



(12) 发明专利申请



(10) 申请公布号 CN 118715232 A

(43) 申请公布日 2024. 09. 27

(21) 申请号 202380024792.3

(22) 申请日 2023.06.08

(30) 优先权数据

2022-093570 2022.06.09 JP

(85) PCT国际申请进入国家阶段日

2024.08.30

(86) PCT国际申请的申请数据

PCT/JP2023/021368 2023.06.08

(87) PCT国际申请的公布数据

W02023/238911 JA 2023.12.14

(71) 申请人 株式会社村田制作所

地址 日本京都

(72) 发明人 森大辅 铃木义明 中山有理

川崎秀树

(74) 专利代理机构 北京康信知识产权代理有限公司 11240

专利代理师 赵雨桐

(51) Int.Cl.

C07F 19/00 (2006.01)

C07F 3/02 (2006.01)

C07F 5/04 (2006.01)

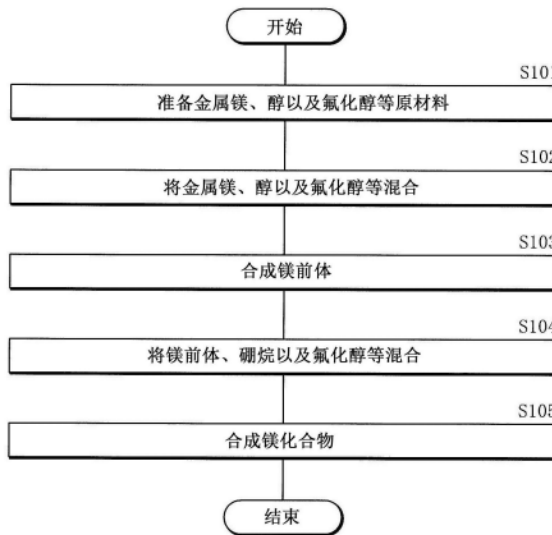
权利要求书1页 说明书10页 附图2页

(54) 发明名称

镁化合物的制造方法

(57) 摘要

在镁化合物的制造方法中,通过使金属镁、醇和碘中的至少一方、由式(1)表示的氟化醇以及溶剂相互混合,形成由式(2)表示的镁前体,通过使包含该镁前体的溶剂、硼烷和氟化醇相互混合,形成由式(3)表示的镁化合物。(R1)₃COH (1) (三个R1分别是氢、氟、烷基以及氟化烷基中的任一种。其中,三个R1中的至少一个是氟以及氟化烷基中的任一种。)Mg[OC(R2)₃]₂ (2) (六个R2分别是氢、氟、烷基以及氟化烷基中的任一种。其中,六个R2中的至少一个是氟以及氟化烷基中的任一种。)Mg[B(OC(R3)₃)₄]₂ (3) (24个R3分别是氢、氟、烷基以及氟化烷基中的任一种。其中,24个R3中的至少一个是氟以及氟化烷基中的任一种)。



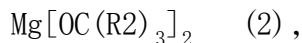
1. 一种镁化合物的制造方法，

通过使金属镁、醇和碘中的至少一方、由式(1)表示的氟化醇以及溶剂相互混合，形成由式(2)表示的镁前体，

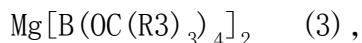
通过使包含所述镁前体的所述溶剂、硼烷和所述氟化醇相互混合，形成由式(3)表示的镁化合物，



式中，三个R1分别是氢、氟、烷基以及氟化烷基中的任一种，其中，三个R1中的至少一个是氟以及氟化烷基中的任一种，



式中，六个R2分别是氢、氟、烷基以及氟化烷基中的任一种，其中，六个R2中的至少一个是氟以及氟化烷基中的任一种，



式中，24个R3分别是氢、氟、烷基以及氟化烷基中的任一种，其中，24个R3中的至少一个是氟以及氟化烷基中的任一种。

2. 根据权利要求1所述的镁化合物的制造方法，其中，

所述氟化醇包含六氟异丙醇。

3. 根据权利要求1或2所述的镁化合物的制造方法，其中，

所述醇包含甲醇。

4. 根据权利要求1至3中任一项所述的镁化合物的制造方法，其中，

所述溶剂包含具有醚键即-O-的醚化合物。

5. 根据权利要求4所述的镁化合物的制造方法，其中，

所述醚化合物包含二甲氧基乙烷以及四氢呋喃中的至少一方。

镁化合物的制造方法

技术领域

[0001] 本技术涉及一种镁化合物的制造方法。

背景技术

[0002] 正在进行镁化合物的开发,关于该镁化合物的制造方法进行了各种研究。具体而言,提出了使用硼氢化镁 ($\text{Mg}(\text{BH}_4)_2$) 或二丁基镁 ($\text{Mg}(\text{C}_4\text{H}_9)_2$) 作为起始材料的镁化合物的制造方法(例如,参照非专利文献1)。使用该制造方法制造的镁化合物用作电解液的电解质盐(例如,参照专利文献1)。

[0003] 现有技术文献

[0004] 专利文献

[0005] 专利文献1:国际公开第2020/235314号小册子

[0006] 非专利文献

[0007] 非专利文献1:Critical Issues of Fluorinated Alkoxyborate-Based Electrolytes in Magnesium Battery Applications, ACS Appl. Mater. Interfaces 2020, 12, 39135-39144

发明内容

[0008] 关于镁化合物的制造方法进行了各种研究,但由于该镁化合物的制造方法的容易性以及稳定性尚不充分,因此具有改善的余地。

[0009] 期望一种能够容易且稳定地得到镁化合物的镁化合物的制造方法。

[0010] 本技术的一个实施方式的镁化合物的制造方法通过使金属镁、醇和碘中的至少一方、由式(1)表示的氟化醇以及溶剂相互混合,形成由式(2)表示的镁前体,通过使包含该镁前体的溶剂、硼烷和氟化醇相互混合,形成由式(3)表示的镁化合物。

