

19



OFICINA ESPAÑOLA DE
PATENTES Y MARCAS

ESPAÑA



11 Número de publicación: **2 675 322**

51 Int. Cl.:

C07F 7/18 (2006.01)

C08G 77/00 (2006.01)

C03C 25/00 (2008.01)

12

TRADUCCIÓN DE PATENTE EUROPEA

T3

86 Fecha de presentación y número de la solicitud internacional: **01.04.2016 PCT/EP2016/057183**

87 Fecha y número de publicación internacional: **01.12.2016 WO16188654**

96 Fecha de presentación y número de la solicitud europea: **01.04.2016 E 16713892 (4)**

97 Fecha y número de publicación de la concesión europea: **07.03.2018 EP 3110822**

54 Título: **Procedimiento para la preparación de materiales hidrolizados acuosos de aminoalquiltrialcoxisilanos**

30 Prioridad:

28.05.2015 EP 15169684

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

10.07.2018

73 Titular/es:

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

72 Inventor/es:

**STANDKE, BURKHARD;
WASSMER, CHRISTIAN;
LIPPERT, IRENE y
BIBBO, KERSTIN**

74 Agente/Representante:

LEHMANN NOVO, María Isabel

ES 2 675 322 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

Procedimiento para la preparación de materiales hidrolizados acuosos de aminoalquiltrialcoxisilanos

El presente invento se refiere a un procedimiento para la preparación de materiales hidrolizados acuosos de aminoalquiltrialcoxisilanos, que conduce a unas soluciones acuosas concentradas de estos aminoalquiltrialcoxisilanos, que en lo esencial están libres de alcoholes, y que es realizable de una manera especialmente rentable.

A partir del estado de la técnica se conocen unos procedimientos, en los cuales se hidrolizan concomitantemente unos aminoalquiltrialcoxisilanos, tales como por ejemplo ciertos 3-aminopropiltriethoxisilanos, con unos adicionales silanos hidrolizables, tales como por ejemplo una bis-triethoxisililpropilamina y/o unos alquiltrialcoxisilanos y/o alquiltrialcoxisilanos sustituidos funcionalmente, diferenciándose el grupo funcional con respecto del grupo amino. Tales procedimientos son conocidos por ejemplo a partir de los documentos de solicitudes de patentes europeas EP-A 675 128, EP-A 716 127, EP-A 997 469, EP-A 1 031 593 y del documento de solicitud de patente internacional WO 2009/03538. En contraposición con esto, el presente invento se refiere a un procedimiento para la preparación de unos materiales hidrolizados de aminoalquiltrialcoxisilanos con un contenido más alto de materiales sólidos, y en los que no están presentes otros silanos hidrolizables de ningún tipo, que se diferencien de los aminoalquiltrialcoxisilanos.

El documento de patente alemana DE 103 33 941 A1 se refiere a una composición de apresto para fibras de vidrio que, junto a agua, contienen un agente formador de películas y un agente mediador de adherencia. Como agente mediador de adherencia se propone un material hidrolizado de 3-aminopropiltriethoxisilano. En el único ejemplo de realización, sin que se den datos más detallados acerca de la realización del procedimiento, se hidroliza un γ -aminopropiltriethoxisilano con un exceso molar de agua más que 400 veces mayor.

El documento EP-A 1 017 880 divulga un procedimiento para el revestimiento de un sustrato metálico, en el que una solución de tratamiento se aplica sobre la superficie del sustrato metálico, conteniendo la solución de tratamiento un aminosilano parcialmente hidrolizado y un ácido inorgánico que contiene flúor en una relación de 1:2 hasta 2:1. El aminosilano parcialmente hidrolizado se hidroliza por adición de unas cantidades muy pequeñas de agua, situadas en el intervalo de 4 hasta 5 %, referidas al volumen total de agua y del aminosilano, dejando en reposo durante una noche.

El documento de patente de los EE.UU. US-A 3.810.843 se refiere a la preparación de composiciones mediante puesta en contacto de un sol de ácido silícico con un agente de acoplamiento derivado de un silano que tiene funciones orgánicas, que previamente ha sido hidrolizado en un sistema acuoso. Entre otros se propone el 3-aminopropiltriethoxisilano como agente de acoplamiento. La descripción general del documento no contiene datos de ningún tipo acerca del procedimiento, con el que se prepara el material hidrolizado del agente de acoplamiento derivado de un silano. En una concreta forma de realización, el 3-aminopropiltriethoxisilano se añade a una lejía de sosa acuosa diluida, siendo de 26,7 % la relación molar de agua a 3-aminopropil-triethoxisilano.

Zengping Zhang y colaboradores describen en "Journal of Applied Polymer Science", 103ª edición, 2608-2614 (2007), la preparación de octa(aminopropilsilsequioxanos) con una estructura de jaula. En este caso se hidroliza por ejemplo el 3-aminopropiltriethoxisilano en una mezcla de acetonitrilo y 1-propanol en presencia de hidróxido de tetraetilamonio, siendo de 8,9 : 1 la relación molar de agua a silano, con el fin de preparar las deseadas estructuras de jaula.

El documento US-A 6.512.132 se refiere asimismo a un procedimiento para la preparación de materiales hidrolizados acuosos del 3-aminopropiltriethoxisilano. Es un objetivo asimismo la puesta a disposición de tales materiales hidrolizados, que en lo esencial están libres de disolventes orgánicos, en particular de alcoholes, y tienen una alta estabilidad en almacenamiento. La estabilidad en almacenamiento se determina por medición del índice colorimétrico después de un almacenamiento a lo largo de un período de tiempo definido. Según la enseñanza general del documento, la solución acuosa se prepara por reacción de 1 mol de un aminoalquilsilano con 1,5 - 10 moles de agua y separación por destilación del compuesto orgánico volátil, que se forma por la reacción de hidrólisis. En el concreto ejemplo de realización el 3-aminopropiltriethoxisilano se dispone previamente y se mezcla con agua. Según la enseñanza general la hidrólisis se lleva a cabo en un intervalo de temperaturas de 0 °C hasta 150 °C. Las concretas formas de realización no contienen ningún dato acerca de la temperatura de hidrólisis. Al contrario que en la enseñanza general, en el Ejemplo 2 el 3-aminopropiltriethoxisilano se conduce a través de agua en una relación molar de agua a silano de 12,4. Según la enseñanza del documento US 6.512.132 se obtienen ciertamente materiales hidrolizados acuosos de 3-aminoalquiltriethoxisilano en altas concentraciones en el orden de magnitud de 50 % en peso, que también están ampliamente libres del alcohol resultante por hidrólisis. No obstante, el procedimiento descrito conduce a un rendimiento de espacio/tiempo comparativamente bajo. Así, en el caso del modo de procedimiento según el documento US 6.512.132 constituye una gran desventaja el hecho de que un tal modo de preparación de los mencionados productos condiciona un largo período de tiempo de dosificación o respectivamente de agitación de la necesaria cantidad de agua, y además de ello durante el proceso de preparación aparecen regularmente fuertes floculaciones o respectivamente segregaciones unidas con un considerable aumento

