

(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
2017年11月2日(02.11.2017)



(10) 国際公開番号

WO 2017/187901 A1

(51) 国際特許分類:
H01G 9/035 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2017/013956

(22) 国際出願日: 2017年4月3日(03.04.2017)

(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 2016-089920 2016年4月27日(27.04.2016) JP

(71) 出願人: 宇部興産株式会社(UBE INDUSTRIES, LTD.) [JP/JP]; 〒7558633 山口県宇部市大字小串1978番地の96 Yamaguchi (JP).

(72) 発明者: 吉田 佳弘 (YOSHIDA, Yoshihiro); 〒7558633 山口県宇部市大字小串1978番地の96 宇部興産株式会社内 Yamaguchi (JP). 安部 浩司 (ABE, Koji); 〒5928543 大阪府堺市西区築港新町3丁1番地 宇部興産株式会社内 Osaka (JP). 敷田 庄司 (SHIKITA, Shoji); 〒5928543 大阪府堺市西区築港新町3丁1番地 宇部興産株式会社内 Osaka (JP).

(74) 代理人: 片岡 誠, 外 (KATAOKA, Makoto et al.); 〒1050001 東京都港区虎ノ門三丁目25番

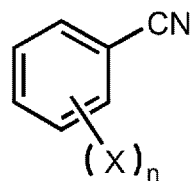
2号 虎ノ門 E S ビル 7 階 特許業務法人 大谷特許事務所 Tokyo (JP).

(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, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, 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, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

(54) Title: ELECTROLYTE SOLUTION FOR ALUMINUM ELECTROLYTIC CAPACITORS AND ALUMINUM ELECTROLYTIC CAPACITOR USING SAME

(54) 発明の名称: アルミ電解コンデンサ用電解液及びそれを用いたアルミ電解コンデンサ



(1)

(57) Abstract: The present invention relates to: an electrolyte solution which has excellent withstand voltage; and an aluminum electrolytic capacitor which uses this electrolyte solution. [1] An electrolyte solution for aluminum electrolytic capacitors, which contains 0.1-30% by mass of an aromatic nitrile compound represented by general formula (1) and a carboxylic acid having 5-20 carbon atoms or a salt of the carboxylic acid; and [2] an aluminum electrolytic capacitor which uses the electrolyte solution set forth in [1].

(57) 要約: 優れた耐電圧を示す電解液、及びそれを用いたアルミ電解コンデンサに関する。〔1〕0.1～30質量%の下記一般式(1)で示される芳香族ニトリル化合物と、炭素数5～20のカルボン酸又はその塩と、を含有するアルミ電解コンデンサ用電解液、及び〔2〕〔1〕の電解液を用いたアルミ電解コンデンサ。

添付公開書類：

一 国際調査報告（条約第21条(3)）

明 細 書

発明の名称：

アルミ電解コンデンサ用電解液及びそれを用いたアルミ電解コンデンサ
技術分野

[0001] 本発明は、アルミ電解コンデンサ用電解液及びそれを用いたアルミ電解コンデンサに関する。

背景技術

[0002] 従来、中高圧用アルミ電解コンデンサの駆動用電解液としては、耐電圧が比較的高く得られることから、エチレングリコールを溶媒に、ホウ酸又はホウ酸アンモニウムを電解質として溶解した電解液が用いられてきた。

しかしながら、このような電解液は、電気伝導性が低く、しかもエチレングリコールとホウ酸のエステル化により生成した酸性の水がアルミニウム酸化皮膜と反応して電極を劣化させるという問題があった。また電解液中の水分量の増加は100℃以上の高温環境下での使用において、デバイスの内圧上昇によるデバイスの破損の原因となる問題もあった。

[0003] そこで、このような問題を解決するために、電解質成分として、例えば、1, 6-デカンジカルボン酸などのジカルボン酸又はその塩を含有した電解液が報告されている（例えば、特許文献1）。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開昭63-50011号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] しかしながら、1, 6-デカンジカルボン酸を含む電解液よりも、更に優れた耐電圧を示す電解液が求められている。

