し	黄変無し	黄変無し	黄変無し	黄変無し	黄変無し	黄変無し	黄変無し	黄変	黄変
耐湿熱性	高温高湿暴露後のフッ素系ポリマー 試験片間の剥離接着強さ	N/cm	1.1	3.6	3.8	3.1	2.8	2.7	2.8	3.0	3.0	0	0
	黄変度	%	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	0.0	14	13
	外観観察		黄変無し	黄変無し	黄変無し	黄変無し	黄変無し	黄変無し	黄変無し	黄変無し	黄変無し	黄変	黄変
備考			実施例	実施例	実施例	実施例	実施例	実施例	実施例	実施例	実施例	比較例	比較例

【０１０７】

表１より以下のことが認められる。本発明の硬化性樹脂組成物は、フッ素系ポリマー、ポリエチレンテレフタレート、ガラスに対して高い接着性を示し、又、高温高湿暴露、高

温暴露、紫外線暴露後についても高い接着耐久性を示す（実験例１～１２）。（Ｅ）成分のシランカップリング剤を使用すると、より高い接着性を示す（実験例１と実験例２と実験例３の比較）。

【０１０８】

表２より、本発明の二剤型の常温硬化性の硬化性樹脂組成物も、フッ素系ポリマー、ポリエチレンテレフタレート、ガラスに対して高い接着性を示し、高温高湿暴露、高温暴露、紫外線暴露後についても高い接着耐久性を示すことが分かる。

【０１０９】

又、表１と表２及び表３の比較から、本発明の硬化性樹脂組成物は、ウレタン樹脂系接着剤よりも、各種被着体に対して高い接着性を示すとともに、高温高湿暴露、高温暴露、紫外線暴露後についても一層高い接着耐久性を示すことが分かる。

【０１１０】

更に、実験例１８及び実験例１９から、本発明の硬化性樹脂組成物を用いると、耐久性の高い太陽電池用バックシート及びフロントシートが得られ、当該バックシート及びフロントシートを用いて太陽電池モジュールが作製できることが分かる。

【０１１１】

又、実験例２０～３０から、コロナ放電処理した各種被着体に対しても、本発明の硬化性樹脂組成物は高い接着性・接着耐久性を示す事が分かる。更に、実験例２０～３０と実験例１～１５の比較から、コロナ放電処理した被着体を用いたほうが未処理の被着体よりも高い接着性・接着耐久性を示す事が分かる。

【産業上の利用可能性】

【０１１２】

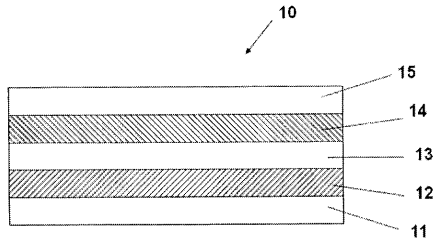
本発明の硬化性樹脂組成物は、フッ素系ポリマーやポリエチレンテレフタレート等の難接着性材料やガラス、特にフッ素系ポリマーに対して十分な接着強度が発現し、かつ高い接着耐久性（耐加水分解性、耐熱性、耐光性）を有する。フッ素系ポリマーやポリエチレンテレフタレート等の各種フィルムを積層接合された多層フィルムは太陽電池モジュールのバックシートやフロントシート（フロントフィルム）に応用されており、本発明の硬化性樹脂組成物はフッ素系ポリマーやポリエチレンテレフタレート等の各種フィルムを積層接合するときの接着剤として使用できることから、産業上非常に有効である。

【符号の説明】

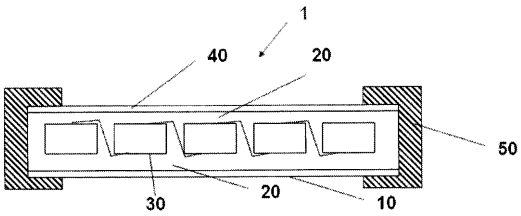
【０１１３】

１　太陽電池モジュール
１０　バックシート
１１、１５　フッ素樹脂フィルム
１２、１４　接着剤層
１３　アルミニウム箔
２０　ＥＶＡ
３０　太陽電池素子
４０　ガラス板又はフロントシート
５０　スペーサー

【図１】



【図２】



フロントページの続き

(51)Int.Cl.		FI		
C09J 11/06	*(2006.01)*	C09J	11/06	
C09J 11/08	*(2006.01)*	C09J	11/08	
C09J 109/00	*(2006.01)*	C09J	109/00	
C09J 167/00	*(2006.01)*	C09J	167/00	
H01L 31/042	*(2014.01)*	H01L	31/04	500

(56)参考文献 特開昭５７－０１６０６７（ＪＰ，Ａ）
特開昭６３－１８９４１１（ＪＰ，Ａ）
特開２００２－１６４３６０（ＪＰ，Ａ）
特開２００２－１８４７９３（ＪＰ，Ａ）
特開昭６２－１４６２７８（ＪＰ，Ａ）
特開平０７－１０６３２８（ＪＰ，Ａ）
非晶性ポリエステル樹脂（有機溶剤可溶型）バイロン，２０１４年 9月２５日，ＵＲＬ，http://www.toyobo.co.jp/seihin/xi/vylon_cg/index.htm

(58)調査した分野(Int.Cl.，ＤＢ名)
Ｃ０８Ｆ ２／４４
Ｃ０８Ｆ ２８３／０１
Ｃ０８Ｆ ２９０／００－２９０／１４
Ｃ０８Ｆ ２９９／００－２９９／０８
Ｃ０８Ｋ ３／００－１３／０８
Ｃ０８Ｌ １／００－１０１／１４
Ｃ０９Ｊ １／００－２０１／１０