de la viscosidad, lo cual tiene como consecuencia un esfuerzo para agitar durante más largo tiempo y con intenso consumo de energía, para la finalidad de conseguir una suficiente homogeneidad del producto. Además de ello, tales segregaciones pueden perturbar decisivamente en la práctica al funcionamiento de la producción por causa de deposiciones o taponamientos, unidos con los necesarios períodos de tiempo de parada para realizar medidas técnicas de limpieza.

En el comercio son obtenibles asimismo unos materiales hidrolizados acuosos de 3-aminopropilsilanos, tales como por ejemplo el Dynasylan® HYDROSIL 1151. Estas soluciones acuosas están asimismo ampliamente libres de disolventes orgánicos. El contenido de materiales sólidos de estas soluciones es sin embargo más bien pequeño y se sitúa en el intervalo de 20 % en peso. Con esta baja concentración en silano hidrolizado de los productos comerciales están vinculadas diversas desventajas. Éstas son en particular costos de transporte elevados, puesto que se transporta mucha cantidad de agua y poca cantidad de sustancia activa. Por lo demás las soluciones diluidas se congelan con pocos grados negativos, de manera tal que en el caso de bajas temperaturas exteriores resultan altos costos de transporte mediante el necesario transporte de calor. Los productos diluidos contienen mucha cantidad de agua y por consiguiente no se pueden emplear en un uso en el que son desventajas unas altas cantidades de agua. Por lo demás, con unas soluciones diluidas no se pueden formular concentrados de ningún tipo.

Es misión del presente invento, por lo tanto, poner a disposición un procedimiento especial, lo más rentable que sea posible, que, en comparables condiciones instrumentales, en el caso de unos rendimientos de espacio/tiempo por lo menos comparativamente altos o mejores conduzca a unos materiales hidrolizados más altamente concentrados de aminoalquiltrialcoxisilanos, es decir a un más alto contenido de materiales sólidos, y una composición obtenida de esta manera esté simultáneamente en lo esencial libre de disolventes orgánicos, es decir en particular que tenga un VOC (acrónimo de Volatile Organic compounds = compuestos orgánicos volátiles) lo más pequeño que sea posible.

En lo sucesivo los citados aminoalquiltrialcoxisilanos se denominarán también silanos hidrolizables o brevemente silanos.

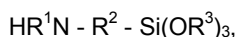
El problema planteado por esta misión se resolvió de un modo sorprendente por medio de un especial procedimiento para la preparación de materiales hidrolizados acuosos de aminoalquiltrialcoxisilanos, mediante

- (a) disposición previa de agua, opcionalmente calentamiento,
 - (b) adición de unos silanos hidrolizables que se componen de por lo menos un aminoalquiltrialcoxisilano en una cantidad, que pone a disposición una relación molar de agua a la cantidad total de aminoalquiltrialcoxisilano de 10,5 hasta 20 por 1, y
 - (c) separación por destilación del alcohol alquílico formado en la reacción,
- consiguiéndose de manera ventajosa un contenido de materiales sólidos en una solución acuosa obtenible de esta manera (seguidamente designada también como una composición acuosa o abreviadamente composición) de 30 hasta 55 % en peso, referido a la composición, al mismo tiempo que un rendimiento de espacio/tiempo comparativamente alto en condiciones de ensayo instrumentales comparables y un contenido de VOC extremadamente pequeño. De esta manera se hicieron posibles en particular, en base al presente modo de trabajo, unos períodos de tiempo de dosificación más cortos así como unos períodos de tiempo de agitación más cortos y menos intensos, y consiguiéndose por consiguiente no en último término, en un modo ahorrativo de energía, un manifiesto mejoramiento de la rentabilidad. Además de ello en el caso del modo de trabajo según el invento ya no aparecen tampoco precipitaciones de ningún tipo durante el proceso de preparación, con lo que se pudo reducir el peligro de deposiciones o taponamientos en la instalación de producción y se pudieron disminuir manifiestamente los períodos de tiempo de parada.

Es objeto del presente invento por consiguiente un procedimiento para la preparación de materiales hidrolizados acuosos de aminoalquiltrialcoxisilanos, mediante

- (a) disposición previa de agua, opcionalmente calentamiento,
 - (b) adición de unos silanos hidrolizables que se componen de por lo menos un aminoalquiltrialcoxisilano en una cantidad, que pone a disposición una relación molar de agua a la cantidad total de aminoalquiltrialcoxisilano de 10,5 hasta 20 por 1, y
 - (c) separación por destilación del alcohol alquílico formado en la reacción,
- siendo de 30 hasta 55 % en peso el contenido de materiales sólidos en una composición acuosa preparada de esta manera, referido a la composición, teniendo la solución acuosa un contenido total de alcohol alquílico libre y combinado menor que o igual a 1 % en peso, referido a la composición.

Los aminoalquiltrialcoxisilanos, que son apropiados para el empleo según el presente invento, pueden ser escogidos entre compuestos de la fórmula general



en la que

R^1 se selecciona entre H o un grupo alquilo de $\text{C}_1 - \text{C}_4$;

R^2 se selecciona entre un grupo alquilo de $\text{C}_1 - \text{C}_4$ bivalente; y

R^3 se selecciona entre un grupo alquilo de $\text{C}_1 - \text{C}_3$.

R¹ es de manera preferida hidrógeno. R² es de manera preferida un grupo propilo bivalente $[-(\text{CH}_2)_3-]$. R³ se escoge de manera preferida entre metilo y etilo.

Unos aminoalquiltrialcoxisilanos especialmente preferidos son el 3-aminopropiltriétoxisilano o el 3-aminopropiltrietoxisilano o unas mezclas de los mismos, siendo el más preferido el 3-aminopropiltriétoxisilano.

