

19



OFICINA ESPAÑOLA DE
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 373 512**

51 Int. Cl.:
C08G 59/56 (2006.01)
C09D 163/00 (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

- 96 Número de solicitud europea: **08861267 .6**
96 Fecha de presentación: **11.12.2008**
97 Número de publicación de la solicitud: **2222748**
97 Fecha de publicación de la solicitud: **01.09.2010**

54 Título: **SISTEMA DE CURADO EPOXI Y REVESTIMIENTOS OBTENIDOS DEL MISMO.**

30 Prioridad:
17.12.2007 EP 07123364
24.01.2008 EP 08100896

45 Fecha de publicación de la mención BOPI:
06.02.2012

45 Fecha de la publicación del folleto de la patente:
06.02.2012

73 Titular/es:
Lanxess Deutschland GmbH
51368 Leverkusen, DE

72 Inventor/es:
MASLOW, Wasil;
BREUKER, Flip Theodorus;
TALMA, Auke Gerardus y
VAN SWIETEN, Andreas Petrus

74 Agente: **Carpintero López, Mario**

ES 2 373 512 T3

Aviso: En el plazo de nueve meses a contar desde la fecha de publicación en el Boletín europeo de patentes, de la mención de concesión de la patente europea, cualquier persona podrá oponerse ante la Oficina Europea de Patentes a la patente concedida. La oposición deberá formularse por escrito y estar motivada; sólo se considerará como formulada una vez que se haya realizado el pago de la tasa de oposición (art. 99.1 del Convenio sobre concesión de Patentes Europeas).

DESCRIPCIÓN

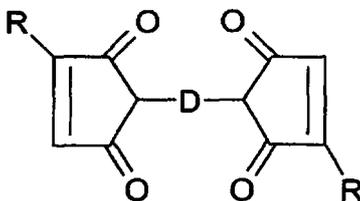
Sistema de curado epoxi y revestimientos obtenidos del mismo

5 La invención se refiere a un sistema de curado que comprende un compuesto que tiene al menos un grupo epóxido, una poliamina, y un agente de co-curado. La invención además se refiere a un procedimiento para curar el sistema y a un revestimiento que se obtiene del mismo.

Las composiciones de revestimiento que se basan en compuestos con grupos epoxi tienen una resistencia limitada a la temperatura, y la descomposición se produce por encima de 160°C.

10 En el documento US 5.198.515 se describió un procedimiento para modificar las resinas que tienen enlaces olefinicamente insaturados combinando con bismaleimidias. De acuerdo con este procedimiento los polímeros que tienen resistencia al calor hasta 500°C se pueden obtener utilizando 1,3-bis(citraconimidometileno)benceno. Este producto está disponible bajo los nombres comerciales Flexlink® y Perkalink®.

Flexlink tiene la fórmula química:



15 en la que D representa 1,3-dimetilenobenceno y R es metilo.

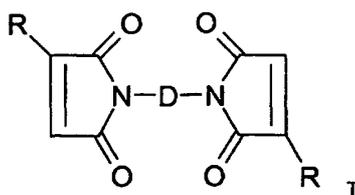
20 El acelerador de entrecruzamiento de este sistema de curado es peróxido. Sin embargo, para los polímeros que tienen un grupo epóxido, que no son curados en presencia de peróxido sino en presencia de un compuesto amina-funcional, sólo se pueden utilizar bajas cantidades de Flexlink. El contenido de Flexlink en este sistema de curado está por debajo de aproximadamente el 20%, debido a su limitada solubilidad. A concentraciones más elevadas, Flexlink forma sedimentos en el sistema de curado.

25 En el documento US 4.837.295 se han divulgado los adhesivos de resina epoxi en los cuales las poliaminas de polioxialquileno se usan como agentes de curado y las mono- o bis-maleimidias insaturadas están presentes, pero además se menciona la N,N'-hexametilenodicitraconimida, para la cual no se busca protección. Las maleimidias del documento 4.837.295 sin embargo son compuestos tóxicos y carcinogénicos, y además tienen diferente reactividad en comparación con las biscitraconimidias de esta invención. Otra desventaja de estos compuestos es que no se pueden usar en aplicaciones a baja temperatura porque no son solubles y solidifican en los sistemas de curado a temperatura ambiente.