本発明は、優れた耐電圧を示す電解液、及びそれを用いたアルミ電解コンデンサに関する。

課題を解決するための手段

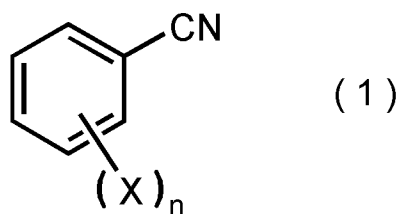
[0006] 本発明者らは、電解液が一般式（１）に示される芳香族ニトリル化合物を含有することで上記の課題を解決しうることを見出した。

本発明は、以下の〔１〕及び〔２〕に関する。

〔１〕 ０．１～３０質量％の下記一般式（１）で示される芳香族ニトリル化合物と、

炭素数５～２０のカルボン酸又はその塩と、を含有するアルミ電解コンデンサ用電解液。

[化１]



（式中、Xは、ハロゲン原子、アルキル基、アルキルオキシ基、ヒドロキシ基、又はシアノメチル基を示し、nは０～５の整数である。）

〔２〕 〔１〕の電解液を用いたアルミ電解コンデンサ。

発明の効果

[0007] 本発明によれば、優れた耐電圧を示す電解液、及びそれを用いたアルミ電解コンデンサを提供できる。

発明を実施するための形態

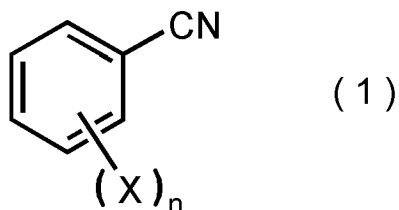
[0008] 〔電解液〕

本発明のアルミ電解コンデンサ用電解液（以下、単に「電解液」ともいう）は、０．１～３０質量％の一般式（１）で示される芳香族ニトリル化合物（以下、単に「芳香族ニトリル化合物」ともいう）と、炭素数５～２０のカルボン酸又はその塩とを含有する。

[0009] 〔芳香族ニトリル化合物〕

電解液は、優れた耐電圧を得るため、下記一般式（１）で表される芳香族ニトリル化合物を含有する。

[化2]



(式中、Xは、ハロゲン原子、アルキル基、アルキルオキシ基、ヒドロキシ基、又はシアノメチル基を示し、nは0～5の整数である。)

[0010] ハロゲン原子としては、例えば、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子が挙げられる。

アルキル基としては、炭素数1～6（好ましくは1～3）のアルキル基が好ましく、例えば、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基が挙げられる。

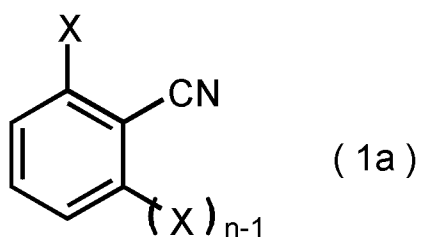
アルキルオキシ基としては、炭素数1～6（好ましくは1～3）のアルキルオキシ基が好ましく、例えば、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、イソプロポキシ基が挙げられる。

Xは、耐電圧を向上させる観点から、好ましくは、フッ素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、メトキシ基、エトキシ基、又はプロポキシ基であり、より好ましくはフッ素原子、メチル基、メトキシ基である。

nは、耐電圧を向上させる観点から、好ましくは0～3の整数であり、より好ましくは1～3の整数であり、更に好ましくは1又は2であり、更に好ましくは2である。

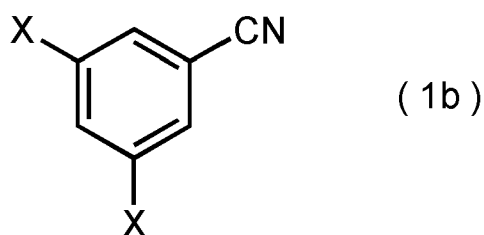
[0011] 芳香族ニトリル化合物は、好ましくは下記一般式(1a)で表される化合物又は下記一般式(1b)で表される化合物である。

[化3]



