

(19)



**Евразийское  
патентное  
ведомство**

(21) **202390129** (13) **A1**

(12) **ОПИСАНИЕ ИЗОБРЕТЕНИЯ К ЕВРАЗИЙСКОЙ ЗАЯВКЕ**

(43) Дата публикации заявки  
**2023.05.10**

(22) Дата подачи заявки  
**2021.06.22**

(51) Int. Cl. **C01F 7/42** (2006.01)  
**C01G 1/02** (2006.01)  
**C01G 1/04** (2006.01)  
**C01G 3/06** (2006.01)  
**C01G 9/00** (2006.01)  
**C01G 23/04** (2006.01)  
**C01G 49/06** (2006.01)  
**C23C 22/05** (2006.01)

---

(54) **СПОСОБ ПОЛУЧЕНИЯ СОЕДИНЕНИЙ НА ОСНОВЕ МЕТАЛЛОВ И/ЛИ  
МЕТАЛЛОИДОВ В ИОННОЙ ЖИДКОСТИ**

---

(31) **2009470.2**

(32) **2020.06.22**

(33) **GB**

(86) **PCT/GB2021/051575**

(87) **WO 2021/260360 2021.12.30**

(71) Заявитель:  
**НАНОМОКС ЛТД (GB)**

(72) Изобретатель:

**Маларет Франциско, Кэмпбелл Кира  
Лорен Седранск, Халлетт Джейсон  
Патрик (GB)**

(74) Представитель:

**Кузнецова С.А. (RU)**

---

(57) Изобретение предусматривает способ получения соединения на основе металлов. Способ включает приведение в контакт источника металлов с реакционной смесью, где реакционная смесь содержит ионную жидкость и окислитель, и, таким образом, получение соединения на основе металлов.

---

**A1**

**202390129**

**202390129**

**A1**

## **СПОСОБ ПОЛУЧЕНИЯ СОЕДИНЕНИЙ НА ОСНОВЕ МЕТАЛЛОВ И/ИЛИ МЕТАЛЛОИДОВ В ИОННОЙ ЖИДКОСТИ**

### **Область техники**

Настоящее изобретение относится к способу получения соединений на основе металлов и/или металлоидов, включая без ограничения оксиды и гидроксиды. Соединения на основе металлов и металлоидов могут быть получены в нескольких формах, таких как микрочастицы, нанообъекты или пленки.

### **Предпосылки изобретения**

Существует глобальная тенденция к снижению воздействия промышленных процессов на окружающую среду. В целом это подразумевает широкий спектр изменений в промышленном секторе, направленных на сокращение отходов, энергопотребления и/или смягчение воздействия на окружающую среду. В некоторых случаях эти улучшения достигаются путем умеренных адаптаций к существующим технологиям, а в других случаях для решения этих задач применяются подходы, изменяющие парадигму в технологиях. В области синтеза на основе металлов, в частности, при образовании оксидов металлов (или тесно связанных с ними видов), были предприняты некоторые попытки, хотя в основном в небольшом (лабораторном) масштабе. Тем не менее, потенциал многих из этих технологических разработок не был реализован либо из-за неоправданных затрат, либо из-за неспособности масштабировать их в соответствии с промышленным спросом. Наиболее распространенные способы получения оксидов металлов в большом масштабе (наночастицы, микрочастицы или пленки) не являются надежными, поскольку они требуют высоких температур для окисления металлов или использования опасных химических веществ, таких как кислоты. В настоящее время существует двойственное отношение к пути синтеза оксидов металлов. Изготовление достаточного количества и целенаправленный синтез для некоторых вариантов применения включают часто упоминаемую потребность в контролируемой морфологии и размере частиц. Особенно актуальным примером являются варианты применения, в которых требуются наноразмерные частицы и

пленки, которые трудно получить в масштабе с требуемыми характеристиками (и допусками).

Ионные жидкости представляют собой соли с низкими точками плавления, что является результатом слабых сил притяжения катионов и анионов, в отличие от традиционных ионных солей, которые демонстрируют сильные взаимодействия. Это связано с природой составляющих ионов, такой как асимметрия или размер. Слабые силы притяжения приводят к тому, что эти вещества остаются жидкими в широком диапазоне температур, включая комнатную температуру или ниже, в большом количестве случаев. По сравнению с традиционными органическими растворителями ионные жидкости обладают чрезвычайно низкой летучестью, являются невоспламеняющимися и химически и термически стабильными, они обладают высокой тепловой и ионной проводимостью, высокой теплоемкостью и т. п. Эти признаки означают, что использование ионных жидкостей снижает факторы риска (тем самым повышая безопасность) и уменьшает воздействие на окружающую среду.

Ионные жидкости представляют собой всеобъемлющий термин, где химический состав может быть исключительно широким, как определено отдельными используемыми катионами и анионами. Что касается производства оксидов металлов (и других материалов на основе металлов), то большое количество различных ионных жидкостей позволяет разработать растворитель с нужными свойствами для контроля размера и формы образовавшихся частиц. При синтезе продуктов на основе металлов (например, оксидов металлов) способность ионной жидкости действовать как проводник дает дополнительное преимущество, способствуя протеканию электрохимических (например, окисление и восстановление) и химических реакций.

Сообщалось о некоторых разработках по синтезу частиц, в частности наночастиц, с использованием растворов, содержащих ионные жидкости. Тем не менее, работа до сих пор была ограничена. Это включало узкие исследования (нано) частиц, которые могут быть получены, легкость, с которой наночастицы могут быть отделены от других продуктов реакции, и возможность повторного использования ионной жидкости, что ограничивает практическую применимость известных подходов. Кроме того, стоимость ионных жидкостей может быть чрезвычайно высокой, поэтому для увеличения практической применимости ионных жидкостей необходимы процедуры переработки ионных жидкостей после использования.

В большинстве методов, опубликованных в литературе и предыдущих патентах, для получения наночастиц в ионных жидкостях в качестве источника металла используются восстановимые предшественники металлов, такие как соли металлов и металлоорганические соединения. Это обладает рядом недостатков.

В частности, соли металлов, как правило, более дорогие при нормализации содержания металла. Некоторые соли металлов производятся промышленным способом из металлов, что подразумевает повышенное потребление энергии, стадии обработки, используемые химические вещества и образующиеся отходы. Анионы, присутствующие в солях металлов, могут накапливаться в системе ионной жидкости, что увеличивает стоимость обработки для переработки ионной жидкости, могут совместно осаждаться с продуктами, что приводит к загрязнению и дополнительным технологическим стадиям для очистки, что в конечном итоге приводит к большему потреблению энергии, высоким капитальным затратам, большему расходу химических веществ и большему количеству образующихся отходов.

Другой проблемой, о которой сообщалось в отношении гидротермальных способов, известных из уровня техники, особенно для наночастиц, является агрегация частиц, для решения которой необходимы поверхностно-активные вещества или стабилизирующие средства.

Настоящее изобретение является результатом работы авторов настоящего изобретения в попытке преодолеть проблемы, связанные с известным уровнем техники.

### **Краткое описание**

В соответствии с первым аспектом настоящего изобретения представлен способ получения соединения на основе металла и/или металлоида, при этом способ предусматривает приведение источника металла и/или металлоида в контакт с реакционной смесью, где реакционная смесь содержит ионную жидкость и окислитель, и получение таким образом соединения металла и/или металлоида.

Ионные жидкости (ИЛ) могут быть электропроводными. Это отличает ИЛ от традиционных органических растворителей и может использоваться для обеспечения реакции окисления источника металла и/или металлоида, погруженного в ионную жидкость. Кроме того, ИЛ могут самостоятельно формироваться, и это может быть

использовано в качестве механизма, способствующего зарождению и росту кристаллов. Было продемонстрировано, что молекулярное строение ионных жидкостей в зависимости от условий растворения обеспечивает контроль не только над химическим составом образующихся продуктов соединений на основе металла и/или металлоида, но и над морфологией/свойством/размером. Эта способность, если ее использовать, позволяет очень хорошо контролировать синтез (т. е. настраиваемость) требуемого конечного продукта. Кроме того, свойство самостоятельного формирования в растворе также дает дополнительное преимущество в том, что суспензии частиц могут быть стабилизированы без поверхностно-активного вещества или другого подобного механизма, чтобы уменьшить или даже устранить нежелательное поведение, включая агломерацию и укрупнение частиц. Это добавляет дополнительные преимущества пути синтеза, включая хороший контроль реакции и улучшенную простоту разделения продуктов (с возможностью восстановления II).

Соединения на основе металлов и/или металлоидов, полученные указанным выше способом, могут быть использованы в качестве катализаторов химических реакций, в топливных элементах, в измерительном датчике, в суперконденсаторе или в качестве компонента батареи.

Источник металла и/или металлоида может содержать чистый металл, чистый металлоид, неочищенный металл, неочищенный металлоид, сплав, соединение, содержащее металл, соединение, содержащее металлоид, или раствор, содержащий ионы металла и/или металлоида, или состоять из них. В некоторых вариантах осуществления источник металла и/или металлоида представляет собой источник металлов. Источник металлов может содержать чистый металл, неочищенный металл, сплав или соединение, содержащее металл, или состоять из них.

Неочищенный металл и/или металлоид может представлять собой металл и/или металлоид, который был восстановлен или переработан. Металл и/или металлоид в соединении, содержащем металл и/или металлоид, может быть с нулевой степенью окисления или с низкой степенью окисления. Подразумевается, что металл и/или металлоид обладает низкой степенью окисления, если он может быть дополнительно окислен в результате электрохимической или химической реакции. Источник металла и/или металлоида может представлять собой композитную структуру. Композитная структура может содержать металл и/или металлоид внутри другого материала.

Источник металла и/или металлоида может быть твердым, жидким или присутствовать в растворе. В некоторых вариантах осуществления источник металла и/или металлоида представляет собой твердое вещество. Следует отметить, что источник металла и/или металлоида может иметь размеры от нанометра до метра. Источник металла и/или металлоида может представлять собой слиток, лист, проволоку, трубу, цельный пруток или порошок.

Источник металла и/или металлоида может содержать алюминий, сурьму, мышьяк, астат, барий, бериллий, висмут, бор, кадмий, цезий, кальций, церий, хром, кобальт, медь, диспрозий, эрбий, европий, гадолиний, галлий, германий, золото, гафний, гольмий, индий, иридий, железо, лантан, свинец, литий, лютеций, магний, марганец, ртуть, молибден, неодим, никель, ниобий, осмий, палладий, платину, полоний, калий, празеодим, рений, родий, рубидий, рутений, самарий, скандий, селен, кремний, серебро, натрий, тантал, теллур, тербий, торий, тулий, олово, титан, вольфрам, уран, ванадий, иттербий, иттрий, цинк и/или цирконий или состоять из них. Может быть отмечено, что сурьма, мышьяк, астат, бор, германий, полоний, селен, кремний и теллур являются металлоидами.

Сплав может содержать два или более металлов. Сплав может быть сплавом железа, сплавом ртути, сплавом олова, сплавом меди, сплавом алюминия, сплавом титана, сплавом никеля, сплавом кобальта, сплавом серебра, сплавом золота и/или сплавом висмута. Сплавом железа может быть алнико (т. е. сплав, содержащий железо, алюминий, никель и кобальт), чугун, сплав никеля с железом или сталь. Ртутным сплавом может быть амальгама. Сплав олова может представлять собой металл баббит (например, сплав, содержащий олово и сурьму, и необязательно дополнительно включающий свинец, медь и/или мышьяк) или пьютер (например, сплав, содержащий олово, сурьму, медь и висмут, и необязательно также серебро). Алюминиевым сплавом может быть магниево-алюминиевый сплав. Никелевым сплавом может быть нихром (т. е. сплав, содержащий никель и хром, и необязательно также железо) или никелево-титановый сплав. Кобальтовым сплавом может быть кобальто-хромовый сплав (например, стеллит). Серебряным сплавом может быть стерлинговое серебро. Золотым сплавом может быть белое золото. Сплавом висмута может быть металл Вуда (например, сплав, содержащий висмут, свинец, олово и кадмий).

Не требуется особой металлургической обработки или обработки поверхности после обработки. Тем не менее, способ может предусматривать такие виды обработки, которые могут быть использованы для улучшения способа. В некоторых вариантах осуществления способ предусматривает химическую и/или механическую очистку, полировку и/или травление источника металла и/или металлоида перед контактом с реакционной смесью.

Под термином «соединение на основе металла и/или металлоида» может пониматься неорганическое или металлоорганическое соединение, содержащее металл или металлоид. Металл и/или металлоид может представлять собой алюминий, сурьму, мышьяк, астат, барий, бериллий, висмут, бор, кадмий, цезий, кальций, церий, хром, кобальт, медь, диспрозий, эрбий, европий, гадолиний, галлий, германий, золото, гафний, гольмий, индий, иридий, железо, лантан, свинец, литий, лютеций, магний, марганец, ртуть, молибден, неодим, никель, ниобий, осмий, палладий, платину, полоний, калий, празеодим, рений, родий, рубидий, рутений, самарий, скандий, селен, кремний, серебро, натрий, тантал, теллур, тербий, торий, тулий, олово, титан, вольфрам, уран, ванадий, иттербий, иттрий, цинк и/или цирконий. В некоторых вариантах осуществления соединение на основе металла и/или металлоида предусматривает только один тип металла и/или металлоида. В альтернативных вариантах осуществления соединение на основе металла и/или металлоида может предусматривать два или более различных металла и/или металлоида.

Соединение на основе металла и/или металлоида может содержать кислород, азот, фосфор, галоген, серу, селен, углерод и/или водород. Кислород может быть в форме оксидной группы (O) в комбинации с водородом с получением гидроксидной группы (OH), в комбинации с азотом с получением нитратной группы или в комбинации с фосфором с получением фосфатной группы. Галоген может представлять собой фтор, хлор, йод или бром. Сера может быть в форме сульфида (S) или в комбинации с кислородом с образованием сульфата (SO<sub>4</sub>). Углерод может быть объединен с кислородом в форме карбонатной группы (CO<sub>3</sub>). Соответственно, соединение на основе металла и/или металлоида может представлять собой оксид металла и/или металлоида, галогенид металла и/или металлоида, сульфид металла и/или металлоида, селенид металла и/или металлоида, сульфат металла и/или металлоида, карбонат металла и/или металлоида, соль металла и/или металлоида неорганической или органической

кислоты, гидроксид металла и/или металлоида или соединение на основе металла и/или металлоида с комплексной структурой, металлоорганическое соединение, содержащее различные анионы, или их соль или сольват.

В некоторых вариантах осуществления соединение на основе металла и/или металлоида представляет собой моногидрат гидроксида хлорида цинка, гидроксид цинка, оксид цинка, оксид железа или тригидроксид хлорида димеди.

Соединение на основе металла и/или металлоида может представлять собой наночастицу, микрочастицу или пленку. Наночастица, микрочастица и/или пленка может быть моодисперсной и/или упорядоченной.

Под «наночастицей» следует понимать частицу, у которой по меньшей мере одно измерение составляет 999 нанометров или менее. Предпочтительно, по меньшей мере одно измерение составляет 750 нанометров или менее, 500 нанометров или менее, 250 нанометров или менее или 100 нанометров или менее.

Соединение на основе металла и/или металлоида может определять одномерную (1D), двумерную (2D) или трехмерную (3D) наночастицу. 1D наночастица может представлять собой наностержень, нанопроволоку, наноиглу, наноспираль, нанопружину, нанокольцо, наноленту, нанотрубку, нанопояс или наногребень. 2D частица может представлять собой нанолит, нанопластину или нанопеллетту. 3D наночастица может представлять собой наносферу, наносфероид, нанокуб, нанопирамиду, нанобипирамиду, наноодуванчик, наноснежинку, нанооктаэдр, наноусеченный куб, нанокубооктаэдр, наноусеченный октаэдр или нанохвойный ежикоподобный объект более высокой структуры, такой как гиперразветвленный наностержень.

«Микрочастицей» может быть частица, у которой все размеры более 100 нанометров, более 250 нанометров, более 500 нанометров, более 750 нанометров. В некоторых вариантах осуществления микрочастица представляет собой частицу, все размеры которой равны 1 мкм или больше. Под «микрочастицей» следует понимать частицу, у которой по меньшей мере одно измерение составляет 999 мкм или меньше.

Соединение на основе металла и/или металлоида может быть получено как закрепленным, так и незакрепленным на поверхности твердой подложки.



Пленка может быть веществом, содержащим по меньшей мере один слой, расположенный на твердой подложке. Пленка может состоять из одного слоя или состоять из множества слоев. Пленка может иметь толщину от нанометровой до макроскопической.

Источник металла и/или металлоида может определять твердую подложку. Соединение на основе металла и/или металлоида может быть кристаллическим или аморфным.