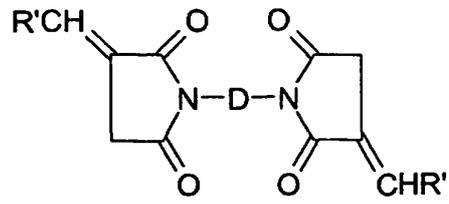
30 La síntesis de los compuestos de biscitraconimida que tienen ambos grupos de éter y sulfona se divulgan en el documento JP 01-186865, tal como ,4'-bis(3-citraconimidofenoxi)difenil sulfona. Estos compuestos no se usan en la presente invención.

Existe la necesidad de sistemas de curado libre de peróxido que tienen cantidades más elevadas de bismaleimidias que las posibles con Flexlink. Por lo tanto es un objetivo de la invención proporcionar estos sistemas, los cuales son menos tóxicos y carcinogénicos que los sistemas conocidos.

35 A dicho fin la invención se refiere a un sistema de curado libre de peróxido que comprende de 20 a 89,5% en peso de un compuesto que tiene al menos un grupo epóxido, de 0,5 a 30% en peso de una poliamina, y de 10 a 50% en peso de un agente de curado, donde el agente de co-curado tiene la fórmula I:

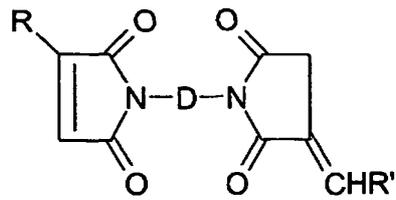


y/o sus fórmulas tautoméricas IIa y/o IIb:



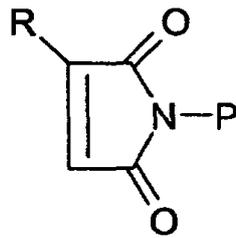
IIa

5



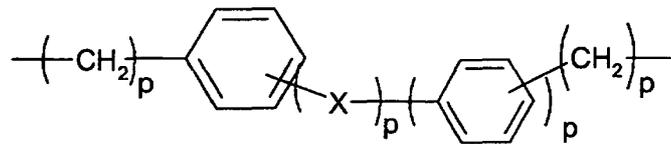
IIb

y/o fórmula III:



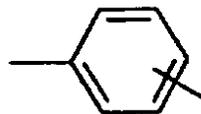
10

o un tautómero del mismo;
y/o un oligómeros del mismo; en la que
D representa $(CR_1R_2)_n$ ramificado o



15

en la que p es independientemente 0 o 1, y X es CH_2 , O, o SO_2 y



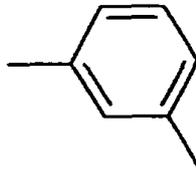
20

representa un grupo meta- o para-benceno;

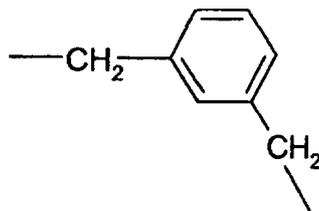
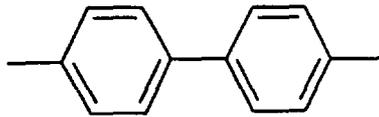
- 5 R es independientemente H o alquilo C₁-C₄; R₁ y R₂ son independientemente H o (CH₂)_mCH₃; en la que al menos un grupo R₂ es (CH₂)_mCH₃ y siendo m 0 a 2; siendo n 1 a 10; y n+m es 4 a 14; R'-CH₂ es R; y P representa fenilo, o alquilo C₁₋₆ no sustituido o sustituido con hidroxilo o alqueno C₂₋₆; con la condición de que al menos uno de R sea alquilo C₁₋₄.

