

19



OFICINA ESPAÑOLA DE
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 615 642**

51 Int. Cl.:

C08G 77/20 (2006.01)

C08G 77/26 (2006.01)

C08G 77/388 (2006.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

86 Fecha de presentación y número de la solicitud internacional: **25.02.2013 PCT/EP2013/053668**

87 Fecha y número de publicación internacional: **24.10.2013 WO2013156187**

96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **25.02.2013 E 13705997 (8)**

97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **23.11.2016 EP 2838936**

54 Título: **Nuevos sistemas de siloxano (met)acrilamido-funcionales fáciles de preparar, reducidos en compuestos orgánicos volátiles (VOC) y no contaminantes, procedimiento para su preparación, así como su uso**

30 Prioridad:

20.04.2012 DE 102012206508

45 Fecha de publicación y mención en BOPI de la traducción de la patente:

07.06.2017

73 Titular/es:

**EVONIK DEGUSSA GMBH (100.0%)
Rellinghauser Straße 1-11
45128 Essen, DE**

72 Inventor/es:

**WASSMER, CHRISTIAN;
STANDKE, BURKHARD;
SCHLOSSER, THOMAS y
KRAUSE, REGINA**

74 Agente/Representante:

LEHMANN NOVO, María Isabel

ES 2 615 642 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

Nuevos sistemas de siloxano (met)acrilamido-funcionales fáciles de preparar, reducidos en compuestos orgánicos volátiles (VOC) y no contaminantes, procedimiento para su preparación, así como su uso

5 La invención se refiere a una composición y a un procedimiento para la preparación de la composición que comprende alcoxisilanos (met)acrilamido-funcionales, así como a su uso.

10 Para el empleo de fibras de vidrio en materiales compuestos de fibras de vidrio, las fibras de vidrio se tratan habitualmente en superficie con silanos funcionalizados. Habitualmente, esto sucede con ayuda de encoladores acuosos en los que se disuelve el silano organo-funcional. Dependiendo de la función química de los silanos, pueden influirse positivamente las propiedades deseadas tales como, por ejemplo, la resistencia de la fibra o también la capacidad de corte (especialmente para el refuerzo de fibras cortas). Los silanos organo-funcionales cooperan también en este caso esencialmente en la inducción de la adherencia de las fibras inorgánicas y de la resina orgánica. A pesar de que se pretende la aplicación por medio de encoladores acuosos, la preparación de los silanos organo-funcionales tiene lugar todavía en disolventes orgánicos.

15 Así, por ejemplo, se emplean silanos metacril-funcionalizados especiales tales como, por ejemplo, 3-metacriloxipropil-trimetoxisilano en materiales compuestos de fibras, a modo de ejemplo se pueden mencionar termoplastos y duroplastos con el fin de aumentar el comportamiento del material compuesto de fibras. También en otras aplicaciones tal como en el caso de la modificación de las cargas, en revestimientos o en adhesivos/selladores se emplean estos silanos funcionalizados como inductores de la adherencia entre la matriz orgánica e inorgánica.

20 Otra aplicación se encuentra en la modificación de propiedades especiales tales como, por ejemplo, el aumento de la capacidad de corte de fibras de vidrio. Algunos de los compuestos utilizados para ello son metacrilamidoalquilalcoxisilanos tales como $(RO)_xRSiNH(CO)C(CH_3)=CH_2$ o también complejos de cromo(III)-ácido metacrílico-cloro tales como, por ejemplo, Volan[®] de la razón social Du Pont (R = grupo alquilo C1-C6).

25 Con el fin de ofrecer los compuestos en encoladores acuosos, los mismos deben presentar una buena solubilidad en agua. Los compuestos de metacrilato basados en cromo muestran una buena solubilidad en agua. Sin embargo, tienen el inconveniente de contener metales pesados. El metacrilamidoalquilalcoxisilano conduce en un medio acuoso a la hidrólisis de los grupos alcoxi y a la liberación de los alcoholes correspondientes metanol (venenoso) y etanol y, con ello, a la formación de VOC (siglas inglesas de compuestos orgánicos volátiles).

30 En el documento WO 00/75148 A (en este caso, el Ejemplo Comparativo 2) se describe una síntesis partiendo de aminopropiltrimetoxisilano con un éster metílico del ácido metacrílico en presencia de óxido de dibutylestaño (DBTO). Esta reacción presenta una serie de inconvenientes, por una parte, para una reacción lo más completa posible, se emplea un exceso de éster del ácido metacrílico de 100%, el cual debe ser de nuevo separado por destilación. Con ello, el rendimiento espacio-tiempo es malo. Además, la reacción se lleva a cabo a temperaturas elevadas a 165 - 170°C, con lo cual se producen problemas en virtud de la tendencia a la polimerización del ácido acrílico. Para evitar la polimerización, debe emplearse un estabilizador. Como catalizadores para una reacción lo más completa posible se emplean compuestos orgánicos de estaño venenosos, peligrosos para el medio ambiente tales como, por ejemplo, óxido de dibutylestaño (DBTO). Otro inconveniente de este procedimiento es la compleja rectificación del producto de reacción con elevadas temperaturas del fondo y una presión absoluta lo más baja posible. Para ello, se ha de emplear otro estabilizador de la fase gaseosa con el fin de evitar una polimerización en la columna. En el fondo permanece un residuo con contenido en metales pesados que debe ser eliminado de forma separada. El producto de destilación, el producto Y-5997 de la razón social Momentive $(CH_3O)_x(C_2H_5O)_3-xSi(CH_2)_3NH(CO)C(CH_3)=CH_2$, adquirible en el comercio, es casi insoluble en agua.

45 En el documento US 3.249.461 se describe la síntesis de metacrilamidopropilmetoxisilano mediante la reacción de cloruro de metacrililo en disolventes con contenido en hidrocarburos aromáticos inertes, anhidros, con aminopropiltrimetoxisilano. Lo desventajoso de este proceso es la liberación de una cantidad equimolar de cloruro de hidrógeno que debe ser separado de forma compleja del proceso. Además, ecológicamente no se desea el uso de disolventes aromáticos. Además de ello, la elevada proporción de disolvente reduce el rendimiento espacio-tiempo. También es desventajoso el uso de dinitrobenceno como estabilizador.

50 Misión de la presente invención era proporcionar otros compuestos orgánicos de silicio (met)acrilamido-funcionales que liberen menos disolventes volátiles (VOC) durante su uso, así como su preparación y aplicación. Además, los compuestos orgánicos de silicio (met)acrilamido-funcionales deben presentar fuerzas de adherencia mejoradas, en

particular deben mejorar sus fuerzas de adherencia como adición o aditivo en pegamentos y selladores. Además debería desarrollarse un procedimiento exento de metales pesados que proporcione buenos rendimientos sin el uso de compuestos tóxicos tales como compuestos de cromo(III) o estaño. Al mismo tiempo, debería reducirse el empleo de estabilizadores, tal como es necesario en el estado de la técnica, en particular debería desarrollarse un procedimiento que se contente sin el uso de estabilizadores de fase gaseosa. Otra misión consistía en encontrar un procedimiento que permita una preparación como reacción en un solo recipiente. Otra misión consistía en reducir la carga de disolventes orgánicos durante la preparación, configurar la preparación de un modo compatible con el medio ambiente y, preferiblemente, también reducir fuertemente la liberación de VOC en el caso de la aplicación mediante hidrólisis de las funciones alcoxi. Además, los compuestos orgánicos de silicio (met)acrilamido-funcionales deben ser estables al almacenamiento. Además, los sectores de aplicación de los compuestos orgánicos de silicio (met)acrilamido-funcionales deben ampliar los sectores de aplicación y encontrar nuevos usos.

Los problemas se resolvieron con una composición según las reivindicaciones 1 y 15, así como con el procedimiento según la reivindicación 4, una formulación según la reivindicación 16 y el uso según la reivindicación 17, explicándose formas de realización preferidas en las reivindicaciones dependientes y en la memoria descriptiva.

Asimismo, el problema se resolvió mediante una reacción acuosa preestablecida de aminoalquilalcoxisilanos, preferiblemente de silanos di- y/o tri-aminoalquil-funcionales en presencia de la humedad o de medios acuosos (de manera sinónima: en presencia de agua), de manera particularmente preferida mediante hidrólisis y preferiblemente condensación con N-(2-aminoetil)-3-aminopropiltrialcoxisilano o 3-aminopropiltrialcoxisilano para formar oligómeros, en lo que sigue denominados siloxanos, y reacción con un anhídrido del ácido acrílico, en particular anhídrido del ácido (met)acrílico en medio acuoso. Los siloxanos acrilamido-funcionales obtenidos, de manera particularmente preferida alcoxisiloxanos (met)acrilamidoalquil-funcionales, se preparan preferiblemente exentos de diluyentes eventualmente utilizados o exentos de alcohol de hidrólisis formado. De acuerdo con formas de realización alternativas, los alcoxisiloxanos oligómeros acrilamido-funcionalizados, obtenidos de esta manera, son hidrolizados al menos en parte, de manera particularmente preferida son hidrolizados por completo y utilizados. Opcionalmente, después de una hidrólisis adicional y antes del uso pueden ajustarse de modo que estén esencialmente exentos de alcohol (de hidrólisis).

Una gran ventaja de la invención es que los siloxanos acrilamido-funcionales, obtenidos de esta manera, pueden utilizarse preferiblemente sin una purificación ulterior como producto del fondo.

Con ello, con el procedimiento de acuerdo con la invención y las composiciones de acuerdo con la invención que contienen siloxanos acrilamido-funcionales, en particular alcoxisiloxanos (met)acrilamidoalquil-funcionales pueden ofrecerse productos particularmente rentables y ecológicos.

Objeto de la invención es una composición que comprende siloxanos acrilamido-funcionales que se derivan de

- a) una reacción de un componente A, que es un compuesto de silicio aminoalquil- funcionalizado, elegido de
- (i) un alcoxisilano aminoalquil-funcional de la fórmula I o una mezcla de alcoxisilanos aminoalquil-funcionales de la fórmula I, en cada caso en presencia de una cantidad definida de agua,
- o
- (ii) un producto de hidrólisis o de condensación de al menos un alcoxisilano aminoalquil-funcional de la fórmula I,
- o
- (iii) una mezcla que comprende al menos un alcoxisilano aminoalquil-funcional de la fórmula I y un producto de hidrólisis y/o de condensación de al menos un alcoxisilano aminoalquil-funcional de la fórmula I con un componente B que es un anhídrido del ácido acrílico y, opcionalmente, en presencia de un diluyente,
- y opcionalmente
- b) separación de al menos una parte del diluyente y/o del alcohol de hidrólisis y, opcionalmente, al menos una parte del agua que se empleó en (i) y, opcionalmente, en (ii) o (iii), preferiblemente también se prepararon (ii) y (iii) mediante reacción con una cantidad definida de agua.