[0011] $(\text{R1})_3\text{COH}$ (1)

[0012] (三个R1分别是氢、氟、烷基以及氟化烷基中的任一种。其中,三个R1中的至少一个是氟以及氟化烷基中的任一种。)

[0013] $\text{Mg}[\text{OC}(\text{R2})_3]_2$ (2)

[0014] (六个R2分别是氢、氟、烷基以及氟化烷基中的任一种。其中,六个R2中的至少一个是氟以及氟化烷基中的任一种。)

[0015] $\text{Mg}[\text{B}(\text{OC}(\text{R3})_3)_4]_2$ (3)

[0016] (24个R3分别是氢、氟、烷基以及氟化烷基中的任一种。其中,24个R3中的至少一个是氟以及氟化烷基中的任一种。)

[0017] 在此,“金属镁”是所谓的镁单体。其中,金属镁的纯度没有特别限定,因此该金属镁也可以包含任意量的杂质。

[0018] 根据本技术的一个实施方式的镁化合物的制造方法,通过使金属镁、醇和碘中的至少一方、氟化醇以及溶剂相互混合,形成镁前体,然后,通过使包含该镁前体的溶剂、硼烷

和氟化醇相互混合,形成镁化合物,因此能够容易且稳定地制造该镁化合物。

[0019] 另外,本技术的效果不一定限定于在此说明的效果,也可以是与后述的本技术关联的一系列的任何效果。

附图说明

[0020] 图1是用于说明本技术的第一实施方式中的镁化合物的制造方法的流程图。

[0021] 图2是用于说明本技术的第二实施方式中的镁化合物的制造方法的流程图。

具体实施方式

[0022] 下面,参照附图对本技术的一个实施方式进行详细说明。另外,说明的顺序如下所述。

[0023] 1. 镁化合物的制造方法(第一实施方式)

[0024] 1-1. 概要

[0025] 1-2. 制造步骤

[0026] 1-3. 作用以及效果

[0027] 2. 镁化合物的制造方法(第二实施方式)

[0028] 2-1. 概要

[0029] 2-2. 制造步骤

[0030] 2-3. 作用以及效果

[0031] 3. 变形例

[0032] 4. 镁电池的用途

[0033] <1. 镁化合物的制造方法(第一实施方式)>

[0034] 首先,对本技术的第一实施方式中的镁化合物的制造方法进行说明。

[0035] <1-1. 概要>

[0036] 在此说明的镁化合物的制造方法是制造由后述的式(3)表示的镁化合物的方法,更具体而言,是使用金属镁作为起始材料来制造镁化合物的方法。

[0037] 从式(3)可知,该镁化合物是包含镁离子(Mg^{2+})作为阳离子且包含含硼离子($[B(OC(R_3)_3)_4]^-$)作为阴离子的镁盐。

[0038] 另外,镁化合物的用途没有特别限定,具体而言,是镁电池的电解液等。在这种情况下,镁化合物被用作电解质盐。

[0039] <1-2. 制造步骤>

[0040] 图1为了说明第一实施方式中的镁化合物的制造方法而示出其制造步骤的流程。以下,参照图1对镁化合物的制造步骤进行说明。

[0041] [原材料的准备]

[0042] 在制造镁化合物的情况下,首先,准备用于合成该镁化合物的原材料(步骤S101)。

[0043] 在这种情况下,作为镁化合物中包含的镁的供给源,使用镁单体(金属镁)而非硼氢化镁以及二丁基镁等镁化合物。

[0044] 具体而言,作为原材料,准备金属镁、醇、氟化醇、硼烷以及溶剂。

[0045] (金属镁)

[0046] 如上所述,金属镁是镁单体,也可以包含任意量的杂质。该杂质的含量优选尽可能少。这是因为变得容易形成镁化合物。

[0047] (醇)

[0048] 醇是用于促进金属镁的溶解反应的催化剂。该醇与氟化醇不同,是不包含氟作为构成元素的化合物。醇的种类只要是任意的醇中的任一种或两种以上,则没有特别限定。醇的具体例是甲醇、乙醇以及丙醇等。另外,碳原子数为三个以上的丙醇等醇可以是链状,也可以是支链状。

[0049] 其中,醇优选包含甲醇。这是因为金属镁的溶解反应变得容易进行,因此变得容易形成镁化合物。

[0050] (氟化醇)

[0051] 氟化醇是成为镁化合物中包含的含氟基团($-\text{OC}(\text{R}_3)_3$)的供给源的材料。该氟化醇与醇不同,是包含氟作为构成元素的化合物。即,氟化醇是醇中的一个或两个以上的氢被氟取代的化合物,更具体而言,包含由式(1)表示的化合物中的任一种或两种以上。

[0052] $(\text{R}_1)_3\text{COH}$ (1)

[0053] (三个 R_1 分别是氢、氟、烷基以及氟化烷基中的任一种。其中,三个 R_1 中的至少一个是氟以及氟化烷基中的任一种。)

[0054] 从式(1)可知,该氟化醇是醇中的一个或两个以上的氢被氟取代的化合物。由此,三个 R_1 全部为氢以及烷基中的任一个的化合物不相当于在此说明的氟化醇。

[0055] 烷基的碳原子数没有特别限定。此外,烷基的种类可以是直链状,也可以是支链状。烷基的具体例是甲基以及乙基等。其中,烷基优选为甲基。这是因为氟化醇的相容性等提高。