En el procedimiento según el invento para la preparación de materiales hidrolizados acuosos de aminotrialcoxisilanos el agua que se requiere para la hidrólisis se dispone previamente y se añaden los silanos hidrolizables, que se componen de por lo menos un aminoalquiltrialcoxisilano. Es esencial para el invento en el presente caso el hecho de que las cantidades de aminoalquiltrialcoxisilano y de agua se escogen de tal manera que, después de una adición completa de los aminoalquiltrialcoxisilanos al agua que se ha dispuesto previamente, se pone a disposición una relación molar de agua a la cantidad total de aminoalquiltrialcoxisilanos de 10,5 hasta 20 por 1, en particular de 11 hasta 18 por 1, inclusive 12:1, 13:1, 14:1, 15:1, 16:1, 17:1.

Un objetivo del presente invento es poner a disposición una solución acuosa de aminoalquiltrialcoxisilanos, que esté en lo esencial libre del disolvente orgánico, en particular del alcohol que se ha puesto en libertad al realizar la hidrólisis, y que ni siquiera después de una eventual dilución con agua no ponga en libertad ningún disolvente orgánico, en particular el alcohol formado por la hidrólisis. "En lo esencial libre" en el sentido del presente invento significa que la solución acuosa obtenida tiene un contenido de disolventes orgánicos, en particular un contenido total de alcohol alquílico libre y de alcohol alquílico combinado, que se podría poner en libertad por hidrólisis, menor o igual que 1 % en peso, referido a la composición, de manera preferida menor o igual que 0,7 % en peso hasta llegar al límite de detección, medido después de la hidrólisis con ácido sulfúrico de una muestra de las soluciones acuosas y de la subsiguiente neutralización con una solución acuosa de carbonato de sodio mediante una cromatografía de gases (para una prescripción exacta para la medición del contenido total de alcohol alquílico véanse los ejemplos).

Se ha puesto de relieve, de un modo sorprendente que, en el procedimiento según el invento, el aminoalquiltrialcoxisilano de partida, ya después de unos períodos de tiempo de adición o respectivamente de dosificación o de agitación en la etapa (b) del procedimiento, está hidrolizado esencialmente por completo y no aparecen precipitaciones de ningún tipo. En particular después de la terminación de la adición del aminoalquiltrialcoxisilano no es necesario ningún período de tiempo adicional de reacción para alcanzar los valores más arriba indicados de alcohol alquílico total e, inmediatamente después de la terminación de la adición, se puede empezar con la separación por destilación del alcohol alquílico formado en la reacción (etapa (c)). De esta manera se pueden conseguir, en comparación con el estado de la técnica en comparables condiciones instrumentales, unos rendimientos de espacio/tiempo (RZA, acrónimo de Raum/Zeit Ausbeute) manifiestamente mejorados en el procedimiento según el invento, con lo que se puede mejorar manifiestamente la rentabilidad de un procedimiento para la preparación de materiales hidrolizados acuosos de aminoalquiltrialcoxisilanos, sin que con ello se empeoren las propiedades como productos de las soluciones acuosas obtenidas.

De esta manera, el intervalo de tiempo entre la terminación de la adición de los aminoalquiltrialcoxisilanos y el comienzo de la separación por destilación del alcohol alquílico puede ser menor que 5 minutos después de haberse alcanzado las condiciones de destilación preferidas o respectivamente necesarias, es decir en particular después de haber ajustado la presión y la temperatura en la unidad de reacción/destilación, de manera preferida menor que 3 minutos, de manera especialmente preferida menor que 1 minuto, en particular sin más retraso en la producción, [seguidamente también de manera abreviada min = minuto(s) así como h = hora(s)].

De manera preferida la temperatura interior en el reactor al comienzo de la adición de los aminoalquiltrialcoxisilanos en la etapa (b) es de 25 °C hasta 50 °C, de manera especialmente preferida de 30 °C hasta 45 °C. Puesto que la reacción de hidrólisis de un aminoalquiltrialcoxisilano es exotérmica, la mezcla de reacción se calienta al añadir los aminoalquiltrialcoxisilanos al agua previamente dispuesta. Por lo tanto se ha manifestado como ventajoso ajustar la duración de la adición en la etapa (b) de tal manera que la temperatura interior en el reactor al haberse terminado la adición del aminoalquiltrialcoxisilano en la etapa (b) sea de 50 °C hasta 80 °C, de manera preferida de 55 °C hasta 70 °C, de manera especialmente preferida de 55 °C hasta 65 °C. La duración de la adición del aminoalquiltrialcoxisilano en la etapa (b) es por lo tanto de manera preferida de 20 hasta 240 min, de manera especialmente preferida de 30 hasta 120 min, de manera particularmente preferida de 35 hasta 90 min y de la manera más preferida de 40 hasta 60 min.

Después de la terminación de la reacción de hidrólisis, el alcohol alquílico formado en la reacción se separa por destilación según la etapa (c) del procedimiento según el invento. Después de la separación por destilación del alcohol alquílico formado, el contenido de alcohol alquílico libre debería ser menor o igual que 1 % en peso, de manera preferida menor o igual que 0,7 % en peso, medido mediante cromatografía de gases (la prescripción exacta para la medición del alcohol alquílico libre véanse los ejemplos). De manera preferida, el alcohol resultante mediante la hidrólisis se separa por destilación bajo presión reducida. Un apropiado intervalo de presiones para la destilación en vacío es de 80 hasta 400 mbar, de manera preferida de 100 hasta 350 mbar a una temperatura de 30 °C hasta 70 °C, de manera preferida de 35 °C hasta 60 °C. Para el ajuste de la concentración deseada de la solución acuosa obtenida como producto de reacción o respectivamente para el ajuste de la viscosidad de la solución acuosa, la

cantidad de alcohol alquílico separado por destilación, o respectivamente de la mezcla de agua y alcohol alquílico, se puede reemplazar por lo menos parcialmente por agua.

Mediante el procedimiento según el invento se obtiene una solución acuosa de un material hidrolizado de silanos hidrolizables, que se compone de por lo menos un aminoalquiltrialcoxisilano, que tiene una alta proporción de materiales sólidos, situada en el intervalo de 45 hasta 55 % en peso, medida según la norma DIN 38409-H1-1.

En el caso de las soluciones acuosas según el invento se trata de soluciones acuosas ópticamente transparentes, en lo esencial incoloras. En particular se ha mostrado de modo sorprendente que las soluciones según el invento son incoloras también después de un prolongado almacenamiento.