Se comprobó que en el caso de la reacción directa de aminosilanos con anhídrido del ácido acrílico aparecen los productos de transesterificación indeseados tal como se representa en el Ejemplo Comparativo 1, dado que el ácido metacrílico liberado reacciona bajo transesterificación con los grupos alcoxi del aminosilano.

Los autores de la invención han conseguido, de manera sorprendente, evitar estas reacciones de transesterificación indeseadas que se manifiestan en el caso de una reacción de aminosilanos con anhídrido del ácido (met)acrílico. La

transesterificación indeseada puede evitarse cuando antes de la reacción con el anhídrido del ácido (met)acrílico, los aminosilanos, mediante hidrólisis y opcional condensación, se oligomerizan para formar siloxanos, en particular siloxanos aminoalquil- y alcoxi-funcionalizados, consiguiéndose sorprendentemente la subsiguiente formación de acrilamida entre los compuestos de silicio aminoalquil-funcionales y el anhídrido del ácido (met)acrílico. Particularmente sorprendente era que no se pudieron detectar productos de transesterificación, es decir, alcóxicarboxisilanos y tampoco alcóxicarboxisiloxanos.

Preferiblemente, para la hidrólisis de los silanos aminoalquil-funcionales, en particular del componente A de acuerdo con (i) o para la preparación del componente A de acuerdo con (ii) o (iii) se emplea una cantidad definida de agua que preferiblemente se encuentra entre mayor que o igual a 0,1 moles a 4,5 moles de agua/mol de átomos de silicio, incluidos los valores límite, en particular entre 0,1 y 2,0, de preferencia entre mayor que o igual a 0,3 moles a 1,5 moles de agua/mol de átomos de silicio de los compuestos de silicio aminoalquil-funcionales, particularmente preferida es una cantidad de agua entre mayor que o igual a 0,5 hasta 1,0 moles de agua/mol de átomos de silicio. La temperatura del fondo puede controlarse durante la reacción con el anhídrido del ácido (met)acrílico mediante la velocidad de adición por goteo de anhídrido del ácido (met)acrílico. Mediante un enfriamiento del matraz de reacción puede alcanzarse una adición más rápida de ácido (met)acrílico. La temperatura del fondo máxima posible depende del sistema de estabilizadores en la mezcla de reacción y del punto de ebullición de los componentes empleados.

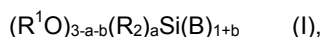
El contenido en principio activo de las composiciones de acuerdo con la invención asciende preferiblemente hasta 100% en peso y, por lo tanto, está exenta de agua y disolventes o bien exenta de diluyentes. Composiciones asimismo preferidas pueden presentar como principios activos un determinado contenido de siloxanos. Asimismo preferidas pueden ser composiciones que presentan un pequeño contenido de diluyente de hasta 5% en peso, pero se prefieren contenidos de diluyentes, en particular contenidos de alcoholes, entre mayor que o igual a 0,0001 y 5% en peso, preferiblemente entre mayor que o igual a 0,0001 y 1,5% en peso, de manera particularmente preferida entre mayor que o igual a 0,0001 a 1% en peso.

En una aplicación posterior, el contenido en principio activo se puede ajustar de manera arbitraria añadiendo otros aditivos tales como disolventes, coadyuvantes, etc. o la composición se presenta como aditivo en una formulación, por ejemplo en una formulación de sellador. Por lo tanto, el contenido en principio activo para la aplicación puede regularse de manera arbitraria, en particular entre 0,0001 y 99,99% en peso de manera ideal entre 0,01 y 10% en peso, entre 10 y 40% en peso, alternativamente entre 40 y 99,99% en peso.

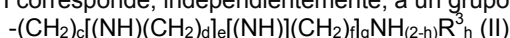
Composiciones particularmente preferidas comprenden siloxanos acrilamidoalquil-funcionales que se presentan esencialmente como alcóxisiloxanos y que se derivan de una reacción a) de un componente A, un compuesto de silicio aminoalquil-funcionalizado, que se elige de (ii) un producto de hidrólisis y/o de condensación de al menos un alcóxisilano aminoalquil-funcional, o (iii) una mezcla que comprende al menos un alcóxisilano aminoalquil-funcional y un producto de hidrólisis y/o de condensación de al menos un alcóxisilano aminoalquil-funcional, b) con un componente B que es un anhídrido del ácido acrílico, en particular de la fórmula IV, preferiblemente en un diluyente, preferiblemente un diluyente prótico, orgánico y, opcionalmente, c) separación de al menos una parte del diluyente y/o alcohol de hidrólisis y, opcionalmente, al menos una parte del agua, pudiendo haber sido empleado el agua junto con el componente A y/o haberse formado durante la reacción. Preferiblemente, el diluyente, el alcohol de hidrólisis y/o el agua se separan, esencialmente por completo y se obtiene la composición de acuerdo con la invención que comprende siloxanos acrilamido-funcionales.

Para una mejor solubilidad pueden elegirse mezclas de aminosilanos con un grupo amino primario y aminosilanos con grupos amino primarios y secundarios para la preparación del siloxano (met)acrilamidoalquil-funcional. Para la solubilidad claramente mejorada pretendida se eligen preferiblemente aminosilanos con un grupo amino primario y al menos un grupo amino secundario, estos silanos al menos diamino-funcionales conducen a una solubilidad mejorada del siloxano (met)acrilamidoalquil-funcional correspondiente. Otra ventaja del grupo amino secundario adicional es que neutraliza el ácido (met)acrílico liberado durante la reacción bajo la formación de una sal correspondiente (aminohidrometacrilato).

Los alcóxisilanos aminoalquil-funcionales corresponden a la fórmula I



en donde el grupo B de la fórmula I corresponde, independientemente, a un grupo de la fórmula II



en la fórmula I con R¹, independientemente, un grupo alquilo con 1 a 8 átomos de C, en particular con 1, 2, 3 ó 4 átomos de C, lineal, ramificado o cíclico, preferiblemente metilo, etilo o propilo, y R² independientemente, un grupo alquilo con 1 a 8 átomos de C, lineal, ramificado o cíclico, en particular metilo, etilo, propilo, n-butilo, iso-butilo, terc.-butil, pentilo, hexilo, heptilo u octilo, y en la fórmula II con R³, independientemente, un grupo alquilo, arilo o alquilarilo con 1 a 8 átomos de C, lineal, ramificado o cíclico en la fórmula II, en particular, metilo, etilo, butilo o bencilo, siendo de manera particularmente preferida h igual a 0, y en la fórmula I a, independientemente, es igual a 0 ó 1, b, independientemente, es igual a 0, 1, 2, preferiblemente b es igual a 0, y en la fórmula II, c, independientemente, se elige de 1, 2, 3, 4, 5 y 6, d, independientemente, se elige de 1, 2, 3, 4, 5 y 6, e, independientemente, se elige de 0, 1, 2, 3, 4, 5 y 6, f, independientemente, se elige de 1, 2, 3, 4, 5 y 6, g, independientemente, se elige de 0, 1, 2, 3, 4, 5 y 6, y h, independientemente, es 0 ó 1, alternativamente, de manera preferida, e = g = 0 ó 1 y d = f = 2 ó 3 y h = 0 con c = 3 y b = 0 y a = 0, combinaciones particularmente preferidas son con R¹ igual a metilo o etilo, a = 0 y b = 0 con c = 3 y g, e y h en cada caso igual a 0; alternativamente, asimismo de manera preferida, a = 0, b = 0, c = 3, e = 1, d = 1, 2 ó 3, preferiblemente d = 2 y g = 0, h = 0, para silanos diamino-funcionales, o el grupo B corresponde a la fórmula III



con j = 1, 2 ó 3 y p = 0, 1 ó 2, preferiblemente p se elige de 1 y 2, convenientemente p puede ser también 0.

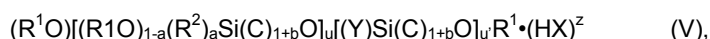
En general, se prefiere que el alcoxisilano aminoalquil-funcional corresponda a un alcoxisilano de la fórmula I diaminoalquil-funcional o triaminoalquil-funcional. Asimismo, particularmente preferidas son mezclas de los silanos antes mencionados tales como aminosilano con diaminosilano o también aminosilano con triaminosilano o diaminosilano con triaminosilano, así como también mezclas con tres o más de los distintos aminosilanos de la fórmula I.

Como anhídrido del ácido acrílico se emplean preferiblemente ácido (met)acrílico y anhídrido del ácido acrílico (no sustituido); de manera particularmente preferida, conforme a la fórmula IV



en donde R⁴, independientemente, es un átomo de hidrógeno o un grupo metilo y R⁵, independientemente, es un átomo de hidrógeno o un grupo metilo, preferiblemente R⁵ es un átomo de hidrógeno. Se prefieren (CH₂=C(CH₃)CO)₂O y (CH₂=CHCO)₂O.

Las composiciones de acuerdo con la invención, que se pueden obtener a partir de la reacción de (i), (ii) y/o (iii) con el componente B, pueden representarse de manera idealizada conforme a la siguiente fórmula general V idealizada para al menos un siloxano acrilamido-funcional, pudiendo presentar los siloxanos acrilamido-funcionales preferiblemente estructuras lineales, cíclicas y reticuladas



en donde en la fórmula general V

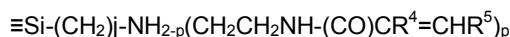
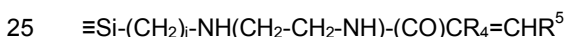
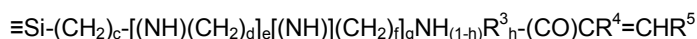
- C corresponde a un grupo acrilamido y
- Y corresponde a OR¹ o en estructuras ramificadas y/o ramificadas en el espacio, independientemente uno de otro, OR¹ u O_{1/2},
- en donde R¹, independientemente, corresponde a un grupo alquilo con 1 a 8 átomos de C, en particular con 1, 2, 3 ó 4 átomos de C, lineal, ramificado o cíclico, u, opcionalmente, al menos en parte, hidrógeno, preferiblemente R¹ es mayor que o igual a 10% en moles un grupo alquilo, preferiblemente mayor que o igual a 50% un grupo alquilo, de manera particularmente preferida mayor que o igual a 90% en moles, siendo preferido mayor que o igual a 95% en moles, 98% en moles y de manera particularmente preferida mayor que o igual a 99% en moles y hasta 100% en moles de hidrógeno, y R² corresponde a un grupo alquilo con 1 a 8 átomos de C lineal, ramificado o cíclico, en particular de acuerdo con la definición de la fórmula (I),
- HX representa un ácido, siendo X un radical ácido inorgánico u orgánico,
- con en cada caso independientemente, a igual a 0 ó 1, en cada caso independientemente b igual a 0, 1 o, adicionalmente, de manera independiente, opcionalmente 2, preferiblemente b es igual a 0, con en cada caso independientemente un número entero u mayor que o igual a 2, u' mayor que o igual a 0 y z mayor que o igual a 0, en particular, z es igual a 0 o mayor que o igual a 1, preferiblemente z puede ser menor que o igual al número de átomos de nitrógeno secundarios del

aminosilano empleado, igualmente de manera preferida, z puede ser mayor que el número de los átomos de nitrógeno secundarios y $(u + u') \geq 2$,
 - en donde la composición está esencialmente exenta de diluyentes, en particular disolventes orgánicos, de manera particularmente preferida de disolventes orgánicos próticos.