[0056] 氟化烷基是烷基中的一个或两个以上的氢被氟取代的基团。氟化烷基中包含的氟的数量没有特别限定。

[0057] 在与镁化合物的具体例的关系中如在后面叙述的那样,氟化醇的具体例是 $(\text{CF}_3)_2\text{HCOH}$ 、 $(\text{CF}_3)_3\text{COH}$ 、 $(\text{CH}_3)(\text{CF}_3)\text{HCOH}$ 、 $(\text{CH}_3)(\text{CF}_3)_2\text{COH}$ 、 $(\text{CH}_3)_2(\text{CF}_3)\text{COH}$ 、 $(\text{CH}_3)_2\text{FCOH}$ 以及 $(\text{CF}_3)_2\text{FCOH}$ 等。

[0058] 其中,氟化醇优选包含六氟异丙醇(六氟-2-丙醇)即 $(\text{CF}_3)_2\text{HCOH}$ 。这是因为变得容易形成镁化合物。

[0059] (硼烷)

[0060] 硼烷是成为镁化合物中包含的硼(B)的供给源的材料。如上所述,该硼是镁化合物中包含的阴离子(含硼离子)的中心元素。

[0061] (溶剂)

[0062] 溶剂包含能够溶解金属镁的有机溶剂中的任一种或两种以上。

[0063] 其中,溶剂优选包含醚化合物。这是因为金属镁被稳定地溶解。该醚化合物是具有醚键($-\text{O}-$)的化合物,可以是链状化合物,也可以是环状化合物,还可以是两者。

[0064] 醚化合物的具体例是二甲氧基乙烷、二甘醇二甲醚、四甘醇二甲醚以及四氢呋喃等。这是因为金属镁被充分溶解。在此说明的一系列的醚化合物的具体例主要是所谓的甘醇二甲醚(glyme)系醚。

[0065] 其中,醚化合物优选包含二甲氧基乙烷以及四氢呋喃中的一方或双方,这是因为

金属镁进一步被溶解。

[0066] [镁前体的形成]

[0067] 接着,使用原材料形成由式(2)表示的镁前体。

[0068] (形成步骤)

[0069] 具体而言,使金属镁、醇、氟化醇以及溶剂相互混合(步骤S102)。在这种情况下,也可以使用搅拌装置等搅拌溶剂。

[0070] 由此,在溶剂中,金属镁与氟化醇反应,因此合成式(2)所示的镁前体(步骤S103)。

[0071] $\text{Mg}[\text{OC}(\text{R}_2)_3]_2$ (2)

[0072] (六个R2分别是氢、氟、烷基以及氟化烷基中的任一种。其中,六个R2中的至少一个是氟以及氟化烷基中的任一种。)

[0073] 该镁前体是用于合成镁化合物的中间产物,从式(2)可知,镁原子是与两个含氟基团($-\text{OC}(\text{R}_2)_3$)键合的化合物。由此,六个R2全部为氢以及烷基中的任一个的化合物不相当于在此说明的镁前体。

[0074] (化学反应)

[0075] 在镁前体的合成工序中,进行由下述的式(A)~式(C)分别表示的化学反应,因此合成镁前体。以下,将式(A)所示的化学反应称为“化学反应A”,将式(B)所示的化学反应称为“化学反应B”,将式(C)所示的化学反应称为“化学反应C”。

[0076] 在此说明的化学反应A~C是通过使用甲醇(CH_3OH)作为醇,并且使用六氟异丙醇($(\text{CF}_3)_2\text{HCOH}$)作为氟化醇,合成 $\text{Mg}[\text{OCH}(\text{CF}_3)_2]_2$ 作为镁前体的情况下的化学反应。

[0077] $\text{Mg} + 2\text{CH}_3\text{OH} \rightarrow \text{Mg}(\text{CH}_3\text{O})_2 + \text{H}_2$ (A)

[0078] $\text{Mg}(\text{CH}_3\text{O})_2 + 2(\text{CF}_3)_2\text{HCOH} \rightarrow \text{Mg}[\text{OCH}(\text{CF}_3)_2]_2 + 2\text{CH}_3\text{OH}$ (B)

[0079] $\text{Mg} + 2(\text{CF}_3)_2\text{CH}_2\text{OH} \rightarrow \text{Mg}[\text{OCH}(\text{CF}_3)_2]_2 + \text{H}_2$ (C)

[0080] 与化学反应A~C相关的详细情况如下所述。

[0081] 化学反应A在室温下进行,并且在该化学反应A中,合成甲醇镁($\text{Mg}(\text{CH}_3\text{O})_2$)。但是,甲醇镁相对于醇(CH_3OH)的溶解度低,因此随着化学反应A进行,该化学反应A的反应速度降低。这是因为,由于具有低溶解性的甲醇镁的存在,该甲醇镁覆盖金属镁(Mg)的表面,并且包含该甲醇镁的溶剂的搅拌效率降低。

[0082] 因此,通过在包含甲醇镁的溶剂中添加氟化醇($(\text{CF}_3)_2\text{HCOH}$),进行化学反应B,因此合成镁前体($\text{Mg}[\text{OCH}(\text{CF}_3)_2]_2$)。镁前体相对于醇的溶解度与甲醇镁相对于该醇的溶解相比足够高,因此通过将该甲醇镁转化为镁前体,镁前体能够溶解在该醇中。由此,抑制了上述的甲醇镁的存在引起的反应速度的降低。

[0083] 另外,在化学反应B中生成的醇在化学反应A中被再利用。由此,削减在化学反应A中消耗的醇的消耗量。

[0084] 在这种情况下,通过使用醚化合物作为溶剂,促进镁前体的溶解,因此进一步抑制了反应速度的降低。

[0085] 另外,在镁前体的合成工序中,不仅分别进行化学反应A、B,还进行化学反应C。在该化学反应C中,与化学反应A、B不同,不经由甲醇镁,而由金属镁直接合成镁前体。