Под термином «окислитель» может подразумеваться вещество, способное забирать электроны у других реагентов в ходе окислительно-восстановительной реакции, тем самым выступая в качестве акцептора электронов. Альтернативно или дополнительно, окислитель может рассматриваться как способный переносить электроотрицательный атом к веществу. Электроотрицательным атомом может быть кислород. Вещество может представлять собой источник металла и/или металлоида. Окислитель может содержать воду, пероксид водорода, озон, кислород, галоген (например, фтор, хлор, йод или бром), нитрат калия и/или минеральную кислоту или состоять из них. Минеральная кислота может содержать серную и/или азотную кислоту. Окислитель может находиться в любом физическом состоянии (т. е. в твердом, газообразном, жидком или в растворе) и может быть смешиваемым, частично смешиваемым или несмешиваемым с ионной жидкостью. В некоторых вариантах осуществления окислитель представляет собой воду.

С помощью способа в качестве сопутствующего продукта может быть получен газообразный водород. В частности, водород может быть образован, если окислитель представляет собой воду или содержит ее. Способ может предусматривать сбор газообразного водорода. Следует понимать, что «сбор» является еще одним словом для обозначения «захвата». Газообразный водород может храниться и/или использоваться в дальнейших вариантах применения. Следует отметить, что газообразный водород используется во многих областях, таких как производство энергии. Соответственно, производство газообразного водорода в качестве сопутствующего продукта может быть выгодным.

Под ионной жидкостью следует понимать композицию, состоящую из катиона и аниона. Ионная жидкость может характеризоваться точкой плавления менее чем 350°C, менее чем 300°C, менее чем 250°C, менее чем 200°C или менее чем 150°C, более

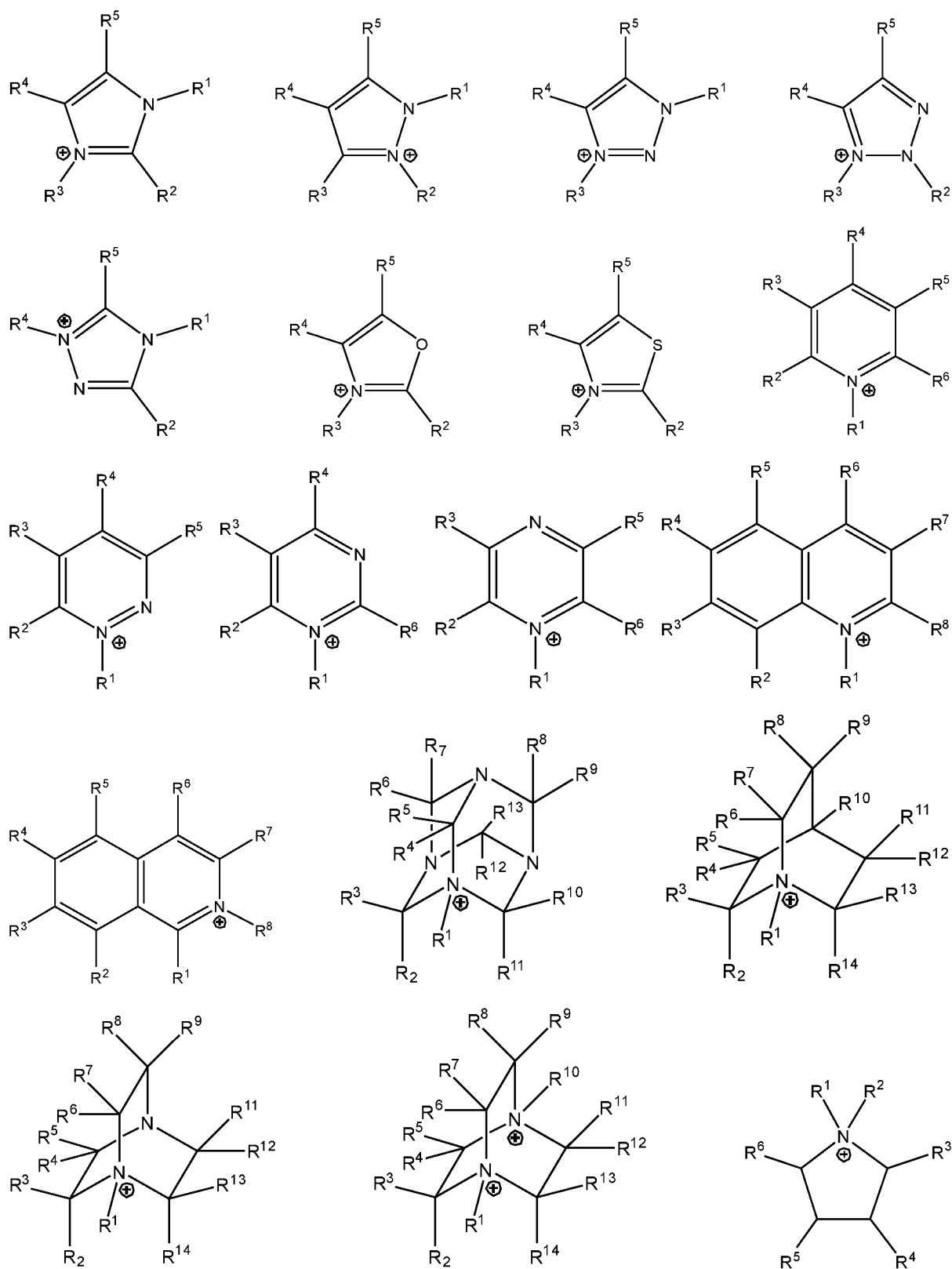
предпочтительно менее чем 100°C, менее чем 50°C или менее чем 25°C. Ионная жидкость может характеризоваться точкой плавления от -300°C до 350°C, от -250°C до 300°C, от -200°C до 250°C, от -150°C до 200°C или от -100°C до 150°C, более предпочтительно от -50°C до 100°C. В одном варианте осуществления ионная жидкость характеризуется точкой плавления от 0°C до 100°C, от 25°C до 90°C, от 50°C до 85°C или от 65°C до 75°C. В альтернативном варианте осуществления ионная жидкость характеризуется точкой плавления от -25°C до 50°C или от 0°C до 25°C.

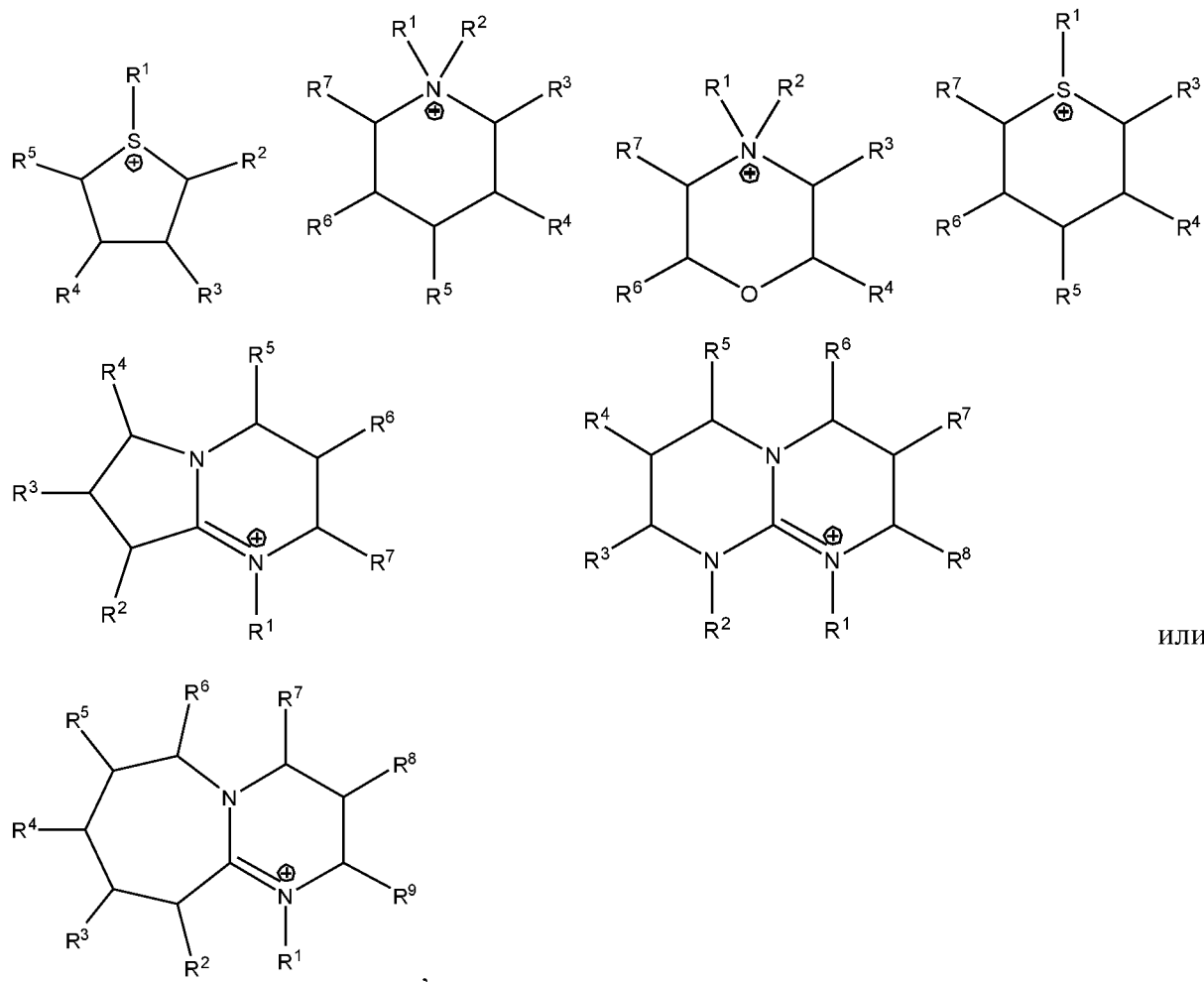
Катион может представлять собой молекулу, содержащую положительно заряженный атом. Положительно заряженный атом может представлять собой азот (N), фосфор (P) или серу (S). Катион может представлять собой органическую или неорганическую молекулу или атом.

В некоторых вариантах осуществления катион представляет собой положительно заряженный металлический катион.

В некоторых вариантах осуществления катион представляет собой необязательно замещенное положительно заряженное 3-15-членное гетероциклическое кольцо или необязательно замещенное положительно заряженное 5-15-членное гетероароматическое кольцо. Предпочтительно, катион представляет собой необязательно замещенное положительно заряженное 4-8-членное гетероциклическое кольцо или необязательно замещенное положительно заряженное 5-8-членное гетероароматическое кольцо, где гетероциклическое кольцо или гетероароматическое кольцо содержит один или более атомов азота. Более предпочтительно, катион представляет собой необязательно замещенное положительно заряженное 5-6-членное гетероциклическое кольцо или необязательно замещенное положительно заряженное 5-6-членное гетероароматическое кольцо, где гетероциклическое кольцо или гетероароматическое кольцо содержит один или более атомов азота. Предпочтительно, один из атомов азота является положительно заряженным.

В некоторых вариантах осуществления катион представляет собой:

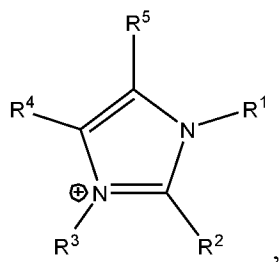




где  $R^1 - R^{14}$  независимо представляют собой H, необязательно замещенный  $C_{1-24}$ алкил, необязательно замещенный  $C_{2-24}$ алкенил, необязательно замещенный  $C_{2-24}$ алкинил, необязательно замещенный  $C_{3-24}$ циклоалкил, необязательно замещенный  $C_{6-12}$ арил,  $-OR^{15}$ ,  $-SR^{15}$ ,  $-CN$ ,  $-NR^{15}R^{16}$ ,  $-SO_3R^{15}$ ,  $-OSO_3R^{15}$ ,  $-COR^{15}$ ,  $-COOR^{15}$ ,  $-NO_2$ ,  $-Cl$ ,  $-Br$ ,  $-F$  или  $-I$ , или два из  $R^1 - R^{14}$  вместе с атомами, к которым они присоединены, образуют необязательно замещенное 3-15-членное кольцо, где  $R^{15}$  и  $R^{16}$  независимо представляют собой H, необязательно замещенный  $C_{1-24}$ алкил, необязательно замещенный  $C_{2-24}$ алкенил, необязательно замещенный  $C_{2-24}$ алкинил, необязательно замещенный  $C_{3-6}$ циклоалкил или необязательно замещенный  $C_{6-12}$ арил.

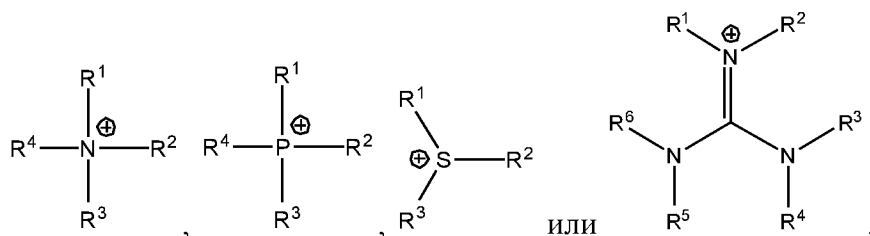
Необязательно замещенное 3-15-членное кольцо, образованное двумя из  $R^1 - R^{14}$  вместе с атомами, к которым они присоединены, может представлять собой необязательно замещенный  $C_{3-15}$ циклоалкил, необязательно замещенный 3-15-членный гетероцикл, необязательно замещенное 5-15-членное гетероароматическое соединение или необязательно замещенный  $C_{6-12}$ арил.

В предпочтительном варианте осуществления катион представляет собой:



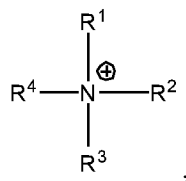
R<sup>1</sup> - R<sup>5</sup> могут представлять собой H, необязательно замещенный C<sub>1-24</sub>алкил, необязательно замещенный C<sub>2-24</sub>алкенил или необязательно замещенный C<sub>2-24</sub>алкинил. Более предпочтительно R<sup>1</sup> - R<sup>5</sup> представляют собой H, необязательно замещенный C<sub>1-12</sub>алкил, необязательно замещенный C<sub>2-12</sub>алкенил или необязательно замещенный C<sub>2-12</sub>алкинил. Наиболее предпочтительно R<sup>1</sup> - R<sup>5</sup> представляют собой H, необязательно замещенный C<sub>1-6</sub>алкил, необязательно замещенный C<sub>2-6</sub>алкенил или необязательно замещенный C<sub>2-6</sub>алкинил. R<sup>1</sup> может представлять собой метил. R<sup>2</sup> может представлять собой H. R<sup>3</sup> может представлять собой н-бутил или водород. R<sup>4</sup> может представлять собой H. R<sup>5</sup> может представлять собой H. Соответственно, катион может представлять собой 1-бутил-3-метилимидазол или 1-метилимидазол.

В альтернативном варианте осуществления катион представляет собой:



где R<sup>1</sup> - R<sup>6</sup> независимо представляют собой H, необязательно замещенный C<sub>1-24</sub>алкил, необязательно замещенный C<sub>2-24</sub>алкенил, необязательно замещенный C<sub>2-24</sub>алкинил, необязательно замещенный C<sub>3-6</sub>циклоалкил, необязательно замещенный C<sub>6-12</sub>арил, -OR<sup>15</sup>, -SR<sup>15</sup>, -CN, -NR<sup>15</sup>R<sup>16</sup>, -SO<sub>3</sub>R<sup>15</sup>, -OSO<sub>3</sub>R<sup>15</sup>, -COR<sup>15</sup>, -COOR<sup>15</sup>, -NO<sub>2</sub>, -Cl, -Br, -F или -I, или два из R<sup>1</sup> - R<sup>6</sup> вместе с атомами, к которым они присоединены, образуют необязательно замещенное 3-15-членное кольцо, где R<sup>15</sup> и R<sup>16</sup> независимо представляют собой H, необязательно замещенный C<sub>1-24</sub>алкил, необязательно замещенный C<sub>2-24</sub>алкенил, необязательно замещенный C<sub>2-24</sub>алкинил, необязательно замещенный C<sub>3-6</sub>циклоалкил или необязательно замещенный C<sub>6-12</sub>арил.