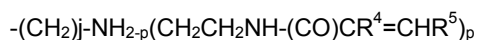
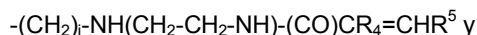
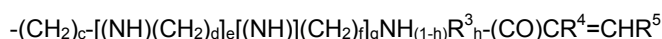
- 5 Preferiblemente u se elige, por término medio, de un número entero de 2 a 500, en particular de 2 a 150, preferiblemente de 2 a 80, incluidos todos los valores numéricos de números enteros situados entremedias tales como 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 10, 15, 20, 25, 30, 35, 40, 45, 50, 55, 60, 65, 70, 75 y 80, así como en cada caso con una amplitud de oscilación de hasta más/menos 5, preferiblemente u oscila entre mayor que o igual a 20 hasta 80, de manera particularmente preferida entre 20 y 60, de preferencia entre mayor que o igual a 20 hasta 40. En donde,
 10 independientemente de ello, u', por término medio, se puede elegir de un número entero entre 0 y 200, incluidos los valores límites, en particular entre 0 y 100, preferiblemente de 0, 1, 2, 3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 10, 15, 20, 30, 35, 40, 45, 50, 55, 60, 65, 70, 75, 80 y 85, así como en cada caso con una amplitud de oscilación de hasta más/menos 5, preferiblemente u' oscila entre mayor que o igual a 5 a 35, preferiblemente u' es 5 a 30. De manera particularmente preferida, la suma de $(u + u')$ juntos se encuentra, por término medio, entre mayor que o igual a 5 a 100, en particular entre mayor que o igual a 20 a 75, tal como en torno a 25 a 50.

Como HX entra en consideración ácido acrílico o también cualquier otro ácido orgánico o inorgánico adecuado para la posterior aplicación. En general, el ácido acrílico presente en la composición puede ser separado en caso necesario. Preferiblemente, puede permanecer en la composición unido a través de enlaces de puentes de hidrógeno o en forma de sal y cooperar como comonomero en la aplicación posterior para la reticulación del producto.

Grupos acrilamido representados a modo de ejemplo (grupo C) en los átomos de silicio de los siloxanos, en particular de los siloxanos alcoxi-funcionales, se representan a modo de ejemplo en lo que sigue en cada caso en un átomo de silicio:



Básicamente, por un grupo acrilamido (grupo C), en particular un grupo acrilamido de los siloxanos, se han de entender todas las reacciones imaginables de los grupos aminoalquil-funcionales mencionados con anhídrido del ácido (met)acrílico o bien $\text{CHR}^5=\text{CR}^4(\text{CO})-$, pero en particular las de una reacción de un grupo B amino-funcional de acuerdo con las fórmulas II y/o III preferidas con un anhídrido del ácido acrílico de la fórmula IV. Por consiguiente, un grupo C puede elegirse de



35 Asimismo objeto de la invención es un procedimiento para la preparación de una composición que comprende siloxanos acrilamido-funcionales y/o sillanos acrilamido-funcionales, en particular siloxanos acrilamidoalcoxi-funcionales, así como composiciones obtenibles según este procedimiento, en el que

- el procedimiento se lleva a cabo en al menos una etapa en presencia de agua, preferiblemente de una cantidad definida de agua, y
 40 - un componente A, un compuesto de silicio aminoalquil-funcional, se elige de:
 (i) al menos un alcoxisilano aminoalquil-funcional de la fórmula I o una mezcla de alcoxisilanos aminoalquil-funcionales de la fórmula I, definidos como precedentemente,
 o
 (ii) un producto de hidrólisis o de condensación de al menos un alcoxisilano aminoalquil-funcional de la fórmula I,
 45 o
 (iii) una mezcla que comprende al menos un alcoxisilano aminoalquil-funcional de la fórmula (I) y un producto de hidrólisis y/o de condensación de al menos un alcoxisilano aminoalquil-funcional de la fórmula I,

- se hace reaccionar con un componente B, un anhídrido del ácido acrílico de la fórmula IV, definido como precedentemente, en particular anhídrido del ácido (met)acrílico o el anhídrido del ácido acrílico (no sustituido), preferiblemente en un diluyente, de manera particularmente preferida en un diluyente prótico orgánico tal como un alcohol y, opcionalmente,
- 5 - el diluyente y el alcohol de hidrólisis formado en la reacción se separan al menos en parte.

Según el procedimiento de acuerdo con la invención se obtienen preferiblemente composiciones que contienen esencialmente siloxanos acrilamido-funcionales o composiciones de los siloxanos acrilamido-funcionales en mezcla con silanos acrilamido-funcionales.

- 10 De acuerdo con una forma de realización conforme a la invención, la reacción se lleva a cabo en presencia de un diluyente, siendo preferido un diluyente orgánico prótico tal como alcohol.

En este caso se prefiere que la cantidad definida de agua se ajuste en una etapa del procedimiento antes de la etapa de la reacción con el componente B, en particular para la preparación del componente A (ii) o (iii) a partir de (i).

- 15 De acuerdo con la invención, no es necesario continuar purificando las composiciones obtenidas, en particular no es necesario un complejo tratamiento por destilación de los siloxanos acrilamido-funcionales, ya que preferiblemente pueden utilizarse directamente los productos del fondo. Los productos del fondo de acuerdo con la invención no requieren una purificación adicional, dado que no están contenidos catalizadores perturbadores o estabilizadores perturbadores en los productos del fondo. Los estabilizadores empleados en el procedimiento no perturban la aplicación ulterior.

- 20 Una ventaja particular del procedimiento de acuerdo con la invención es que no se han de utilizar estabilizadores de fase gaseosa, tal como es necesario en el estado de la técnica, dado que la realización del procedimiento de acuerdo con la invención permite como composición utilizar directamente los productos del fondo. Puede suprimirse una compleja rectificación de los productos tal como en el estado de la técnica. Por consiguiente, las composiciones de acuerdo con la invención se pueden producir de manera mucho más rentable y con sustancias de partida mucho más compatibles con el medio ambiente que lo que se describe en el estado de la técnica.
- 25

- Además, las composiciones de acuerdo con la invención liberaron durante su hidrólisis claramente menos disolventes volátiles (VOC) tal como alcohol de hidrólisis que los silanos conocidos del estado de la técnica. Preferiblemente, en el caso de una hidrólisis de las composiciones de acuerdo con la invención entre mayor que o igual a 20 a 80% en moles, en particular 20 a 60% en moles por término medio por cada mol de átomos de silicio se forma menos alcohol de hidrólisis que en el caso de los silanos monómeros acrilamido-funcionales del estado de la técnica, en particular entre mayor que o igual a 28 a 50% en moles por término medio por cada mol de átomo de silicio, de manera particularmente preferida entre mayor que o igual a 50 a 80% en moles. En porcentaje en peso se libera hasta 20 a 80% en peso, preferiblemente 30 a 80% en peso (incluidos los valores límites) en relación con la composición total, de manera particularmente preferida hasta 60% en peso y preferiblemente en general por encima de 40% en peso, de manera particularmente preferida por encima de 50% en peso menos de alcohol de hidrólisis de los (met)acrilamido-siloxanos en comparación con el (met)acrilamido-trietoxisilano convencional.
- 30
- 35

- De acuerdo con formas de realización preferidas, el procedimiento se lleva a cabo con un compuesto de silicio aminoalquil-funcional elegido de un alcoxisilano aminoalquil-funcional de la fórmula I, o un producto de hidrólisis o de condensación de al menos un alcoxisilano aminoalquil-funcional de la fórmula I, o de una mezcla que comprende al menos un alcoxisilano aminoalquil-funcional de la fórmula I y un producto de hidrólisis y/o de condensación de al menos un alcoxisilano aminoalquil-funcional de la fórmula I, teniendo lugar la hidrólisis y/o condensación del alcoxisilano aminoalquil-funcional de la fórmula I en presencia de una cantidad definida de agua, preferiblemente la cantidad definida de agua corresponde en particular a 0,1 hasta 4,5 moles por cada mol de átomos de silicio, en particular de los silanos de la fórmula I, preferiblemente a 0,5 hasta 2,5 moles o alternativamente, a 0,1 hasta 2,0 moles de agua por cada mol de átomos de silicio del compuesto de silicio aminoalquil-funcional empleado en el procedimiento, se prefieren de 0,3 a 1,5 moles de agua por cada mol de átomos de silicio del compuesto de silicio antes mencionado, particularmente se prefieren de 0,5 a 1,0 moles de agua por cada mol de átomos de silicio del compuesto de silicio, preferiblemente la cantidad definida de agua se ajusta en una etapa del procedimiento antes de la etapa de la reacción con el componente B y preferiblemente se consume, al menos en parte, por la hidrólisis.
- 40
- 45

- 50 De acuerdo con formas de realización preferidas, el procedimiento se lleva a cabo preferiblemente con un alcoxisilano aminoalquil-funcional de la fórmula I o un producto de hidrólisis o de condensación de al menos un alcoxisilano aminoalquil-funcional de la fórmula I o una mezcla que comprende al menos un alcoxisilano aminoalquil-

funcional de la fórmula I y un producto de hidrólisis y/o de condensación de al menos alcoxisilano aminoalquil-funcional de la fórmula I,

- a) con R^1 , independientemente, igual a metilo o etilo, y con $a = 0$ y $b = 0$ con $c = 1, 2$ ó 3 y con el grupo B conforme a la fórmula II con $g = 0$ y $e = 1$ y $h = 0$, $d = 1, 2$ ó 3 , preferiblemente $d = 2$, o
- 5 b) con R^1 , independientemente, igual a metilo o etilo, y con $a = 0$ y $b = 0$ con $c = 3$ y con el grupo B conforme a la fórmula II con g, e y h en cada caso igual a 0 o, conforme a una alternativa, con $a = 0$, $b = 0$, $c = 3$ y con el grupo B conforme a la fórmula II con $e = 1$, $d = 1, 2, 3$, preferiblemente $d = 2$, y con $g = 0$, $h = 0$ o con el grupo B conforme a la fórmula II con $e = g = 0$ ó 1 , y $d = f = 2$ ó 3 y $h = 0$ con $c = 3$ o con el grupo B conforme a la fórmula III con $j = 3$ y p igual a 1 ó 2 , o
- 10 c) con R^1 , independientemente, igual a metilo o etilo, y con $a = 0$ y $b = 0$ con $c = 2$ y con el grupo B conforme a la fórmula II con g, e y h en cada caso igual a 0 o, conforme a una alternativa, con $a = 0$, $b = 0$, $c = 3$ y con el grupo B conforme a la fórmula II con $e = 1$, $d = 1, 2, 3$, preferiblemente $d = 2$, y con $g = 0$, $h = 0$ o con el grupo B conforme a la fórmula II con $e = g = 0$ ó 1 , y $d = f = 2$ ó 3 y $h = 0$ con $c = 2$ o con el grupo B conforme a la fórmula III con $j = 3$ y p igual a 1 ó 2 , o
- 15 d) con R^1 , independientemente, igual a metilo o etilo, y con $a = 0$ y $b = 0$ con $c = 1$ y con el grupo B conforme a la fórmula II con g, e y h en cada caso igual a 0 o, conforme a una alternativa, con $a = 0$, $b = 0$, $c = 3$ y con el grupo B conforme a la fórmula II con $e = 1$, $d = 1, 2, 3$, preferiblemente $d = 2$, y con $g = 0$, $h = 0$ o con el grupo B conforme a la fórmula II con $e = g = 0$ ó 1 , y $d = f = 2$ ó 3 y $h = 0$ con $c = 1$ o con el grupo B conforme a la fórmula III con $j = 3$ y p igual a 1 ó 2 .