[0086] 室温下的化学反应C的反应速度小于化学反应A、B各自的反应速度。在这种情况下,由于在金属镁的表面形成氧化覆膜,反应速度变得更小,因此阻碍化学反应C的进行。

[0087] 但是,在化学反应A中,形成于金属镁的表面的氧化覆膜溶解,因此该金属镁的表面(活性面)变得容易露出。由此,促进化学反应C的进行,因此在该化学反应C中也合成镁前体。

[0088] 由此,在镁前体的合成工序中,在化学反应A、B中,以金属镁为起始材料而间接地合成镁前体,并且在化学反应C中,以金属镁为起始材料而直接合成镁前体。

[0089] [镁化合物的形成]

[0090] 最后,使用镁前体形成由式(3)表示的镁化合物。

[0091] (形成步骤)

[0092] 具体而言,使包含镁前体的溶剂、硼烷和氟化醇相互混合(步骤S104)。在这种情况下,也可以使用搅拌装置等搅拌溶剂。

[0093] 由此,在溶剂中镁前体分别与硼烷以及氟化醇反应,因此合成式(3)所示的镁化合物(步骤S105)。

[0094] $\text{Mg}[\text{B}(\text{OC}(\text{R}_3)_4)_2]_2$ (3)

[0095] (24个R3分别是氢、氟、烷基以及氟化烷基中的任一种。其中,24个R3中的至少一个是氟以及氟化烷基中的任一种。)

[0096] 从式(3)可知,该镁化合物是镁原子与两个含硼基团($-\text{B}(\text{OC}(\text{R}_3)_4)_2$)键合的化合物。由此,24个R3全部为氢以及烷基中的任一个的化合物不相当于在此说明的镁化合物。

[0097] 由此,得到镁化合物。如上所述,该镁化合物是包含镁离子(Mg^{2+})作为阳离子、且包含含硼离子($[\text{B}(\text{OC}(\text{R}_3)_4)_2]^-$)作为阴离子的镁盐。

[0098] (化学反应)

[0099] 在镁化合物的合成工序中,进行由下述的式(D)表示的化学反应,因此合成镁前体。以下,将式(D)所示的化学反应称为“化学反应D”。

[0100] 在此说明的化学反应D是通过使用六氟异丙醇($(\text{CF}_3)_2\text{CHOH}$)作为氟化醇,合成 $\text{Mg}[\text{B}(\text{OCH}(\text{CF}_3)_2)_4]_2$ 作为镁化合物的情况下的化学反应。

[0101] $\text{Mg}[\text{OCH}(\text{CF}_3)_2]_2 + 2\text{BH}_3 + 6(\text{CF}_3)_2\text{CHOH} \rightarrow \text{Mg}[\text{B}(\text{OCH}(\text{CF}_3)_2)_4]_2 + 6\text{H}_2$ (D)

[0102] 在化学反应D中,镁前体($\text{Mg}[\text{OCH}(\text{CF}_3)_2]_2$)与硼烷(BH_3)以及氟化醇($(\text{CF}_3)_2\text{CHOH}$)反应。由此,合成镁化合物($\text{Mg}[\text{B}(\text{OCH}(\text{CF}_3)_2)_4]_2$)。

[0103] (具体例)

[0104] 通过上述的制造步骤制造的镁化合物的结构根据在该制造步骤中使用的氟化醇的结构来确定。

[0105] 列举一例,氟化醇的结构、镁前体的结构和镁化合物的结构的关系如下所述。

[0106] 在使用 $(\text{CF}_3)_2\text{CHOH}$ 作为氟化醇的情况下,形成 $\text{Mg}[\text{OCH}(\text{CF}_3)_2]_2$ 作为镁前体,并且制造 $\text{Mg}[\text{B}(\text{OCH}(\text{CF}_3)_2)_4]_2$ 作为镁化合物。

[0107] 在使用 $(\text{CF}_3)_3\text{COH}$ 作为氟化醇的情况下,形成 $\text{Mg}[\text{OC}(\text{CF}_3)_3]_2$ 作为镁前体,并且制造 $\text{Mg}[\text{B}(\text{OC}(\text{CF}_3)_3)_4]_2$ 作为镁化合物。

[0108] 在使用 $(\text{CH}_3)(\text{CF}_3)\text{CHOH}$ 作为氟化醇的情况下,形成 $\text{Mg}[\text{OCH}(\text{CF}_3)(\text{CH}_3)]_2$ 作为镁前体,并且制造 $\text{Mg}[\text{B}(\text{OCH}(\text{CF}_3)(\text{CH}_3))_4]_2$ 作为镁化合物。

[0109] 在使用 $(\text{CH}_3)(\text{CF}_3)_2\text{COH}$ 作为氟化醇的情况下,形成 $\text{Mg}[\text{OC}(\text{CF}_3)_2(\text{CH}_3)]_2$ 作为镁前体,并且制造 $\text{Mg}[\text{B}(\text{OC}(\text{CF}_3)_2(\text{CH}_3))_4]_2$ 作为镁化合物。

[0110] 在使用 $(\text{CH}_3)_2(\text{CF}_3)\text{COH}$ 作为氟化醇的情况下,形成 $\text{Mg}[\text{OC}(\text{CF}_3)(\text{CH}_3)_2]_2$ 作为镁前体,并且制造 $\text{Mg}[\text{B}(\text{OC}(\text{CF}_3)(\text{CH}_3)_2)_4]_2$ 作为镁化合物。

[0111] 在使用 $(\text{CH}_3)_2\text{FCOH}$ 作为氟化醇的情况下,形成 $\text{Mg}[\text{OCF}(\text{CH}_3)_2]_2$ 作为镁前体,并且制造 $\text{Mg}[\text{B}(\text{OCF}(\text{CH}_3)_2)_4]_2$ 作为镁化合物。