(式中、Xは、フッ素原子、又は炭素数1～6のアルキルオキシ基を示し、nは、1又は2である。)

[化4]



(式中、Xは、それぞれ独立に、フッ素原子、又は炭素数1～6のアルキルオキシ基を示す。)

[0012] 芳香族ニトリル化合物としては、例えば、ベンゾニトリル、2-フルオロベンゾニトリル、3-フルオロベンゾニトリル、4-フルオロベンゾニトリル、2-クロロベンゾニトリル、3-クロロベンゾニトリル、4-クロロベンゾニトリル、2-ブロモベンゾニトリル、3-ブロモベンゾニトリル、4-ブロモベンゾニトリル、2-ヨードベンゾニトリル、3-ヨードベンゾニトリル、4-ヨードベンゾニトリル、2,3-ジフルオロベンゾニトリル、2,4-ジフルオロベンゾニトリル、2,5-ジフルオロベンゾニトリル、2,6-ジフルオロベンゾニトリル、3,4-ジフルオロベンゾニトリル、3,5-ジフルオロベンゾニトリル、2-メチルベンゾニトリル、3-メチルベンゾニトリル、4-メチルベンゾニトリル、2-エチルベンゾニトリル、3-エチルベンゾニトリル、4-エチルベンゾニトリル、2-プロピルベンゾニトリル、3-プロピルベンゾニトリル、4-プロピルベンゾニトリル、2-ブチルベンゾニトリル、3-ブチルベンゾニトリル、4-ブチルベンゾニトリル、2-イソプロピルベンゾニトリル、3-イソプロピルベンゾニトリル、4-イソプロピルベンゾニトリル、2-メチルオキシベンゾニトリル、3-メチルオキシベンゾニトリル、4-メチルオキシベンゾニトリル、2-エチルオキシベンゾニトリル、3-エチルオキシベンゾニトリル、4-エチルオキシベンゾニトリル、2-プロピルオキシベンゾニトリル、3-プロピルオキシベンゾニトリル、4-プロピルオキシベンゾニトリル、2-ブ

チルオキシベンゾニトリル、3-ブチルオキシベンゾニトリル、4-ブチルオキシベンゾニトリル、2-イソプロピルオキシベンゾニトリル、3-イソプロピルオキシベンゾニトリル、4-イソプロピルオキシベンゾニトリル、2-ヒドロキシベンゾニトリル、3-ヒドロキシベンゾニトリル、4-ヒドロキシベンゾニトリル、2-シアノメチルベンゾニトリル、3-シアノメチルベンゾニトリル、4-シアノメチルベンゾニトリル、2-フルオロ-3-メトキシベンゾニトリル、2-フルオロ-4-メトキシベンゾニトリル、2-フルオロ-5-メトキシベンゾニトリル、2-フルオロ-6-メトキシベンゾニトリル、3-フルオロ-2-メトキシベンゾニトリル、3-フルオロ-4-メトキシベンゾニトリル、3-フルオロ-5-メトキシベンゾニトリル、3-フルオロ-6-メトキシベンゾニトリルが挙げられる。これらは、1種類単独で用いてもよいし、2種以上の組合せで用いてもよい。

[0013] これらの中でも、

(i) ベンゾニトリル、2-フルオロベンゾニトリル、3-フルオロベンゾニトリル、4-フルオロベンゾニトリル、2, 3-ジフルオロベンゾニトリル、2, 4-ジフルオロベンゾニトリル、2, 5-ジフルオロベンゾニトリル、2, 6-ジフルオロベンゾニトリル、3, 4-ジフルオロベンゾニトリル、3, 5-ジフルオロベンゾニトリル、2-メチルベンゾニトリル、3-メチルベンゾニトリル、4-メチルベンゾニトリル、2-エチルベンゾニトリル、3-エチルベンゾニトリル、4-エチルベンゾニトリル、2-プロピルベンゾニトリル、3-プロピルベンゾニトリル、4-プロピルベンゾニトリル、2-メチルオキシベンゾニトリル、3-メチルオキシベンゾニトリル、4-メチルオキシベンゾニトリル、2-エチルオキシベンゾニトリル、3-エチルオキシベンゾニトリル、4-エチルオキシベンゾニトリル、2-プロピルオキシベンゾニトリル、3-プロピルオキシベンゾニトリル、4-プロピルオキシベンゾニトリル、3-フルオロ-5-メトキシベンゾニトリル又はこれらのうち2種以上の混合物が好ましく、