20 Asimismo, se prefiere que el procedimiento se lleve a cabo preferiblemente con un alcoxisilano aminoalquil-funcional o un producto de hidrólisis o de condensación de al menos alcoxisilano aminoalquil-funcional o una mezcla que comprende al menos un alcoxisilano aminoalquil-funcional y un producto de hidrólisis y/o de condensación de al menos un alcoxisilano aminoalquil-funcional elegido de los siguientes alcoxisilanos aminoalquil-funcionales de la fórmula general I:

25 3-aminopropiltrimetoxisilano, 3-aminopropiltriethoxisilano, 3-aminopropilmetildimetoxisilano, 3-aminopropilmetildietoxisilano, 1-aminometiltrimetoxisilano, 1-aminometiltriethoxisilano, 2-aminoetiltrimetoxisilano, 2-aminoetiltriethoxisilano, 3-aminoisobutiltrimetoxisilano, 3-aminoisobutiltriethoxisilano, N-n-butil-3-aminopropiltriethoxisilano, N-n-butil-3-aminopropilmetildietoxisilano, N-n-butil-3-aminopropiltrimetoxisilano, N-n-butil-3-aminopropilmetildimetoxisilano, N-n-butil-1-amino-metiltriethoxisilano, N-n-butil-1-aminometilmetildimetoxisilano, N-n-butil-1-aminometiltrimetoxisilano, N-n-butil-1-aminometilmetiltriethoxisilano, bencil-3-aminopropiltrimetoxisilano, bencil-3-aminopropiltriethoxisilano, bencil-2-aminoetil-3-aminopropiltrimetoxisilano, bencil-2-aminoetil-3-aminopropiltriethoxisilano, diaminoetilen-3-propiltrimetoxisilano, diaminoetilen-3-propiltriethoxisilano, triaminodietilen-3-propiltrimetoxisilano, triaminodietilen-3-propiltriethoxisilano, (2-aminoetilamino)-etiltrimetoxisilano, (2-aminoetilamino)-etiltriethoxisilano, (1-aminoetilamino)-metiltrimetoxisilano y (1-aminoetilamino)-metiltriethoxisilano, siendo particularmente preferidos di- y/o tri-aminoalcoxisilanos. Son particularmente preferidos diaminoetilen-3-propiltrimetoxisilano, diaminoetilen-3-propiltriethoxisilano, triaminodietilen-3-propiltrimetoxisilano, triaminodietilen-3-propiltriethoxisilano.

Además, se prefiere particularmente que el procedimiento se lleve a cabo en al menos una etapa en presencia de una cantidad definida de agua, en particular, como sigue, se hace reaccionar el componente A, un compuesto de silicio aminoalquil-funcional que se elige de:

- (i) al menos un alcoxisilano aminoalquil-funcional o una mezcla de alcoxisilanos aminoalquil-funcionales de la fórmula I, definidos como precedentemente, se hace reaccionar con una cantidad definida de agua, o
- (ii) un producto de hidrólisis o de condensación de al menos un alcoxisilano aminoalquil-funcional de la fórmula I, que se prepara a partir del alcoxisilano aminoalquil-funcional en presencia de una cantidad definida de agua, o
- 45 (iii) una mezcla que comprende al menos un alcoxisilano aminoalquil-funcional de la fórmula I y un producto de hidrólisis y/o de condensación de al menos un alcoxisilano aminoalquil-funcional de la fórmula I, que se preparan a partir del alcoxisilano aminoalquil-funcional en presencia de una cantidad definida de agua,

y subsiguientemente, con un componente B, un anhídrido del ácido acrílico de la fórmula IV, definido como precedentemente, en particular anhídrido del ácido metacrílico o el anhídrido del ácido acrílico (no sustituido), preferiblemente la reacción tiene lugar en un diluyente, preferiblemente en un diluyente orgánico prático y, opcionalmente, el diluyente y/o el alcohol de hidrólisis formado en la reacción se separan al menos en parte.

De acuerdo con variantes preferidas del procedimiento, se prefieren procedimientos en los que

- en una etapa (1a) que comprende las siguientes etapas parciales, el componente A, un compuesto de silicio aminoalquil-funcional conforme a (i), que es al menos un alcoxisilano aminoalquil-funcional de la fórmula I

como se ha definido precedentemente, opcionalmente en mezcla con un diluyente, en particular diluyentes próticos orgánicos, preferiblemente un alcohol, de manera particularmente preferida metanol, etanol o propanol,

- 5 - se mezcla con una cantidad definida de agua, preferiblemente el agua se aporta dosificadamente de forma continua o discontinua, por ejemplo se aportan dosificadamente 0,5 a 4,5 moles de agua por cada mol de átomos de silicio, en particular 0,5 a 2,5 moles, preferiblemente 0,5 a 1,5 moles, de manera particularmente preferida 0,5 a 1,0 moles de agua por cada mol de átomos de silicio del compuesto de silicio; preferiblemente dentro de un espacio de tiempo definido, y preferiblemente con agitación, manteniéndose preferiblemente en el intervalo de temperaturas de 0 a 75°C, en particular 30 a 75°C, de manera preferida entre 40 y 65°C, de manera particularmente preferida entre 50 y 65°C, entre 10 minutos y 10 horas, preferiblemente entre 10 minutos y 5 horas, de manera particularmente preferida entre 10 minutos y 2,5 horas, y
- 10 - opcionalmente, el alcohol de la hidrólisis y/o el diluyente añadido, preferiblemente el alcohol añadido, se separa al menos en parte y
- 15 - a la mezcla resultante se añade el anhídrido de ácido acrílico de la fórmula IV, en particular a una temperatura de la mezcla entre 0 y 30°C, preferiblemente, el anhídrido del ácido acrílico de la fórmula IV se aporta dosificadamente de manera que la temperatura de la mezcla no ascienda por encima de 75°C, y
- opcionalmente, a la mezcla se añade un estabilizador, y
- 20 - en una etapa (II), opcionalmente el diluyente añadido y/o el alcohol de la hidrólisis formado y/u opcionalmente el agua formada en la reacción se separa al menos en parte bajo presión ambiente o reducida y a temperatura elevada.

De acuerdo con una alternativa, en una etapa (Ib) que comprende las siguientes etapas parciales, el componente A, un compuesto de silicio aminoalquil-funcional, conforme a (ii) o (iii), opcionalmente en mezcla con un diluyente, preferiblemente un alcohol, de manera particularmente preferida metanol, etanol o propanol,

- 25 - se hace reaccionar con anhídrido de ácido acrílico de la fórmula IV, preferiblemente, el anhídrido de ácido acrílico de la fórmula IV se aporta dosificadamente de modo que la temperatura de la mezcla no ascienda por encima de 75°C,
- opcionalmente a la mezcla se añade un estabilizador, y
- 30 - en una etapa (IIa), conforme a una alternativa, opcionalmente el diluyente añadido así como, eventualmente, el alcohol de hidrólisis formado y/u opcionalmente, el agua formada en la reacción se separa, al menos en parte, bajo presión ambiente o reducida y temperatura elevada, o
- en una etapa (IIb), conforme a otra alternativa, después de la etapa (I) se añade a la mezcla una base, en particular cuando el anhídrido de ácido acrílico está presente en un exceso molar con respecto a los grupos amino primarios del silano aminoalquil-funcional, la cual se añade preferiblemente en una fase alcohólica y/o acuosa, bases preferidas comprenden hidróxido de metal alcalino(térreo), óxido de metal alcalino(térreo) o carbonatos de metales alcalinos(térreos), opcionalmente tiene lugar una
- 35 - separación del precipitado, en particular de los acrilatos de metales alcalinos, opcionalmente tiene lugar, una
- adición de un ácido orgánico y al menos una separación parcial del alcohol de la hidrólisis y/o del diluyente,
- 40 - así como, opcionalmente, separación de al menos una parte del agua, en donde, opcionalmente, para la separación del alcohol de la hidrólisis en esta etapa se añade agua adicional. De preferencia, únicamente se separa el alcohol de la hidrólisis. Hidróxidos u óxidos de metales alcalinos o alcalinotérreos preferidos son hidróxido de calcio, óxido de calcio, pero también se puede utilizar hidróxido/óxido de sodio.

45 El aminohidro-(met)acrilato puede disociarse en condiciones básicas. Como bases se adecuan preferiblemente sales alcalinas de carácter básico tales como NaOH o KOH, preferiblemente alcóxidos de metales alcalinos tales como NaOR o KOR, preferiblemente para R = metilato de alquilo, preferiblemente de metilo y de manera particularmente preferida es metilato de potasio. En el caso de emplear etilato de potasio, el ácido metacrílico precipita en forma de metacrilato de potasio y puede ser separado fácilmente mediante filtración.

50 La composición, así obtenida, puede utilizarse directamente, preferiblemente presenta un contenido en principio activo de siloxano acrilamido-funcional mayor que 90% en peso con relación a la composición total, de manera particularmente preferida un contenido en principio activo de 95 a 100% en peso, en particular de 98 a 100% en peso.