Por consiguiente las soluciones según el invento son apropiadas en particular para unos usos, en cuyos casos es indeseado, que por medio de soluciones acuosas de materiales hidrolizados de aminoalquiltrialcoxisilano se altere el color del sistema. Esto concierne en particular a la utilización de la solución acuosa según el invento en sistemas de resinas o barnices, en particular en sistemas incoloros de resinas o barnices.

Por lo demás, las soluciones según el invento son ópticamente transparentes y tienen de manera preferida un valor de la turbiedad de 5 FNU o menos, de manera especialmente preferida de 3 FNU o menos, en particular de 2 FNU o menos y de la manera más preferida de 1 FNU o menos, medido según la norma ISO 7027.

Las soluciones acuosas según el invento resultan, en el caso del procedimiento según el invento, de manera ventajosa con un contenido de materiales sólidos de 30 hasta 55 % en peso, referido a la composición, de manera preferida de 40 hasta 55 % en peso, de manera especialmente preferida de 44 hasta 54 % en peso, en particular de 50 hasta 53 % en peso.

Debido a la alta concentración de materiales sólidos, las soluciones acuosas según el invento tienen numerosas ventajas en comparación con los conocidos productos comerciales. Así las soluciones acuosas tienen un punto de congelación comprendido en el intervalo de -7 °C hasta -18 °C, de manera preferida de -9 °C hasta -17 °C, de manera especialmente preferida entre -10 °C y -16 °C, a una presión de 1 atm. Esto quiere decir que las soluciones según el invento son manifiestamente más resistentes a las heladas y no deben ser transportadas a unas temperaturas correspondientemente bajas en transporte de calor, con lo que los costos de la energía se pueden reducir todavía una vez más.

Por lo demás, mediante el alto contenido de materiales sólidos se reducen manifiestamente los costos de transporte, referidos a la masa del material hidrolizado de aminoalquiltrialcoxisilano. Por lo demás las soluciones acuosas según el invento son especialmente apropiadas para la preparación de concentrados, puesto que en comparación con los productos obtenibles comercialmente se introduce manifiestamente menos cantidad de agua.

En general el procedimiento según el invento se puede llevar a cabo de la siguiente manera:

En un equipo apropiado, que se compone por ejemplo de un reactor con dispositivos de dosificación y retirada, un dispositivo de calentamiento/refrigeración inclusive una unidad de medición y regulación así como un refrigerador de reflujo, una unidad de mezclado, una unidad de destilación inclusive un dispositivo de reducción de la presión, se dispone previamente el agua, se calienta opcionalmente a la deseada temperatura, de manera preferida a una temperatura de 25 hasta 50 °C, en particular a una temperatura situada en el intervalo de 30 hasta 45 °C, y se dosifica mediando mezclado a fondo el aminoalquiltrialcoxisilano en una cantidad que corresponde a la relación molar del agua a la cantidad total de aminoalquiltrialcoxisilano de 10,5 hasta 20 por 1. En tal caso se trabaja de modo apropiado bajo un gas protector, por ejemplo bajo nitrógeno. A continuación, se separa por destilación el alcohol alquílico formado en el caso de la reacción y se obtiene el producto del procedimiento.

Las soluciones acuosas obtenidas según el invento - opcionalmente también después de una dilución, por ejemplo con agua VE (acrónimo de voll entsaltzen = totalmente desalinizada - encuentran utilización de manera ventajosa para el revestimiento de fibras de vidrio o lana de roca, para la silanización de materiales de carga y relleno, como agente mediador de adherencia, en particular para el mejoramiento de la adherencia de polímeros orgánicos a superficies inorgánicas, para la preparación de concentrados protectores contra la corrosión, para la modificación de sistemas de resinas, en particular de resinas de aminoplastos y formaldehído o de resinas fenólicas, para el mejoramiento de las propiedades reológicas en particular de dispersiones y suspensiones acuosas de polímeros, como agente reticulante o como agente modificador para pinturas y barnices.

El presente invento se explica seguidamente con más detalle haciendo referencia a los ejemplos de realización anejos, sin limitar a ellos el objeto del invento:

Ejemplos:

Los métodos de medición para la caracterización de las propiedades de las soluciones acuosas, que se preparan de acuerdo con el procedimiento según el invento, tal como se indican en la memoria descriptiva, los ejemplos y las reivindicaciones, se llevaron a cabo como sigue:

Material sólido El contenido de materiales sólidos se determinó según la norma DIN 38409-H1-1.

[% en peso]

SiO₂ La determinación de SiO₂ se llevó a cabo tal como se describe seguidamente: 1 g de una muestra se pesó inicialmente en un vaso de precipitados con una capacidad de 250 ml. Se añadieron una tableta de Kjeldahl (Merck N° 15348) y 20 ml de ácido sulfúrico concentrado. La solución se calentó lentamente hasta que se formasen vapores de SO₃. Después de haber enfriado, la solución se diluyó cuidadosamente con agua destilada hasta dar 200 ml. El ácido silícico precipitado se filtró a través de un papel de filtro de cinta blanca. El residuo que quedaba en el filtro se lavó con agua destilada hasta la neutralidad del material filtrado (pH > 4). El papel de filtro se secó e incineró en un crisol de platino. El residuo se quemó a 800 °C y se pesó. Después de un tratamiento con ácido fluorhídrico concentrado, el residuo se quemó a 800 °C y se pesó nuevamente.

[% en peso]

SiO₂ [% en peso] = 100 m/E

m = diferencia de pesos antes y después del tratamiento con ácido fluorhídrico en g

E = peso de la muestra en g.

Viscosidad Determinación según la norma DIN 53015

(a 20 °C)

[mPas]

Densidad Determinación según la norma DIN 51757

(a 20 °C)

[g/ml]

Índice de Determinación según la norma DIN 51423

refracción

(a 20 °C)

Turbiedad Determinación según la norma ISO 7027

[FNU]

Alcohol total La determinación del alcohol total se llevó a cabo tal como seguidamente se describirá: Se pesaron inicialmente 5 g de una muestra en un matraz y se hidrolizaron con 25 ml de ácido sulfúrico (al 20 %). Después de haber añadido 75 ml de agua destilada, se neutralizó la solución con una solución de carbonato de sodio (al 20 %) y a continuación se sometió a una destilación con vapor de agua. El material destilado se recogió en un matraz con una capacidad de 250 ml. Correspondientemente al contenido de alcohol que se había de esperar se añadieron hasta 3 ml de sec.-butanol y el matraz se rellenó con agua destilada hasta la marcación. Los alcoholes se analizaron cuantitativamente mediante una cromatografía de gases mediando utilización de una columna capilar con FID (acrónimo de flame ionisation detector = detector de ionización de llama) y correspondiente tratamiento de datos (HP 7820 con OpenLab). Se utilizaron soluciones de los alcoholes que se habían de esperar y de sec. butanol con finalidades de calibración. El sec. butanol sirvió como patrón interno. El contenido de alcohol total determinado de esta manera en la muestra incluye la proporción de alcohol libre y combinado en forma de grupos alcoxi hidrolizables.