(i i) ベンゾニトリル、2-フルオロベンゾニトリル、3-フルオロベンゾニトリル、4-フルオロベンゾニトリル、2, 3-ジフルオロベンゾニトリル、2, 4-ジフルオロベンゾニトリル、2, 5-ジフルオロベンゾニトリル、2, 6-ジフルオロベンゾニトリル、3, 4-ジフルオロベンゾニトリル、3, 5-ジフルオロベンゾニトリル、2-メチルオキシベンゾニトリル、3-メチルオキシベンゾニトリル、4-メチルオキシベンゾニトリル、3-フルオロ-5-メトキシベンゾニトリル、又はこれらのうち2種以上の混合物がより好ましい。

[0014] 芳香族ニトリル化合物は、市販品を使用することができる。

市販品として入手できないものであっても、例えば、ベンズアミド化合物の脱水反応、ハロゲン化ベンゼンへのシアン化ナトリウムの付加反応等の、公知の方法により合成できる。また、上記芳香族ニトリル化合物は、アルミ電解コンデンサ用電解液の添加剤として有用な化合物である。

[0015] 芳香族ニトリル化合物の含有量は、優れた耐電圧を得る観点から、0.1～30質量%である。

上記含有量の下限は、耐電圧を高める観点から、好ましくは1質量%以上、より好ましくは2質量%以上、更に好ましくは2.5質量%以上、更に好ましくは3質量%以上である。

上記含有量の上限は、耐電圧の観点から、好ましくは25質量%以下、より好ましくは20質量%以下、更に好ましくは18質量%以下、更に好ましくは15質量%以下、更に好ましくは12質量%以下である。

[0016] [カルボン酸又はその塩]

電解液は、炭素数5～20のカルボン酸又はその塩を含む。

つまり、電解質成分として、上記芳香族ニトリル化合物とともに炭素数5～20のカルボン酸又はその塩を組合せて用いる。これにより、電気伝導性が高く、優れた耐電圧を示す電解液が得られる。

[0017] カルボン酸の炭素数は、好ましくは6～18である。

上記炭素数の下限は、耐電圧性を高める観点から、好ましくは8以上、よ

り好ましくは10以上である。

上記炭素数の上限は、耐電圧を高める観点から、好ましくは16以下、より好ましくは14以下である。

カルボン酸は、芳香族カルボン酸、脂肪族カルボン酸のいずれであってもよいが、好ましくは脂肪族カルボン酸である。

カルボン酸は、好ましくはジカルボン酸であり、より好ましくは脂肪族ジカルボン酸である。

カルボン酸としては、例えば、ピバル酸、3,3-ジメチルブタン酸、2,2-ジイソプロピルプロパン酸、ヘキサン酸、2-エチルヘキサン酸、2-エチルブタン酸、2,2-ジメチルヘキサン酸、シクロヘキサンカルボン酸、ソルビン酸、桂皮酸、11-シアノウンデカン酸、ラウリン酸、ステアリン酸、デカン酸等のモノカルボン酸；グルタル酸、アジピン酸、ピメリン酸、スベリン酸、アゼライン酸、1,7-オクタンジカルボン酸、セバシン酸、1,10-デカンジカルボン酸、1,6-デカンジカルボン酸、5,6-デカンジカルボン酸等のジカルボン酸；が挙げられる。

これらの中でも、グルタル酸、アジピン酸、ピメリン酸、スベリン酸、アゼライン酸、1,7-オクタンジカルボン酸、セバシン酸、1,10-デカンジカルボン酸、1,6-デカンジカルボン酸、5,6-デカンジカルボン酸が好ましく、アジピン酸、スベリン酸、アゼライン酸、セバシン酸、1,6-デカンジカルボン酸がより好ましい。