Ejemplos de D son:

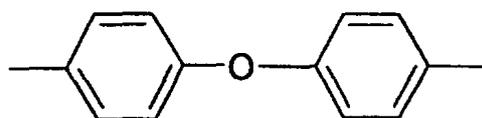
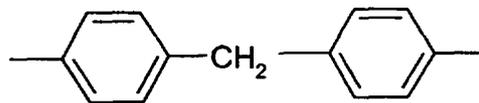
10

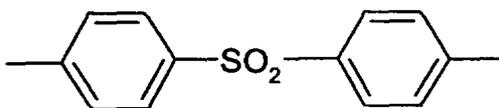


15



20





5

$-(\text{CH}_2)_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-(\text{CH}_2)_2-$; $-(\text{CH}_2)_4-\text{CH}(\text{CH}_3)-(\text{CH}_2)_4-$; $-\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{CH}_2-\text{CH}(\text{CH}_3)-\text{CH}_2-$

El agente de co-curado es una citraconimida, y uno de ambos restos de maleimida puede estar en su forma itaconimida tautomérica. Estas citraconimidas (y sus tautómeros) pueden producirse como se describe, pero además pueden formar un dímero, trímero, u oligómero superior. Donde se menciona el agente de co-curado citraconimida, además se incluyen sus tautómeros y oligómeros que se forman a partir de 2 hasta 10 moléculas de las fórmulas I, IIa, IIb y/o III. Las cantidades en peso se basan en el peso del sistema de curado libre de peróxido.

La invención además se refiere a un procedimiento para obtener un polímero curado calentando el sistema de curado, hasta una temperatura y un tiempo suficiente para co-curar el agente de co-curado y el compuesto que contiene el grupo epóxido. En este sistema la poliamina puede actuar como agente de entrecruzamiento como también como catalizador de curado, y opcionalmente se agregan otros ingredientes al sistema. Este otro ingrediente puede ser las monoaminas que no reaccionan como agente de entrecruzamiento, pero aun pueden ser efectivos catalizadores o co-catalizadores de curado.

El sistema de curado puede contener otros ingredientes tales como nanopartículas, por ejemplo nanotubos de carbono o hidrotalcita modificada, mejoradores de adhesión, los cuales son compuestos o composiciones conocidas que mejoran la adhesión del revestimiento a una superficie tales como los agentes de acoplamiento de silano, agentes de acoplamiento de titanio, agentes de acoplamiento de circonio, agentes de acoplamiento de aluminio, composiciones de organopolisiloxano, o los que se describen en el documento US 4.389.432, y otros aditivos tales como tintes, pigmentos, y similares.

Además puede ser útil para usar mezclas de biscitraconimida y/o bisitaconimida (I, IIa, IIb) y maleimida monomérica o itaconimida III. Las mezclas de estos monómeros y dímeros, por ejemplo 1 a 20% de monómero III en peso del agente de co-curado del sistema de curado, conducen a polímeros curados que tienen una red más flexible. Cantidades superiores, hasta 100% conducen a redes muy flexibles hasta extremadamente flexibles. Además la maleimida se puede usar para reemplazar la parte de I, IIa, IIb, y/o III. Esto además aumenta la resistencia térmica del revestimiento y además otorga únicas posibilidades de curado, por ej., fijación rápida a temperatura ambiente (predominantemente curado de citraconimida), opcionalmente seguido de pos-endurecimiento a temperatura elevada (predominantemente curado de maleimida).

El curado se lleva a cabo simplemente mezclando un sistema que contiene al menos una biscitraconimida de la fórmula (I), donde se requiera en forma de una mezcla con IIa y/o IIb, o (III), o un tautómero u oligómero del mismo, un epóxido, una poliamina, y opcionalmente otros ingredientes tales como monoamina, nanopartículas, y similares, opcionalmente calentando hasta una temperatura suficiente para co-curar la (bis)citraconimida y el compuesto que contiene epóxido y mantener la temperatura a ese nivel durante un tiempo suficiente para curar el material dentro de un producto polimérico. Un experto en la técnica que usa procedimientos de rutina puede determinar fácilmente esta temperatura y el tiempo. El curado se puede obtener a 20°C hasta 150°C. En general, el curado se obtendrá a una temperatura por debajo de 130°C, preferentemente a temperatura ambiente. El tiempo de curado variará dependiendo de la cantidad de poliamina y el tipo de material presente, y puede determinarse fácilmente mediante técnicas analíticas estándares.

Se pueden emplear catalizadores adicionales de curado que contienen nitrógeno para los sistemas de maleimida, tales como los catalizadores que contienen amina.