55 Como diluyentes entran en consideración, en general, todos los diluyentes adecuados tales como diluyentes orgánicos apróticos o próticos y mezclas de estos tales como, por ejemplo, alcoholes, éteres o cetonas, acetato de etilo, cloruro de metileno, siendo preferidos diluyentes próticos orgánicos o agua para la dilución de la composición preparada. El alcohol (de hidrólisis), ya presente como diluyente y/o que resulta en la reacción, se separa

esencialmente, de preferencia por completo, en todas las variantes del procedimiento de acuerdo con la invención. La separación destilativa del alcohol se lleva a cabo preferiblemente a presión reducida. Alternativamente, hasta que se detecta un contenido en alcohol menor que 20% en peso a 0,0001% en peso, preferiblemente menor que o igual a 12% en peso, preferiblemente menor que o igual a 5% en peso, de manera particularmente preferida menor que o igual a 3,0% en peso, de manera muy particularmente preferida menor que o igual a 1,0% en peso, en particular menor que o igual a 0,5% en peso o bien hasta el límite de detección analítico actual. Por norma general la composición de acuerdo con la invención resultante está entonces esencialmente exenta de disolvente, en particular exenta de alcohol. La composición, así obtenida, corresponde de preferencia directamente a la composición de acuerdo con la invención y preferiblemente no se ha de continuar purificando por sí misma.

Se prefiere particularmente que el diluyente volátil y el alcohol de la hidrólisis se separen hasta un contenido en la composición total menor que o igual a 12% en peso a 0% en peso, preferiblemente a menor que o igual a 10% en peso, de manera particularmente preferida menor que o igual a 5% en peso, de manera muy particularmente preferida menor que o igual a 2% en peso a 0,0001% en peso, en particular menor que o igual a 1 a 0,0001% en peso, teniendo lugar la separación preferiblemente mediante destilación, en particular bajo presión reducida en el intervalo de 1 a 1000 mbar, preferiblemente de 0,001 a 350 mbar, de manera particularmente preferida entre 0,001 y 250 mbar, a temperatura suave por debajo de 60°C de la temperatura del fondo, en particular por debajo de 55°C.

Preferiblemente, en el procedimiento la relación molar de los átomos de nitrógeno del compuesto de silicio aminoalquil-funcional, en particular de los silanos aminoalquil-funcionales, a la relación molar de la función $\text{CHR}^5=\text{CR}^4(\text{CO})$ -acrilcarbonilo liberada del anhídrido de ácido acrílico de la fórmula IV se encuentra en el intervalo de 1 a 5 hasta 5 a 1, en particular de 1 a 2 hasta 2 a 1, preferiblemente de 1 a 1,5 hasta 1,5 a 1, de manera particularmente preferida en torno a 1 a 1 con una amplitud de oscilación de más/menos 0,5, preferiblemente más/menos 0,2.

Alternativamente, puede ser particularmente preferido emplear un silano diaminoalquil-funcional de manera equimolar con el anhídrido de ácido acrílico de la fórmula I. En este caso, la función amino secundaria funciona para la neutralización del ácido acrílico libre y puede reaccionar para formar un aminohidrometacrilato que seguidamente se disocia en condiciones básicas.

Objeto de la invención es también un procedimiento para la preparación de silanos acrilamido-funcionales que se preparan de manera sencilla a partir de la composición de acuerdo con la invención que, según el procedimiento precedentemente explicado, pueden separarse mediante destilación. Preferiblemente, los silanos acrilamido-funcionales se separan por destilación a presión reducida, preferiblemente entre 0,001 y 800 mbar y a temperatura elevada. Una destilación particularmente cuidadosa puede tener lugar con un evaporador de capa fina. En general, son asimismo adecuadas columnas de destilación o columnas de rectificación habituales. El contenido en monómero en la composición puede controlarse mediante la adición de una cantidad definida de agua. De esta manera, se puede ajustar un contenido máximo en silano, preferiblemente sin productos de transesterificación y preferiblemente con un contenido bajo simultáneo de siloxanos. Con el fin de preparar una composición con contenidos elevados de alcoxisilano acrilamido-funcional, se emplean preferiblemente 0,2 a 1,5 moles de agua por cada mol de alcoxisilano aminoalquil-funcional, preferiblemente 0,2 a 0,8 o también 0,4 a 0,8 moles de agua por cada mol de alcoxisilano aminoalquil-funcional.

Objeto de la invención es también una formulación que comprende una composición o un producto del procedimiento, así como al menos otro componente de la formulación, elegido de coadyuvante, polímero, agua, diluyente, aditivo, pigmento, carga, ácido, base o tampón. Como polímeros pueden emplearse en la formulación preferiblemente poliuretanos terminados en silano. Otros componentes de la formulación pueden ser plastificantes, catalizadores, reticulantes y/o captadores de agua.

Además, se prefiere un procedimiento en el que el contenido en principio activo en siloxanos acrilamido-funcionales se ajuste a 0,0001 a 100% en peso o bien a 0,0001 a 99,99% en peso en la composición total, en particular a 10 hasta 80% en peso, preferiblemente a 20 hasta 60% en peso, de manera particularmente preferida a 35 hasta 60% en peso, pudiendo ajustarse el contenido en principio activo mediante dilución con un diluyente, preferiblemente con agua o eventualmente con alcoholes acuosos o de cualquier otro diluyente adecuado a cualquier valor entre 99,99% en peso y 0,00001% en peso. Como diluyentes pueden servir también disolventes orgánicos adecuados tales como cetonas, aldehídos, disolventes aromáticos o también monómeros, prepolímeros y polímeros.

Asimismo, es posible la adición de ácidos, bases, aditivos, coadyuvantes, cargas, estabilizadores, pigmentos habituales para el ajuste de las propiedades del producto, del color o para aumentar la estabilidad al almacenamiento.

Para la inducción de disolución en sistemas acuosos pueden añadirse a la composición ácidos típicos para la regulación del valor del pH o bien ácidos minerales tales como HCl, ácido sulfúrico o también ácidos orgánicos, siendo preferidos ácidos orgánicos tales como ácido acético, ácido láctico o ácido fórmico. El valor del pH de estos sistemas acuosos puede ajustarse entre 3 y 11, siendo preferidos valores del pH entre 6 y 8.

5 El procedimiento de preparación se manifiesta asimismo ventajoso sobre la viscosidad de las composiciones. Así, las composiciones preparadas de acuerdo con la invención son líquidos ligeramente móviles de una viscosidad que permite un tratamiento sencillo, un trasvase y una medición simple. La viscosidad de las composiciones - preparadas como producto del fondo - oscila entre 1 mPas y 3000 mPas, preferiblemente entre 500 y 1500 mPas, más preferiblemente entre 1000 y 2000 mPas.

10 Asimismo objeto de la invención son composiciones que se pueden obtener según un procedimiento antes mencionado y que comprenden siloxanos acrilamido-funcionales, preferiblemente en esencia siloxanos acrilamidoalquil-funcionales y, opcionalmente silanos acrilamidoalquil-funcionales, preferiblemente siloxanos acrilamidoalquil- y alcoxi-funcionales solubles en agua. En donde los siloxanos acrilamidoalquil- y alcoxi-funcionales no presentan en esencia grupos hidroxilo y/o carboxilanos y preferiblemente en esencia, se presentan como al menos siloxanos acrilamidoalquil- y alcoxi-funcionales. De acuerdo con una forma alternativa de realización de la invención, los siloxanos acrilamidoalquil- y alcoxi-funcionales pueden estar al menos hidrolizados en parte o por completo. Preferiblemente, la composición comprende siloxanos acrilamidoalquil-aminoalquil-funcionales, de manera particularmente preferida, la composición comprende siloxanos acrilamidoalquil-aminoalquilalcoxi-funcionales.

Además, es objeto de la invención el uso de una composición, así como de los productos del procedimiento como adhesivos, para la funcionalización de vidrio, en particular para la funcionalización de fibras de vidrio, para la modificación de cargas, pigmentos, superficies orgánicas y/o superficies inorgánicas, en particular como revestimiento de carga, pudiendo ser las cargas, cargas inorgánicas u orgánicas. El revestimiento de pigmentos, el revestimiento de superficies orgánicas o inorgánicas, en masas de moldeo dentales, en masas de material sintético dentales, como aditivos en polímeros, en adhesivos, en selladores, en materiales compuestos de fibras, junto con monómeros o polímeros, en particular termoplastos, duroplastos, elastómeros, para la funcionalización de polímeros, para el ajuste del perfil de propiedades de polímeros, para la preparación de mezclas maestras, como aditivo en sistemas de resinas, en particular en sistemas de resinas orgánicas insaturadas tales como resinas alquídicas. Particularmente preferido es el uso para el enlace/unión de materiales inorgánicos con materiales orgánicos, en particular materiales orgánicos insaturados. Asimismo, los siloxanos acrilamidoalquil-funcionales de acuerdo con la invención pueden utilizarse en y/o junto con poliésteres insaturados. Asimismo, las composiciones de acuerdo con la invención pueden emplearse para la preparación de mezclas maestras. En donde, cada uno de los usos antes mencionados se reivindica para los alcoxisilanos acrilamidoalquil-funcionales y alcoxisilanos acrilamidoalquil-funcionales así como para las mezclas de estos.

Los siguientes ejemplos explican el procedimiento de acuerdo con la invención con mayor detalle, sin limitar la invención a estos ejemplos.

Métodos de determinación:

El contenido en alcohol después de la hidrólisis se determina mediante cromatografía de gases (% en peso). Contenido en SiO₂ de compuestos de silicio orgánico: se determina según procedimientos conocidos por el experto en la materia tales como, por ejemplo, oxidación de los componentes orgánicos. Seguidamente reducción a cenizas, evaporación con ácido fluorhídrico y determinación de la diferencia en peso (% = % en peso). Determinación de nitrógeno: según un método conocido por el experto en la materia, por ejemplo según Kjeldahl. Resistencias al cizallamiento con una máquina de dilatación por tracción después de endurecimiento a fondo en clima normal 23°C, 50% de humedad relativa del aire durante 14 días (norma DIN EN ISO 527).

Compuestos empleados:

45 "TEMPO (radical libre 2,2,6,6-tetrametilpiperidiniloxi) y 4-hidroxiTEMPO"
"SANTONOX (Flexys America, Akron, OH) antioxidante 4,4'-tio-bis-(6-t-butil-m-cresol)"

Ejemplo 1:

En un conjunto de aparatos con agitador de 1 l con puente de destilación se dispusieron 222,24 g de N-(3-(trimetoxisilil)propil)etilendiamina (1,0 mol) y se añadieron con agitación 200,92 g de metanol. A continuación, bajo agitación y en el espacio de 2 minutos se añadieron 26,98 g de agua totalmente desalada. Al cabo de 0,5 horas, se

añadió gota a gota el anhídrido de ácido metacrílico bajo enfriamiento a una temperatura del fondo de 13,8 a 21,9°C en el espacio de 1,8 horas. A continuación, mediante la adición de 0,95 moles de disolución metanólica de metilato de potasio al 32% se precipitó el ácido metacrílico y se separó por filtración a través de un filtro a presión de laboratorio. El residuo del filtro se lavó con en total 226,13 g de n-hexano. Al filtrado se le añadieron con agitación en el conjunto de aparatos 100,05 g de ácido acético al 1,0% y 2,11 g de ácido acético glacial. El alcohol de la hidrólisis se separó por destilación a una temperatura del fondo de 32°C a 49,8°C. Se obtuvieron 152,6 g de producto amarillento poco viscoso.