Alcohol La determinación de la proporción de alcohol libre se llevó a cabo tal como seguidamente se describirá: 2 g de una muestra y 50 mg de 2-butanol como patrón interno se disuelven en 10 g de agua VE. Esta solución se analiza mediante cromatografía de gases mediando utilización de una columna capilar con TCD (acrónimo de thermal conductivity detector = detector de conductividad térmica) y correspondiente tratamiento de datos (HP 7820 con OpenLab). La calibración se efectúa con una solución de 50 mg del alcohol relevante y 50 mg del patrón interno utilizado en 10 g del disolvente utilizado.

[% en peso]

El rendimiento de espacio-tiempo (RZA), indicado en los ejemplos, se calcula como sigue:

5

$$RZA = \frac{\text{Rendimiento calculado como silicio (Si) en [g]}^1}{(\text{volumen de eductos}) [l]^2 \times \text{período de tiempo de preparación [h]}^3}$$

10

¹⁾ Rendimiento (Si) = rendimiento [g] x w(Si) en % x 0,01

En tal caso se calculó "(Si)" o respectivamente "w(Si)" sobre la base de la respectiva determinación de SiO₂.

15

²⁾ Como eductos se designan las cantidades previamente dispuestas de agua o respectivamente de 3-aminopropiltrietoxisilano (AMEO) y las cantidades añadidas dosificadamente de AMEO o respectivamente de agua. La densidad de los eductos empleados se supuso simplíficadamente como de 1,0 g/ cm³. Por consiguiente el volumen de los eductos se calcula a partir del cociente de Σ(m_{eductos}) y de la densidad de 1,0 g/cm³.

³⁾ Período de tiempo de preparación = período de tiempo a partir del comienzo de la reacción (adición gota a gota de AMEO o respectivamente agua) hasta el final de la destilación

Ejemplo 1:

5 En un matraz de cuatro bocas con una capacidad de 2 l, provisto de un agitador de KPG (acrónimo de Kalibriertes Präzisions Glas = vidrio de precisión calibrado), un embudo de goteo, un puente de destilación, un refrigerador intensivo, una bomba de aceite con distribuidor rotatorio, un termómetro de sumidero, un termómetro de cabeza y un baño de aceite con regulación de la temperatura, se dispusieron previamente 800,0 g (44,4 moles) de agua VE
10 mediando superposición de N₂ y se calentaron con el baño de aceite a una temperatura de sumidero de 40,7 °C. Después de la retirada del baño de aceite se añadieron gota a gota sin más calentamiento en el transcurso de 44 min 800,0 g (3,61 moles) de Dynasylan® AMEO. La temperatura de sumidero subió en tal caso hasta 57,5 °C. Resultó en tal caso durante aprox. 6 min una turbiedad mínima, seguidamente la fracción de sumidero era transparente e incolora. Después de haberse terminado la adición gota a gota se aplicó inmediatamente un vacío. En el caso de un vacío de 304 hasta 122 mbar, una temperatura del baño de 105°C hasta 115 °C, una temperatura
15 de sumidero de 46,3 °C hasta 50,7 °C, una temperatura de cabeza de 44,4 °C hasta 49,4 °C se separaron por destilación en el transcurso de 2,3 h 842,7 g de etanol/agua (alcohol de hidrólisis + 73 %). Después de que se hubieron separado por destilación 500 g, se comenzaron a añadir gota a gota 579,2 g de agua VE hasta el final de la destilación. Durante la reacción y la destilación no se llegó a ninguna precipitación ni a ningún fuerte aumento de la viscosidad. Después de haberse terminado la destilación, se aireó con nitrógeno.

20

El rendimiento fue de 1.320,22 g de un producto incoloro y transparente.

El rendimiento de espacio-tiempo fue de

21,3 [g de (Si) / (l·h)].

Contenido de materiales sólidos

30,7 % en peso

Alcohol total

0,7 % en peso

Los datos analíticos del producto obtenido se comparan recopilativamente de nuevo en la Tabla 1.

Ejemplo comparativo 1: (compárese el Ejemplo 2 del documento US 6.512.132)

25 En un matraz de cuatro bocas con una capacidad de 2 l, provisto de un agitador de KPG, un embudo de goteo, un puente de destilación, un refrigerador intensivo, una bomba de aceite con distribuidor rotatorio, un termómetro de sumidero, un termómetro de cabeza y un baño de aceite con regulación de la temperatura, se dispusieron previamente 800,0 g (3,61 moles) de Dynasylan® AMEO mediando superposición de N₂ y se calentaron con el baño de aceite a una temperatura de sumidero de 41,4 °C. Después de la retirada del baño de aceite, se añadieron gota a
30 gota sin más calentamiento en el transcurso de 2 h 800,0 g (44,4 moles) de agua VE. La temperatura de sumidero subió en tal caso hasta 65,4 °C y era reconocible una fuerte exotermia. Resultó en tal caso a lo largo de un período de tiempo de aprox. 8 min. una fuerte precipitación, con copos blancos, en parte grandes. A continuación, la fracción de sumidero era transparente e incolora. Después de haberse terminado la adición gota a gota, se aplicó inmediatamente un vacío. En el caso de un vacío de 204 hasta 198 mbar, una temperatura del baño de 109 °C hasta
35 111 °C, una temperatura de sumidero de 46,8 °C hasta 59,9 °C, una temperatura de cabeza de 42,8 °C hasta 51,3 °C, se separaron por destilación en el transcurso de 2 h 701,6 g de etanol/agua (alcohol de hidrólisis + 40 %). Después de haber enfriado a aprox. 38 °C se aireó con nitrógeno y el producto se diluyó en el transcurso de aprox. 15 min con 435,6 g de agua VE y de esta manera se ajustó a un contenido de sustancia activa de 60 %.

40

El rendimiento fue de 1.324,4 g de un producto incoloro y transparente.

El rendimiento de espacio-tiempo fue de

11,2 [g de (Si) / (l·h)].

Contenido de materiales sólidos

30,8 % en peso

Alcohol total

1,4 % en peso

Los datos analíticos del producto obtenido se comparan recopilativamente de nuevo en la Tabla 1.