[0018] カルボン酸の塩としては、例えば、アンモニウム塩 (NH_4^+) 又は炭素数1～10の有機アミン塩が挙げられる。

炭素数1～10の有機アミン塩としては、例えば、メチルアミン、エチルアミン、*t*-ブチルアミン等の第一級アミン塩；ジメチルアミン、エチルメチルアミン、ジエチルアミン等の第二級アミン塩；トリメチルアミン、ジエチルメチルアミン、エチルジメチルアミン、トリエチルアミン等の第三級アミン塩；テトラメチルアンモニウム、トリエチルメチルアンモニウム、テトラエチルアンモニウム等の第四級アンモニウム塩が挙げられる。これらは単

独で用いてもよいし、これら化合物から選ばれる1種以上の化合物の混合物であってもよい。これらの中でも、アンモニウム塩が好ましい。

[0019] カルボン酸又はその塩は、これらを単独で使用しても、又は複数種類を使用してもよい。

カルボン酸又はその塩の含有量は、耐電圧を高める観点から、好ましくは1～20質量%である。

上記含有量の下限は、電気伝導性を高める観点から、好ましくは2質量%以上、より好ましくは4質量%以上、更に好ましくは7質量%以上である。

上記含有量の上限は、耐電圧を高める観点から、好ましくは18質量%以下、より好ましくは15質量%以下、更に好ましくは12質量%以下である。

[0020] 〔脂肪族ジニトリル化合物〕

電解液は、耐電圧をより向上させる観点から、好ましくは、脂肪族ジニトリル化合物を含有する。

脂肪族ジニトリル化合物として、例えば、マロノニトリル、スクシノニトリル、グルタロニトリル、アジポニトリル、ピメロニトリル、スベロニトリル、1, 10-ジシアノデカン、2-メチルグルタロニトリル、1, 6-ジシアノデカンが挙げられる。

これらの中でも、グルタロニトリル、アジポニトリル、スベロニトリル、1, 10-ジシアノデカン、2-メチルグルタロニトリル、1, 6-ジシアノデカンが好ましく、アジポニトリルがより好ましい。

これらの脂肪族ジニトリル化合物は、単独で添加しても、複数種類を添加してもよい。

脂肪族ジニトリル化合物の含有量は、耐電圧を高める観点から、好ましくは1～20質量%である。

上記含有量の下限は、耐電圧を高める観点から、好ましくは2質量%以上、より好ましくは4質量%以上、更に好ましくは7質量%以上である。

上記含有量の上限は、耐電圧を高める観点から、好ましくは18質量%以

下、より好ましくは 1.5 質量%以下、更に好ましくは 1.2 質量%以下である。

[0021] [アルキニルアルコール化合物]

電解液は、耐電圧をより向上させる観点から、好ましくは、アルキニルアルコール化合物を含有する。

アルキニルアルコール化合物としては、例えば、2-プロピン-1-オール（以下「プロパルギルアルコール」ともいう）、3-ブチン-2-オール、3-ブチン-2-メチル-2-オール、2-ブチン-1, 4-ジオール、3-ヘキシン-2, 5-ジオール、2, 5-ジメチル-3-ヘキシン-2, 5-ジオールが挙げられる。

これらの中でも、2-プロピン-1-オール、3-ブチン-2-オール、3-ブチン-2-メチル-2-オールが好ましく、2-プロピン-1-オールがより好ましい。

これらのアルキニルアルコール化合物は単独あるいは複数種類を添加してもよい。

アルキニルアルコール化合物の含有量は、好ましくは 1～20 質量%である。

上記含有量の下限は、耐電圧を高める観点から、好ましくは 2 質量%以上、より好ましくは 4 質量%以上、更に好ましくは 7 質量%以上である。

上記含有量の上限は、耐電圧を高める観点から、好ましくは 18 質量%以下、より好ましくは 1.5 質量%以下、更に好ましくは 1.2 質量%以下である。

[0022] [その他の添加剤]