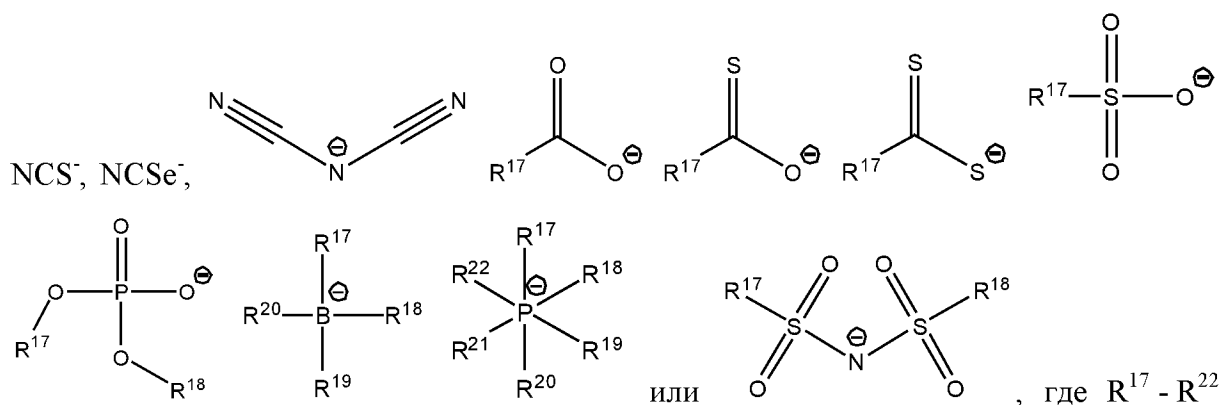
Катион может представлять собой:



$\text{R}^1 - \text{R}^4$  могут представлять собой H, необязательно замещенный  $\text{C}_{1-24}$ алкил, необязательно замещенный  $\text{C}_{2-24}$ алкенил или необязательно замещенный  $\text{C}_{2-24}$ алкинил. Более предпочтительно  $\text{R}^1 - \text{R}^4$  представляют собой H, необязательно замещенный  $\text{C}_{1-12}$ алкил, необязательно замещенный  $\text{C}_{2-12}$ алкенил или необязательно замещенный  $\text{C}_{2-12}$ алкинил. Наиболее предпочтительно  $\text{R}^1 - \text{R}^4$  представляют собой H, необязательно замещенный  $\text{C}_{1-6}$ алкил, необязательно замещенный  $\text{C}_{2-6}$ алкенил или необязательно замещенный  $\text{C}_{2-6}$ алкинил.  $\text{R}^1$  может представлять собой бутил.  $\text{R}^2$  может представлять собой метил.  $\text{R}^3$  может представлять собой метил.  $\text{R}^4$  может представлять собой H. Соответственно, катион может представлять собой -N,N-диметилбутиламмоний.

Анион может представлять собой галогенид или молекулу, содержащую отрицательно заряженный атом или делокализованный отрицательный заряд. Молекула может представлять собой органическую или неорганическую молекулу.

Соответственно, анион может представлять собой  $\text{F}^-$ ,  $\text{Cl}^-$ ,  $\text{Br}^-$ ,  $\text{I}^-$ ,  $\text{ClO}_4^-$ ,  $\text{BrO}_4^-$ ,  $\text{NO}_3^-$ ,  $\text{NC}^-$ ,



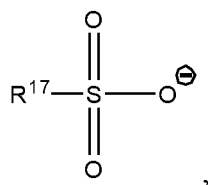
независимо представляют собой H, необязательно замещенный  $\text{C}_{1-24}$ алкил, необязательно замещенный  $\text{C}_{2-24}$ алкенил, необязательно замещенный  $\text{C}_{2-24}$ алкинил, необязательно замещенный  $\text{C}_{3-6}$ циклоалкил, необязательно замещенный  $\text{C}_{6-12}$ арил, - $\text{OR}^{15}$ , - $\text{SR}^{15}$ , - $\text{CN}$ , - $\text{NR}^{15}\text{R}^{16}$ , - $\text{SO}_3\text{R}^{15}$ , - $\text{OSO}_3\text{R}^{15}$ , - $\text{COR}^{15}$ , - $\text{COOR}^{15}$ , - $\text{NO}_2$ , - $\text{Cl}$ , - $\text{Br}$ , - $\text{F}$  или - $\text{I}$ , или два из  $\text{R}^{17} - \text{R}^{22}$ , вместе с атомами, к которым они присоединены, образуют необязательно замещенное 3-15-членное кольцо, где  $\text{R}^{15}$  и  $\text{R}^{16}$  независимо

представляют собой H, необязательно замещенный C<sub>1-24</sub>алкил, необязательно замещенный C<sub>2-24</sub>алкенил, необязательно замещенный C<sub>2-24</sub>алкинил, необязательно замещенный C<sub>3-6</sub>циклоалкил или необязательно замещенный C<sub>6-12</sub>арил.

Необязательно замещенное 3-15-членное кольцо, образованное двумя из R<sup>17</sup> - R<sup>22</sup> вместе с атомами, к которым они присоединены, может представлять собой необязательно замещенный C<sub>3-15</sub>циклоалкил, необязательно замещенный 3-15-членный гетероцикл, необязательно замещенное 5-15-членное гетероароматическое соединение или необязательно замещенный C<sub>6-12</sub>арил.

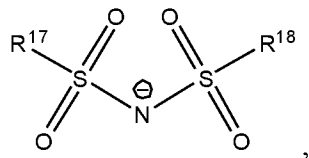
В некоторых вариантах осуществления анион представляет собой F<sup>-</sup>, Cl<sup>-</sup>, Br<sup>-</sup> или I<sup>-</sup>. Анион может представлять собой Cl<sup>-</sup>.

В некоторых вариантах осуществления анион представляет собой:



R<sup>17</sup> может представлять собой H, необязательно замещенный C<sub>1-12</sub>алкил, необязательно замещенный C<sub>2-12</sub>алкенил, необязательно замещенный C<sub>2-12</sub>алкинил, необязательно замещенный C<sub>3-6</sub>циклоалкил, необязательно замещенный C<sub>6-12</sub>арил, -OR<sup>15</sup>, -SR<sup>15</sup>, -CN, -NR<sup>15</sup>R<sup>16</sup>, -SO<sub>3</sub>R<sup>15</sup>, -OSO<sub>3</sub>R<sup>15</sup>, -COR<sup>15</sup>, -COOR<sup>15</sup> или -NO<sub>2</sub>. R<sup>17</sup> может представлять собой -OR<sup>15</sup> или -SR<sup>15</sup>. Предпочтительно R<sup>17</sup> представляет собой -OR<sup>15</sup>. R<sup>15</sup> может представлять собой H, необязательно замещенный C<sub>1-12</sub>алкил, необязательно замещенный C<sub>2-12</sub>алкенил, необязательно замещенный C<sub>2-12</sub>алкинил. Предпочтительно R<sup>15</sup> представляет собой H.

Альтернативно анион может представлять собой:



R<sup>17</sup> и R<sup>18</sup> независимо могут представлять собой H, необязательно замещенный C<sub>1-12</sub>алкил, необязательно замещенный C<sub>2-12</sub>алкенил, необязательно замещенный C<sub>2-</sub>

$C_{12}$ алкинил, необязательно замещенный  $C_{3-6}$ циклоалкил, необязательно замещенный  $C_{6-12}$ арил-Cl, -Br, -F или -I.  $R^{17}$  и  $R^{18}$  независимо могут представлять собой H, необязательно замещенный  $C_{1-6}$ алкил, необязательно замещенный  $C_{2-6}$ алкенил или необязательно замещенный  $C_{2-6}$ алкинил, Предпочтительно  $R^{17}$  и  $R^{18}$  независимо представляют собой необязательно замещенный  $C_{1-3}$ алкил и наиболее предпочтительно каждый из  $R^{17}$  и  $R^{18}$  необязательно представляет собой замещенный метил. Алкил, алкенил и/или алкинил предпочтительно замещены одним или более атомами галогена, предпочтительно фтором. Соответственно, каждый из  $R^{17}$  и  $R^{18}$  может представлять собой  $CF_3$ .

В некоторых вариантах осуществления анион представляет собой тетрафторборат, бис(трифторметансульфонил)амид, бис(фторсульфонил)имид, бис(оксалат)борат, трифторацетат, трифторметансульфонат или п-тозилат.

Анион может представлять собой отрицательно заряженный комплекс на основе металлов. Например, анион может представлять собой комплекс металл-галогенид. Предпочтительно комплекс на основе тетрагалогенида металла, такой как комплекс на основе тетрагалогенида алюминия, комплекс на основе тетрагалогенида железа и/или комплекс на основе тетрагалогенида цинка. Комплекс металл-галогенид может представлять собой тетрахлоралюминат, тетрахлорофerrat, бромотрихлорофerrat, дианион тетрахлороцинката или дианион дибромодихлороцинката.

Соответственно, неорганическая жидкость может представлять собой 1-н-бутил-3-метилимидазолия хлорид, гидрофосфат бутилдиметиламмония, бис(трифторметилсульфонил)имид 1-н-бутил-3-метилимидазолия или метилимидазолия хлорид.

Используемый в данном описании термин «алкил», если не указано иное, относится к необязательно замещенному насыщенному углеводороду с неразветвленной или разветвленной цепью. Один или каждый необязательно замещенный алкил может представлять собой необязательно замещенный  $C_{1-12}$ алкил или необязательно замещенный  $C_{1-6}$ алкил.

Термин «алкенил» относится к необязательно замещенной олеиново ненасыщенной углеводородной группе, которая может быть неразветвленной или разветвленной. Один



или каждый необязательно замещенный алкенил может представлять собой необязательно замещенный C<sub>2-12</sub>алкенил или необязательно замещенный C<sub>2-6</sub>алкенил.

Термин «алкинил» относится к необязательно замещенной ацетиленово ненасыщенной углеводородной группе, которая может быть неразветвленной или разветвленной. Один или каждый необязательно замещенный алкинил может представлять собой необязательно замещенный C<sub>2-12</sub>алкинил или необязательно замещенный C<sub>2-6</sub>алкинил.

Один или каждый алкил, алкенил и/или алкинил может быть незамещенным или замещенным одним или более из необязательно замещенного C<sub>3-6</sub>циклоалкила, необязательно замещенного фенила, оксо, -OR<sup>23</sup>, -SR<sup>23</sup>, -CN, -NR<sup>23</sup>R<sup>24</sup>, -SO<sub>3</sub>R<sup>23</sup>, -OSO<sub>3</sub>R<sup>23</sup>, -COR<sup>23</sup>, -COOR<sup>23</sup>, -NO<sub>2</sub>, -Cl, -Br, -F или -I, где R<sup>23</sup> и R<sup>24</sup> независимо представляют собой H, необязательно замещенный C<sub>1-24</sub>алкил, необязательно замещенный C<sub>2-24</sub>алкенил, необязательно замещенный C<sub>2-24</sub>алкинил, необязательно замещенный C<sub>3-6</sub>циклоалкил или необязательно замещенный фенил.

«Арил» относится к необязательно замещенной ароматической 6-12-членной углеводородной группе. Необязательно замещенный арил может представлять собой необязательно замещенный фенил. Арил может быть незамещенным или замещенным одним или более из необязательно замещенного C<sub>1-24</sub>алкила, необязательно замещенного C<sub>2-24</sub>алкенила, необязательно замещенного C<sub>2-24</sub>алкинила, необязательно замещенного C<sub>3-6</sub>циклоалкила, необязательно замещенного C<sub>6-12</sub>арила, -OR<sup>23</sup>, -SR<sup>23</sup>, -CN, -NR<sup>23</sup>R<sup>24</sup>, -SO<sub>3</sub>R<sup>23</sup>, -OSO<sub>3</sub>R<sup>23</sup>, -COR<sup>23</sup>, -COOR<sup>23</sup>, -NO<sub>2</sub>, -Cl, -Br, -F или -I, где R<sup>23</sup> и R<sup>24</sup> независимо представляют собой H, необязательно замещенный C<sub>1-24</sub>алкил, необязательно замещенный C<sub>2-24</sub>алкенил, необязательно замещенный C<sub>2-24</sub>алкинил, необязательно замещенный C<sub>3-24</sub>циклоалкил или необязательно замещенный C<sub>6-12</sub>арил.

«Циклоалкил» относится к необязательно замещенной, неароматической, насыщенной, частично насыщенной, моноциклической, бициклической или полициклической углеводородной системе кольцевых членов.

«Гетероарил» или «гетероароматическое кольцо» относится к необязательно замещенной, моноциклической или бициклической ароматической кольцевой системе, в которой по меньшей мере один кольцевой атом представляет собой гетероатом. Один или каждый гетероатом может быть независимо выбран из группы, состоящей из кислорода, серы и азота.

«Гетероцикл» или «гетероциклическое кольцо» относится к необязательно замещенным, моноциклическим, бициклическим или соединенным мостиковой связью молекулам, в которых по меньшей мере один кольцевой атом представляет собой гетероатом. Один или каждый гетероатом может быть независимо выбран из группы, состоящей из кислорода, серы и азота.

Один или каждый циклоалкил, гетероцикл/гетероциклическое кольцо и/или гетероарил/гетероароматическое кольцо может быть незамещенным или замещенным одним или более из необязательно замещенного C<sub>1-24</sub>алкила, необязательно замещенного C<sub>2-24</sub>алкенила, необязательно замещенного C<sub>2-24</sub>алкинила, необязательно замещенного C<sub>3-6</sub>циклоалкила, необязательно замещенного C<sub>6-12</sub>арила, оксо, -OR<sup>23</sup>, -SR<sup>23</sup>, -CN, -NR<sup>23</sup>R<sup>24</sup>, -SO<sub>3</sub>R<sup>23</sup>, -OSO<sub>3</sub>R<sup>23</sup>, -COR<sup>23</sup>, -COOR<sup>23</sup>, -NO<sub>2</sub>, -Cl, -Br, -F или -I, где R<sup>23</sup> и R<sup>24</sup> независимо представляют собой H, необязательно замещенный C<sub>1-24</sub> алкил, необязательно замещенный C<sub>2-24</sub>алкенил, необязательно замещенный C<sub>2-24</sub>алкинил, необязательно замещенный C<sub>3-24</sub>циклоалкил или необязательно замещенный C<sub>6-12</sub>арил.

Способ может предусматривать приведение в контакт источника металла и/или металлоида с одним из ионной жидкости и окислителя с образованием первой смеси, последующее приведение в контакт первой смеси с другим из ионной жидкости и окислителя с образованием таким образом реакционной смеси и одновременное приведение в контакт источника металла и/или металлоида с реакционной смесью.

Альтернативно способ может предусматривать приведение в контакт ионной жидкости и окислителя с образованием реакционной смеси перед приведением в контакт реакционной смеси и источника металла и/или металлоида.

Реакционная смесь может состоять из ионной жидкости и окислителя. Альтернативно реакционная смесь может дополнительно содержать одну или более добавок. Одна или более добавок могут содержать катализатор, стабилизатор и/или молекулярный растворитель.

Молекулярный растворитель может представлять собой ацетонитрил, дихлорметан, хлороформ, тетрагидрофуран (THF), 2-метилтетрагидрофуран (2-MeTHF), метилтрет-бутиловый эфир (ТВМЕ), амин (например, триметиламин или пиридин), толуол, гептан, диметилсульфоксид (DMSO), сульфолан, N,N'-диметилпропиленмочевина (DMPU), спирт (например, изобутанол, изоамиловый спирт или 1,2-пропандиол,

глицерин), сложный эфир (например, изобутилацетат, изоамилацетат, гликоляцетат,  $\gamma$ -валеролактон или диэтилсукцинат), эфир (например, трет-амилметиловый эфир (ТАМЕ), циклопентилметиловый эфир (СРМЕ) или этил-трет-бутиловый эфир (ЕТВЕ)), углеводород (например, d-лимонен, терпентин или п-цимен), диполярный апротонный растворитель (например, диметилкарбонат, этиленкарбонат, пропиленкарбонат или цирен), этиллактат, органическую кислоту (например, уксусную кислоту, молочную кислоту или тетрагидрофолиевую кислоту (ТНФА)), кетон (например, ацетон, метилэтилкетон или метилизобутилкетон (МИБК)), алкоксиамин, амид (например, N-метил-2-пирролидон (NMP)) или их комбинацию.

Стабилизирующее средство может представлять собой длинноцепочечные алкильные поверхностно-активные вещества, такие как длинноцепочечная кислота алкилкарбоксилата, длинноцепочечный алкиламин и/или полимер. Соответственно, стабилизирующее средство может представлять собой  $\text{COOR}^{25}$ ,  $\text{P(O)(OH)R}^{25}\text{R}^{26}$ ,  $\text{P(O)R}^{25}\text{R}^{26}\text{R}^{27}$ ,  $\text{NR}^{25}\text{R}^{26}\text{R}^{27}$ ,  $\text{XNR}^{25}\text{R}^{26}\text{R}^{27}\text{R}^{28}$ ,  $\text{R}^{25}\text{OH}$  или полимер, где  $\text{R}^{25}$  представляет собой необязательно замещенный  $\text{C}_{5-50}$ алкил, необязательно замещенный  $\text{C}_{5-50}$ алкенил или необязательно замещенный  $\text{C}_{5-50}$ алкинил,  $\text{R}^{26} - \text{R}^{28}$  необязательно представляют собой H, необязательно замещенный  $\text{C}_{1-24}$ алкил, необязательно замещенный  $\text{C}_{1-24}$ алкенил или необязательно замещенный  $\text{C}_{1-24}$ алкинил, и X представляет собой галогенид.  $\text{R}^{25}$  может представлять собой необязательно замещенный  $\text{C}_{10-30}$ алкил, необязательно замещенный  $\text{C}_{10-30}$ алкенил или необязательно замещенный  $\text{C}_{10-30}$ алкинил. Соответственно, стабилизирующее средство может представлять собой олеиновую кислоту, бис-(2,4,4-триметилпентил)фосфиновую кислоту, стеариновую кислоту, олеиламин, гексадециламин, 1,2-гександекандиол, бромид ценилтриметиламмония, N,N-диметилгексадециламин, три-н-октилфосфиноксид, этиленгликоль или поли(винилпирролидон).