[0112] 在使用 $(\text{CF}_3)_2\text{FCOH}$ 作为氟化醇的情况下,形成 $\text{Mg}[\text{OCF}(\text{CF}_3)_2]_2$ 作为镁前体,并且制造 $\text{Mg}[\text{B}(\text{OCF}(\text{CF}_3)_2)_4]_2$ 作为镁化合物。

[0113] <1-3.作用以及效果>

[0114] 根据第一实施方式中的镁化合物的制造方法,通过使金属镁、醇、氟化醇以及溶剂相互混合,在形成镁前体之后,使包含该镁前体的溶剂、硼烷和氟化醇相互混合,由此形成镁化合物。

[0115] 在这种情况下,不使用化学性不稳定的镁化合物作为起始材料,而使用化学性稳定的镁单体(金属镁)作为起始材料来合成镁化合物。该化学性不稳定的镁化合物的具体例是上述的硼氢化镁以及二丁基镁等。

[0116] 而且,为了使用金属镁作为起始材料来合成镁化合物,仅使用使金属镁分别与氟化醇以及硼烷反应的简单处理。

[0117] 因此,容易且稳定地合成镁化合物,因此能够容易且稳定地得到该镁化合物。在这种情况下,特别是由于不使用高价的镁的化合物作为起始材料即可,因此也能够以低成本大量地得到镁化合物。

[0118] 特别是如果氟化醇包含六氟异丙醇,则变得容易形成镁化合物,因此能够得到更高的效果。

[0119] 此外,如果醇包含甲醇,则变得容易形成镁化合物,因此能够得到更高的效果。

[0120] 此外,如果溶剂包含具有醚键的醚化合物,则镁化合物稳定地溶解,因此能够得到更高的效果。在这种情况下,如果醚化合物包含二甲氧基乙烷以及四氢呋喃中的一方或双方,则镁化合物充分溶解,因此能够得到更高的效果。

[0121] <2.镁化合物的制造方法(第二实施方式)>

[0122] 接着,对本技术的第二实施方式中的镁化合物的制造方法进行说明。

[0123] <2-1.概要>

[0124] 第二实施方式中的镁化合物的制造方法的内容除了使用碘(I_2)来代替醇以外,与第一实施方式中的镁化合物的制造方法的内容是同样的。该碘与醇同样,是用于促进金属镁的溶解反应的催化剂。

[0125] <2-2.制造步骤>

[0126] 图2为了说明第二实施方式中的镁化合物的制造方法而示出其制造步骤的流程,对应于图1。以下,一边参照图2一边对镁化合物的制造步骤进行说明。

[0127] [原材料的准备]

[0128] 在制造镁化合物的情况下,首先,准备用于合成该镁化合物的原材料(步骤S201)。

[0129] 在这种情况下,与第一实施方式同样,作为镁化合物中包含的镁的供给源,使用金属镁而非镁化合物。

[0130] 具体而言,作为原材料,准备金属镁、碘、氟化醇、硼烷以及溶剂。与金属镁、氟化醇以及溶剂各自相关的详细情况如上所述。

[0131] [镁前体的形成]

[0132] 接着,使用原材料形成式(2)所示的镁前体。

[0133] (形成步骤)

[0134] 具体而言,使金属镁、碘、氟化醇以及溶剂相互混合(步骤S202)。在这种情况下,也可以使用搅拌装置等搅拌溶剂。由此,合成镁前体(步骤S203)。与镁前体相关的详细情况如上所述。

[0135] (化学反应)

[0136] 在镁前体的合成工序中,进行由下述的式(E)表示的化学反应,因此合成镁前体。以下,将式(E)所示的化学反应称为“化学反应E”。

[0137] 在此说明的化学反应E是通过使用六氟异丙醇($(\text{CF}_3)_2\text{CHOH}$)作为氟化醇,合成 $\text{Mg}[\text{OCH}(\text{CF}_3)_2]_2$ 作为镁前体的情况下的化学反应。

[0138] $\text{Mg} + \text{I}_2 \rightarrow \text{MgI}_2$ (E)

[0139] 化学反应E在室温下进行,并且在该化学反应E中合成碘化镁(MgI_2)。此外,进行上述的化学反应C。

[0140] 在室温下,在金属镁(Mg)的表面形成氧化覆膜,因此该金属镁的反应速度降低。但是,在化学反应E中,形成于金属镁的表面的氧化覆膜溶解,因此该金属镁的表面(活性面)变得容易露出。由此,促进化学反应C,因此在该化学反应C中合成镁前体($\text{Mg}[\text{OCH}(\text{CF}_3)_2]_2$)。

[0141] [镁化合物的形成]

[0142] 最后,使用镁前体形成式(3)所示的镁化合物。

[0143] (形成步骤)

[0144] 具体而言,与第一实施方式同样,使包含镁前体的溶剂、硼烷和氟化醇相互混合(步骤S204)。在这种情况下,也可以使用搅拌装置等搅拌溶剂。

[0145] 由此,在溶剂中镁前体分别与硼烷以及氟化醇反应,因此合成镁化合物(步骤S205)。因此,得到镁化合物。

[0146] (化学反应)

[0147] 在镁化合物的合成工序中,进行化学反应D,因此合成镁化合物($\text{Mg}[\text{B}(\text{OCH}(\text{CF}_3)_2)_4]_2$)。

[0148] (具体例)

[0149] 通过上述的制造步骤制造的镁化合物的结构根据在该制造步骤中使用的氟化醇的结构来确定。氟化醇的结构、镁前体的结构和镁化合物的结构的关系如在第一实施方式中说明的那样。