電解液には、漏れ電流の低減、耐電圧向上、ガス吸収等の目的で種々の添加剤を加えることができる。

添加剤としては、例えば、リン酸化合物、リン酸エステル化合物、ニトロ化合物、ホウ酸化合物、多価アルコール類、ポリビニルアルコール、ポリビニルエーテル、ポリエチレングリコール、ポリプロピレングリコール、ポリ

ビニルピロリドン、ポリオキシエチレン・ポリオキシプロピレンランダム共重合体、及びブロック共重合体等の高分子化合物が挙げられる。

[0023] リン酸化合物及びリン酸エステル化合物としては、例えば、オルトリン酸、ピロリン酸、次亜リン酸、亜リン酸、二亜リン酸、イソ次リン酸、リン酸ブチル、リン酸イソブチル、リン酸オクチル等が挙げられる。

リン酸化合物、及びリン酸エステル化合物の塩としては、例えば、アンモニウム塩、アミニウム塩、アルミニウム塩が挙げられる。

ニトロ化合物としては、例えば、ニトロアニソール、ニトロアニリン、ニトロ安息香酸、ニトロトルエン、ニトロフェノール、ニトロベンジルアルコール、ニトロアセトフェノンが挙げられる。

[0024] [溶媒]

溶媒は、芳香族ニトリル化合物、カルボン酸化合物又はその塩を溶解できるものであれば、特に制限されない。

溶媒としては、例えば、水、有機溶媒が挙げられる。

有機溶媒としては、例えば、エチレングリコール、ジエチレングリコール、プロピレングリコール、グリセリン、1, 4-ブタンジオール、メチルセルソルブ、エチルセルソルブなどのアルコール類； γ -ブチロラクトンなどのラクトン類；エチレンカーボネート、プロピレンカーボネートなどのカーボネート類；メチルホルムアミド、ジメチルホルムアミド、エチルホルムアミド、ジエチルホルムアミド、メチルアセトアミド、ジメチルアセトアミド、エチルアセトアミド、ジエチルアセトアミドなどのアミド類；ジメチルスルホキシドなどのオキシド類；スルホラン、N-メチルピロリドンが挙げられる。

これらの溶媒は、単独で使用しても、複数種類を混合した混合溶媒として使用してもよい。

これらの中でも、水、エチレングリコールが好ましく、水及びエチレングリコールの組合せがより好ましい。

溶媒の含有量は、使用する蓄電デバイスの用途および定格電圧等により異

なるため、特に制限されないが、例えば、50～93質量%である。

[0025] 水の含有量は、好ましくは0.1～10質量%である。

上記水の含有量の下限は、好ましくは0.5質量%以上、より好ましくは1質量%以上、更に好ましくは2質量%以上である。

上記水の含有量の上限は、好ましくは8質量%以下、より好ましくは6質量%以下、更に好ましくは5質量%以下である。

[0026] 有機溶媒の含有量は、好ましくは50～93質量%である。

上記有機溶媒の含有量の下限は、好ましくは55質量%以上、より好ましくは60質量%以上、更に好ましくは70質量%以上である。

上記有機溶媒の含有量の上限は、好ましくは90質量%以下、より好ましくは85質量%以下、更に好ましくは80質量%以下である。

[0027] 電解液のpHは、好ましくは5～7である。特に6付近になるようにカルボン酸とその塩との比率を調整することが好ましい。

[0028] [電解コンデンサ]

アルミ電解コンデンサとしては、例えば、捲き取り形のアルミニウム電解コンデンサであって、陽極表面に酸化アルミニウムが形成された陽極（酸化アルミニウム箔）と陰極アルミニウム箔との間に、セパレータを介在させて捲回することにより構成された電解コンデンサが挙げられる。

この電解コンデンサに、本発明の電解液を駆動用電解液としてセパレータに含浸し、陽陰極と共に、例えば、有底筒状のアルミニウムケースに収納した後、アルミニウムケースの開口部を封口材で密封することで、アルミニウム電解コンデンサを製造することができる。

実施例

[0029] 以下に本発明の実施例を示すが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

測定方法、及び評価方法は、以下のとおりに行った。

[0030] [測定方法]