Ejemplo 2:

En un matraz de cuatro bocas con una capacidad de 2 l, provisto de un agitador de KPG, un embudo de goteo, un puente de destilación, un refrigerador intensivo, una bomba de aceite con distribuidor rotatorio, un termómetro de
45 sumidero, un termómetro de cabeza y un baño de aceite con regulación de la temperatura, se dispusieron previamente 800,0 g (44,4 moles) de agua VE mediando superposición de N₂ y se calentaron con el baño de aceite a una temperatura de sumidero de 40,2 °C. Después de la retirada del baño de aceite se añadieron gota a gota sin más calentamiento, en el transcurso de 40 min 800,0 g (3,61 moles) de Dynasylan® AMEO. La temperatura de sumidero subió en tal caso hasta 58,2 °C. Resultó en tal caso una turbiedad mínima, que desapareció después de
50 haberse terminado la adición gota a gota, la fracción de sumidero era incolora y transparente. Seguidamente se aplicó inmediatamente un vacío. En el caso de un vacío de 326 hasta 101 mbar, una temperatura del baño 108 °C hasta 110 °C, una temperatura de sumidero de 48,4 °C hasta 52,9 °C, una temperatura de cabeza de 46,7 °C hasta 49,6 °C se separaron por destilación en el transcurso de 2,4 h 872,0 g de etanol/agua (alcohol de hidrólisis + 73 %). Después de que se hubieron separado por destilación 700 g, se añadieron gota a gota en el transcurso de 10 min
55 46,9 g de agua VE para la dilución. La fracción de sumidero era, al final de la destilación, viscosa, pero todavía buena para ser agitada. Después del enfriamiento, la instalación se aireó con nitrógeno.

El rendimiento fue de 762,9 g de un producto incoloro y transparente.

El rendimiento de espacio-tiempo fue de	21,1 [g de (Si) / (lxh)].
Contenido de materiales sólidos	52,8 % en peso
Alcohol total	0,2 % en peso

Los datos analíticos del producto obtenido se comparan recopilativamente de nuevo en la Tabla 1

Ejemplo comparativo 2: (compárese el Ejemplo 1 del documento US 6.512.132)

5 En un matraz de cuatro bocas con una capacidad de 2 l, provisto de un agitador de KPG, un embudo de goteo, un puente de destilación, un refrigerador intensivo, una bomba de aceite con distribuidor rotatorio, un termómetro de sumidero, un termómetro de cabeza y un baño de aceite con regulación de la temperatura, se dispusieron previamente 1.000,0 g (4,52 moles) de Dynasylan® AMEO mediando superposición de N₂ y se calentaron con el baño de aceite a una temperatura de sumidero de 40,1 °C. Después de la retirada del baño de aceite, se añadieron gota a gota sin más calentamiento en el transcurso de 1,25 h 500,0 g (27,8 moles) de agua VE. La temperatura de sumidero subió en tal caso hasta 65,5 °C y era reconocible una fuerte exoterminia. Resultó en tal caso, a lo largo de un período de tiempo de aprox. 18 min., una fuerte precipitación, con copos blancos, en parte grandes. Después de haberse terminado la adición gota a gota, se aplicó inmediatamente un vacío. En el caso de un vacío de 216 hasta 205 mbar, una temperatura del baño 108 °C hasta 113 °C, una temperatura de sumidero de 46,9 °C hasta 52,9 °C, una temperatura de cabeza de 42,6 °C hasta 48,3 °C, se separaron por destilación en el transcurso de 1,65 h 703,4 g de etanol/agua (alcohol de hidrólisis + 20 %). Durante la destilación se llegó a un aumento muy fuerte de la temperatura. En tal caso la fracción de sumidero ya no era apta para agitarse. La fracción de sumidero era sólida (contenido de sustancia activa 125,5 %). Se aireó inmediatamente con nitrógeno y la fracción de sumidero se mezcló con 250,4 g de agua VE. Con el fin de obtener el material sólido nuevamente en forma de una solución se sacudió el matraz durante 5,25 h en la máquina sacudidora RO 10. Después de ello la fracción de sumidero estaba casi completamente de nuevo en forma de una solución. Solamente junto a la pala de agitación estaba presente todavía alguna cantidad de material sólido.

El rendimiento fue de 1.037,6 g de un producto incoloro y transparente.

25 El rendimiento de espacio-tiempo es de 11,7 g de Si / (lxh).	
El rendimiento de espacio-tiempo fue de	11,7 [g de (Si) / (lxh)].
Contenido de materiales sólidos	48,6 % en peso
Alcohol total	6,5 % en peso

Los datos analíticos del producto obtenido se comparan recopilativamente de nuevo en la Tabla 1

Ejemplo 3:

30 En un matraz de cuatro bocas y doble envoltura con una capacidad de 8 l, provisto de un agitador de KPG, un embudo de goteo, un puente de destilación, una columna con 4 empaquetaduras de Sulzer EX L = 5 cm, B = 4 cm (platos teóricos con un grado medio de carga de 13 - 20), un refrigerador intensivo, una bomba de aceite con distribuidor rotatorio, un termómetro de sumidero, un termómetro de cabeza, un termostato, una bomba de dosificación Prominent Gamma 4 se dispusieron previamente 3.401,8 g (188,8 moles) de agua VE mediando superposición de N₂ y con el termostato se calentaron a una temperatura de sumidero de 40,0 °C. A esta temperatura de sumidero (temperatura del baño 60 °C) se añadieron dosificadamente luego en el transcurso de 1 h 3.400,1 g (15,4 moles) de Dynasylan® AMEO a través de una bomba de dosificación. La temperatura de sumidero subió en tal caso hasta 63,9 °C. La fracción de sumidero permaneció en el presente caso incolora y transparente. Seguidamente se aplicó inmediatamente un vacío. En el caso de un vacío de 106 hasta 105 mbar, una temperatura de termostato de 96,8 °C hasta 105 °C, una temperatura de sumidero de 37,8 °C hasta 47,7 °C, una temperatura de cabeza de 36,6 °C hasta 46,9 °C, se separaron por destilación en el transcurso de 4,75 h 3.719,3 g de etanol/agua (alcohol de hidrólisis + 75 %). Después de que se hubieron separado por destilación aprox. 1.348,71 g, se añadieron gota a gota durante la destilación en el transcurso de 2,5 h en total 782,9 g de agua VE para la dilución. La fracción de sumidero era, durante y hacia el final de destilación, incolora y transparente, no viscosa. No hubo ningún tipo de precipitaciones y deposiciones junto al borde del matraz. Después del enfriamiento se aireó la instalación con nitrógeno.