Реакционная смесь может содержать ионную жидкость и окислитель в весовом соотношении от 1:1000 до 1000:1, от 1:750 до 750:1, от 1:500 до 500:1, от 1:250 до 250:1, от 1:100 до 100:1, более предпочтительно от 1:50 до 50:1, от 1:25 до 25:1 или от 1:15 до 15:1 и наиболее предпочтительно от 1:10 до 10:1, от 1:7 до 7:1 или от 1:6 до 5:1 или состоять из них. В одном варианте осуществления реакционная смесь может содержать ионную жидкость и окислитель в весовом соотношении от 1:10 до 2:1, от 1:8 до 1:1, от 1:6 до 1:2 или от 1:5 до 1:4 или состоять из них. В альтернативном варианте

осуществления реакционная смесь может содержать ионную жидкость и окислитель в весовом соотношении от 1:5 до 10:1, от 1:1 до 8:1, от 2:1 до 6:1 или от 3:1 до 4:1 или состоять из них. В дополнительном альтернативном варианте осуществления реакционная смесь может содержать ионную жидкость и окислитель в весовом соотношении от 1:10 до 5:1, от 1:5 до 2:1 или от 1:2 до 1:1 или состоять из них.

Реакционная смесь может содержать ионную жидкость и окислитель в молярном соотношении от 1:1000 до 100:1, более предпочтительно от 1:500 до 50:1, от 1:250 до 10:1 или от 1:100 до 5:1 и наиболее предпочтительно от 1:80 до 3:1, от 1:70 до 2:1, от 1:60 до 1:1 или от 1:50 до 1:2 или состоять из них. В одном варианте осуществления реакционная смесь может содержать ионную жидкость и окислитель в молярном соотношении от 1:100 до 1:5, от 1:90 до 1:10, от 1:80 до 1:20, от 1:70 до 1:30, от 1:60 до 1:40 или от 1:55 до 1:45 или состоять из них. В альтернативном варианте осуществления реакционная смесь может содержать ионную жидкость и окислитель в молярном соотношении от 1:50 до 4:1, от 1:40 до 3:1, от 1:20 до 2:1, от 1:10 до 1:1, от 1:5 до 1:2 или от 1:4 до 1:3 или состоять из них. В дополнительном альтернативном варианте осуществления реакционная смесь может содержать ионную жидкость и окислитель в молярном соотношении от 1:50 до 1:4, от 1:40 до 1:6, от 1:30 до 1:8, от 1:20 до 1:10 или от 1:18 до 1:13 или состоять из них.

Источник металла и/или металлоида и реакционная смесь могут быть представлены в весовом соотношении от 1:100 до 100:1, от 1:80 до 80:1, от 1:50 до 50:1, от 1:20 до 20:1, от 1:10 до 10:1, от 1:5 до 5:1 или от 1:2 до 2:1.

Источник металла и/или металлоида и реакционная смесь могут быть приведены в контакт при температуре от  $-50^{\circ}\text{C}$  до  $500^{\circ}\text{C}$ , более предпочтительно от  $-25^{\circ}\text{C}$  до  $400^{\circ}\text{C}$  или от  $0^{\circ}\text{C}$  до  $300^{\circ}\text{C}$  и наиболее предпочтительно от  $5^{\circ}\text{C}$  до  $200^{\circ}\text{C}$  или от  $10^{\circ}\text{C}$  до  $175^{\circ}\text{C}$ . В одном варианте осуществления источник металла и/или металлоида и реакционную смесь приводят в контакт при температуре от  $25^{\circ}\text{C}$  до  $200^{\circ}\text{C}$ , от  $50^{\circ}\text{C}$  до  $190^{\circ}\text{C}$ , от  $100^{\circ}\text{C}$  до  $180^{\circ}\text{C}$ , от  $125^{\circ}\text{C}$  до  $170^{\circ}\text{C}$  или от  $140^{\circ}\text{C}$  до  $160^{\circ}\text{C}$ . В альтернативном варианте осуществления источник металла и/или металлоида и реакционную смесь приводят в контакт при температуре от  $25^{\circ}\text{C}$  до  $200^{\circ}\text{C}$ , от  $50^{\circ}\text{C}$  до  $190^{\circ}\text{C}$ , от  $75^{\circ}\text{C}$  до  $180^{\circ}\text{C}$ , от  $100^{\circ}\text{C}$  до  $150^{\circ}\text{C}$  или от  $110^{\circ}\text{C}$  до  $130^{\circ}\text{C}$ . В дополнительном альтернативном варианте осуществления источник металла и/или металлоида и реакционную смесь приводят в контакт при температуре от  $20^{\circ}\text{C}$  до  $150^{\circ}\text{C}$ , от  $40^{\circ}\text{C}$  до  $100^{\circ}\text{C}$  или от  $60^{\circ}\text{C}$  до

80°C. Еще в дополнительном альтернативном варианте осуществления источник металла и/или металлоида и реакционную смесь приводят в контакт при температуре от 0°C до 150°C, от 10°C до 100°C, от 20°C до 75°C или от 30°C до 50°C. Еще в дополнительном варианте осуществления источник металла и/или металлоида и реакционную смесь приводят в контакт при температуре от 0°C до 100°C, от 5°C до 50°C, от 10°C до 30°C или от 15°C до 25°C.

Источник металла и/или металлоида и реакционная смесь могут быть приведены в контакт при давлении от 1 кПа до 100000 кПа, от 10 кПа до 10000 кПа, от 20 кПа до 1000 кПа, от 40 кПа до 500 кПа, от 60 кПа до 250 кПа, от 80 кПа до 150 кПа, от 90 кПа до 110 кПа или от 95 кПа до 105 кПа. Источник металла и/или металлоида и реакционная смесь могут быть приведены в контакт при атмосферном давлении. Следует отметить, что атмосферное давление составляет 101,325 кПа.

Источник металла и/или металлоида и реакционная смесь могут быть приведены в контакт в течение по меньшей мере 1 минуты, по меньшей мере 15 минут, по меньшей мере 30 минут, по меньшей мере 1 часа, по меньшей мере 6 часов, по меньшей мере 12 часов, по меньшей мере 24 часов или по меньшей мере 48 часов. В некоторых вариантах осуществления источник металла и/или металлоида и реакционную смесь приводят в контакт в течение по меньшей мере 3 суток, по меньшей мере 5 суток, по меньшей мере 7,5 суток, по меньшей мере 10 суток, по меньшей мере 15 суток, по меньшей мере 20 суток, по меньшей мере 25 суток, по меньшей мере 30 суток, по меньшей мере 40 суток, по меньшей мере 50 суток или по меньшей мере 60 суток.

Источник металла и/или металлоида и реакционная смесь могут быть приведены в контакт в течение от 1 минуты до 500 суток, от 1 часа до 200 суток, от 12 часов до 100 суток, от 24 часов до 80 суток или от 48 часов до 70 суток. В некоторых вариантах осуществления источник металла и/или металлоида и реакционную смесь приводят в контакт в течение от 1 минуты до 25 суток, от 1 часа до 10 суток, от 3 часов до 5 суток, от 6 часов до 4 суток, от 8 часов до 2 суток или от 12 часов до 36 часов. В некоторых вариантах осуществления источник металла и/или металлоида и реакционную смесь приводят в контакт в течение от 1 суток до 50 суток, от 2 суток до 30 суток, от 3 суток до 20 суток или от 4 суток до 10 суток. В альтернативных вариантах осуществления источник металла и/или металлоида и реакционную смесь приводят в контакт в течение от 30 суток до 100 суток или от 40 суток до 70 суток.

Источник металла и/или металлоида предпочтительно представляет собой твердое вещество. Реакционная смесь предпочтительно представляет собой жидкость. Отношение площади поверхности источника металла и/или металлоида к объему жидкости реакционной смеси может составлять от 0,001 до 100 мл/мм<sup>2</sup>, от 0,01 до 10 мл/мм<sup>2</sup>, от 0,05 до 1 мл/мм<sup>2</sup>, от 0,1 до 0,5 мл/мм<sup>2</sup> или от 0,15 до 0,3 мл/мм<sup>2</sup>.

Способ может предусматривать отделение соединения на основе металла и/или металлоида от ионной жидкости. Соединение на основе металла и/или металлоида может быть отделено от ионной жидкости путем фильтрации и/или центрифугирования. В зависимости от размера соединения на основе металла и/или металлоида способ может предусматривать применение обычной фильтрации, ультрафильтрации или нанофильтрации.

Частицы, образованные на твердом веществе, обладают низкой растворимостью в фазе ионная жидкость-окислитель. Кроме того, окислитель расходуется и переходит в твердую фазу во время реакции. Соответственно, фаза ионной жидкости преимущественно может не содержать примесей. Таким образом, можно легко повторно использовать фазу ионной жидкости. Ионная жидкость, переработанная в результате описанных в данном документе реакций, сохраняет характеристики термической и химической стабильности непереработанной, новой ионной жидкости. Более того, можно продолжать повторное использование ионной жидкости через несколько партий реакций, описанных в данном документе. Например, описанные в данном документе реакции могут быть повторены один, два, три, четыре, пять или более раз с исходной ионной жидкостью.

Соответственно, способ может предусматривать очистку ионной жидкости после отделения. В различных иллюстративных вариантах осуществления отделенная ионная жидкость может быть очищена путем пропускания ионной жидкости через колонку из поглощающего вещества, такого как, например, глинозем, активированный уголь, цеолиты или силикагель. Кроме того, летучие примеси могут быть удалены из отделенной ионной жидкости путем нагревания. Такое нагревание можно проводить под вакуумом или при атмосферном давлении, а также можно проводить на воздухе или в атмосфере инертного газа, такого как азот или аргон. Металлические примеси могут быть удалены путем электроосаждения. Металлические примеси, которые могут быть образованы из источника металла и/или металлоида, также могут быть удалены с

помощью химических или электрохимических способов, например, экстракцией жидкость-жидкость с хелатирующими средствами или без них, селективной кристаллизацией путем понижения температуры реакционных смесей, электроосаждением в ячейках для электролитического выделения или осаждением с помощью химических средств.

Способ может предусматривать нагревание соединения на основе металла и/или металлоида с обеспечением химической реакции соединения металла и/или металлоида и получением дополнительного соединения металла и/или металлоида. Способ может включать нагревание соединения на основе металла и/или металлоида с последующим отделением соединения на основе металла и/или металлоида от реакционной смеси. Способ может предусматривать нагревание соединения на основе металла и/или металлоида в воздухе или кислороде. Способ может предусматривать нагревание соединения на основе металла и/или металлоида при температуре по меньшей мере 50°C, по меньшей мере 100°C, по меньшей мере 200°C, по меньшей мере 300°C, по меньшей мере 400°C или по меньшей мере 450°C. Способ может предусматривать нагревание соединения металла и/или металлоида при температуре от 50°C до 1000°C, от 100°C до 900°C, от 200°C до 800°C, от 300°C до 700°C, от 400°C до 600°C или от 450°C до 550°C. В таком варианте осуществления соединение на основе металла и/или металлоида может содержать гидроксидную группу и/или галогенид. Дополнительное соединение на основе металла и/или металлоида может представлять собой оксид металла или оксид металлоида.

Способ может быть проведен в виде периодического процесса. Альтернативно способ может быть проведен как непрерывный или полунепрерывный процесс. Например, если способ проводится как непрерывный процесс, ионная жидкость, окислитель и источник металла и/или металлоида могут постоянно вводиться в реактор.

Авторы настоящего изобретения отмечают, что способ первого аспекта может быть использован для получения новых соединений.

В соответствии со вторым аспектом предусмотрен комплекс медь-цинк-оксохлорид.

Комплекс может состоять из меди, цинка, кислорода и хлора.

Комплекс может содержать от 1 до 75 ат. % меди, более предпочтительно от 2 до 50 ат. % или от 5 до 45 ат. % меди и наиболее предпочтительно от 10 до 40 ат. %, от 20 до 35 ат. % или от 25 до 30 ат. % меди.

Комплекс может содержать от 0,1 до 20 ат. % цинка, более предпочтительно от 0,5 до 10 ат. % или от 1 до 5 ат. % цинка и наиболее предпочтительно от 1,5 до 4 ат. % или от 2 до 3 ат. % цинка.

Комплекс может содержать от 5 до 90 ат. % кислорода, более предпочтительно от 10 до 85 ат. % или от 20 до 80 ат. % кислорода и наиболее предпочтительно от 40 до 75 ат. %, от 50 до 70 ат. % или от 60 до 65 ат. % кислорода.

Комплекс может содержать от 0,1 до 30 ат. % хлора, более предпочтительно от 0,5 до 20 ат. % или от 1 до 10 ат. % хлора и наиболее предпочтительно от 2 до 8 ат. %, от 3 до 7 ат. % или от 4 до 6 ат. % хлора.

Комплекс может характеризоваться рентгеновским спектром рассеивания энергии (EDX), по сути показанным на фигуре 13.

Все признаки, описанные в данном документе (включая любые прилагаемые пункты формулы, реферат и графические материалы), и/или все стадии любого раскрытого способа или процесса могут быть объединены с любым из вышеуказанных аспектов в любой комбинации, за исключением комбинаций, где по меньшей мере некоторые из таких признаков и/или стадий являются взаимоисключающими.

### **Описание графических материалов**

Для лучшего понимания настоящего изобретения и чтобы показать, как варианты его осуществления могут быть реализованы, ниже будет приведена ссылка в качестве примера на сопроводительные графические материалы, на которых:

**на фигуре 1** представлено изображение растрового электронного микроскопа (SEM) цинковой подложки, подвергнутой действию 1-бутил-3-метилимидазолия хлорида (раствор  $\text{XH}_2\text{O} = 0,98$  при  $70 \pm 1^\circ\text{C}$ ), на котором видны наностержни ZnO после 4 суток воздействия (средний размер  $90 \pm 40$  нм).



**На фигуре 2** представлено изображение SEM цинковой подложки после воздействия 1-бутил-3-метилимидазолия хлорида (раствор  $\text{XH}_2\text{O} = 0,75$ ,  $20 \pm 1^\circ\text{C}$ ) в течение 26 суток, на котором видна вершина гексагональных наностержней (средний размер  $150 \pm 30$  нм).

**На фигуре 3** представлено изображение SEM цинковой подложки после воздействия 1-бутил-3-метилимидазолия хлорида (раствор  $\text{XH}_2\text{O} = 0,75$ ,  $20 \pm 1^\circ\text{C}$ ) в течение 15 суток, на котором видны кристаллические пластинки моногидрата гидроксида хлорида цинка ( $\text{Zn}_5(\text{OH})_8\text{Cl}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ ). Установленная толщина  $2,5 \pm 1,5$  мкм и диаметр  $19 \pm 8$  мкм.

**На фигуре 4** представлено изображение SEM цинковой подложки, подвергнутой действию 1-бутил-3-метилимидазолия хлорида (раствор  $\text{XH}_2\text{O} = 0,98$  при  $20 \pm 1^\circ\text{C}$ ), на котором видно несколько октаэдров  $\text{Zn}(\text{OH})_2$  после 44 суток воздействия со средней длиной  $21 \pm 6$  мкм.

**На фигурах 5A и B** представлены изображения SEM октаэдров  $\varepsilon\text{-Zn}(\text{OH})_2$  и частиц  $\text{Zn}_5(\text{OH})_8\text{Cl}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$  (ZHC) соответственно перед кальцинированием. **На фигуре 5C** представлены спектры рентгеновской дифракции (XRD) смеси  $\text{Zn}(\text{OH})_2$  и порошкообразного ZHC, демонстрирующие сигналы обоих соединений, основные пики дифракционных картин обозначены метками: (x) ZHC и (+)  $\varepsilon\text{-Zn}(\text{OH})_2$ . **На фигурах 5D и 5E** представлены изображения SEM октаэдров  $\varepsilon\text{-Zn}(\text{OH})_2$  и частиц ZHC соответственно после кальцинирования; и **на фигуре 5F** представлены спектры XRD кальцинированных образцов, демонстрирующих только сигналы  $\text{ZnO}$ , основные пики обозначены метками ( $\blacktriangle$ )  $\text{ZnO}$ ;

**На фигуре 6** кратко описаны наиболее представленные структуры, полученные при воздействии на цинковую подложку раствора 1-бутил-3-метилимидазолия хлорида.

**На фигуре 7** представлено изображение SEM латунной подложки после воздействия 1-бутил-3-метилимидазолия хлорида (раствор  $\text{XH}_2\text{O} = 0,98$ ,  $20 \pm 1^\circ\text{C}$ ) в течение 18 суток, на котором видна вершина гексагональных наностержней (средний размер  $1,0 \pm 0,2$  мкм).

**На фигуре 8** представлено изображение SEM железной подложки после воздействия 1-бутил-3-метилимидазолия хлорида (раствор  $\text{XH}_2\text{O} = 0,98$ ,  $70 \pm 1^\circ\text{C}$ ) в течение 8 суток,

демонстрирующее образование  $500 \pm 100$  нм  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  в форме кубиков и  $4 \pm 1$  мкм кубооктаэдрических структур.