[pH測定方法]

東亜ディーケーケー株式会社製のpHメーター「TPX-999i」を用い測定を行った。

[0031] [評価方法]

[耐電圧]

アルミニウム製容器に対象の電解液を入れ、正電極側に接続したアルミプレーン箔を浸漬し、アルミニウム製容器に負電極を付け室温（25℃）にて、定電流発生装置「PS/EH01.5P6SLD0」（GLASSMAN HIGH VOLTAGE, INC）により、10mA/cm²の電流密度の定電流で化成した際の時間-電圧の上昇カーブを測定し、初めにシンチレーションが観測された電圧を耐電圧（V）とした。

[0032] [電解液の製造]

実施例1～10

100mLの三口フラスコに、表に示す種類及び割合の芳香族ニトリル、カルボン酸、水、及びエチレングリコールを総量100gとなるように調整し、当該フラスコにpHメーター、ガス吹き込み口を装着した。これを40℃のウオーターバスに浸漬し、窒素ガスを少量流しながらカルボン酸及びベンゾニトリルが完全に溶解するまで攪拌した。完全に溶解を確認した後に、40℃でpH=6（所定のpH）になるまでアンモニアガスを導入し、電解液を得た。その後電解液の耐電圧を測定した。

[0033] 比較例1～2

100mLの三口フラスコに、表に示す種類及び割合のカルボン酸、水、及びエチレングリコールを総量100gとなるように調整した以外は、実施例1と同様の方法により、電解液を得た。その後電解液の耐電圧を測定した。

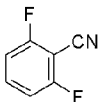
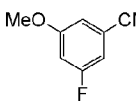
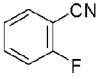
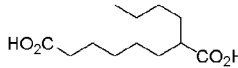
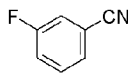
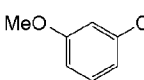
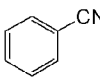
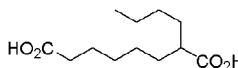
[0034] 実施例11～13

100mLの三口フラスコに、表に示す種類及び割合の芳香族ニトリル、カルボン酸、添加剤、水、及びエチレングリコールを総量100gとなるように調整した以外は、実施例1と同様の方法により、電解液を得た。その後

電解液の耐電圧を測定した。

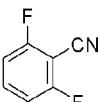
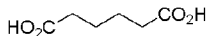
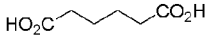
[0035] [表1]

表 1

	芳香族ニトリル化合物		カルボン酸		水 (質量%)	エチレン グリコール (質量%)	耐電圧 (V)
	種類	質量%	種類	質量%			
実施例1		10		10	3	77	520
実施例2		5		10	3	82	490
実施例3		2.5		10	3	84.5	465
実施例4		15		10	3	72	515
実施例5		10		10	3	77	490
実施例6		10		10	3	77	490
実施例7		10		10	3	77	475
実施例8		10		10	3	77	470
実施例9		10		10	3	77	455
比較例1	—	—		10	3	87	430

[0036] [表2]

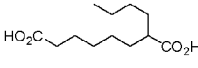
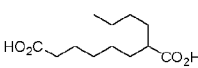
表 2

	芳香族ニトリル化合物		カルボン酸		水 (質量%)	エチレン グリコール (質量%)	耐電圧 (V)
	種類	質量%	種類	質量%			
実施例10		10		10	3	77	455
比較例2	—	—		10	3	87	415

[0037]

[表3]

表 3

	芳香族ニトリル化合物		カルボン酸		添加剤		水 (質量%)	エチレン グリコール (質量%)	耐電圧 (V)
	種類	質量%	種類	質量%	種類	質量%			
実施例11		10		10	アジポニトリル	10	3	67	485
実施例12					プロパルギル アルコール		3	67	475
実施例13		10		10	アジポニトリル	10	3	67	520