El rendimiento fue de 3.897,2 g de un producto incoloro y transparente.

El rendimiento de espacio-tiempo fue de	12,0 [g de (Si) / (lxh)].
Contenido de materiales sólidos	44,7 % en peso
Alcohol total	0,3 % en peso

Los datos analíticos del producto obtenido se comparan recopilativamente de nuevo en la Tabla 1

Ejemplo comparativo 3:

50 En un matraz de cuatro bocas y doble envoltura con una capacidad de 8 l, provisto de un agitador de KPG, un embudo de goteo, un puente de destilación, una columna con 4 empaquetaduras de Sulzer EX L = 5 cm, B = 4 cm (platos teóricos con un grado medio de carga 13 hasta 20), un refrigerador intensivo, una bomba de aceite con distribuidor rotatorio, un termómetro de sumidero, un termómetro de cabeza, un termostato, una bomba de dosificación de Prominent Gamma 4 se dispusieron previamente 3.406,5 g (15,4 moles) de Dynasylan® AMEO mediando superposición de N₂ y con el termostato se calentaron a una temperatura de sumidero de 39,9 °C se

calentó. A esta temperatura de sumidero (temperatura del baño 60 °C) se añadieron dosificadamente luego en el transcurso de 2,75 h 3.400,5 g (188,8 moles) de agua VE a través de una bomba de dosificación. La temperatura de sumidero subió en tal caso hasta 72,7 °C. Era reconocible unas exotermia muy fuerte. Después de que se hubieron añadido dosificadamente 225 ml de agua VE, se formaron copos blancos y deposiciones junto al borde del matraz.

5 La fracción de sumidero era de color blanco lechoso. Después de otros 7 min (en total 300 ml de agua VE) los copos y las turbiedades estaban de nuevo en forma de una solución, la fracción de sumidero permaneció seguidamente incolora y transparente. Después de que se hubo añadido dosificadamente toda el agua VE, se aplicó inmediatamente un vacío. En el caso de un vacío de 107 hasta 100 mbar, una temperatura de termostato de 81 °C hasta 105 °C, una temperatura de sumidero de 37,8 °C hasta 47,7 °C, una temperatura de cabeza de 35,2 °C hasta

10 50,9 °C, se separaron por destilación en el transcurso de 5,6 h 3.820,3 g de etanol/agua (colector previo + trampa de frío) (alcohol de hidrólisis + 80 %). Después de que se hubieron separado por destilación aprox. 1.632,4 g, aparecieron junto al borde del matraz unas deposiciones gelatinosas, que se enriquecieron aún más durante la destilación. La fracción de sumidero era, después del final de la destilación viscosa, incolora y transparente (viscosidad -3.000 mPa*s medición a partir del ensayo IL/V180/12-43). Después del final de la destilación se diluyó la

15 fracción de sumidero en el transcurso de 5 min con 884,45 g de agua VE a un contenido de sustancia activa de 88 % y el conjunto total se siguió agitando durante aprox. 30 min a 48,5 °C hasta 41,3 °C. El gel procedente del borde del matraz todavía no se había disuelto todavía. Después del enfriamiento se aireó la instalación con nitrógeno.

El rendimiento fue de 3.761,5 g de un producto incoloro y transparente.

El rendimiento de espacio-tiempo fue de	6,3	[g de (Si) / (lxh)].
Contenido de materiales sólidos	45,0	% en peso
Alcohol total	0,1	% en peso

20 Los datos analíticos del producto obtenido se comparan recopilativamente de nuevo en la Tabla 1

Ejemplo comparativo 4: (compárese el Ejemplo 1 del documento EP1031593A2)

En un matraz de cuatro bocas con una capacidad de 4 l, provisto de un agitador de KPG, un embudo de goteo, un puente de destilación, un refrigerador intensivo, una bomba de aceite con distribuidor rotatorio, un termómetro de sumidero, un termómetro de cabeza y un baño de aceite con regulación de la temperatura, se dispusieron

25 previamente 1.250,0 g (69,4 moles) de agua VE mediando superposición de N₂. A continuación se añadió gota a gota en el transcurso de 35 minutos una mezcla de 480,0 g (2,17 moles) de Dynasylan® AMEO y 120,0 g (0,46 moles) de AMEO-Hochsieder a través del dispositivo de dosificación (AMEO Hochsieder es una mezcla de Dynasylan® AMEO y aprox. 20% de bis-AMEO). En tal caso la temperatura de sumidero sube desde temperatura ambiente hasta 50°C. La tanda se agitó durante 3 h a 50°C. A una presión absoluta de 130 mbar hasta 100 mbar se separan por destilación a una temperatura de sumidero de 39°C hasta 41°C 450 g de una mezcla de etanol / agua

30 en aprox. 1,3 h. El producto final se ajusta al final con agua a un peso de 1.500 g.

El rendimiento fue de 1.500,0 g de un producto incoloro ligeramente turbio.

El rendimiento de espacio-tiempo fue de	7,2	[g de (Si) / (lxh)].
Contenido de materiales sólidos	20,1	% en peso
Alcohol total	no se	determinó

35 Los datos analíticos del producto obtenido se comparan recopilativamente de nuevo en la Tabla 1

Tabla 1: Comparación de los datos analíticos del producto obtenido a partir de los ejemplos

	B 1	VB 1	B 2	VB 2	B 3	VB 3	VB 4
Relación de las sustancias empleadas agua a "componente de silano"	12,3:1	12,3:1	12,3:1	6,2:1	12,2:1	12,3:1	26,4:1
Contenido de materiales sólidos en el producto [% en peso]	30,7	30,8	52,8	48,6	44,7	45,0	20,1
Contenido de SiO ₂ en el producto [% en peso]	16,4	16,4	28,6	26,2	21,3	21,8	9,3
Viscosidad (a 20 °C) [mPas]	10,6	11,0	550	267	80,3	92	n.d.
Turbiedad [FNU]	0,74	0,9	1,9	0,5	0,3	1,3	4
Etanol total (después de hidrólisis) [% en peso]	0,7	1,4	0,2	6,5	0,3	0,1	n.d.
Etanol libre en el producto [% en peso]	0,7	1,4	0,2	5,9	0,3	0,1	n.d.
Índice colorimétrico [mg de Pt-Co/l]	<5	<5	<5	<5	<5	<5	n.d.
rendimiento de espacio-tiempo g de (Si) / (lxh)	21,3	11,2	21,1	11,7	12,0	6,3	7,2

Recopilación de los resultados de los ensayos:

Los ejemplos B1, VB1, B2 y VB2, compárese la Tabla 1, se llevan a cabo en condiciones instrumentales comparables. En el caso del modo de procedimiento según el invento el RZA y por consiguiente la rentabilidad se sitúan manifiestamente más altos en comparación con los/las según el documento US 6.512.132. Además en el VB2 resulta un producto con un contenido total de etanol manifiestamente más alto.