**На фигуре 9** представлено изображение SEM железной подложки после воздействия 1-бутил-3-метилимидазолия хлорида (раствор  $\text{XH}_2\text{O}=0,98$ ,  $70 \pm 1^\circ\text{C}$ ) в течение 3,5 суток, демонстрирующее образование гексагональных пластин оксида железа диаметром  $115 \pm 5$  нм.

**На фигуре 10** представлено изображение SEM медной подложки после воздействия 1-бутил-3-метилимидазолия хлорида (раствор  $\text{XH}_2\text{O}=0,98$ ,  $70 \pm 1^\circ\text{C}$ ) в течение 15 суток, демонстрирующее образование кристаллов тригидроксида хлорида димеди  $\text{Cu}_2(\text{OH})_3\text{Cl}$  со средним размером граней  $1,7 \pm 0,5$  мкм.

**На фигуре 11** представлено изображение SEM цинковой подложки после воздействия 1-бутил-3-метилимидазолия хлорида (содержание воды 60 вес. %,  $40 \pm 1^\circ\text{C}$ ,  $\text{pH} = 3$ , массовое соотношение 1:1, скорость перемешивания 250 об/мин) в течение 7 суток, демонстрирующее образование наностержней  $\text{ZnO}$  со средней длиной  $900 \pm 100$  нм.

**На фигуре 12** представлено изображение SEM латунной подложки после воздействия 1-бутил-3-метилимидазолия хлорида (содержание воды 98 мол. %, комнатная температура) в течение 18 суток, демонстрирующее образование игловидных кристаллов комплекса медь-цинк-оксохлорид, исходящих из ядра; и

**на фигуре 13** представлен рентгеновский спектр рассеивания энергии (EDX) комплекса медь-цинк-оксохлорид фигуры 12.

## ПРИМЕРЫ

Пример 1. Синтез гексагональных наностержней оксида цинка ( $\text{ZnO}$ ) диаметром 90 нм на цинковой подложке путем прямого окисления  $\text{Zn}$  в 1-бутил-3-метилимидазолия хлориде

Использовали диск из цинка (чистота  $>99,95\%$ ,  $d = 18$  мм и толщина  $0,125$  мм) с одним отверстием диаметром  $0,8$  мм. Металлическую подложку получали при комнатной температуре путем промывки деминерализованной водой, промышленным денатурированным спиртом и ацетоном. После этого образец высушивали в течение 45 мин при  $105^\circ\text{C}$ , а затем охлаждали в сушильной печи в течение 30 мин.

Металлическую подложку погружали в раствор 1-бутил-3-метилимидазолия хлорида с содержанием воды 98 мол. % (82 вес. %), предварительно нагретый до 70°C, с помощью фторуглеродного волокна. Соотношение площади металлической поверхности и объема жидкости составляло 0,2 мл мм<sup>-2</sup>. Контейнер с раствором и суспендированной металлической подложкой помещали в конвекционную печь при 70°C на 4 суток. По окончании эксперимента подложку удаляли из растворителя и гасили в деминерализованной воде, затем промывали деминерализованной водой, промышленным денатурированным спиртом и ацетоном. Это приводило к образованию гексагонального оксида цинка (плоская вершина) со средним размером 90 ± 40 нм, как изображено на **фигуре 1**.

Пример 2. Синтез гексагональных наностержней оксида цинка диаметром 150 нм на цинковой подложке путем прямого окисления Zn в 1-бутил-3-метилимидазолия хлориде

Использовали диск из цинка (чистота >99,95%, d = 18 мм и толщина 0,125 мм) с одним отверстием диаметром 0,8 мм. Металлическую подложку получали при комнатной температуре путем промывки деминерализованной водой, промышленным денатурированным спиртом и ацетоном. После этого образец высушивали в течение 45 мин при 105°C, а затем охлаждали в сушильной печи в течение 30 мин. Металлическую подложку погружали в раствор 1-бутил-3-метилимидазолия хлорида с содержанием воды 75 мол. %, предварительно нагретый до 70°C, с помощью фторуглеродного волокна. Соотношение площади металлической поверхности и объема жидкости составляло 0,2 мл мм<sup>-2</sup>. Контейнер с раствором и суспендированной металлической подложкой помещали в конвекционную печь при 20°C на 26 суток. По окончании эксперимента подложку удаляли из растворителя и гасили в деминерализованной воде, затем промывали деминерализованной водой, промышленным денатурированным спиртом и ацетоном. Это приводило к образованию гексагонального оксида цинка (плоская вершина) со средним размером 150 ± 30 нм, как изображено на **фигуре 2**.

Пример 3. Синтез пластин моногидрата гидроксида хлорида цинка ( $Zn_5(OH)_8Cl_2 \cdot H_2O$ ) путем прямого окисления Zn в 1-бутил-3-метилимидазолия хлориде

Использовали диск из цинка (чистота >99,95%,  $d = 18$  мм и толщина 0,125 мм) с одним отверстием диаметром 0,8 мм. Металлическую подложку получали при комнатной температуре путем промывки деминерализованной водой, промышленным денатурированным спиртом и ацетоном. После этого образец высушивали в течение 45 мин при 105°C, а затем охлаждали в сушильной печи в течение 30 мин. Металлическую подложку погружали в раствор 1-бутил-3-метилимидазолия хлорида с содержанием воды 98 мол. %, предварительно нагретый до 70°C, с помощью фторуглеродного волокна. Соотношение площади металлической поверхности и объема жидкости составляло 0,2 мл мм<sup>-2</sup>. Контейнер с раствором и суспендированной металлической подложкой помещали в конвекционную печь при 70°C на 15 суток. По окончании эксперимента подложку удаляли из растворителя и гасили в деминерализованной воде, затем промывали деминерализованной водой, промышленным денатурированным спиртом и ацетоном. Это приводило к образованию различных структур, таких как пластинчатые кристаллы моногидрата гидроксида хлорида цинка ( $Zn_5(OH)_8Cl_2 \cdot H_2O$ ) со средней толщиной 2,5 мкм и средним размером 19 мкм, как изображено на **фигуре 3**.

Пример 4. Синтез октаэдров гидроксида цинка ( $Zn(OH)_2$ ) путем прямого окисления Zn в растворах 1-бутил-3-метилимидазолия хлорида

Использовали диск из цинка (чистота >99,95%,  $d = 18$  мм и толщина 0,125 мм) с одним отверстием диаметром 0,8 мм. Металлическую подложку получали при комнатной температуре путем промывки деминерализованной водой, промышленным денатурированным спиртом и ацетоном. После этого образец высушивали в течение 45 мин при 105°C, а затем охлаждали в сушильной печи в течение 30 мин. Металлическую подложку погружали в раствор 1-бутил-3-метилимидазолия хлорида с содержанием воды 98 мол. %, при комнатной температуре, с помощью фторуглеродного волокна, в течение 44 суток. Соотношение площади металлической поверхности и объема жидкости составляло 0,2 мл мм<sup>-2</sup>. По окончании эксперимента подложку удаляли из растворителя и промывали деминерализованной водой, промышленным денатурированным спиртом и ацетоном. Это приводило к образованию

различных структур, таких как кристаллы октаэдров гидроксида цинка ( $Zn(OH)_2$ ) со средним размером граней  $21 \pm 6$  мкм, как изображено на **фигуре 4**.

Пример 5. Синтез структур ZnO путем кальцинирования пластинчатых кристаллов моногидрата гидроксида хлорида цинка ( $Zn_5(OH)_8Cl_2 \cdot H_2O$ ) и октаэдров гидроксида цинка ( $Zn(OH)_2$ ) с помощью кальцинирования образцов, полученных путем прямого окисления цинка в растворах 1-бутил-3-метилимидазолия хлорида

Структуры, полученные в примере 4 (октаэдры  $Zn(OH)_2$  вместе с пластинчатыми кристаллами ( $Zn_5(OH)_8Cl_2 \cdot H_2O$ ), подобными показанным в примере 3), удаляли механически с подложки путем царапания поверхности, и восстанавливали. Собранный порошок, содержащий оба образца, нагревали в приборе TGA от температуры окружающей среды до  $650^\circ C$  со скоростью  $5^\circ C/мин$ . Процесс кальцинирования завершали при  $550^\circ C$ . Продукты после кальцинирования содержали только ZnO и в целом сохраняли общую форму кристаллов исходных соединений с повышенной пористостью. Например, октаэдры  $Zn(OH)_2$  превращали в октаэдры ZnO, а пластинчатые кристаллы ( $Zn_5(OH)_8Cl_2 \cdot H_2O$ ) превращали в пластинчатые кристаллы ZnO, как изображено на **фигуре 5**.

Пример 6. Сравнение различных условий

Авторы настоящего изобретения сравнивали структуры, полученные с использованием различных условий реакции, и их результаты представлены в таблице 1 ниже. Структуры показаны на **фигуре 6**.

Таблица 1. Краткое описание обязательных представленных структур, полученных при контакте цинкового диска с растворами 1-бутил-3-метилимидазолия хлорида

П/	Содержание воды / мол. %	Темп. / °C	Время воздействия	[A]	[B]	[C]	[D]	[E]	[G]	[F]	[H]	[I]
2	75	120	5,8 суток	X								X
1	75	20	18/26 суток	X								
2	75	120	1 сутки	X								
2	75	120	16 часов	X					X			X
2	98	20	6 суток		X							
2	98	20	16 суток		X							
1	98	20	18 суток	X								
1	98	20	44 суток		X	X	X					X

2	98	20	48 суток			X						
1	98	70	3,5 суток	X					X	X	X	
1	98	70	15 суток			X	X	X	X		X	X
2	98	120	1 сутки	X					X			X
2	98	120	16 часов	X								

IL для всех экспериментов представляла собой 1-бутил-3-метилимидазолия хлорид. IL-1 получали от Sigma-Aldrich с чистотой >98%, а IL-2 получали от Iolitec с чистотой >99%. Как показано на **фигуре 6**, [A] представляет собой гексагональные стержни ZnO с плоской вершиной, [B] представляет собой октаэдры  $\epsilon$ -Zn(OH)<sub>2</sub>, [C] представляет собой пластины ZHC, [D] представляет собой короткие стержни ZnO (круглые и с острым концом), [E] представляет собой иглы ZnO, [F] представляет собой гексагональные наностержни с плоской вершиной, [G] представляет собой толстослойные кристаллы ZnO, [H] представляет собой 3D игольчатый цветок ZnO и [I] представляет собой 3D толстослойный кристаллический цветок ZnO.

Пример 7. Синтез гексагональных наностержней оксида цинка (ZnO) диаметром 1 мкм путем прямого окисления латуни в 1-бутил-3-метилимидазолия хлориде

Использовали диск из латуни (Cu 63% и Zn 37%, d = 18 мм и толщина 0,125 мм) с одним отверстием диаметром 0,8 мм. Металлическую подложку получали при комнатной температуре путем промывки деминерализованной водой, промышленным денатурированным спиртом и ацетоном. После этого образец высушивали в течение 45 мин при 105°C, а затем охлаждали в сушильной печи в течение 30 мин. Металлическую подложку погружали в раствор 1-бутил-3-метилимидазолия хлорида с содержанием воды 98 мол. %, при комнатной температуре, с помощью фторуглеродного волокна, в течение 18 суток. Соотношение площади металлической поверхности и объема жидкости составляло 0,2 мл мм<sup>-2</sup>. По окончании эксперимента подложку удаляли из растворителя и промывали деминерализованной водой, промышленным денатурированным спиртом и ацетоном. Это приводило к образованию различных структур, таких как гексагональные стержневые кристаллы гидроксида цинка ZnO со средним размером  $1,0 \pm 0,2$  мкм, как изображено на **фигуре 7**.

Пример 8. Синтез 500 нм оксида железа в форме кубиков и 4 мкм оксида железа в форме кубооктаэдров путем прямого окисления железа в 1-бутил-3-метилимидазолия хлориде

Использовали диск из железа (чистота 99,99%,  $d = 18$  мм и толщина 0,125 мм) с одним отверстием диаметром 0,8 мм. Металлическую подложку получали при комнатной температуре путем промывки деминерализованной водой, промышленным денатурированным спиртом и ацетоном. После этого образец высушивали в течение 45 мин при 105°C, а затем охлаждали в сушильной печи в течение 30 мин. Металлическую подложку погружали в раствор 1-бутил-3-метилимидазолия хлорида с содержанием воды 98 мол. %, предварительно нагретый до 70°C, с помощью фторуглеродного волокна. Соотношение площади металлической поверхности и объема жидкости составляло 0,2 мл мм<sup>2</sup>. Контейнер с раствором и суспендированной металлической подложкой помещали в конвекционную печь при 70°C на 8 суток. По окончании эксперимента подложку удаляли из растворителя и гасили в деминерализованной воде, затем промывали деминерализованной водой, промышленным денатурированным спиртом и ацетоном. Это приводило к образованию 500 ± 100 нм Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> в форме кубиков и 4 ± 1 мкм кубооктаэдрических структур, как изображено на **фигуре 8**.

Пример 9. Синтез гексагональной пластины оксида железа диаметром 115 нм путем прямого окисления железа в 1-бутил-3-метилимидазолия хлориде

Использовали диск из железа (чистота 99,99%,  $d = 18$  мм и толщина 0,125 мм) с одним отверстием диаметром 0,8 мм. Металлическую подложку получали при комнатной температуре путем промывки деминерализованной водой, промышленным денатурированным спиртом и ацетоном. После этого образец высушивали в течение 45 мин при 105°C, а затем охлаждали в сушильной печи в течение 30 мин. Металлическую подложку погружали в раствор 1-бутил-3-метилимидазолия хлорида с содержанием воды 98 мол. %, предварительно нагретый до 70°C, с помощью фторуглеродного волокна. Соотношение площади металлической поверхности и объема жидкости составляло 0,2 мл мм<sup>2</sup>. Контейнер с раствором и суспендированной металлической подложкой помещали в конвекционную печь при 70°C на 3,5 суток. По окончании эксперимента подложку удаляли из растворителя и гасили в деминерализованной воде, затем промывали деминерализованной водой,

промышленным денатурированным спиртом и ацетоном. Это приводило к образованию гексагональных пластин оксида железа диаметром  $115 \pm 5$  нм, как изображено на **фигуре 9**.

Пример 10. Синтез тригидроксида хлорида димеди ( $\text{Cu}_2(\text{OH})_3\text{Cl}$ ) путем прямого окисления меди в 1-бутил-3-метилимидазолия хлориде

Использовали диск из меди (чистота  $>99,9\%$ ,  $d = 18$  мм и толщина  $0,125$  мм) с одним отверстием диаметром  $0,8$  мм. Металлическую подложку получали при комнатной температуре путем промывки деминерализованной водой, промышленным денатурированным спиртом и ацетоном. После этого образец высушивали в течение  $45$  мин при  $105^\circ\text{C}$ , а затем охлаждали в сушильной печи в течение  $30$  мин. Металлическую подложку погружали в раствор 1-бутил-3-метилимидазолия хлорида с содержанием воды  $98$  мол. %, предварительно нагретый до  $70^\circ\text{C}$ , с помощью фторуглеродного волокна. Соотношение площади металлической поверхности и объема жидкости составляло  $0,2$  мл мм<sup>2</sup>. Контейнер с раствором и суспендированной металлической подложкой помещали в конвекционную печь при  $70^\circ\text{C}$  на  $15$  суток. По окончании эксперимента подложку удаляли из растворителя и гасили в деминерализованной воде, затем промывали деминерализованной водой, промышленным денатурированным спиртом и ацетоном. Это приводило к образованию бипирамидальных кристаллов тригидроксида хлорида димеди  $\text{Cu}_2(\text{OH})_3\text{Cl}$  со средним размером граней  $1,7 \pm 0,5$  мкм, как изображено на **фигуре 10**.

Пример 11. Синтез наностержней оксида цинка ( $\text{ZnO}$ ) путем прямого окисления гранул цинка в 1-бутил-3-метилимидазолия хлориде

Синтез наночастиц оксида цинка проводили путем окисления гранул цинка ( $20$ - $30$  меш) в растворе водного 1-бутил-3-метилимидазолия хлорида с содержанием воды  $94$  мол. % ( $60$  вес. %). При регулировании pH концентрированную HCl по каплям добавляли в деионизированную воду ( $100$  мл) до достижения pH  $3$ . Далее добавляли 1-бутил-3-метилимидазолия хлорид до достижения значений концентрации воды  $60$  вес. %. Растворы 1-бутил-3-метилимидазолия хлорида добавляли к цинковым гранулам в пробирках для осушения в массовом соотношении  $1:1$ . Скорость перемешивания составляла  $250$  об/мин при вращении в инкубаторе (шейкер-инкубатор серии Innova 42 от New Brunswick Scientific), и синтез проводили в течение  $7$  суток при  $40^\circ\text{C}$ . В конце



эксперимента продукт оксида цинка помещали в пробирки для центрифугирования (Falcon, 50 мл) и промывали двумя аликвотами воды и одной абсолютного этанола с центрифугированием в течение 40 минут между каждой промывкой для эффективного отделения продукта от раствора. Ионную жидкость восстанавливали путем ротационного выпаривания. После промывки продукт кальцинировали в вакуумной печи в течение ночи при 150°C. В результате этой процедуры получали наностержни ZnO со средней длиной  $700 \pm 200$  нм, как изображено на **фигуре 11**.