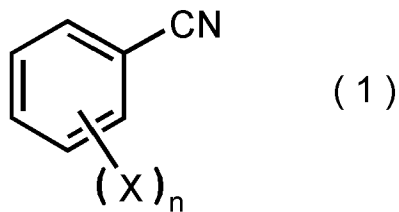
[0038] 以上、実施例及び比較例によれば、特定の芳香族ニトリル化合物を含むことで、電解液は優れた耐電圧性を示すことが理解できる。

請求の範囲

[請求項1] 0. 1～30質量%の下記一般式(1)で示される芳香族ニトリル化合物と、

炭素数5～20のカルボン酸又はその塩と、を含有するアルミ電解コンデンサ用電解液。

[化1]



(式中、Xは、ハロゲン原子、アルキル基、アルキルオキシ基、ヒドロキシ基、又はシアノメチル基を示し、nは0～5の整数である。)

[請求項2] 前記芳香族ニトリル化合物の、nが1～5の整数である、請求項1に記載のアルミ電解コンデンサ用電解液。

[請求項3] 前記カルボン酸がジカルボン酸である、請求項1又は2に記載のアルミ電解コンデンサ用電解液。

[請求項4] 脂肪族ジニトリル化合物、及びアルキニルアルコール化合物からなる群より選ばれる少なくとも1種の化合物を更に含む、請求項1～3のいずれかに記載のアルミ電解コンデンサ用電解液。

[請求項5] 前記カルボン酸が、1,6-デカンジカルボン酸、アジピン酸、スベリン酸、アゼライン酸、及びセバシン酸からなる群より選ばれる少なくとも1種を含む、請求項1～4のいずれかに記載のアルミ電解コンデンサ用電解液。

[請求項6] 請求項1～5のいずれかに記載の電解液を用いたアルミ電解コンデンサ。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/013956

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H01G9/035(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)

H01G9/035

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	1996-2017
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2017	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2017

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.
Y A	JP 2006-156728 A (Sanyo Chemical Industries, Ltd.), 15 June 2006 (15.06.2006), paragraph [0029]; table 2 (Family: none)	1, 3-6 2
Y A	JP 09-186052 A (Rubycon Corp.), 15 July 1997 (15.07.1997), claims 1, 3 (Family: none)	1, 3-6 2

☒ 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
02 June 2017 (02.06.17)

Date of mailing of the international search report
13 June 2017 (13.06.17)

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/JP2017/013956

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2003/028052 A1 (Rubycon Corp.), 03 April 2003 (03.04.2003), example 10 & US 2004/0245105 A1 & US 2007/0029529 A1 example 10 & EP 1437749 A1 & KR 10-0573448 B1 & TW 561498 B & CN 1529892 A	1-6
A	WO 2010/080009 A2 (LG Chem, Ltd.), 15 July 2010 (15.07.2010), claim 8 & US 2010/0304222 A1 claim 8 & EP 2378601 A2 & KR 10-2010-0082494 A & CN 102210054 A	1-6

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. H01G9/035 (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. H01G9/035

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	1971-2017年
日本国実用新案登録公報	1996-2017年
日本国登録実用新案公報	1994-2017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
Y A	JP 2006-156728 A (三洋化成工業株式会社) 2006.06.15, 段落[0029], 表2 (ファミリーなし)	1, 3-6 2
Y A	JP 09-186052 A (ルビコン株式会社) 1997.07.15, 請求項1, 3 (ファミリーなし)	1, 3-6 2

☒ 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

02.06.2017

国際調査報告の発送日

13.06.2017

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

小池 秀介

5 D

3 6 6 2

電話番号 03-3581-1101 内線 3551

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
A	WO 2003/028052 A1 (ルビコン株式会社) 2003. 04. 03, 実施例 10 & US 2004/0245105 A1 & US 2007/0029529 A1, 実施例 10 & EP 1437749 A1 & KR 10-0573448 B1 & TW 561498 B & CN 1529892 A	1-6
A	WO 2010/080009 A2 (エルジー・ケム・リミテッド) 2010. 07. 15, 請求項 8 & US 2010/0304222 A1, 請求項 8 & EP 2378601 A2 & KR 10-2010-0082494 A & CN 102210054 A	1-6