Tabla 1: Resultados del análisis del Ejemplo 1

Determinación	Método	Resultado
N total [%]	véase arriba	4,6
contenido de SiO ₂ [%]	véase arriba	11,2
metanol libre [%]	véase arriba	2,4
pH	norma DIN ISO 4925	9,5
viscosidad [mPas]	norma DIN 53015	82,3
1H- y 13C-RMN	se encontró el metacrilamidosilano oligomerizado	

Ejemplo 2:

En un conjunto de aparatos con agitador de 500 ml con puente de destilación se dispusieron 155,09 g de aminopropiltrimetoxisilano (0,70 mol) y 40,14 g de etanol. A continuación, en el espacio de un minuto se añadieron 10,12 g de agua desalada (0,52 moles). La temperatura del fondo aumentó en este caso de 27,9°C a 29,0°C. En el caso de una temperatura del fondo de 40,1°C a 60,8°C, se separó por destilación, a una presión absoluta de 226 mbar hasta < 1 mbar, etanol libre. La cantidad de destilado ascendió a 76,3 g. A continuación, a una temperatura del fondo de 20,5°C se inició la adición de anhídrido del ácido metacrílico. Durante la adición de 108,02 g de anhídrido de ácido metacrílico (0,70 mol) se aportaron dosificadamente de manera adicional 51,6 g de etanol y, con ello, la temperatura del fondo aumentó a como máximo 72,3°C. La adición tuvo lugar en el espacio de 1,85 horas. A continuación, a una presión absoluta de 159 mbar hasta < 1 mbar y una temperatura del fondo de 48,0°C a 57,8°C se separó por destilación etanol libre. La cantidad de destilado ascendió a 62,2 g. En el fondo se incorporaron con agitación para la estabilización, además, 0,02 g de 4-hidroxi-Tempo. Como producto del fondo se obtuvieron 197,7 g de un líquido ligeramente amarillento transparente. En la Tabla 2 se recogen los correspondientes resultados del análisis.

Tabla 2: Resultados del análisis del Ejemplo 2

Determinación	Método	Resultado
N total [%]	véase arriba	4,6
contenido de SiO ₂ [%]	véase arriba	20,3
metanol libre [%]	véase arriba	1,0
pH	norma DIN ISO 4925	5,2
viscosidad [mPas]	norma DIN 53015	1352
1H- y 13C-RMN	se encontró el metacrilamidosilano oligomerizado con un contenido bajo de metacrilamidosilano y ácido metacrílico libre	

Ejemplo Comparativo 1:

En un conjunto de aparatos con agitador de 500 ml con puente de destilación se dispusieron 88,81 g de aminopropiltrimetoxisilano (0,401 moles) y 34,80 g de aminopropiltrimetoxi (AMMO) (0,194 moles). Bajo enfriamiento mediante un baño de hielo se añadieron gota a gota, en el espacio de 1 hora, 92,61 g de anhídrido del ácido metacrílico (0,60 moles). En este caso, la temperatura del fondo ascendió a como máximo 32,0°C. A continuación, a una presión absoluta de 6 mbar hasta una temperatura del fondo de 115°C se separó por destilación una parte del ácido metacrílico libre. Se obtuvieron 175,8 g de un producto del fondo ligeramente amarillento. En la Tabla 3 se recogen los resultados correspondientes resultados del análisis.

Tabla 3: Resultados del análisis del producto del fondo del Ejemplo Comparativo 1

Determinación	Método	Resultado
N total [%]	véase arriba	4,4
contenido de SiO ₂ [%]	véase arriba	19,4
pH	norma DIN ISO 4925	5,5
viscosidad [mPas]	norma DIN 53015	447
1H- y 13C-RMN	la evaluación cuantitativa proporciona: - 43% en moles de metacrilamidopropilmetoxidietoxisilano - 57% en moles de metacrilamidopropildialcoxicarboxisilano* * carboxi = éster del ácido metacrílico	

Ejemplo Comparativo 2 (ejemplo comparativo con respecto al documento WO 00/75148 A1):

5 En un conjunto de aparatos con agitador de 1 l con puente de destilación se dispusieron 398,07 g de aminopropiltrietoxisilano (1,8 moles) y se añadieron con agitación 1,99 g de óxido de dibutilestaño, 0,037 g de Ionol y 0,18 g de 4,4'-tiobis(6-butilo terciario-m-cresol). A continuación, en el espacio de 2 horas, se aportó dosificadamente una mezcla a base de 360,35 g de metacrilato de metilo (3,60 moles) y 5,41 g de dipropilamina a una temperatura del fondo de 152,8°C a 165,5°C. Después de un tiempo de reacción de 0,3 horas, se recogió, a una temperatura de la parte superior de 76,5°C a 80,4°C, una mezcla a base de metanol, etanol, metacrilato de metilo y metacrilato de etilo. Después de un tiempo de destilación de 2,5 horas, se separaron del producto del fondo, a una presión absoluta de 316 mbar hasta < 1 mbar y una temperatura del fondo de 157,2°C, cantidades residuales de componentes fácilmente volátiles. En conjunto, se recogieron 287,8 g de destilado. Como producto del fondo se obtuvieron 461,35 g de un líquido poco viscoso y ligeramente amarillento. Conforme a la divulgación del documento WO 00/75148 A1, el producto bruto metacrilo se destila en alto vacío. Para la finalidad de la determinación de la solubilidad, en el 15 presente caso era suficiente con utilizar el producto bruto que contiene todavía óxido de dibutilestaño. Para una posterior aplicación sería necesaria una rectificación dada a conocer conforme al documento WO 00/75148 A1.

Tabla 4: Resultados del análisis del Ejemplo comparativo 2

Determinación	Método	Resultado
N total [%]	véase arriba	5,0
contenido de SiO ₂ [%]	véase arriba	22,0
metanol libre [%]	véase arriba	0,1
pH	norma DIN ISO 4925	9,7
viscosidad [mPas]	norma DIN 53015	50,1

20 **Determinación de la liberación de VOC:**

Metacrilamidopropilsiloxano (del Ejemplo 2) en comparación con Y-5997 (metacrilamidopropilmetoxietoxisilano). La cantidad de VOC liberable máxima es, en el caso de metacrilamidopropilsiloxano, un 57,8% menor en comparación con Y-5997, véase la Tabla 5.

Tabla 5: Contenidos en VOC

Determinación	Método	Unidad	Metacrilamidopropilsiloxano del Ejemplo 2	Y-5997
metanol después de la hidrólisis	véase arriba	% p/p*	< 1	34
etanol después de la hidrólisis	véase arriba	% p/p	19	11
VOC	suma de metanol/etanol después de la hidrólisis	% p/p	19	45

*p = "peso"

Examen técnico de aplicación en resinas de poliéster insaturadas:

En la industria de las piedras artificiales se fabrican resinas de poliéster insaturadas, por ejemplo, con pieza natural con contenido en silicio (arena de cuarzo/harina de cuarzo) para formar placas de piedra artificial correspondientes. En el ensayo que se describe seguidamente se examina en el laboratorio la influencia de los siloxanos metacrilamido-funcionales como aditivo en la resina UPE sobre la resistencia de los productos de piedras artificiales.

- 5 Método de laboratorio: se dispusieron 1000,0 g de harina de cuarzo (granulometría: 0,1-0,6 mm). A la harina de cuarzo se añadió con agitación una mezcla a base de 95,5 g de resina UPE (Palatal P4-01), 1,8 g de endurecedor (TPBP-HA-M1), 2,5 g de siloxano metacrilamido-funcional y 1,8 g de acelerador (Octa-Soligen Cobalt6). Después de agitar durante 5 minutos, a partir de la mezcla homogénea se produjeron, mediante un molde metálico y martinete, seis varillas de ensayo (medidas 22 x 22 x 170 mm). Éstas se almacenaron durante la noche a 23°C y 50% de humedad relativa. A continuación, mediante el examen de flexión en tres puntos (aparato Zwick) se midió la fuerza máxima para romper las varillas de ensayo.

Tal como se puede ver en la Tabla 6, la resistencia a la flexión aumentó mediante la adición de 0,22% de siloxano metacrilamido-funcional (del Ejemplo N° 2) a la resina UPE en torno a 44,7%, en comparación con la resina UPE no modificada.

- 15 Tabla 6:

Aditivo en la resina UPE	Cantidad de aditivo [% p/p]	Fuerza máx. media [N]	Aumento relativo de la fuerza de ruptura [%]
Sin aditivo	0	772	0
Metacrilamidopropilsiloxano	0,22	1117	44,7

Se demuestra muy claramente que con los siloxanos metacrilamido-funcionales se alcanzan muy buenos resultados para las resistencias a la flexión en placas de piedra natural con una escasa sollicitación de VOC.

Examen técnico de aplicación en formulación de selladores:

- 20 Seguidamente se presenta el examen técnico de aplicación de composiciones de acuerdo con la invención que comprenden siloxanos metacrilamidopropil-funcionales en comparación con metacrilamidossilano de manera correspondiente al estado de la técnica.

- 25 El producto de ensayo, un siloxano metacrilamidopropil-funcional sin ácido acrílico libre se examinó en una formulación de SPU en comparación con el monómero de metacrilamido Silquest Y 5997. En este caso, se manifestaron claras ventajas en la reactividad en la formulación de los selladores examinada, como también mayores resistencias a la tracción del sellador endurecido. El examen de adherencia condujo a fuerzas de cizallamiento significativamente más elevadas en los sustratos examinados.

Tabla 7:

Principio activo	Resistencia al cizallamiento [N/mm ²] sobre aluminio	Resistencia al cizallamiento [N/mm ²] sobre PMMA
Metacrilamidopropilsiloxano	3,38	1,14
Y 5997	2,0	0,78

- 30 Como sistema base se eligió un sellador de SPU en el que se mezclaron los principios activos, el siloxano metacrilamidopropil-funcional de acuerdo con la invención así como el silano Y 5997, con en cada caso 1% en peso como inductor de la adherencia (Tabla 8).

Tabla 8: Componentes de la receta del sellador de SPU

36% en peso de polímero de poliuretano terminado en silano (SPU)
14,5% en peso de falato de diisodocilo, plastificante
46,9% en peso de greda precipitada
1,5% en peso de viniltrimetoxisilano, captador de agua
1% en peso de principios activos (siloxano metacrilamidopropil-funcional y alternativamente silano Y 5997) como adhesivos
0,1% en peso de TIB KAT 226, catalizador de estaño

Para el ensayo tuvo lugar la producción de tiras de ensayo a partir de las cuales se troquelaron después de un endurecimiento a fondo alteras de ensayo (resistencia a la tracción, dilatación en el caso de resistencia al desgarre). La producción de pegaduras de solapamiento de los mismos sustratos tuvo lugar como sigue:

- 5 superficie de ensayo: anchura 2 cm, longitud 3 cm
sustratos: aluminio, PMMA

determinación de las resistencias al cizallamiento con la máquina de dilatación por tracción después de endurecimiento a fondo a clima normal 23°C, 50% de humedad relativa durante 14 días (norma DIN EN ISO 527).