[0150] <2-3.作用以及效果>

[0151] 根据第二实施方式中的镁化合物的制造方法,通过使金属镁、碘、氟化醇以及溶剂相互混合,在形成镁前体之后,使包含该镁前体的溶剂、硼烷和氟化醇相互混合,由此形成镁化合物。

[0152] 在这种情况下,由于与在第一实施方式中说明的理由同样的理由,仅通过使用化学性稳定的金属镁作为起始材料,并且利用碘使金属镁分别与氟化醇以及硼烷反应的简单处理来合成镁化合物。

[0153] 由此,容易且稳定地制造镁化合物,因此能够容易且稳定地得到该镁化合物。

[0154] 与第二实施方式中的镁化合物的制造方法相关的其他作用以及效果除了基于醇的作用以及效果以外,与第一实施方式中的镁化合物的制造方法相关的其他作用以及效果是同样的。

[0155] <3.变形例>

[0156] 上述的镁化合物的制造方法能够适当变更。

[0157] 具体而言,在第一实施方式中,使用醇作为用于促进金属镁的溶解反应的催化剂。此外,在第二实施方式中,使用碘作为用于促进金属镁的溶解反应的催化剂。

[0158] 但是,也可以不仅使用醇和碘中的任一方,而使用该醇和碘的双方。即使在这种情况下,也容易且稳定地制造镁化合物,因此能够得到同样的效果。

[0159] <4.镁电池的用途>

[0160] 镁电池的用途(应用例)没有特别限定。用作电源的二次电池在电子设备以及机动车辆等中,可以是主电源,也可以是辅助电源。主电源是指与有无其他电源无关而优先使用的电源。辅助电源可以是代替主电源而使用的电源,也可以是从主电源切换的电源。

[0161] 镁电池的用途的具体例如下所述。摄像机、数码静态相机、移动电话、笔记本电脑、立体声耳机、便携式收音机以及便携式信息终端等电子设备。备用电源以及存储卡等存储用装置。电钻以及电锯等电动工具。搭载于电子设备等的电池包。起搏器以及助听器等医疗用电子设备。电动汽车(包括混合动力汽车)等机动车辆。防备紧急情况而预先蓄积电力的家用或工业用的电池系统等电力存储系统。在这些用途中,可以使用一个镁电池,也可以使用多个镁电池。

[0162] 电池包可以使用单电池,也可以使用电池组。机动车辆是使用镁电池作为驱动用电源而行驶的车辆,也可以是一并具备该镁电池以外的其他驱动源的混合动力汽车。在家用的电力存储系统中,利用蓄积于作为电力存储源的镁电池的电力,能够使用家用的电气产品等。

[0163] 实施例

[0164] 对本技术的实施例进行说明。

[0165] 在制造镁化合物之后,评价该镁化合物。

[0166] [镁化合物的制造]

[0167] 通过以下说明的步骤,制造镁化合物。

[0168] (实施例1)

[0169] 使用第一实施方式中的镁化合物的制造方法,制造该镁化合物。

[0170] 首先,在向醇(甲醇(CH_3OH)) 1cm^3 (25mmol) 中加入金属镁(Mg) 100mg (4mmol) 之后,搅拌该醇,由此制备溶液W。在这种情况下,由于氢的产生,溶液W发泡。

[0171] 接着,通过向溶液W中添加氟化醇(六氟异丙醇($(\text{CF}_3)_2\text{HCOH}$)) 1cm^3 (10mmol), 搅拌该溶液W之后,通过向该溶液W中添加溶剂(作为醚化合物的四氢呋喃) 1.5cm^3 (18mmol), 进一步搅拌该溶液W。由此,合成镁前体($\text{Mg}[\text{OCH}(\text{CF}_3)_2]_2$), 因此制备包含该镁前体的溶液X。

[0172] 接着,通过使溶液X减压干燥,回收镁前体。

[0173] 接着,在向溶剂(作为醚化合物的二甲氧基乙烷) 20cm^3 中添加镁前体(0.01mol) 之后,搅拌该溶剂,由此制备溶解有该镁前体的溶液Y。

[0174] 接着,在向溶剂(作为醚化合物的四氢呋喃) 中加入硼烷之后,搅拌该溶剂,由此制

备硼烷的四氢呋喃溶液。接着,在向溶液Y中添加硼烷的四氢呋喃溶液22cm³(硼烷为0.022mol)和氟化醇(六氟异丙醇)12cm³(0.11mol)之后,搅拌该溶液Y,由此制备溶液Z。

[0175] 最后,通过在室温环境中(温度=23℃),搅拌溶液Z(搅拌时间=1天),然后在高温环境中(温度=50℃),对溶液Z进行减压(减压时间=1天),挥发除去溶剂。由此,合成镁化合物(Mg[B(OCH(CF₃)₂)₄]₂),因此得到该镁化合物。

[0176] (实施例2)

[0177] 使用第二实施方式中的镁化合物的制造方法,制造该镁化合物。

[0178] 首先,在向溶剂(作为醚化合物的四氢呋喃)中加入碘(I₂)之后,搅拌该溶剂,由此制备碘的四氢呋喃溶液。

[0179] 接着,在向碘的四氢呋喃溶液(4mmol/dm³)中添加金属镁(Mg)100mg(4mmol)和氟化醇(六氟异丙醇)1cm³(10mmol)之后,搅拌该碘的四氢呋喃溶液。由此,合成镁前体(Mg(OCH(CF₃)₂)₂),因此制备包含该镁前体的溶液P。

[0180] 接着,通过使溶液P减压干燥,回收镁前体。

[0181] 最后,通过与实施例1同样的步骤,使用镁前体合成镁化合物(Mg[B(OCH(CF₃)₂)₄]₂)。

[0182] [镁化合物的评价]