El sistema comprende un compuesto que contiene al menos un grupo epóxido, pero también se pueden usar los compuestos que tienen uno o más grupos epóxido en combinación con un grupo isocianato o uretano olefinicamente insaturado.

Ejemplos de agentes de co-curado se conocen a partir del documento US 5.198.515, pero ninguno de estos compuestos genéricamente mencionados se divulga como adecuado en los sistemas de curado del compuesto que contiene epoxi libre de peróxido de esta invención.

Flexlink® tiene el nombre químico 1,3-bis(citraconimidometileno)benceno y está disponible de Flexsys, Bruselas, Bélgica. La disminución del punto de fusión del Flexlink por isomerización (tautomerización) proporciona un Flexlink modificado y mejora la solubilidad de este producto en una formulación estable para las aplicaciones de curado a temperatura ambiente. En lugar de que menos del 10 al 20% de Flexlink, más del 25% de este Flexlink modificado puede disolverse en los sistemas de curado 2K (dos componentes) modificados con epoxi a temperatura ambiente sin formar sedimentos en el almacenamiento. Entonces se obtiene un sistema 2K estable compatible a temperatura ambiente libre de solvente. Esto significa que esto es un prerrequisito para la obtención de concentraciones más

5 elevadas de Flexlink en una formulación estable para tautomerizar el Flexlink. Opcionalmente, también se puede añadir un solvente reactivo o no reactivo apropiado.

Una biscitraconimida particularmente adecuada tiene la fórmula I en la que D es un grupo C₆-alquileo, el cual es líquido a temperatura ambiente. Por esta razón esta molécula se puede usar aun como tal sin isomerización en concentraciones muy elevadas (>50%). La isomerización además aumentará la solubilidad. Estas citraconimidias alifáticas otorgan revestimientos transparentes y son estables en el color y resistentes a las condiciones externas como ser UV. Para obtener revestimientos transparentes a partir del Flexlink comercial, el grado estándar disponible debe ser recristalizado.

10 Se puede usar el Flexlink tautomerizado en combinación con los compuestos que tienen epóxidos reactivos, glicidil éteres, y glicidil ésteres tales como Epikote 827/828 y Epikote 1001 (disponible de Hexion Specialty Chemicals, Columbus, OH, EE.UU.) o Thioplast® EPS (fabricante Akzo Nobel, Holanda).

Los sistemas 2K disponibles en el comercio, convencionales basados en las resinas epoxi se pueden calentar como máximo a 160°C. A temperaturas más elevadas, estos sistemas de curado se descomponen. La adición del Flexlink modificado en estas formulaciones mejora la resistencia al calor y la estabilidad. Con las formulaciones de citraconimida modificada se pueden obtener resistencia a altas temperaturas de hasta 250°C, mientras que el curado se puede realizar a temperatura ambiente. El punto de fusión del Flexlink de citraconimida (tautomerizado) modificado (que tiene una relación de citraconimida: itaconimida de aproximadamente 45:55) es aproximadamente de 60 a 70°C. La citraconimida sin modificar que está disponible en el comercio como Flexlink® (que tiene una relación de citraconimida: itaconimida de aproximadamente 95:5) tiene un punto de fusión de aproximadamente 90°C. Preferentemente la citraconimida contiene 6 hasta 50% de uno o dos de los isómeros itacon tautoméricos.

25 Además de la resistencia al calor mejorada el revestimiento que se obtiene del presente sistema de curado muestra también una mejora en la resistencia química y el rayado y propiedades de auto reparación.

El sistema de curado además contiene una poliamina. Éstas actúan como aceleradores y/o como comonomeros. Las poliaminas adecuadas son compuestos que tienen al menos dos grupos amino primarios y/o secundarios, como también mezclas de estas poliaminas. Además se pueden usar los oligómeros que contienen amina y los polímeros, tales como Aradur® disponible en el comercio (ex. Huntsman, Salt Lake City, EE.UU.), y otras moléculas básicas que contienen nitrógeno. Los sistemas de curado de la presente invención permiten una elevada concentración del agente de co-curado, el cual debe ser al menos el 10% de la composición, pero fácilmente puede ser hasta el 50%. En la parte experimental se dan otros ejemplos de poliaminas.