- 10 En el resultado global, el sistema de siloxano de acuerdo con la invención muestra un tiempo de formación de la piel claramente más rápido, el endurecimiento a fondo (10 mm) es considerablemente más rápido y presenta las máximas resistencias en el caso de un alargamiento de rotura aceptable en comparación con Y 5997.

- 15 El ensayo técnico de aplicación en la Tabla 7 muestra de manera impresionante que el sistema de siloxanos de acuerdo con la invención alcanza en los dos sustratos examinados resistencias al cizallamiento mejores. En este caso, las resistencias al cizallamiento determinadas sobre aluminio estaban limitadas por la resistencia interna del sellador (rotura de cohesión). Sobre el sustrato crítico PMMA, todas las masas de sellado mostraban una rotura de cohesión, de modo que para las resistencias al cizallamiento, en este caso no era decisiva la resistencia interna del sellador, sino sólo el efecto del adhesivo. En este caso, la masa de sellado a base del sistema de siloxano metacrilamido-funcional de acuerdo con la invención mostró un valor significativamente más elevado de +46,2% en comparación con Silquest Y 5997.

- 20 El sistema de silano de acuerdo con la invención determina en esta formulación en la masa de sellado una buena reactividad y conduce a buenas resistencias internas de este SMP (polímeros modificados con silano). En virtud de estos resultados del ensayo se alcanza un buen comportamiento de las composiciones de acuerdo con la invención en sistemas híbridos tales como poliuretanos terminados en silano.

Ejemplo 3

- 25 En un conjunto de aparatos con agitador de 1 l con puente de destilación se dispusieron 400,26 g de N-[3-(trimetoxisilil)propil]etilendiamina (1,8 moles) y se añadieron con agitación 80,90 g de metanol. A continuación, bajo agitación y en el espacio de 4 minutos, se añadieron 25,91 g de agua totalmente desalada y se continuó agitando durante 1 hora a 59-61°C. Después del enfriamiento hasta una temperatura del fondo de 29°C se aportaron dosificadamente, en el espacio de 40 minutos, 92,63 g de anhídrido del ácido metacrílico (0,6 moles). La temperatura del fondo aumenta en este caso hasta 54°C. En el fondo se añadieron como estabilizador adicional, 0,41 g de 4-hidroxi-Tempo (antes de la adición del anhídrido del ácido metacrílico). A continuación, a una presión absoluta de 216 mbar y una temperatura del fondo de aprox. 40°C se separó por destilación metanol libre. Al término de la destilación, la presión absoluta asciende a 1 mbar y la temperatura del fondo a 20°C. La cantidad de destilado asciende a 147,5 g.
- 30
- 35 Rendimiento: 441,8 g de líquido incoloro transparente

El producto se disuelve espontáneamente en agua, véase la Tabla 10.

Tabla 9: Resultados del análisis en relación con el Ejemplo 3

Determinación	Método	Resultado
Contenido en N [%]	Véase arriba	10,7
Contenido en sólidos [%]	3 g/12 horas/125°C	77,3
Contenido en SiO ₂ [%]	AN-SAA 1171	24,0
pH	Norma DIN ISO 4925	9,9
Densidad [g/cm ³]	Norma DIN 51757	1,110
Viscosidad [mPas]	Norma DIN 53015	5000
Metanol tras la hidrólisis [%]	En base a SAA0272	27 (= contenido máx. en VOC)
¹ H- y ¹³ C-RMN	Por cada mol de Si se presenta 1 mol de Si-OCH ₃ . Mezcla oligómera a base de aprox. 30% en moles de amida primaria y aprox. 30% en moles de amida sec.	

Tabla 10: Perspectiva de los ensayos de solubilidad en relación con el Ejemplo 3

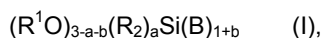
Hidrolizado			Turbidez [FNU]	
p(producto del fondo) [%]	p(H ₂ O) [%]	pH	1 min	24 horas
6	97	9,6	0,5 (transparente)	0,8 (transparente)
12	90	9,1	2,3 (transparente)	1,8 (transparente)
Hidrolizado			Turbidez [FNU]	
p(producto del fondo) [%]	p(ácido acético al 0,5%) [%]	pH	1 min	24 horas
6	97	6,4	0,5 (transparente)	0,7 (transparente)
12	90	5,6	1,5 (transparente)	1,8 (transparente)

REIVINDICACIONES

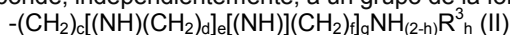
1. Composición que comprende siloxanos acrilamido-funcionales que se derivan de

- 5 a) una reacción de un componente A, que es un compuesto de silicio aminoalquil-funcionalizado, elegido de
 (i) un alcoxisilano aminoalquil-funcional de la fórmula I o una mezcla de alcoxisilanos aminoalquil-funcionales de la fórmula I, en cada caso en presencia de una cantidad definida de agua,
 o
 (ii) un producto de hidrólisis o de condensación de al menos un alcoxisilano aminoalquil-funcional de la fórmula I,
 o
 10 (iii) una mezcla que comprende al menos un alcoxisilano aminoalquil-funcional de la fórmula I y un producto de hidrólisis y/o de condensación de al menos un alcoxisilano aminoalquil-funcional de la fórmula I,

en donde el alcoxisilano aminoalquil-funcional corresponde a la fórmula I



15 y el grupo B de la fórmula I corresponde, independientemente, a un grupo de la fórmula II



20 en la fórmula I con R^1 , independientemente, un grupo alquilo con 1 a 8 átomos de C, lineal, ramificado o cíclico, R^2 es, independientemente, un grupo alquilo con 1 a 8 átomos de C, lineal, ramificado o cíclico, y en la fórmula II con R^3 , independientemente, un grupo alquilo, arilo o alquilarilo con 1 a 8 átomos de C, lineal, ramificado o cíclico, y en la fórmula I a, independientemente, es igual a 0 ó 1, b, independientemente, es igual a 0 ó 1, en la fórmula II, c, independientemente, se elige de 1, 2, 3, 4, 5 y 6, d, independientemente, se elige de 1, 2, 3, 4, 5 y 6, e, independientemente, se elige de 0, 1, 2, 3, 4, 5 y 6, f, independientemente, se elige de 1, 2, 3, 4, 5 y 6, g, independientemente, se elige de 0, 1, 2, 3, 4, 5 y 6, y h, independientemente, es 0 ó 1, o el grupo B corresponde a la fórmula III



con $j = 1, 2$ ó 3 y $p = 0, 1$ ó 2 , preferiblemente p se elige de 0 y 1 ,

con un componente B que es un anhídrido del ácido acrílico y, opcionalmente, en presencia de un diluyente, y, opcionalmente,

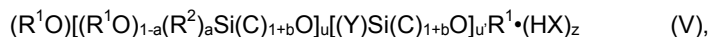
30 b) separación de al menos una parte del diluyente y/o alcohol de hidrólisis.

2. Composición según la reivindicación 1, caracterizada por que el anhídrido de ácido acrílico corresponde a la fórmula IV



35 en donde R^4 , independientemente, es un átomo de hidrógeno o un grupo metilo y R^5 , independientemente, es un átomo de hidrógeno o un grupo metilo, preferiblemente R^5 es un átomo de hidrógeno.

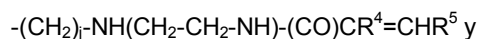
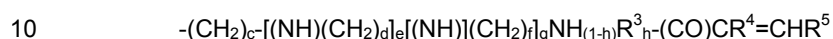
3. Composición según la reivindicación 1 ó 2, caracterizada por que al menos un siloxano acrilamido-funcional corresponde de manera idealizada a la fórmula V



en donde

- 40 - C corresponde a un grupo acrilamido y
 - Y corresponde a OR^1 o en estructuras ramificadas y/o ramificadas en el espacio, independientemente uno de otro, OR^1 u $O_{1/2}$,

- en donde R^1 , independientemente, corresponde a un grupo alquilo con 1 a 8 átomos de C, en particular con 1, 2, 3 ó 4 átomos de C, lineal, ramificado o cíclico, u, opcionalmente, al menos en parte, hidrógeno, y R^2 corresponde a un grupo alquilo con 1 a 8 átomos de C lineal, ramificado o cíclico,
- HX representa un ácido, siendo X un radical ácido inorgánico u orgánico,
- 5 - con en cada caso independientemente, a igual a 0 ó 1, en cada caso independientemente b igual a 0, 1, preferiblemente b es igual a 0, con en cada caso independientemente un número entero u mayor que o igual a 2, u' mayor que o igual a 0 y z mayor que o igual a 0, y $(u + u') \geq 2$,
- en donde la composición está esencialmente exenta de diluyentes, en particular disolventes orgánicos, en particular C corresponde a un grupo acrilamido elegido de



$-(CH_2)_j-NH_2-p(CH_2CH_2NH-(CO)CR^4=CHR^5)_p$, en donde c, d, e, f, g, h, j, p, así como R^3 , R^4 y R^5 están definidos como precedentemente.

4. Procedimiento para la preparación de una composición que comprende siloxanos y/o sillanos acrilamido-funcionales, en el que

- el procedimiento se lleva a cabo en al menos una etapa en presencia de agua, preferiblemente de una cantidad definida de agua, y
- un componente A, un compuesto de silicio aminoalquil-funcional, se elige de
 - 20 (i) al menos un alcoxisilano aminoalquil-funcional o una mezcla de alcoxisilanos aminoalquil-funcionales de la fórmula I, definidos como en la reivindicación 1, o
 - (ii) un producto de hidrólisis o de condensación de al menos un alcoxisilano aminoalquil-funcional de la fórmula I, o
 - 25 (iii) una mezcla que comprende al menos un alcoxisilano aminoalquil-funcional de la fórmula (I) y un producto de hidrólisis y/o de condensación de al menos un alcoxisilano aminoalquil-funcional de la fórmula I,
- se hace reaccionar con un componente B, un anhídrido del ácido acrílico de la fórmula IV, definido como en la reivindicación 2, opcionalmente en un diluyente,
- 30 - opcionalmente el diluyente y el alcohol de hidrólisis formado en la reacción se separan al menos en parte.