Пример 12. Синтез соединений на основе никеля путем прямого окисления никеля в гидросульфате бутилдиметиламмония

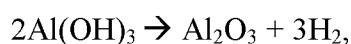
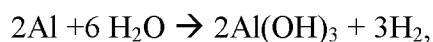
Использовали диск из никеля (чистота >99,98%,  $d = 18$  мм и толщина 0,125 мм). Металлическую подложку получали при комнатной температуре путем промывки деминерализованной водой, промышленным денатурированным спиртом и ацетоном. После этого образец высушивали в течение 45 мин при 105°C, а затем охлаждали в сушильной печи в течение 30 мин. Металлическую подложку погружали в раствор гидросульфата бутилдиметиламмония объемом 3 мл с содержанием воды 75 мол. % (24 вес. %), предварительно нагретый до 150°C. Контейнер с раствором и суспендированной металлической подложкой помещали в конвекционную печь при 150°C на 48 ч. По окончании эксперимента подложку удаляли из растворителя и гасили в деминерализованной воде, затем промывали деминерализованной водой, промышленным денатурированным спиртом и ацетоном. Это приводило к образованию зеленого твердого вещества на поверхности подложки.

Пример 13. Синтез соединений на основе алюминия путем прямого окисления никеля в гидросульфате бутилдиметиламмония

Использовали диск из алюминия (чистота >99,999%,  $d = 18$  мм и толщина 0,125 мм). Металлическую подложку получали при комнатной температуре путем промывки деминерализованной водой, промышленным денатурированным спиртом и ацетоном. После этого образец высушивали в течение 45 мин при 105°C, а затем охлаждали в сушильной печи в течение 30 мин. Металлическую подложку погружали в раствор гидросульфата бутилдиметиламмония объемом 3 мл с содержанием воды 75 мол. %, предварительно нагретый до 150°C. Контейнер с раствором и суспендированной

металлической подложкой помещали в конвекционную печь при 150°C на 48 ч. По окончании эксперимента подложка превращалась в белое твердое вещество.

Отмечается, что в таком способе в качестве сопутствующего продукта образуется газообразный водород. Не желая ограничиваться теорией, авторы настоящего изобретения отмечают, что может происходить несколько реакций:



Авторы настоящего изобретения отмечают, что газообразный водород может быть поглощен.

Пример 14. Синтез соединений на основе титана путем прямого окисления никеля в гидросульфате бутилдиметиламмония

Использовали шайбу из титана (степень чистоты 2,  $d = 18$  мм и толщина 0,125 мм). Металлическую подложку получали при комнатной температуре путем промывки деминерализованной водой, промышленным денатурированным спиртом и ацетоном. После этого образец высушивали в течение 45 мин при 105°C, а затем охлаждали в сушильной печи в течение 30 мин. Металлическую подложку погружали в раствор гидросульфата бутилдиметиламмония объемом 3 мл с содержанием воды 75 мол. %, предварительно нагретый до 150°C. Контейнер с раствором и суспендированной металлической подложкой помещали в конвекционную печь при 150°C на 48 ч. По окончании эксперимента подложку удаляли из растворителя и гасили в деминерализованной воде, затем промывали деминерализованной водой, промышленным денатурированным спиртом и ацетоном. Это приводило к образованию белого твердого осадка в растворе.

Пример 15. Синтез бис(трифторметансульфонил)имида меди(II) путем прямого окисления меди в бис(трифторметилсульфонил)имиде 1-бутил-3-метилимидазолия

Использовали диск из меди (чистота 99,9%,  $d = 18$  мм и толщина 0,125 мм) с одним отверстием диаметром 0,8 мм. Металлическую подложку получали при комнатной

температуре путем промывки деминерализованной водой, промышленным денатурированным спиртом и ацетоном. После этого образец высушивали в течение 45 мин при 105°C, а затем охлаждали в сушильной печи в течение 30 мин. Металлическую подложку погружали в бис(трифторметилсульфонил)имид 1-бутил-3-метилимидазолия при комнатной температуре с помощью фторуглеродного волокна. Соотношение площади металлической поверхности и объема жидкости составляло 0,2 мл мм<sup>-2</sup>. Контейнер с ионной жидкостью и суспендированной металлической подложкой помещали в конвекционную печь при 150°C на 68 суток. По окончании эксперимента подложку удаляли из растворителя и гасили в деминерализованной воде, затем промывали деминерализованной водой, промышленным денатурированным спиртом и ацетоном. Это приводило к образованию зеленого твердого вещества на поверхности подложки.

Пример 16. Синтез комплекса медь-цинк-оксохлорид путем прямого окисления латуни в 1-бутил-3-метилимидазолия хлориде

Использовали диск из латуни (Cu 63% и Zn 37%, d = 18 мм и толщина 0,125 мм) с одним отверстием диаметром 0,8 мм. Металлическую подложку получали при комнатной температуре путем промывки деминерализованной водой, промышленным денатурированным спиртом и ацетоном. После этого образец высушивали в течение 45 мин при 105°C, а затем охлаждали в сушильной печи в течение 30 мин. Металлическую подложку погружали в раствор 1-бутил-3-метилимидазолия хлорида с содержанием воды 98 мол. % при комнатной температуре с помощью фторуглеродного волокна на 18 суток. Соотношение площади металлической поверхности и объема жидкости составляло 0,2 мл мм<sup>-2</sup>. По окончании эксперимента подложку удаляли из растворителя и гасили в деминерализованной воде, затем промывали деминерализованной водой, промышленным денатурированным спиртом и ацетоном. Это приводило к образованию игловидных кристаллов комплекса медь-цинк-оксохлорид, исходящих из ядра, как изображено на **фигуре 12**. Спектр EDX представлен на **фигуре 13**, и было установлено, что комплекс характеризуется атомным соотношением Cu:Zn:O:Cl 11:1:25,1:2.

## Заклучение

Авторы настоящего изобретения продемонстрировали окислительный ионотермальный синтез (OIS) нано/микроматериалов (как кристаллических, так и аморфных) путем прямого окисления металлов в смеси ИЛ и воды. Путем регулирования содержания воды, температуры и времени воздействия могут быть получены различные образцы.

Применение смеси, содержащей ИЛ и окислитель для получения наночастиц путем прямого окисления металлов (OIS), может быть использовано для синтеза материалов по умолчанию (в виде гетероструктур, структур ядро-оболочка или металлов с модифицированной поверхностью) с физико-химическими свойствами, приспособленными для удовлетворения промышленных потребностей. Кроме того, применение таких растворителей в комбинации с металлами/металлоидами может приводить к созданию более экономически эффективных и экологически безопасных процессов для крупномасштабного синтеза широкого спектра нано- и микроматериалов.

Без ограничения какой-либо конкретной теорией, полагали, что в ходе обсуждаемых в данном документе реакций предшественник металла/металлоида сначала окисляется окислителем, а затем частично сольбилизируется в полярных областях ионной жидкости, что может стабилизировать ионы металла/металлоида. Концентрация металла/металлоида в таких средах увеличивается, пока не достигнет критической концентрации, что приводит к образованию соединений на основе металлов/металлоидов. Такие соединения подвергаются дальнейшему росту и под кинетическим и/или термодинамическим контролем формируются в микрочастицы или наночастицы. Частицы могут расти как отдельные частицы в растворе или прикрепляться к поверхности предшественника с образованием пленки или композитного материала. Ионная жидкость может быть выбрана для обеспечения среды растворителя, которая специально предназначена для конкретных предшественников и окислителей. Соответственно, представляется, что микрочастицы или наночастицы любой заданной композиции и морфологии могут быть получены путем синтеза, описанным в данном документе.

### Формула изобретения

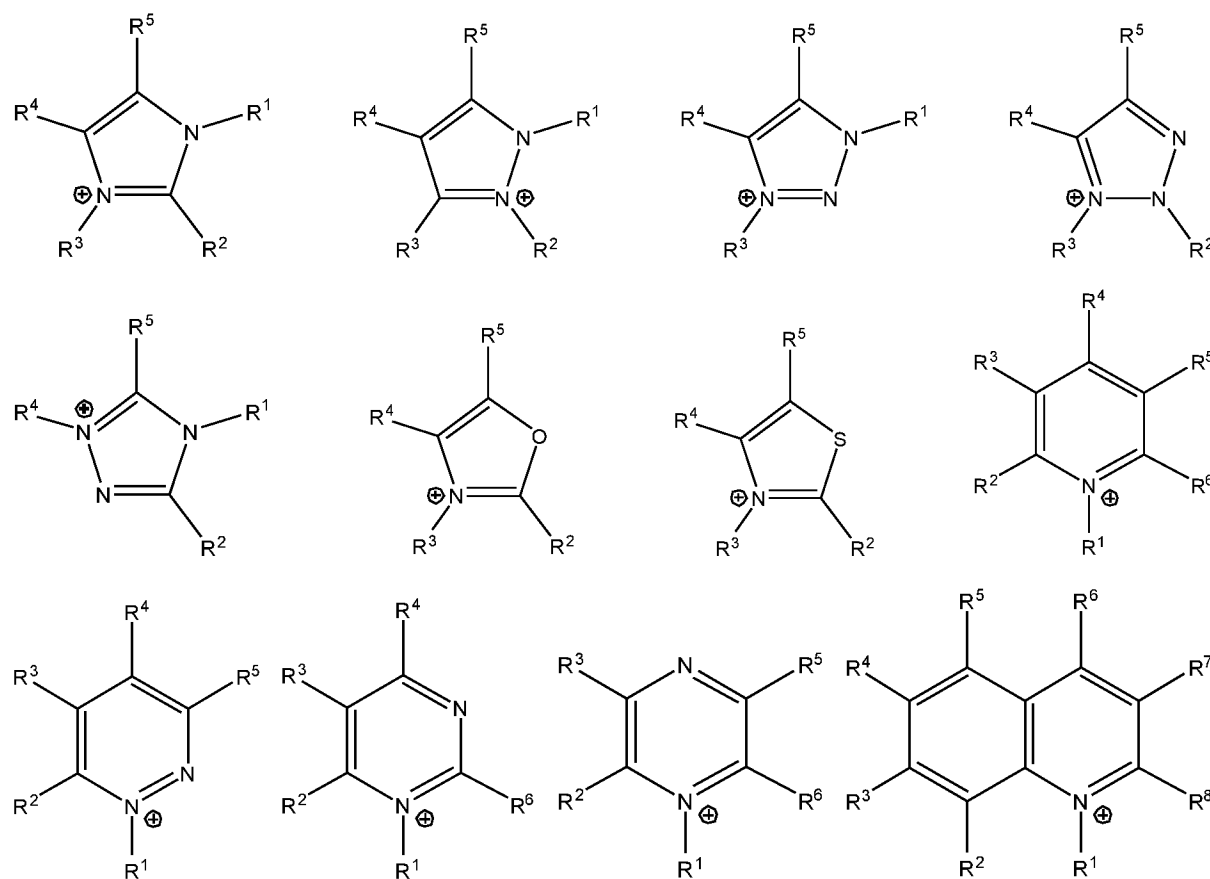
1. Способ получения соединения на основе металла и/или металлоида, при этом способ предусматривает приведение источника металла и/или металлоида в контакт с реакционной смесью, где реакционная смесь содержит ионную жидкость и окислитель, и таким образом получение соединения на основе металла и/или металлоида.
2. Способ по п. 1, где источник металла и/или металлоида содержит чистый металл, чистый металлоид, неочищенный металл, неочищенный металлоид, сплав, соединение, содержащее металл, или соединение, содержащее металлоид, или состоит из них.
3. Способ по п. 2, где источник металла и/или металлоида содержит металл или сплав.
4. Способ по любому из предыдущих пунктов, где источник металла и/или металлоида содержит алюминий, сурьму, мышьяк, астат, барий, бериллий, висмут, бор, кадмий, цезий, кальций, церий, хром, кобальт, медь, диспрозий, эрбий, европий, гадолиний, галлий, германий, золото, гафний, гольмий, индий, иридий, железо, лантан, свинец, литий, лютеций, магний, марганец, ртуть, молибден, неодим, никель, ниобий, осмий, палладий, платину, полоний, калий, празеодим, рений, родий, рубидий, рутений, самарий, скандий, селен, кремний, серебро, натрий, тантал, теллур, тербий, торий, тулий, олово, титан, вольфрам, уран, ванадий, иттербий, иттрий, цинк и/или цирконий или состоит из них.
5. Способ по любому из предыдущих пунктов, где соединение на основе металла и/или металлоида содержит кислород, азот, фосфор, галоген, серу, селен, углерод и/или водород.
6. Способ по п. 5, где соединение на основе металла и/или металлоида содержит оксидную группу (O) или гидроксидную группу (OH).
7. Способ по любому из предыдущих пунктов, где окислитель содержит воду, пероксид водорода, озон, кислород, галоген (например, фтор, хлор, йод или бром), нитрат калия и/или минеральную кислоту или состоит из них.
8. Способ по п. 7, где окислитель представляет собой воду.

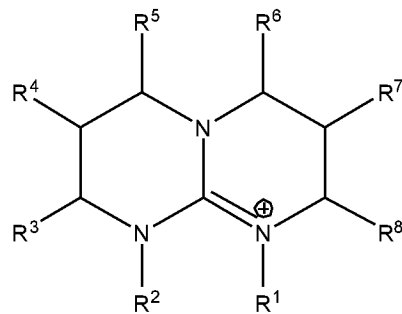
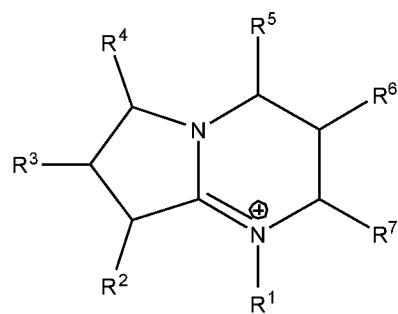
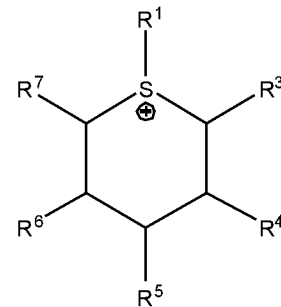
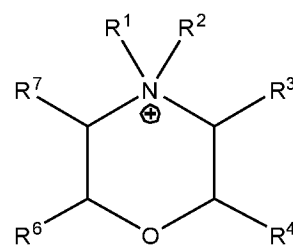
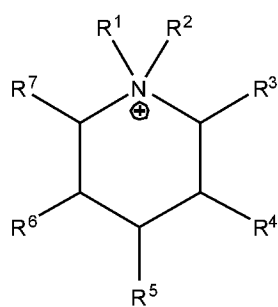
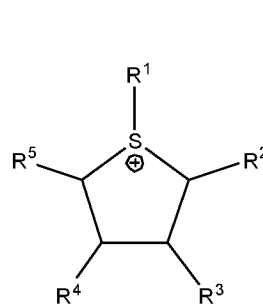
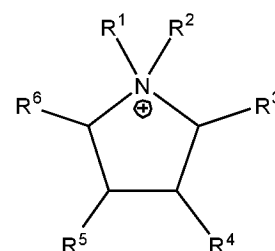
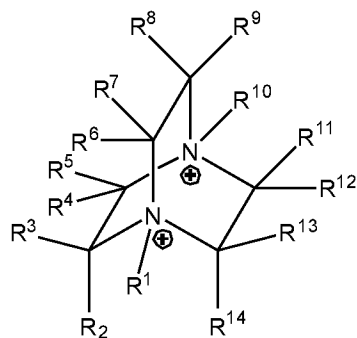
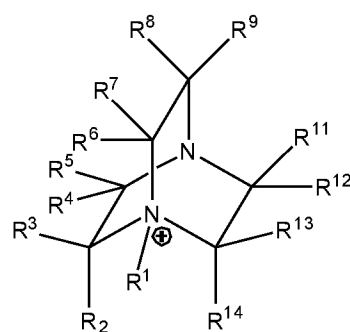
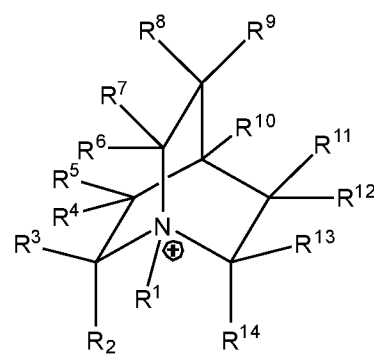
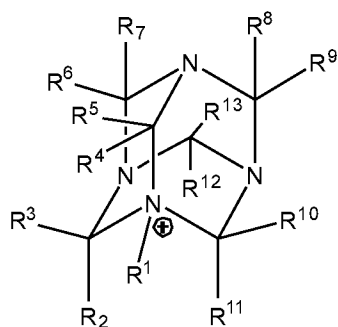
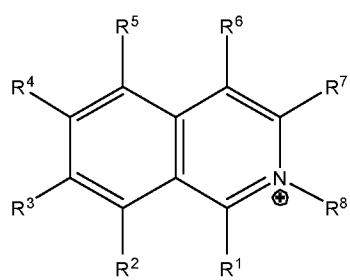
9. Способ по любому из предыдущих пунктов, где с помощью способа в качестве сопутствующего продукта получают газообразный водород, и при этом способ дополнительно включает сбор газообразного водорода.