35 Las citraconimidias de la invención otorgan revestimientos transparentes y son estables en el color y resistentes a las condiciones externas como ser UV. La adición de los agentes de co-curado en elevada concentración conduce a mejorar la resistencia al calor y a la estabilidad, por lo que esta mejora aumenta con cantidades más altas del agente de co-curado en el sistema.

Al añadir nano-partículas tal como la hidrotalcita modificada, se observó la formación del paisaje 3D auto-topográfico en varios sustratos. Esto puede ser atractivo para las aplicaciones decorativas. Además se mejoró la resistencia al rayado y al antideslizante. El espesor de la capa del revestimiento es variable dentro de 50 micrones hasta varios milímetros. Cuánto más gruesa la capa más se pronuncia el efecto estético obtenido.

Las composiciones de la invención se pueden aplicar sobre una variedad de superficies, entre las cuales figuran madera blanda y dura, madera artificial, tal como múltiplex y similar, vidrio, aluminio, acero inoxidable, hierro, plásticos del tipo PVC, policarbonato, poliésteres, poliamidas, polietileno y polipropileno, hormigón, piedra, superficies de látex, superficie de pintura convencional, fibras naturales y sintéticas del tipo poliamida alifática y aromática, poliéster, algodón, y similares.

Las aplicaciones para las nuevas composiciones de revestimiento son revestimientos transparentes, adhesivos, selladores, rellenos, y combinaciones de los mismos.

50 La invención además se describirá con referencia a los siguientes ejemplos que no se consideran limitantes del alcance de la invención.

Ejemplo 1

Procedimiento general para modificar Flexlink

Flexlink® (ex Flexsys, Bélgica) disponible en el comercio se mezcló con una base débil de N-fenil imidazol (o cualquier otra base débil) que se usa como catalizador (intervalo de concentración de 0,05 -5% m/m), preferentemente con 0,1-3,0% m/m, y más preferentemente con 0,5-1,0% m/m, se calentó en un horno durante aproximadamente 10 a 20 horas a aproximadamente 130°C o 3 a 4 horas a 140°C. Cuánto más altas fueron las temperaturas, se formaron cantidades más altas de homo (pre)polímero oligomerizado.

- 5 Como agente de curado se pueden usar varios tipos de aminas. Para tiempos de curado muy rápidos, se pueden usar pequeñas aminas del tipo etilendiamina (EDA), dietilendiamina (DETA), trietilentetramina (TETA), tetraetilenopentamina (TEPA), pentametilenohexamina (PEHA), y similares, y homólogos o derivados funcionalmente similares.

Ejemplo 2

10 Sistema 2K del sistema de curado rápido

Mezcla 1: 15 gramos de Flexlink tautomerizado se fundieron en un horno (70-90°C) y se mezclaron con 15 gramos de un agente de curado epoxi ((Epikote 827/828 o 1001) y se homogenizaron. Se añadieron 0,5 a 3 gramos opcionales de un agente de acoplamiento tal como trialcoxi glicidil silano a esta mezcla para mejorar la adhesión sobre superficies metálicas.

- 15 Mezcla 2: En otro vaso dosificador se prepararon 15 gramos de TEPA.

Ambas mezclas se mezclaron entre sí. Se produjo una reacción exotérmica (>100°C). Durante este período de calentamiento además una cierta cantidad de Flexlink se tautomerizó. Dentro de varios minutos este sistema de revestimiento se puede aplicar como un revestimiento de capa delgada, un relleno, una cubierta, o como adhesivo sobre una superficie del tipo madera, metal o similares. Estos sistemas 2K también se pueden pulverizar y mezclar en una boquilla para aplicaciones profesionales.

- 20 Si se requiere mayor elasticidad en el sistema de curado final, se pueden añadir 2 a 5 gramos de Thioplast® EPS, y/o se puede usar menos de epoxi (por ejemplo 13-10 gramos en lugar de 15 gramos).

Si se requiere un tiempo operativo largo, por ejemplo horas en lugar de minutos, se debe añadir más derivado de amina graso (tal como un homólogo Duomeen®; fabricante: Akzo Nobel) y menos EDA o un homólogo del mismo.