5. Procedimiento según la reivindicación 4, caracterizado por un alcoxisilano aminoalquil-funcional de la fórmula I,

- a) con R^1 , independientemente, igual a metilo o etilo, y con $a = 0$ y $b = 0$ con $c = 1, 2$ ó 3 y con el grupo B conforme a la fórmula II con $g = 0$ y $e = 1$ y $h = 0$, $d = 1, 2$ ó 3 , preferiblemente $d = 2$, o
- 35 b) con R^1 , independientemente, igual a metilo o etilo, y con $a = 0$ y $b = 0$ con $c = 3$ y con el grupo B conforme a la fórmula II con g, e y h en cada caso igual a 0 o, conforme a una alternativa, con $a = 0$, $b = 0$, $c = 3$ y con el grupo B conforme a la fórmula II con $e = 1$, $d = 1, 2, 3$, preferiblemente $d = 2$, y con $g = 0$, $h = 0$ o con el grupo B conforme a la fórmula II con $e = g = 0$ ó 1 , y $d = f = 2$ ó 3 y $h = 0$ con $c = 3$ o con el grupo B conforme a la fórmula III con $j = 3$ y p igual a 1 ó 2, o
- 40 c) con R^1 , independientemente, igual a metilo o etilo, y con $a = 0$ y $b = 0$ con $c = 2$ y con el grupo B conforme a la fórmula II con g, e y h en cada caso igual a 0 o, conforme a una alternativa, con $a = 0$, $b = 0$, $c = 3$ y con el grupo B conforme a la fórmula II con $e = 1$, $d = 1, 2, 3$, preferiblemente $d = 2$, y con $g = 0$, $h = 0$, con el grupo B conforme a la fórmula II con $e = g = 0$ ó 1 , y $d = f = 2$ ó 3 y $h = 0$ con $c = 2$ o con el grupo B conforme a la fórmula III con $j = 3$ y p igual a 1 ó 2, o
- 45 d) con R^1 , independientemente, igual a metilo o etilo, y con $a = 0$ y $b = 0$ con $c = 1$ y con el grupo B conforme a la fórmula II con g, e y h en cada caso igual a 0 o, conforme a una alternativa, con $a = 0$, $b = 0$, $c = 3$ y con el grupo B conforme a la fórmula II con $e = 1$, $d = 1, 2, 3$, preferiblemente $d = 2$, y con $g = 0$, $h = 0$ o con el grupo B conforme a la fórmula II con $e = g = 0$ ó 1 , y $d = f = 2$ ó 3 y $h = 0$ con $c = 1$ o con el grupo B conforme a la fórmula III con $j = 3$ y p igual a 1 ó 2.

6. Procedimiento según la reivindicación 4 ó 5, caracterizado por que el silano aminoalquil-funcional de la fórmula I se elige de 3-aminopropiltrimetoxisilano, 3-aminopropiltri-etoxisilano, 3-aminopropilmetildimetoxisilano, 3-aminopropilmetildietoxisilano, 1-aminometiltrimetoxisilano, 1-aminometiltri-etoxisilano, 2-aminoetiltrimetoxisilano, 2-aminoetiltri-etoxisilano, 3-aminoisobutiltrimetoxisilano, 3-aminoisobutiltri-etoxisilano, N-n-butil-3-aminopropiltri-etoxisilano, N-n-butil-3-aminopropilmetildietoxisilano, N-n-butil-3-aminopropiltrimetoxisilano, N-n-butil-3-aminopropilmetildimetoxisilano, N-n-butil-1-amino-metiltri-etoxisilano, N-n-butil-1-aminometilmetildimetoxisilano, N-n-butil-1-aminometiltrimetoxisilano, N-n-butil-1-aminometilmetiltri-etoxisilano, bencil-3-aminopropiltrimetoxisilano, bencil-

- 3-aminopropiltriétoxissilano, bencil-2-aminoetil-3-aminopropiltrimetoxissilano, bencil-2-aminoetil-3-aminopropiltriétoxissilano, diaminoetilen-3-propiltrimetoxissilano, diaminoetilen-3-propiltriétoxissilano, triaminodietilen-3-propiltrimetoxissilano, triaminodietilen-3-propiltriétoxissilano, (2-aminoetilamino)-etiltrimetoxissilano, (2-aminoetilamino)-etiltriétoxissilano, (1-aminoetilamino)-metiltrimetoxissilano y (1-aminoetilamino)-metiltriétoxissilano, siendo particularmente preferidos di- y/o tri-aminoalcoxisilanos.
7. Procedimiento según la reivindicación 4, caracterizado por que el anhídrido del ácido acrílico de la fórmula IV es el anhídrido del ácido metacrílico o el anhídrido del ácido acrílico (no sustituido).
8. Procedimiento según una de las reivindicaciones 4 a 7, caracterizado por que la cantidad definida de agua asciende a 0,1 a 4,5 moles de agua por mol de átomos de silicio del compuesto de silicio aminoalquil-funcional empleado en el procedimiento, preferiblemente a 0,1 a 2,0, se prefieren 0,3 a 1,5 moles de agua por mol de átomos de silicio del compuesto de silicio antes mencionado, particularmente preferidos son 0,5 a 1,0 moles de agua por mol de átomos de silicio del compuesto de silicio.
9. Procedimiento según una de las reivindicaciones 4 a 8, caracterizado por que la cantidad definida de agua se ajusta en una etapa del procedimiento antes de la etapa de reacción con el componente B, preferiblemente para la preparación de los componentes A (ii) o (iii) del componente A (i).
10. Procedimiento según una de las reivindicaciones 4 a 9, en el que
- en una etapa (Ia) que comprende las siguientes etapas parciales, el componente A, un compuesto de silicio aminoalquil-funcional conforme a (i), que es al menos un alcoxisilano aminoalquil-funcional de la fórmula I como se ha definido en las reivindicaciones 2, 6 ó 7, opcionalmente en mezcla con un diluyente, preferiblemente un alcohol, de manera particularmente preferida metanol, etanol o propanol, se mezcla con una cantidad definida de agua,
 - opcionalmente, el alcohol de la hidrólisis y/o el diluyente añadido se separa al menos en parte,
 - a la mezcla resultante se añade el anhídrido de ácido acrílico de la fórmula IV, preferiblemente el anhídrido del ácido acrílico de la fórmula IV se aporta dosificadamente de manera que la temperatura de la mezcla no ascienda por encima de 75°C,
 - opcionalmente, a la mezcla se añade un estabilizador, o
 - en una etapa (Ib) que comprende las siguientes etapas parciales, el componente A, un compuesto de silicio aminoalquil-funcional, conforme a (ii) o (iii), opcionalmente en mezcla con un diluyente, preferiblemente un alcohol, de manera particularmente preferida metanol, etanol o propanol,
 - se hace reaccionar con anhídrido de ácido acrílico de la fórmula IV, preferiblemente, el anhídrido de ácido acrílico de la fórmula IV se aporta dosificadamente de modo que la temperatura de la mezcla no ascienda por encima de 75°C,
 - opcionalmente a la mezcla se añade un estabilizador, y
 - en una etapa (IIa), conforme a una alternativa, después de la etapa (I), opcionalmente el diluyente añadido así como, eventualmente, el alcohol de hidrólisis formado y opcionalmente, el agua formada en la reacción se separa, al menos en parte, bajo presión ambiente o reducida y temperatura elevada, o
 - en una etapa (IIb), conforme a otra alternativa, después de la etapa (I) se añade a la mezcla una base, opcionalmente
 - separación del precipitado,
 - adición de un ácido orgánico y al menos separación parcial del alcohol de hidrólisis y/o del diluyente.
11. Procedimiento según una de las reivindicaciones 4 a 10, caracterizado por que la relación molar de los átomos de nitrógeno del compuesto de silicio aminoalquil-funcional de la fórmula I a la relación molar de la función acrilcarbonilo liberada del anhídrido de ácido acrílico de la fórmula IV se encuentra en el intervalo de 1 a 5 hasta 5 a 1, en particular de 1 a 2 hasta 2 a 1, preferiblemente de 1 a 1,5 hasta 1,5 a 1, de manera particularmente preferida en torno a 1 a 1 con una amplitud de oscilación de más/menos 0,5, preferiblemente 0,2.
12. Procedimiento según una de las reivindicaciones 4 a 11, caracterizado por que el contenido en principio activo en siloxanos acrilamido-funcionales se ajusta a 0,0001 a 99,9% en peso en la composición total, en particular a 10 hasta 80% en peso, preferiblemente a 20 hasta 60% en peso, de manera particularmente preferida a 35 hasta 60% en peso.
13. Procedimiento según una de las reivindicaciones 4 a 12, caracterizado por que el diluyente volátil y el alcohol de la hidrólisis se separan hasta un contenido en la composición total menor que o igual a 12% en peso a 0% en peso, preferiblemente a menor que o igual a 10% en peso, de manera particularmente preferida menor que o igual a 5% en peso, de manera muy particularmente preferida menor que o igual a 2% en peso a 0,0001% en peso, en

particular menor que o igual a 1 a 0,0001% en peso, teniendo lugar la separación preferiblemente mediante destilación, en particular bajo presión reducida en el intervalo de 100 a 100 000 Pa, preferiblemente de 0,1 a 35 000 Pa.

5 14. Procedimiento según una de las reivindicaciones 4 a 13, caracterizado por que los silanos acrilamidoalquil-funcionales se separa por destilación.

15. Composición, obtenible según un procedimiento según una de las reivindicaciones 4 a 14, que comprende preferiblemente siloxanos acrilamido-funcionales, en particular alcoxisilanos acrilamidoalquil-funcionales, así como mezclas de de éstos con silanos acrilamido-funcionales.

10 16. Formulación que comprende una composición según una de las reivindicaciones 1 a 3 ó 15 o un producto del procedimiento según una de las reivindicaciones 4 a 14, así como al menos otro componente de la formulación, elegido de coadyuvante, agua, polímero, diluyente, aditivo, pigmento, carga, ácido, base o tampón.

15 17. Uso de una composición según una de las reivindicaciones 1 a 3 ó 15 o de los productos del procedimiento según una de las reivindicaciones 4 a 14, o una formulación según la reivindicación 16, como adhesivos, para la funcionalización de vidrio, en particular para la funcionalización de fibras de vidrio, para la modificación de cargas, pigmentos, superficies orgánicas y/o superficies inorgánicas, en particular como revestimiento de carga, revestimiento de pigmentos, revestimiento de superficies orgánicas o inorgánicas, en masas de moldeo dentales, en masas de material sintético dentales, como aditivo en polímeros, en adhesivos, en selladores, en materiales compuestos de fibras, junto con monómeros o polímeros, en particular termoplastos, duroplastos, elastómeros, para la funcionalización de polímeros, para el ajuste del perfil de propiedades de polímeros, para la preparación de
20 mezclas maestras, como aditivo en sistemas de resinas, en particular en sistemas de resinas orgánicas insaturadas, en particular de los alcoxisiloxanos acrilamidoalquil-funcionales o alcoxisilanos acrilamidoalquil-funcionales, así como mezclas de éstos.