También los ejemplos B3 y VB3, con respecto a las premisas instrumentales pueden servir para una comparación de los RZA. Así el ejemplo 3, llevado a cabo según el invento, tiene, en comparación con el ejemplo comparativo 3, una

rentabilidad manifiestamente mejor, como se demuestra con ayuda de los RZA. También el valor de la turbiedad en el producto procedente del VB3 se sitúa manifiestamente por encima del procedente del B3.

5 El ejemplo comparativo 4 (VB4) corresponde a la enseñanza según el ejemplo 1 del documento EP1031593A2), en tal caso se consigue solamente un contenido de materiales sólidos de 20 % en peso.

Por lo demás, los períodos de tiempo de dosificación y/o de agitación en VB1, VB2, VB3 o VB4 son manifiestamente más largos que en los ejemplos B1, B2 y B3 según el invento.

10 Además de ello los productos según el invento de B1, B2 y B2 tienen un alto contenido de materiales sólidos y un contenido bajo (en forma de etanol total) ecológicamente ventajoso, lo cual constituye una medida de la compleción de la reacción de hidrólisis y por consiguiente no en último término – junto a la especial rentabilidad del procedimiento según el invento - también una medida de su calidad.

15

REIVINDICACIONES

1. Un procedimiento para la preparación de materiales hidrolizados acuosos de aminoalquiltrialcoxisilanos mediante
 - (a) disposición previa de agua, opcionalmente calentamiento,
 - (b) adición de unos silanos hidrolizables que se componen de por lo menos un aminoalquiltrialcoxisilano en una cantidad, que pone a disposición una relación molar de agua a la cantidad total de aminoalquiltrialcoxisilano de 10,5 hasta 20 por 1, y
 - (c) separación por destilación del alcohol alquílico formado en la reacción,
 siendo el contenido de materiales sólidos en una composición acuosa preparada de esta manera de de 30 hasta 55 % en peso, referido a la composición, teniendo la solución acuosa un contenido total de alcohol alquílico libre y combinado menor o igual que 1 % en peso, referido a la composición.
2. Un procedimiento según la reivindicación 1, siendo seleccionados los aminoalquiltrialcoxisilanos entre compuestos de la fórmula general

$$\text{HR}^1\text{N} - \text{R}^2 - \text{Si}(\text{OR}^3)_3,$$
 en la que
 - R¹ se selecciona entre H o un grupo alquilo de C₁ - C₄;
 - R² se selecciona entre un grupo alquilo de C₁ - C₄ bivalente; y
 - R³ se selecciona entre un grupo alquilo de C₁ - C₃.
3. Un procedimiento según la reivindicación 2, siendo R¹ H.
4. Un procedimiento según una de las reivindicaciones 2 o 3, siendo R² un grupo propilo bivalente [-(CH₂)₃-] y siendo seleccionado R³ entre metilo y etilo.
5. Un procedimiento según una de las reivindicaciones 1 hasta 4, siendo seleccionado el aminoalquiltrialcoxisilano entre 3-aminopropiltriétoxissilano o 3-aminopropiltrimetoxissilano o unas mezclas de los mismos, es preferido como aminoalquiltrialcoxisilano en particular el 3-aminopropiltriétoxissilano.
6. Un procedimiento según una de las precedentes reivindicaciones, siendo el contenido de materiales sólidos en una composición acuosa preparada de esta manera, de 40 hasta 55 % en peso, en particular de 50 hasta 53 % en peso, referido a la composición.
7. Un procedimiento según una de las precedentes reivindicaciones, siendo la relación molar de agua a la cantidad total de aminoalquiltrialcoxisilano de 11 hasta 18 por 1, estando incluidas aquí las relaciones molares de 12:1, 13:1, 14:1, 15:1, 16:1, 17:1.
8. Un procedimiento según una de las precedentes reivindicaciones, siendo la duración de la adición de aminoalquiltrialcoxisilano en la etapa (b) de 20 hasta 240 minutos, de manera preferida de 30 hasta 120 minutos, de manera especialmente preferida de 35 hasta 90 minutos, de la manera más preferida de 40 hasta 60 minutos.
9. Un procedimiento según una de las precedentes reivindicaciones, siendo la temperatura interior en el reactor al comienzo de la adición de los aminoalquiltrialcoxisilanos en la etapa (b) de 25 °C hasta 50 °C, de manera preferida de 30 °C hasta 45 °C y siendo la temperatura interior en el reactor a la terminación de la adición de los aminoalquiltrialcoxisilanos en la etapa (b) de 50 °C hasta 80 °C, de manera preferida de 55 °C hasta 70 °C, de manera especialmente preferida de 55 °C hasta 65 °C.
10. Un procedimiento según una de las precedentes reivindicaciones, comenzándose con la separación por destilación del alcohol alquílico inmediatamente después de la terminación de la adición de los aminoalquiltrialcoxisilanos.
11. Un procedimiento según una de las precedentes reivindicaciones, siendo el intervalo de tiempo entre la terminación de la adición de los aminoalquiltrialcoxisilanos y el comienzo de la separación por destilación del alcohol alquílico menor que 5 minutos después de alcanzarse las preferidas condiciones de destilación, de manera preferida menor que 3 minutos, de manera especialmente preferida menor que 1 minuto.
12. Un procedimiento según una de las precedentes reivindicaciones, teniendo la solución acuosa un contenido total de alcohol alquílico menor o igual que 0,7 % en peso, referido a la composición, medido mediante cromatografía de gases después de la hidrólisis con ácido sulfúrico de una muestra de las soluciones acuosas y de la subsiguiente neutralización con una solución acuosa de carbonato de sodio.
13. Un procedimiento según una de las precedentes reivindicaciones, teniendo la solución acuosa un valor de la turbiedad de 5 FNU o menos, de manera preferida de 3 FNU o menos, de manera especialmente preferida de 2 FNU o menos, de la manera más preferida de 1 FNU o menos, medido según la norma ISO 7027.