10. Способ по любому из предыдущих пунктов, где ионная жидкость состоит из катиона и аниона и характеризуется точкой плавления менее чем 350°C.

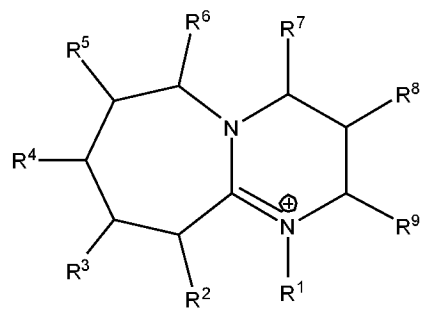
11. Способ по п. 10, где катион представляет собой необязательно замещенное положительно заряженное 3-15-членное гетероциклическое кольцо или необязательно замещенное положительно заряженное 5-15-членное гетероароматическое кольцо.

12. Способ по п. 11, где катион представляет собой:



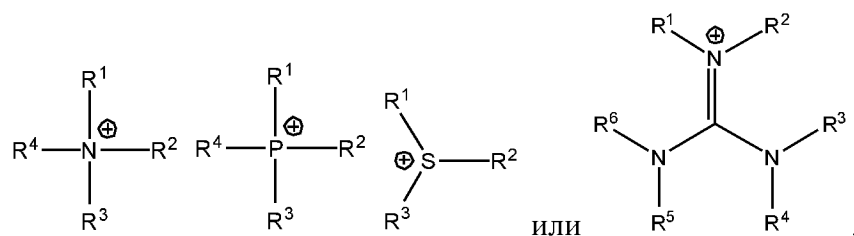


ИЛИ



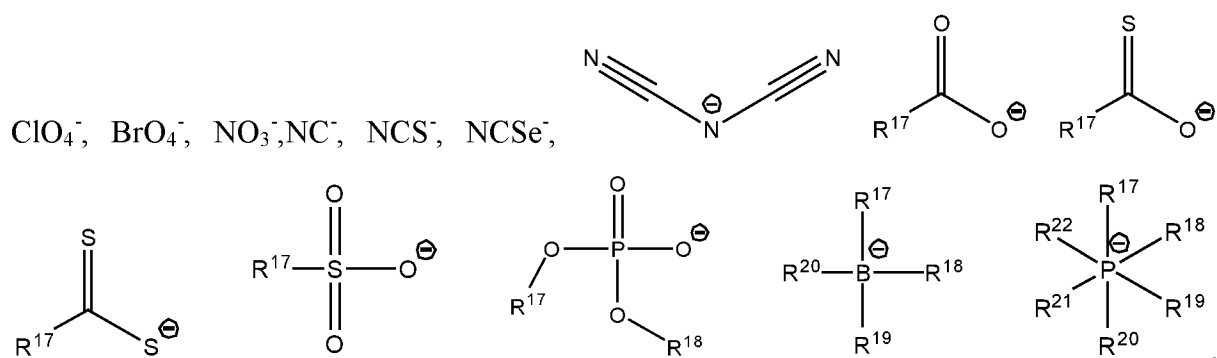
где  $R^1 - R^{14}$  независимо представляют собой H, необязательно замещенный  $C_{1-24}$ алкил, необязательно замещенный  $C_{2-24}$ алкенил, необязательно замещенный  $C_{2-24}$ алкинил, необязательно замещенный  $C_{3-24}$ циклоалкил, необязательно замещенный  $C_{6-12}$ арил, -OR<sup>15</sup>, -SR<sup>15</sup>, -CN, -NR<sup>15</sup>R<sup>16</sup>, -SO<sub>3</sub>R<sup>15</sup>, -OSO<sub>3</sub>R<sup>15</sup>, -COR<sup>15</sup>, -COOR<sup>15</sup>, -NO<sub>2</sub>, -Cl, -Br, -F или -I, или два из  $R^1 - R^{14}$  вместе с атомами, к которым они присоединены, образуют необязательно замещенное 3-15-членное кольцо, где  $R^{15}$  и  $R^{16}$  независимо представляют собой H, необязательно замещенный  $C_{1-24}$ алкил, необязательно замещенный  $C_{2-24}$ алкенил, необязательно замещенный  $C_{2-24}$ алкинил, необязательно замещенный  $C_{3-6}$ циклоалкил или необязательно замещенный  $C_{6-12}$ арил.

13. Способ по п. 10, где катион представляет собой:

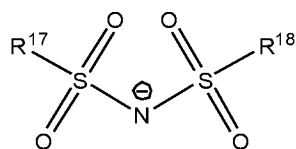


где  $R^1 - R^6$  независимо представляют собой H, необязательно замещенный  $C_{1-24}$ алкил, необязательно замещенный  $C_{2-24}$ алкенил, необязательно замещенный  $C_{2-24}$ алкинил, необязательно замещенный  $C_{3-6}$ циклоалкил, необязательно замещенный  $C_{6-12}$ арил, -OR<sup>15</sup>, -SR<sup>15</sup>, -CN, -NR<sup>15</sup>R<sup>16</sup>, -SO<sub>3</sub>R<sup>15</sup>, -OSO<sub>3</sub>R<sup>15</sup>, -COR<sup>15</sup>, -COOR<sup>15</sup>, -NO<sub>2</sub>, -Cl, -Br, -F или -I, или два из  $R^1 - R^6$  вместе с атомами, к которым они присоединены, образуют необязательно замещенное 3-15-членное кольцо, где  $R^{15}$  и  $R^{16}$  независимо представляют собой H, необязательно замещенный  $C_{1-24}$ алкил, необязательно замещенный  $C_{2-24}$ алкенил, необязательно замещенный  $C_{2-24}$ алкинил, необязательно замещенный  $C_{3-6}$ циклоалкил или необязательно замещенный  $C_{6-12}$ арил.

14. Способ по любому из пп. 10-13, где анион представляет собой F<sup>-</sup>, Cl<sup>-</sup>, Br<sup>-</sup>, I<sup>-</sup>,







или отрицательно заряженный комплекс металлов, где  $R^{17}$  -  $R^{22}$  независимо представляют собой H, необязательно замещенный  $C_{1-24}$ алкил, необязательно замещенный  $C_{2-24}$ алкенил, необязательно замещенный  $C_{2-24}$ алкинил, необязательно замещенный  $C_{3-6}$ циклоалкил, необязательно замещенный  $C_{6-12}$ арил, -OR<sup>15</sup>, -SR<sup>15</sup>, -CN, -NR<sup>15</sup>R<sup>16</sup>, -SO<sub>3</sub>R<sup>15</sup>, -OSO<sub>3</sub>R<sup>15</sup>, -COR<sup>15</sup>, -COOR<sup>15</sup>, -NO<sub>2</sub>, -Cl, -Br, -F или -I, или два из  $R^{17}$  -  $R^{22}$  вместе с атомами, к которым они присоединены, образуют необязательно замещенное 3-15-членное кольцо, где  $R^{15}$  и  $R^{16}$  независимо представляют собой H, необязательно замещенный  $C_{1-24}$ алкил, необязательно замещенный  $C_{2-24}$ алкенил, необязательно замещенный  $C_{2-24}$ алкинил, необязательно замещенный  $C_{3-6}$ циклоалкил или необязательно замещенный  $C_{6-12}$ арил.

15. Способ по п. 10, где неорганическая жидкость представляет собой 1-н-бутил-3-метилимидазолия хлорид, гидросульфат бутилдиметиламмония, бис(трифторметилсульфонил)имид 1-н-бутил-3-метилимидазолия или метилимидазолия хлорид.

16. Способ по любому из предыдущих пунктов, где реакционная смесь содержит ионную жидкость и окислитель в весовом соотношении от 1:1000 до 1000:1, от 1:750 до 750:1, от 1:500 до 500:1, от 1:250 до 250:1, от 1:100 до 100:1, от 1:50 до 50:1, от 1:25 до 25:1, от 1:15 до 15:1, от 1:10 до 10:1, от 1:7 до 7:1 или от 1:6 до 5:1 или состоит из них.

17. Способ по любому из предыдущих пунктов, где реакционная смесь содержит ионную жидкость и окислитель в молярном соотношении от 1:1000 до 100:1, от 1:500 до 50:1, от 1:250 до 10:1, от 1:100 до 5:1, от 1:80 до 3:1, от 1:70 до 21, от 1:60 до 1:1 или от 1:50 до 1:2 или состоит из них.

18. Способ по любому из предыдущих пунктов, где источник металла и/или металлоида и реакционную смесь приводят в контакт при температуре от -50°C до 500°C, от -25°C до 400°C, от 0°C до 300°C, от 5°C до 200°C или от 10°C до 175°C.

19. Способ по любому из предыдущих пунктов, где источник металла и/или металлоида и реакционную смесь приводят в контакт в течение по меньшей мере 1 минуты, по меньшей мере 15 минут, по меньшей мере 30 минут, по меньшей мере

1 часа, по меньшей мере 6 часов, по меньшей мере 12 часов, по меньшей мере 24 часов или по меньшей мере 48 часов.

20. Способ по любому из предыдущих пунктов, где способ включает отделение соединения на основе металла и/или металлоида от ионной жидкости.

21. Способ по п. 20, где способ включает очистку ионной жидкости после отделения.

22. Способ по любому из предыдущих пунктов, где способ включает нагревание соединения на основе металла и/или металлоида с обеспечением химической реакции соединения на основе металла и/или металлоида и получением дополнительного соединения на основе металла и/или металлоида.

23. Способ по п. 22, где дополнительное соединение на основе металла и/или металлоида представляет собой оксид металла или оксид металлоида.

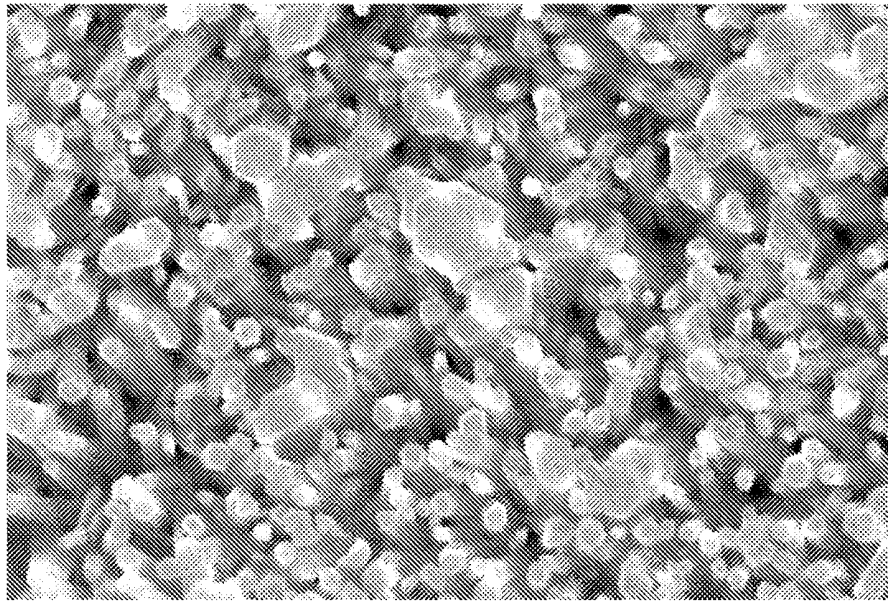
24. Комплекс медь-цинк-оксохлорид.

25. Комплекс по п. 24, где комплекс содержит:

- от 1 до 75 ат. % меди,
- от 0,1 до 20 ат. % цинка,
- от 5 до 90 ат. % кислорода и
- от 0,1 до 30 ат. % хлора.

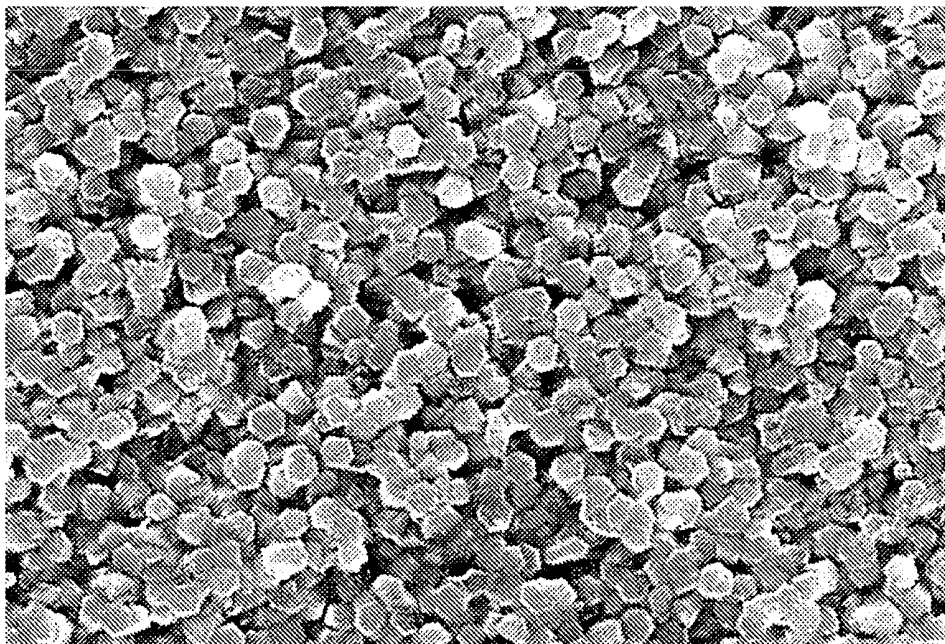
26. Комплекс по п. 24 или п. 25, где комплекс характеризуется рентгеновским спектром рассеивания энергии (EDX), по сути показанным на фигуре 13.