[0183] 通过以下说明的步骤,使用核磁共振法(NMR)评价镁化合物。在此,为了确认,也一并评价用于合成镁化合物的镁前体。

[0184] 在评价镁前体的情况下,在向溶剂中加入镁前体之后,搅拌该溶剂。由此,镁前体溶解在溶剂中,因此得到分析用的试样。作为溶剂,使用双(三氟甲烷磺酰基)酰亚胺锂(LiN(CF₃SO₂)₂)的二甲基亚砜-d₆溶液(LiTFSI DMSO-d₆)。此后,使用质子核磁共振法(¹H NMR)分析试样。

[0185] 在评价镁化合物的情况下,除了使用镁化合物来代替镁前体以外,通过与该镁前体的评价步骤同样的步骤,使用质子核磁共振法分析试样。

[0186] [评价结果]

[0187] 对镁化合物进行评价,得到以下说明的结果。

[0188] (实施例1)

[0189] 在使用质子核磁共振法的镁前体的分析结果中,在8.0ppm(基准物质:四甲基硅烷)处检测出由含氟基团(-OCH(CF₃)₂)引起的峰。由此,确认到合成了镁前体(Mg(OCH(CF₃)₂)₂)。在这种情况下,还确认到醇(甲醇)以及溶剂(二甲氧基乙烷以及四氢呋喃)各自作为结晶溶剂或配位溶剂存在。

[0190] 此外,在使用质子核磁共振法的镁化合物的分析结果中,与由含氟基团(-OCH(CF₃)₂)引起的峰一起,检测出由二甲氧基乙烷引起的峰。由此,确认到合成了镁化合物(Mg[B(OCH(CF₃)₂)₄]₂)。

[0191] 在这种情况下,由于含氟基团(-OCH(CF₃)₂)和溶剂(二甲氧基乙烷)的存在(摩尔比)为8:3,所以确认到目标的镁化合物(Mg[B(OCH(CF₃)₂)₄]₂)以[Mg(CH₃OC₂H₄CH₃)₃][B(OCH(CF₃)₂)₄]₂的状态存在。

[0192] (实施例2)

[0193] 得到与实施例1的评价结果同样的评价结果。由此,确认到合成了镁前体(Mg(OCH

(CF₃)₂)₂), 并且合成了镁化合物 (Mg[B(OC(CH₃)₂)₄]₂)。

[0194] 另外, 通常在金属镁与碘的反应中, 应该不产生氢。但是, 在实施例2中, 如上所述, 由于金属镁的反应而产生氢, 因此确认到该金属镁与氟化醇(六氟异丙醇)反应。根据该结果, 也确认到经由镁前体合成了镁化合物。

[0195] [总结]

[0196] 根据上述的评价结果, 使用金属镁作为起始材料形成镁化合物。由此, 能够容易且稳定地得到镁化合物。

[0197] 以上, 与一些实施方式一起列举实施例对本技术进行了说明, 但本技术的结构不限于在这些实施方式以及实施例中说明的结构, 因此能够进行各种变形。

[0198] 具体而言, 对镁化合物用于镁电池的情况进行了说明, 但该镁化合物的用途没有特别限定。因此, 镁化合物在镁电池以外的其他用途中也能够广泛利用。

[0199] 本说明书中所记载的效果只不过是示例, 因此本技术的效果不限于本说明书中记载的效果。因此, 关于本技术, 也可以得到其他效果。

[0200] 另外, 本技术也可以采取以下结构。

[0201] <1>一种镁化合物的制造方法,

[0202] 通过使金属镁、醇和碘中的至少一方、由式(1)表示的氟化醇以及溶剂相互混合, 形成由式(2)表示的镁前体,

[0203] 通过使包含所述镁前体的所述溶剂、硼烷和所述氟化醇相互混合, 形成由式(3)表示的镁化合物。

[0204] (R₁)₃COH (1)

[0205] (三个R₁分别是氢、氟、烷基以及氟化烷基中的任一种。其中, 三个R₁中的至少一个是氟以及氟化烷基中的任一种。)

[0206] Mg[OC(R₂)₃]₂ (2)

[0207] (六个R₂分别是氢、氟、烷基以及氟化烷基中的任一种。其中, 六个R₂中的至少一个是氟以及氟化烷基中的任一种。)

[0208] Mg[B(OC(R₃)₃)₄]₂ (3)

[0209] (24个R₃分别是氢、氟、烷基以及氟化烷基中的任一种。其中, 24个R₃中的至少一个是氟以及氟化烷基中的任一种。)