- 25 El agente de acoplamiento además se puede aplicar por separado primero activando la superficie metálica con soda cáustica (mediante un procedimiento de lavado) y de ahí en adelante desgrasar la superficie completa en presencia del agente de acoplamiento. En ese caso el agente de acoplamiento está presente específicamente para la adhesión del metal al revestimiento.

Ejemplo 3

30 Sistema 2K de curado lento

Mezcla 1: 15 gramos de Flexlink tautomerizado se fundieron en un horno (70-90°C), se mezclaron con 15 gramos de un agente de curado epoxi ((Epikote 827/828 o 1001) y se homogenizaron.

Se añadieron 0,5 a 3 gramos de un agente de acoplamiento a esta mezcla para mejorar la adhesión (tal como trialcoxi glicidil silano) sobre superficies metálicas.

- 35 Mezcla 2: En otro vaso dosificador se prepararon 15 gramos de coco propilenodiamina (Duomeen CD), u otros tipos de Duomeen (homólogos de propilenodiaminas monosustituidas). Ambas mezclas se mezclaron entre sí. Se produjo una leve reacción exotérmica, por lo que la temperatura aumentó hasta aproximadamente 30 a 50°C.

- 40 El tiempo operativo es al menos varias horas para aplicar este sistema de revestimiento en forma de un revestimiento de capa delgada sobre una superficie del tipo madera, metal, u otro material, como relleno, cubierta, o como adhesión. Después de 10 a 15 horas de secado a temperatura ambiente, el sistema se endureció. Estos sistemas 2K además se pueden pulverizar y mezclar en una boquilla para aplicaciones profesionales.

Si se requiere mayor elasticidad en el sistema de curado final, se pueden añadir 2 a 5 gramos de Thioplast EPS, y/o se puede usar menos de epoxi (por ejemplo 13-10 gramos en lugar de 15 gramos).

- 45 Si se requiere un tiempo operativo más corto, por ejemplo media hora en lugar de varias horas, por ejemplo se puede añadir TETA y menos del homólogo Duomeen.

El agente de acoplamiento además se puede aplicar por separado primero activando la superficie metálica con soda cáustica (mediante un procedimiento de lavado) y de ahí en adelante desgrasar la superficie completa en presencia del agente de acoplamiento. En ese caso el agente de acoplamiento está presente específicamente para la adhesión del metal al revestimiento.

- 50 Si son necesarias las propiedades de repeler agua (anticorrosión y similar) entonces se pueden usar poliaminas grasas y derivados. Se ensayaron una variedad de aminas y se obtuvieron buenos resultados con Duomeen®, tri-lineal y Tetrameen® ramificado (tripropilenotetraminas monosustituidas, fabricante Akzo Nobel).

Al aplicar combinaciones de diferentes aminas, tales como aminas cortas y aminas grasas, el tiempo de curado es sintonizable. Además se pueden usar jeffaminas (polioxialquilenoaminas), dendrímeros y/o poliamino amidas.

5 **Ejemplo 4**

Aplicación de la nano tecnología para la formación de un paisaje auto topográfico tridimensional

La composición del ejemplo 3 se usa como formulación básica.

10 En la mezcla1 (la parte imida/epoxi) se añadieron y mezclaron perfectamente, adicionalmente 0,1-10% m/m, preferentemente 0,5-5% m/m, y más preferentemente 1-4% m/m de hidrotalcita modificada F100. Se añadieron 4 gramos de HTC F100 a la mezcla 1.

Esta mezcla 1 se maduró durante al menos media hora para defoliarla antes de mezclarla con la mezcla 2.

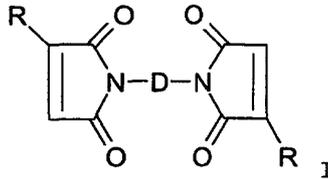
Esta mezcla con un tiempo operativo de varias horas se revistió sobre metal (aluminio o acero inoxidable), madera, concreto, u otra superficie.

15 Al asentar (secado) a temperatura ambiente durante 5 a 10 horas el paisaje auto topográfico se formó automáticamente. Después de 24 horas se obtuvo un revestimiento transparente tridimensional seco que tiene una apariencia de cocodrilo. Se pueden añadir opcionalmente 0,1-1% de un tinte o 20-30% de un pigmento y usarlo para proporcionar colores estéticos. El cuerpo del color es predominantemente concentrado sobre las islas y bastante menos sobre las calles. Esto significa que además se obtienen una distribución y separación del color estéticas.