**Фиг. 1**



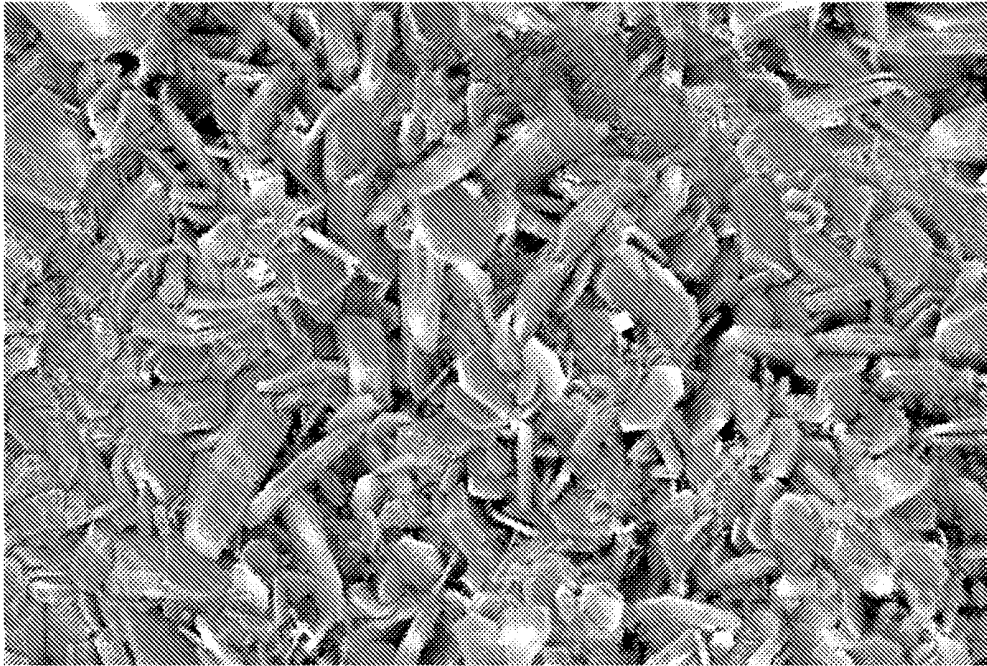
200 нм

**Фиг. 2**



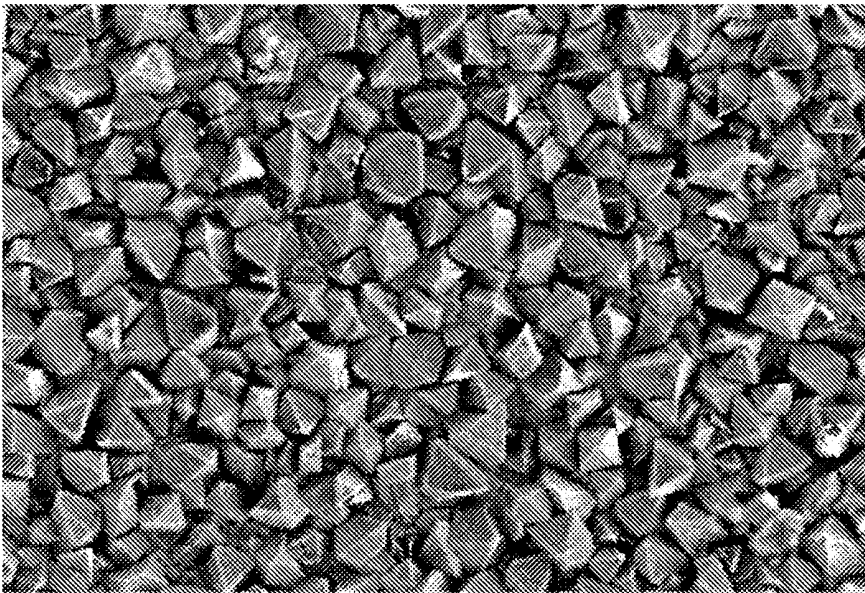
300 нм

**Фиг. 3**



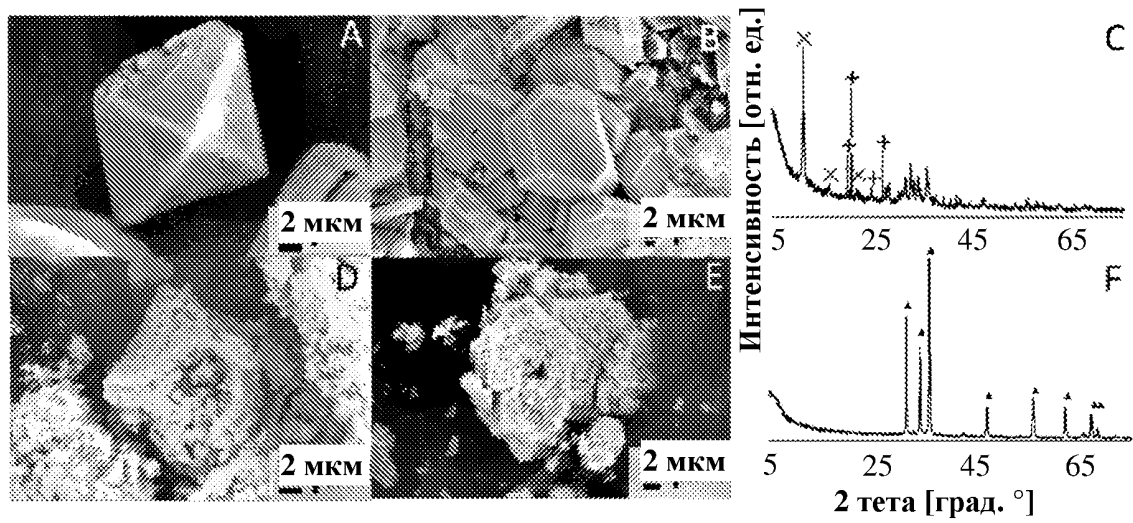
20 мкм

**Фиг. 4**

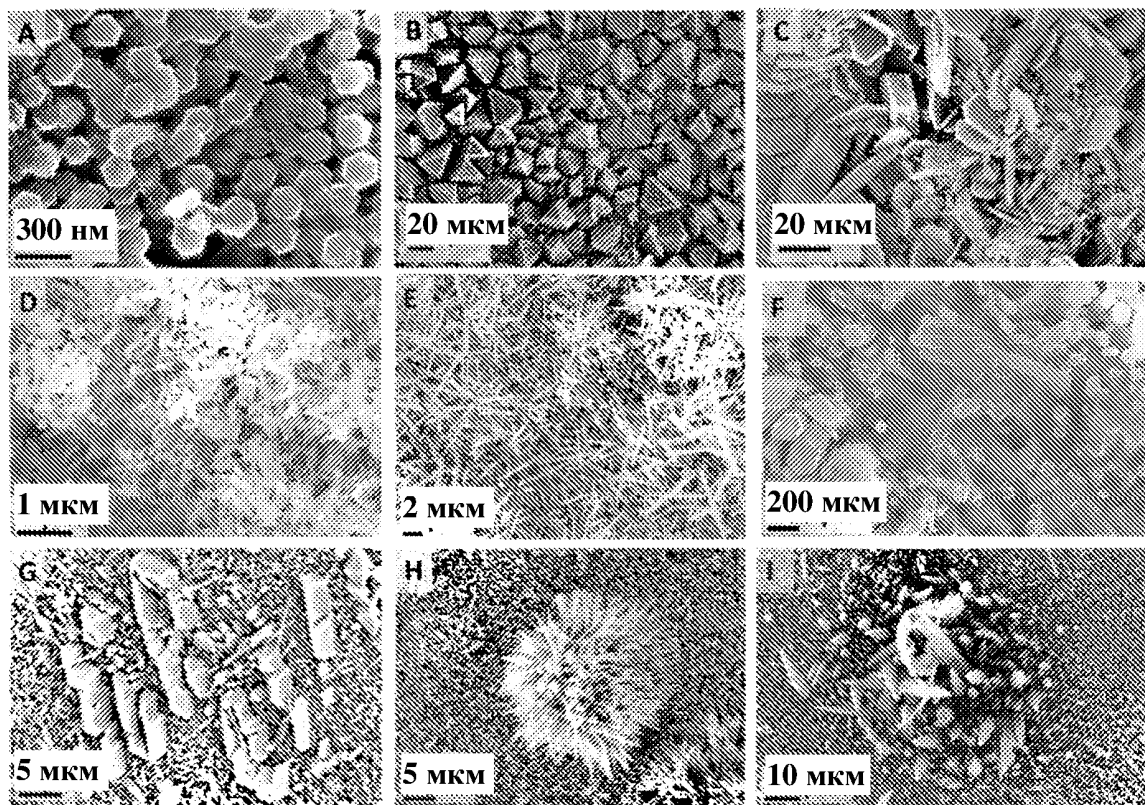


20 мкм

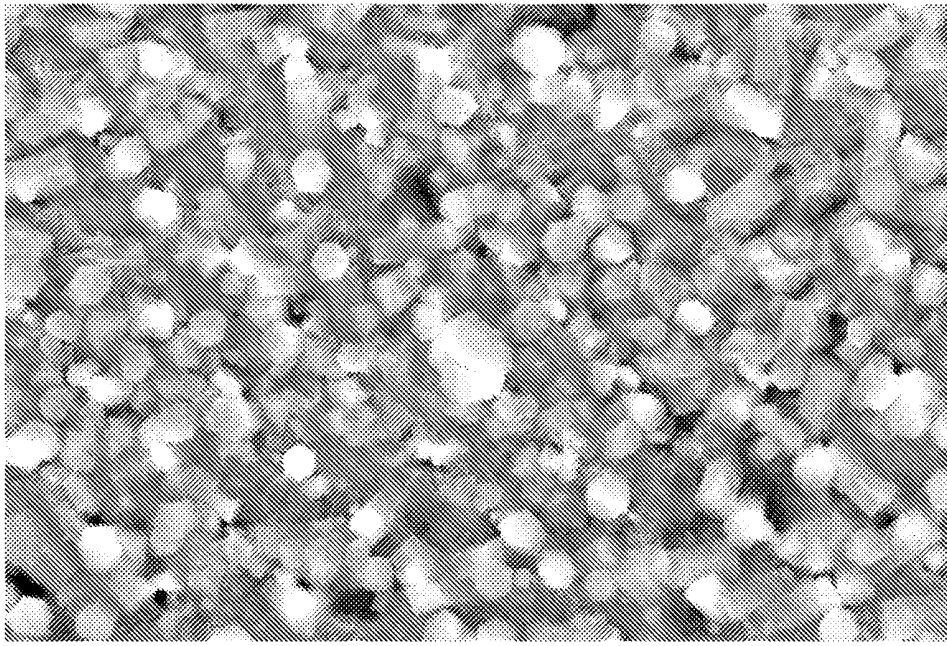
Фиг. 5



Фиг. 6

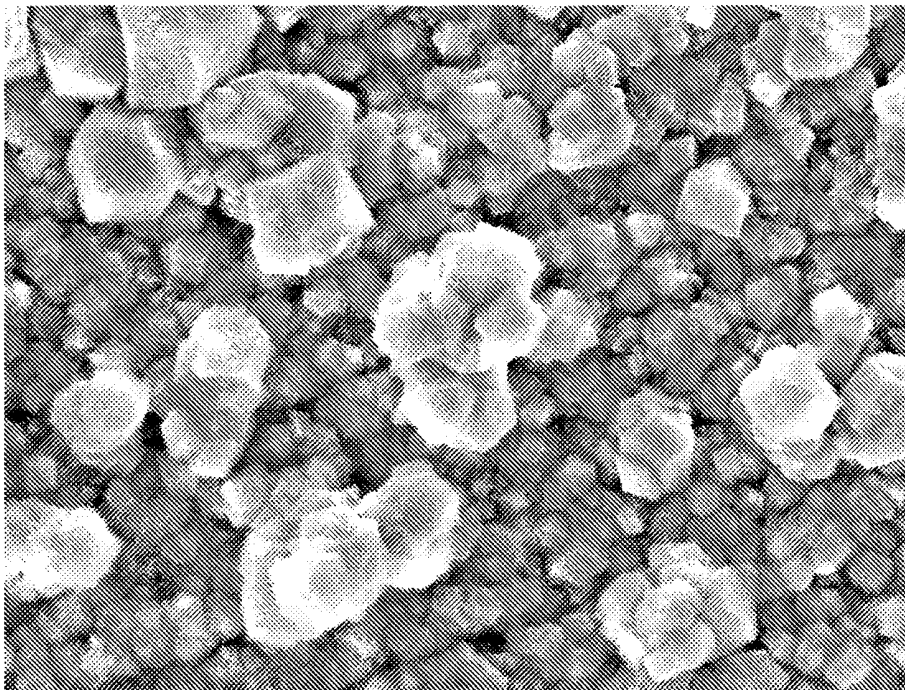


**Фиг. 7**



2 мкм

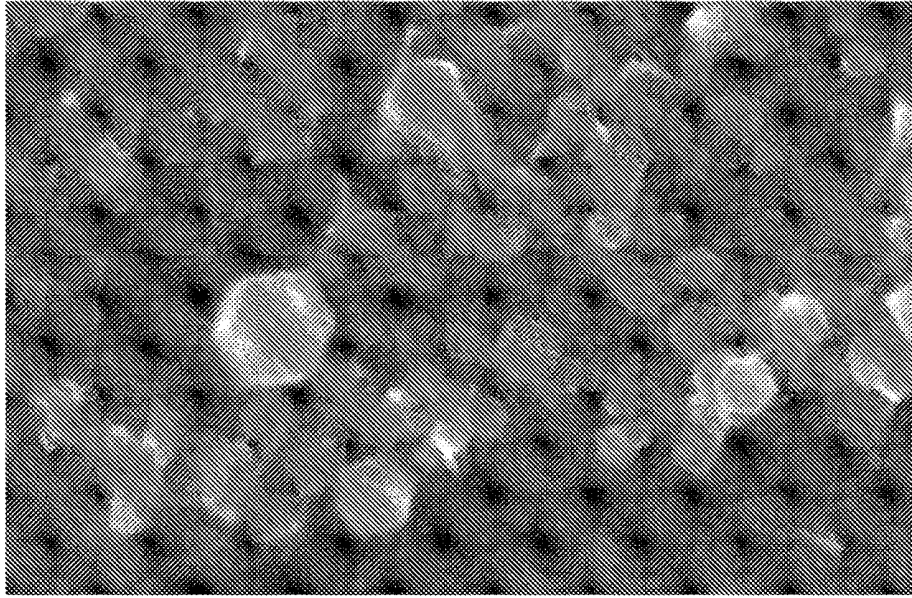
**Фиг. 8**



10 мкм

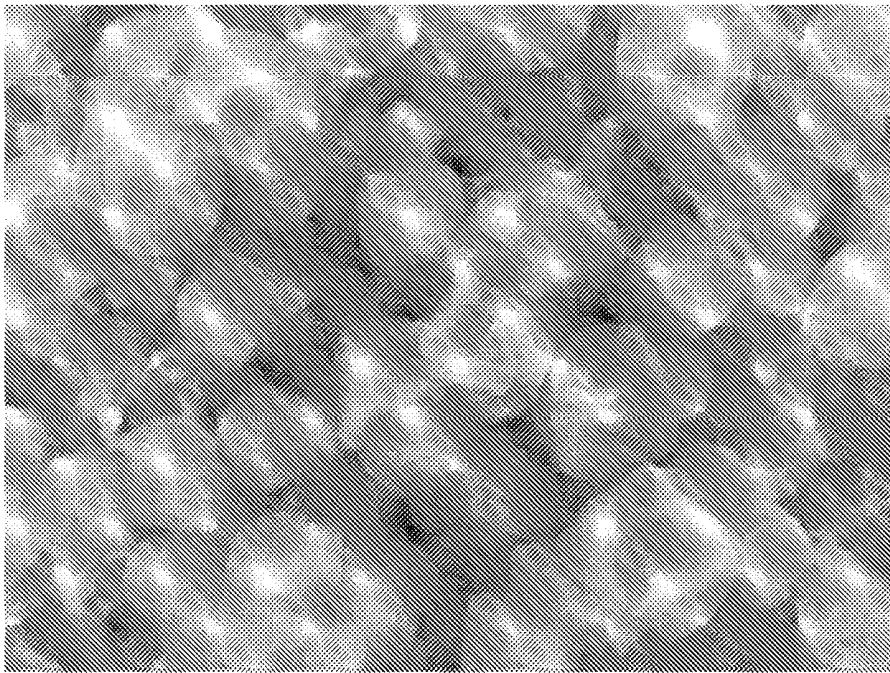


**Фиг. 9**



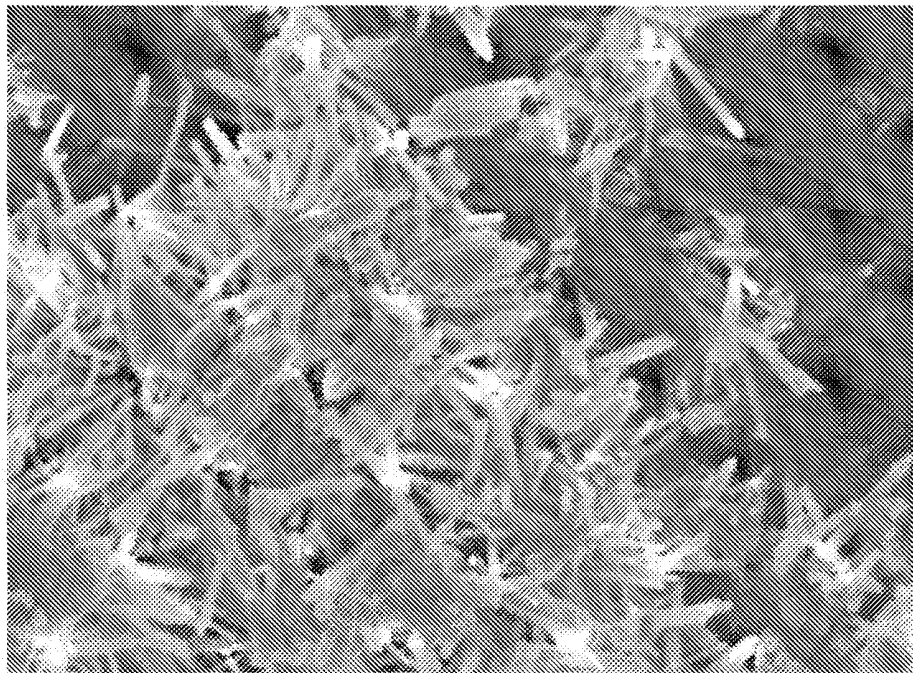
**1 мкм**

**Фиг. 10**



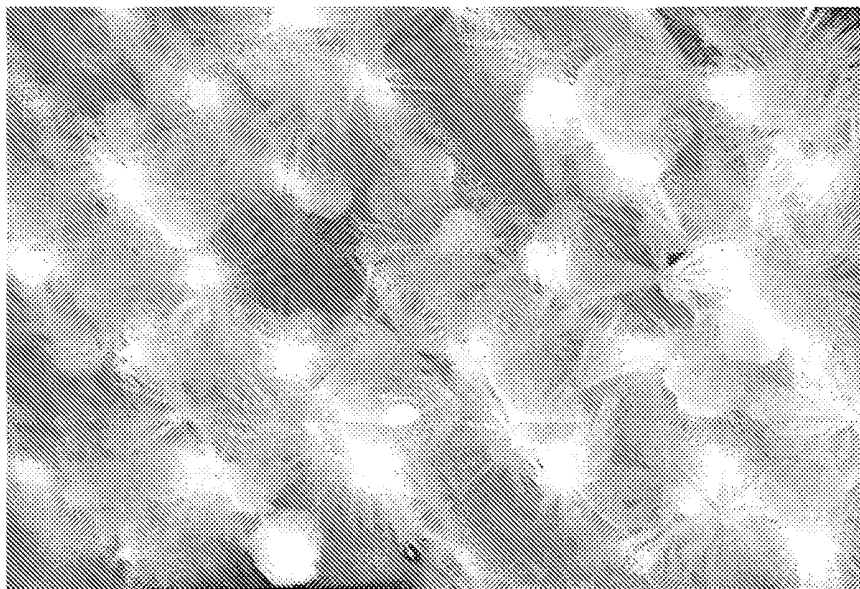
**7 мкм**

**Фиг. 11**



**1 мкм**

**Фиг. 12**



**2 мкм**



Фиг. 13