[0210] <2>根据<1>所述的镁化合物的制造方法, 其中,

[0211] 所述氟化醇包含六氟异丙醇。

[0212] <3>根据<1>或<2>所述的镁化合物的制造方法, 其中,

[0213] 所述醇包含甲醇。

[0214] <4>根据<1>至<3>中任一项所述的镁化合物的制造方法, 其中,

[0215] 所述溶剂包含具有醚键(-O-)的醚化合物。

[0216] <5>根据<4>所述的镁化合物的制造方法, 其中,

[0217] 所述醚化合物包含二甲氧基乙烷以及四氢呋喃中的至少一方。

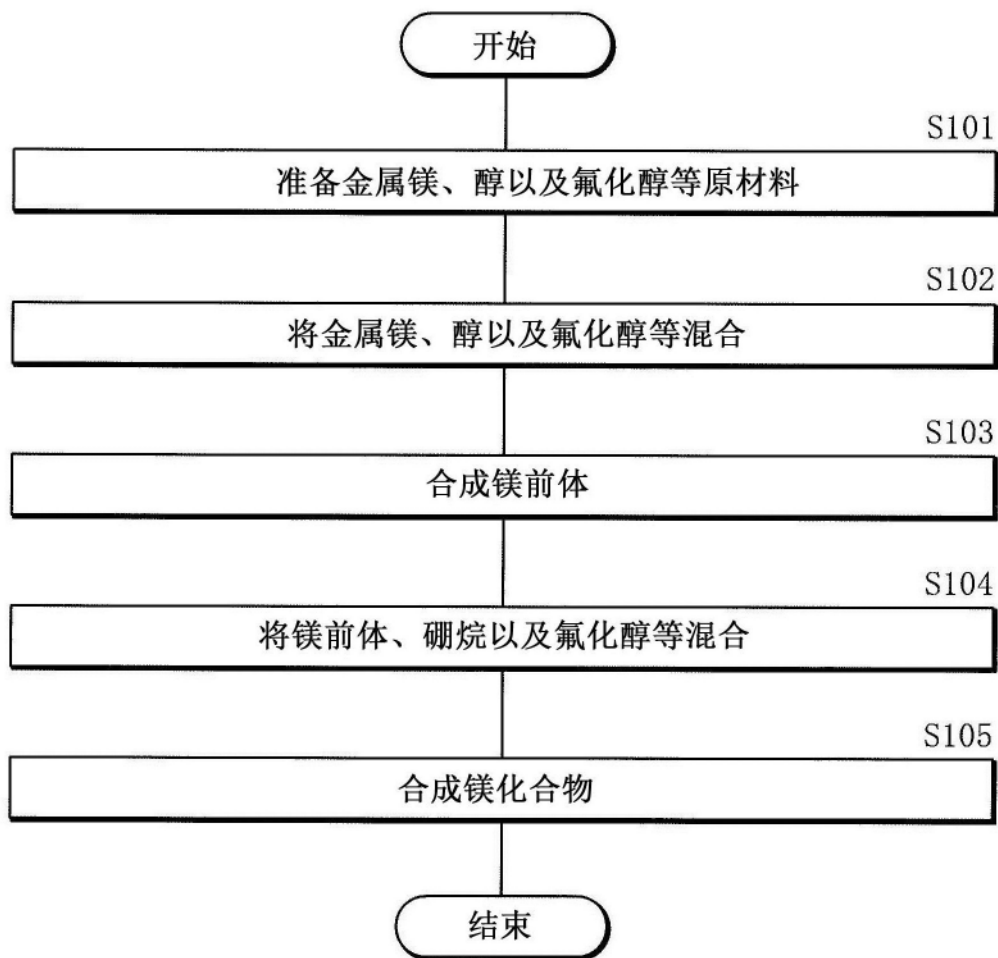


图1

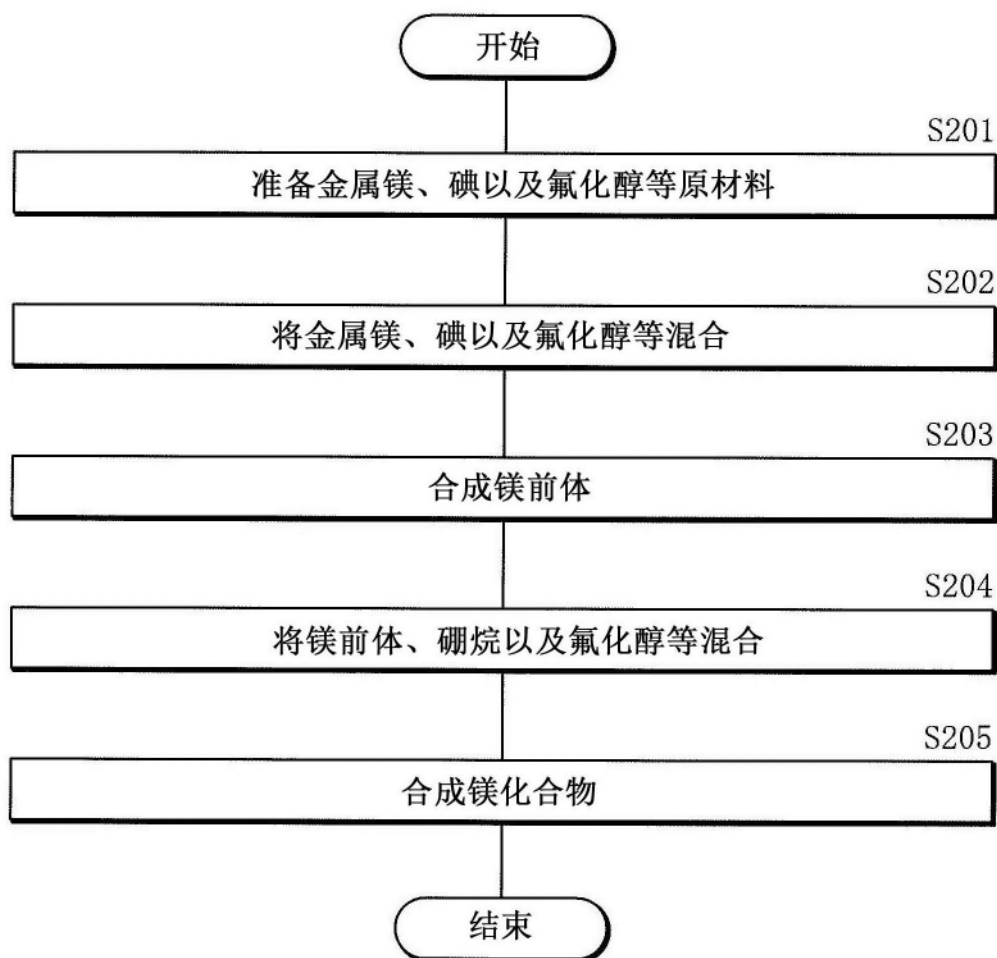


图2