5

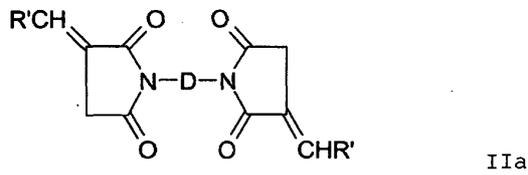
REIVINDICACIONES

1. Un sistema de curado libre de peróxido que comprende de 20 a 89,5% en peso de un compuesto que tiene al menos un grupo epóxido, de 0,5 a 30% en peso de una poliamina, y de 10 a 50% en peso de un agente de curado, en el que el agente de co-curado tiene la fórmula I:

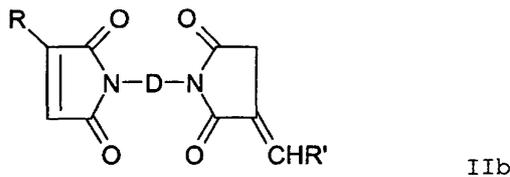


10

y/o sus fórmulas tautoméricas IIa y/o IIb:



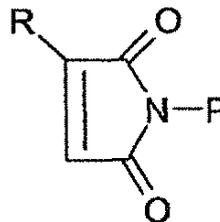
IIa



IIb

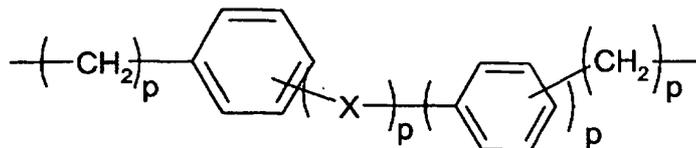
15

y/o fórmula III:



o un tautómero del mismo;

y/o un oligómero del mismo, en las que D representa $(CR_1R_2)_n$ o



20

en la que p es independientemente 0 o 1, y X es CH₂, O, o SO₂ y



5

representa un grupo meta- o para-benceno;

R es independientemente H o alquilo C₁-C₄; R₁ y R₂ son independientemente H o (CH₂)_mCH₃; en la que al menos un grupo R₂ es (CH₂)_mCH₃ y siendo m 0 a 2; siendo n 1 a 10; y n+m es 4 a 14; R'-CH₂ es R; y P representa fenilo, o alquilo C₁₋₆ no sustituido o sustituido con hidroxilo o alqueno C₂₋₆; con la condición de que al menos uno de R sea alquilo C₁₋₄.

10

2. El sistema de curado de la reivindicación 1 en el que R es metilo y R' es H.
3. El sistema de curado de la reivindicación 1 o 2 en el que 6-50% del agente de co-curado tiene las fórmulas IIa y/o IIb.
4. El sistema de curado de la reivindicación 1 o 2 que comprende 20-40% en peso de la composición del agente de co-curado.
5. El sistema de curado de una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 4 en el que el agente de co-curado tiene el resto D que representa un grupo C₆-alqueno ramificado, o en el que el agente de co-curado es 1,3-bis(citracoimidometil)benceno.
6. El sistema de curado de una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 5 que comprende además nanopartículas y/o un mejorador de la adhesión.
7. Un revestimiento que comprende un polímero entrecruzado que se obtiene a partir del sistema de curado de cualquiera de las reivindicaciones 1 a 6 en el que el compuesto que tiene al menos un grupo epóxido está entrecruzado por la poliamina.
8. Un procedimiento para el curado del sistema de curado de una cualquiera de las reivindicaciones 1 a 6, calentando el sistema de curado hasta una temperatura y durante un tiempo suficiente como para co-curar el agente de co-curado, el compuesto que tiene al menos un grupo epóxido, y la poliamina.
9. El procedimiento de acuerdo con la reivindicación 8 en el que el curado se realiza a una temperatura inferior a 130°C.
10. El procedimiento de acuerdo con la reivindicación 9 en el que el curado se realiza a temperatura ambiente.

15

20

25

30